

Eidgenössische Anstalt für  
Wasserversorgung,  
Abwasserreinigung und  
Gewässerschutz  
Umwelphysik  
Radioaktive und Chemische  
Tracer

Ueberlandstrasse 133  
CH-8600 Dübendorf  
Schweiz

Tel. +41-1-823 55 11  
Fax +41-1-823 50 28  
Telex 828 687 EAWA CH

## **ABSCHLUSSBERICHT**

# **VERHALTEN VON RADIONUKLIDEN AUS KERNKRAFTWERKEN IN AARE UND RHEIN**

**Dr. Achim Albrecht  
(Projektleiter)**

**Dr. Jürg Beer  
(Gruppenleiter, RCT)**

**Diese Studie (EPA Nr. 217.606) wurde ermöglicht durch eine finanzielle  
Unterstützung der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK)**

**Dübendorf, im Oktober 1995**



<b>Gliederung</b>	<b>Seite</b>
<b>1. Einführung in die Problematik</b>	<b>6</b>
<b>2. Abwasser</b>	<b>9</b>
<b>2.1 Radionuklidherkunft und -aktivitäten</b>	<b>9</b>
<b>2.2 Chemische Charakterisierung</b>	<b>11</b>
<b>3. Einspeisung und Vermischung</b>	<b>13</b>
<b>3.1 Radionuklidchemismus nach Einspeisung</b>	<b>13</b>
<b>3.2 Vermischung und Abflussmodellierung</b>	<b>16</b>
<b>4. Suspensierte Partikel als Transportmedium</b>	<b>22</b>
<b>4.1 Konzentration und Zusammensetzung suspendierter Partikel</b>	<b>22</b>
<b>4.2 Aktivitäten suspendierter Partikel</b>	<b>27</b>
<b>5. Sedimentation</b>	<b>28</b>
<b>5.1 Wohlensee</b>	<b>28</b>
<b>5.2 Stausee Niederried</b>	<b>29</b>
<b>5.2.1 Sedimentdatierung</b>	<b>33</b>
<b>5.2.2 <sup>60</sup>Co Budgetierung</b>	<b>34</b>
<b>5.2.3 Sedimentfallen</b>	<b>36</b>
<b>5.3 Stausee Klingnau</b>	<b>39</b>
<b>5.3.1 Korngrößen und organischer Anteil</b>	<b>42</b>
<b>5.4 Stausee Augst</b>	<b>44</b>
<b>5.4.1 Partikelgrößen und organischer Anteil</b>	<b>47</b>
<b>5.5 Bielersee</b>	<b>48</b>
<b>5.5.1 Radionuklidtransport</b>	<b>50</b>
<b>5.5.2 Radionuklide in Sedimentkernen</b>	<b>51</b>
<b>6. Allgemeines Flussmodell</b>	<b>58</b>
<b>7. Seemodell</b>	<b>60</b>

---

<b>8. Radionuklidadsorption - eine Synthese</b>	<b>62</b>
<b>Zusammenfassung</b>	<b>70</b>
<b>Literaturnachweis</b>	<b>71</b>
<b>Danksagung</b>	<b>75</b>
<b>Anhang</b>	<b>76</b>
<b>Tabellen</b>	
<b>1.1 Radionuklidabgaben kerntechnischer Einrichtungen</b>	<b>6</b>
<b>2.1 Abwasseranalyse Kernkraftwerk Mühleberg (KKM)</b>	<b>12</b>
<b>3.1.1 Radionuklidspeziierung in der Aare unterhalb des KKM</b>	<b>14</b>
<b>4.1.1 Korngrösse und organischer Anteil zentrifugierter Partikel</b>	<b>24</b>
<b>4.1.2 organischer Anteil als Funktion der Korngrösse</b>	<b>27</b>
<b>5.2.1 Partikelmineralanalysen (RFA)</b>	<b>32</b>
<b>5.2.2.1 Detailinformation zur Radionuklidbudgetierung in Sedimenten</b>	<b>36</b>
<b>5.2.3 Sedimentfallenanalyse Stausee Niederried</b>	<b>37</b>
<b>5.3.1 Sedimentfallenanalyse Stausee Klingnau</b>	<b>42</b>
<b>5.4.1 Abschätzung <math>^{137}\text{Cs}</math> -Abgaben des KKW Beznau (70er Jahre)</b>	<b>46</b>
<b>5.5.1 Gesamtbudgetierung Bielersee</b>	<b>56</b>
<b>5.5.2 Abschätzung <math>^{137}\text{Cs}</math> -Abgaben des KKW Mühleberg (70er Jahre)</b>	<b>58</b>
<b>8.1 Nuklidaktivitäten in-situ filtrierter suspendierter Partikel</b>	<b>67</b>
<b>8.2 Nuklidaktivitäten durchflusszentrifugierter suspendierter Partikel</b>	<b>67</b>
<b>Anhang</b>	
<b>A1 Daten der koordinierten Abgaben</b>	<b>76</b>
<b>(a) Mühleberg-Niederried 1.4.1993 und 17.12.1992</b>	
<b>(b) Beznau-Klingnau-Rhein 18.5.1994</b>	
<b>A2 Radionuklide in sämtlichen Sedimentkernen</b>	<b>80</b>
<b>(a) Stausee Niederried</b>	

(b) Stausee Klingnau	
(c) Stausee Augst	
(d) Bielersee	
<b>A3 Daten in-Situ Partikeltrennung</b>	<b>93</b>
<b>Abbildungen</b>	
<b>Abb. 1.1 Gesamtüberblick Schweiz inkl. Detailkarten der Arbeitsgebiete</b>	<b>7</b>
<b>Abb. 1.2 Fließdiagramm als Gliederungshilfe</b>	<b>8</b>
<b>Abb. 2.1 Abgaben der Kernkraftwerke Mühleberg und Beznau</b>	<b>10</b>
<b>Abb. 2.2 Versuchsaufbau Abwasseranalyse</b>	<b>12</b>
<b>Abb. 2.3 Anteil partikulär gebundener Radionuklide im Abwasser</b>	<b>13</b>
<b>Abb. 3.1.1 Versuchsaufbau Aarewasseranalyse</b>	<b>14</b>
<b>Abb. 3.1.2 Radionuklidspezifizierung</b>	<b>15</b>
<b>Abb. 3.2.1 Temperaturverteilung in der Aare unterhalb des KKM</b>	<b>16</b>
<b>Abb. 3.2.2 Abflusscharakterisierung der Aare unterhalb der KKW's</b>	<b>18</b>
(a) Mühleberg	
(b) Beznau	
<b>Abb. 3.2.3 Vergleich modellierter und gemessener Durchbruchkurven</b>	<b>20</b>
(a) Feldversuch 17.12.1992	
(b) Feldversuch 18.5.1994	
<b>Abb. 3.2.4 Temperatur- und Aktivitätsquerprofil der Aare bei Klingnau</b>	<b>21</b>
<b>Abb. 4.1.1 Partikel in Rohwasser und filtriertem Wasser</b>	<b>22</b>
<b>Abb. 4.1.2 Korngrößenverteilung suspendierter Partikel</b>	<b>23</b>
<b>Abb. 4.1.3 REM Aufnahme suspendierter Partikel</b>	<b>25</b>
<b>Abb. 4.1.4 Wichtige Parameter suspendierter Partikel</b>	<b>26</b>
(a) Partikelkonzentration und organischer Anteil	
(b) organischer Anteil und Korngröße	
<b>Abb. 5.1.1 <sup>137</sup>Cs Tiefenprofil im Wohlenseekern</b>	<b>29</b>

---

Abb. 5.2.1 Probenlokalisierung und Zonierung des Stausees Niederried	30
Abb. 5.2.2 Radionuklidtiefenprofile in Kernen des Stausees Niederried	31
Abb. 5.2.1.1 Sedimentkerndatierung auf der Basis von $^7\text{Be}$	35
Abb. 5.2.3.1 Radionuklide in Sedimenten aus Fallenbeprobung	38
Abb. 5.3.1 Probenlokalisierung und Zonierung des Stausees Klingnau	40
Abb. 5.3.2 Radionuklidtiefenprofile im Kern 3 des Stausees Klingnau	41
Abb. 5.3.1.1 Stickstoffkonzentration und Korngrösse (Klingnau)	44
Abb. 5.4.1 Radionuklidtiefenprofile im Kern des Stausees Augst	45
Abb. 5.4.1.1 Stickstoffkonzentration und Korngrösse (Augst)	48
Abb. 5.5.1 Bielersee: Lokalisierung, Nuklidtiefenprofile und Zonierung	49
Abb. 5.5.1.1 Dichte des Aare- und Bielerseewassers als Funktion der Zeit	51
Abb. 5.5.2.1 Radionuklidtiefenprofile im Kern Bielerseekern BS-93-01	52
Abb. 5.5.2.2 Vergleich des Radionuklidflusses in den Bielersee mit dem Radionuklidfluss in die Sedimente	54
(a) für $^{60}\text{Co}$	
(b) für $^{54}\text{Mn}$ und $^{65}\text{Zn}$	
Abb. 6.1 Flussmodell	59
Abb. 7.1 Seemodell	61
(a) Sommer	
(b) Winter	
Abb. 8.1 Massenbezogene Aktivitäten als Funktion der Korngrösse	63
Abb. 8.2 Partikelkonzentrationen als Funktion der Korngrösse	65
Abb. 8.3 Volumenbezogene Aktivitäten als Funktion der Korngrösse	66
Abb. 8.4 $^{60}\text{Co}$ -Adsorption an Partikel als Funktion der Zeit	68

## 1. Einführung in die Problematik

Seit der Entdeckung der Kernspaltung und besonders seit ihrer intensiven militärischen und energiewirtschaftlichen Nutzung existiert die Frage nach der Auswirkung von künstlich erzeugten Radionukliden auf Organismen. Die Anschlussfrage nach ihren Ausbreitungsmechanismen in der Umwelt drängte sich Anfang der 60er Jahre auf, nachdem die weltweite atmosphärische Verteilung von Bombenradioaktivität festgestellt wurde. Ende 1963 kam es dann zum Moratorium gegen weitere atmosphärische Atombombenversuche, welches lediglich von China (1981) ignoriert wurde.

Die in Tabelle 1.2 dargestellten Abgaben an das aquatische Milieu durch die Aufbereitungsanlagen Sellafield und La Hague (UNSCEAR, 1993) erlauben es, die Abgaben der Schweizer Kernkraftwerke Beznau und Mühleberg in Relation zu setzen.

Tabelle 1.1: Radionuklidabgaben bzw -herde verschiedener kerntechnischer Anlagen

Lokalität	Jahr bzw. Periode	Abgabe
Sellafield (GB) Aufbereitungsanlage	seit 1951	Mitte der 70er Jahre: $5 \times 10^{15}$ Bq/a $^{137}\text{Cs}$
La Hague (F) Aufbereitungsanlage	seit 1966	jährliche Abgabe: $2.4 \times 10^{13}$ Bq/a $^{137}\text{Cs}$ , $^{90}\text{Sr}$
KKW Mühleberg	1971-1994	$3.5 \times 10^{11}$ Bq $^{137}\text{Cs}$ $4.3 \times 10^{11}$ Bq $^{60}\text{Co}$
KKW Beznau	1982-Mai 1995	$8.5 \times 10^{10}$ Bq $^{137}\text{Cs}$ $3.9 \times 10^{11}$ Bq $^{60}\text{Co}$

Die EAWAG fasste zusammen mit der HSK den Entschluss, die vergleichsweise geringen Radionuklidaktivitäten, die von den schweizer Kernkraftwerken an das aquatische System abgegeben werden, im Detail zu studieren. Zum einen sollte diese Studie  $^{58}\text{Co}$  und  $^{60}\text{Co}$  Aktivitäten, wie sie in Rheinsedimenten im Bereich Deutschlands detektiert wurden (Mundschenk 1991), erklären, zum anderen das Verständnis über Radionuklidtransport, -adsorption und -sedimentation in aquatischen Systemen erweitern.

Die vier Schweizer Kernkraftwerke Mühleberg, Gösgen, Beznau und Leibstadt liegen im Flussverlauf von Aare und Rhein (Abb. 1.1). Die von ihnen abgegebenen Abwässer enthalten unter anderen die Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ . Diese werden von Aare und Rhein transportiert und erreichen, falls sie nicht durch Adsorption und Sedimentation dem fließenden System entzogen werden, die deutsch-schweizerische Grenze bei Basel. Ein Hauptinteresse dieser Studie stellte die Ermittlung des exportierten und des im Bereich der Schweiz abgelagerten Radionuklidanteils dar. Zu diesem Zweck war es nötig, die Prozesse des aquatischen Metalltransports zu beschreiben und wenn möglich zu quantifizieren.

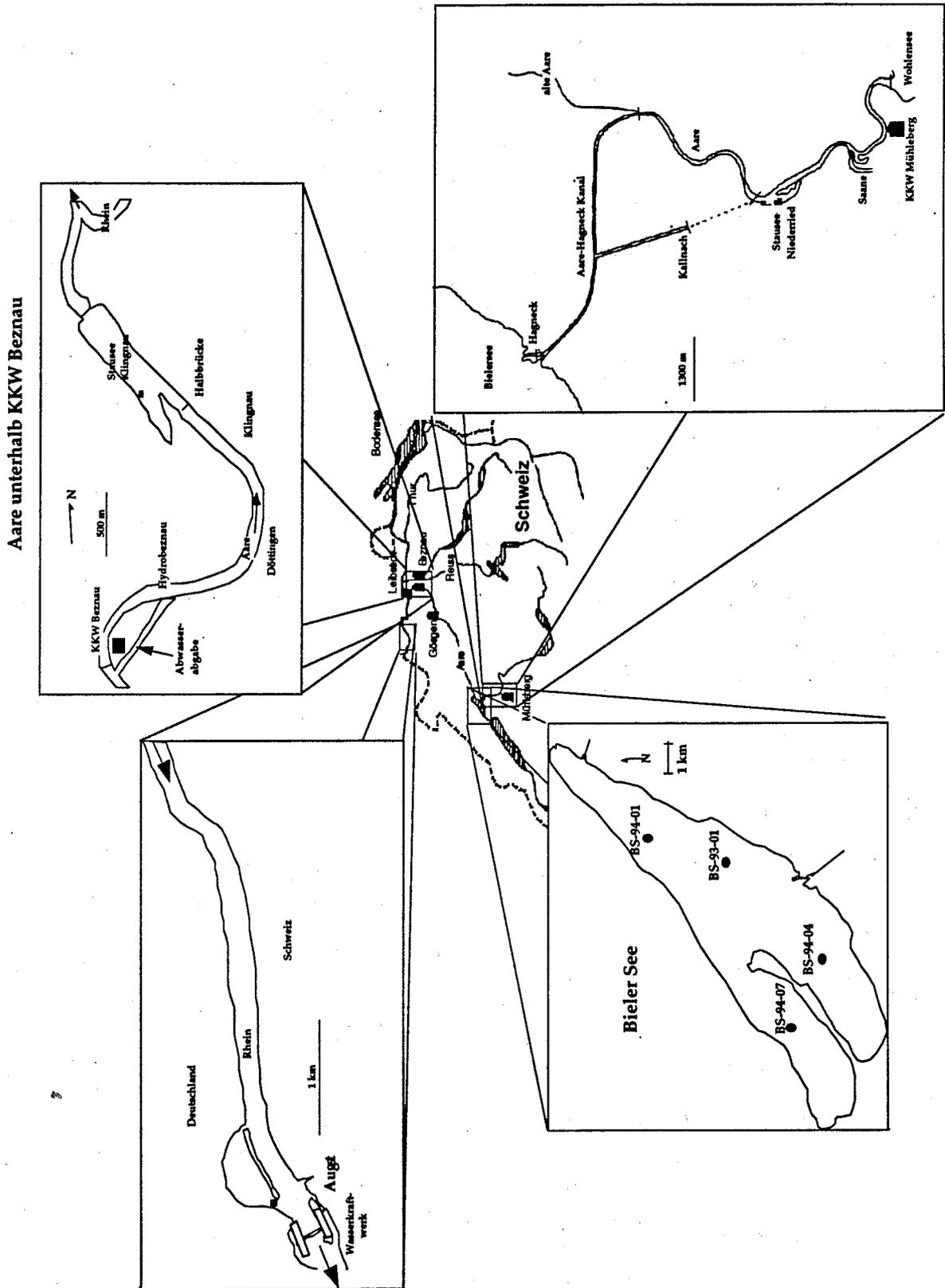


Abb. 1.1 : Die Schweiz, ihre 5 Kernreaktorblöcke und die Hauptarbeitsgebiete der vorliegenden Studie.

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Wie aus der Lokalitätsskizze (Abb. 1.1) entnommen werden kann, ist die Diversität der betroffenen aquatischen Systeme vielfältig. Sie kann grob in drei Abschnitte eingeteilt werden.

- (1) Aare und Saane zwischen Wohlensee und Bielersee
- (2) Bielersee
- (3) Aare und Rhein zwischen Bielersee und der Schweizer Grenze

Diese Abschnitte unterscheiden sich besonders durch die Art und Konzentration der suspendierten Partikel. Im 1. Abschnitt kommt es im Nebenfluss der Saane (Sense) zu natürlicher Erosion und demzufolge zu periodisch hohem Transport grobkörniger, anorganischer Partikel. Im Bielersee, dem 2. Gebietsabschnitt, spielen sowohl die von der Aare transportierten Partikel wie auch die im See gebildeten organischen und anorganischen Partikel eine Rolle. Größere anorganische Partikel gelangen im See grösstenteils zur Ablagerung. Im Bielersee findet man die für Schweizer Mittellandseen typischen saisonal bedingten seephysikalischen Eigenschaften, wie eine stabile Sommerschichtung und eine im Winter einsetzende Gesamtzirkulation. Weiter flussabwärts, im 3. Abschnitt sind Aare und Rhein von organischen bzw. feinstkörnigen, anorganischen suspendierten Partikeln dominiert. Die Flussabschnitte sind hauptsächlich durch die im fließenden aquatischen Milieu feststellbaren Inhomogenitäten und zeitlich extremen Variationen gekennzeichnet.

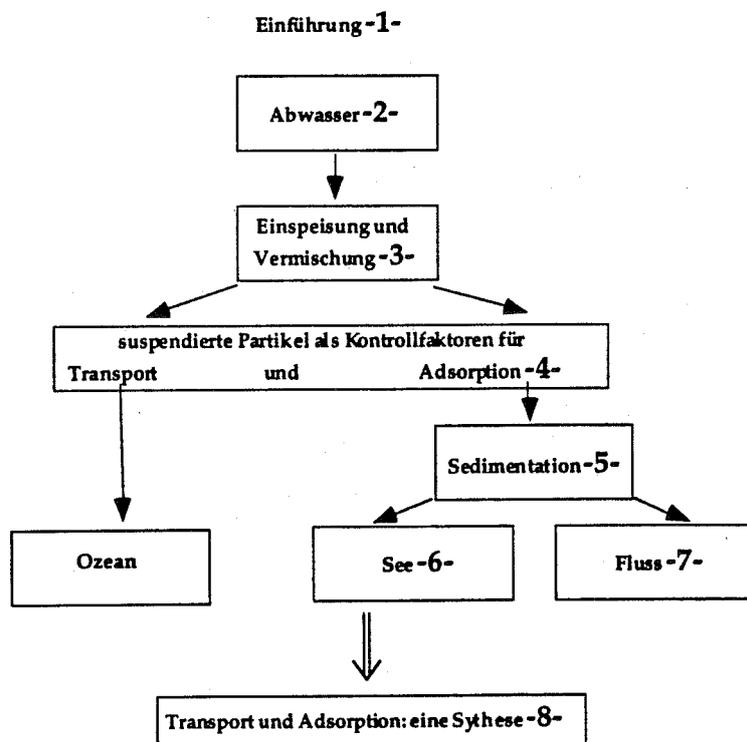


Abb. 1.2 : Fließdiagramm zur Darstellung der Prozesse, die das Radionuklidverhalten im oberflächenaquatischen Milieu beeinflussen (Ziffern dienen der Gliederung des Berichtes und beziehen sich auf die einzelnen Kapitel dieses Berichtes).

Das in Abb. 1.2 dargestellte Fließdiagramm bezieht sich in erster Linie auf Radiokobalt, welches zusammen mit  $^{137}\text{Cs}$  den Hauptanteil der an das aquatische System abgegebenen Radioaktivität darstellt. Kobalt soll in dieser Arbeit das Hauptaugenmerk erhalten, da Interpretationen von  $^{137}\text{Cs}$  oft durch die Aktivitätsbeiträge der Atombombenversuche und des Tschernobylunfalls erschwert sind. Radiocaesium,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ , wie auch natürliche Radionuklide sind dann mit eingebaut worden, wenn die gemessenen Aktivitäten eine Interpretation zulassen und die Ergebnisse zum Gesamtverständnis beitragen.

Die in Abbildung 1.2 verwandte Boxeneinteilung findet sich ebenfalls in der Gliederung dieses Berichtes wieder. Eine erste Box nimmt Bezug auf das von den KKW's abgegebene Abwasser. Hier spielen die Aktivitäten der verschiedenen Radionuklide als Funktion der Zeit und ihrer chemischen Form eine Rolle. Die Prozesse der Flusseinspeisung und Vermischung laufen parallel. Hierbei können aquatische Durchmischungsmodelle, sowie chemische Analyse der vorliegenden Radionuklide Auskunft geben über die Details der Abwasser-Flusswasser Durchmischungskinetik. Die weitere Bestimmung der Radionuklide hängt davon ab, ob sie sich an Partikel anlagern (Adsorption) oder in Lösung bleiben und so weiter Richtung Ozean transportiert werden (Transport in Lösung). Die auf dem Scheideweg Lösung-Adsorption wichtigen Prozesse basieren auf geologischen, physikalischen, chemischen und biologischen Grundlagen und müssen von daher multidisziplinär erarbeitet und erörtert werden. Die Möglichkeit des Weitertransports adsorptiv gebundener Radionuklide hängt vom hydraulischen Milieu, der Korngrösse der Transportpartikel und dem Partikelwachstum (Koagulation) ab. Die an gröbere Partikel gebundenen Radionuklide können dem fließenden aquatischen Milieu durch Sedimentation entzogen werden, ein Vorgang, der im See, wie auch in Ruhezonen im Fluss (Todärme, Staudämme, Hafenbecken) abläuft (Mundschenk und Tolksdorf, 1988).

Unter Heranziehung des Fließmodells (Abb. 1.2) kann die Aufgabe des hier beschriebenen Forschungsprojektes als eine Beschreibung und wenn möglich Quantifizierung der in den verschiedenen Boxen ablaufenden Vorgänge und deren Verbindungen zusammengefasst werden.

## **2. Abwasser**

### 2.1 Radionuklidherkunft und -aktivitäten

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich vorwiegend mit den flüssigen Abgaben der flussgekühlten Kernkraftwerke Beznau (Druckwasserreaktor; Inbetriebnahme 1969 -KKB I- bzw. 1971 KKB II) und Mühleberg (Siedewasserreaktor; Inbetriebnahme 1971). Die neueren Kernanlagen Gösgen (Druckwasserreaktor, Inbetriebnahme 1979) und Leibstadt (Siedewasserreaktor, Inbetriebnahme 1984) sind neueren Designs,

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Abwasserabgaben sind daher geringer. Zusätzlich wird ein Grossteil der flüssigen Abwässer durch Evaporation aufkonzentriert und anderweitig als radioaktiver Abfall entsorgt. Von den im Werk produzierten Radionukliden sollen die Metalle näher analysiert werden ( $^{137,134}\text{Cs}$ ,  $^{60,58}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  und  $^{54}\text{Mn}$ ). Diese entstehen durch Neutronenaktivierung ( $^{60,58}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  und  $^{54}\text{Mn}$ ) oder sind Produkte der  $^{235}\text{U}$  Kernspaltung ( $^{134,137}\text{Cs}$ ). Während Reinigungsarbeiten, Revisionen und durch Leckagen u. ä. gelangen die im Primärkreislauf durch Korrosionsvorgänge wässrig gelösten Radionuklide in dafür vorgesehene Auffangbecken und Tanks. Hier wird mittels chemischer (Harzfilter) und physikalischer (Zentrifugierung) Methoden die Radionuklidaktivität reduziert. Nach chemischer und radiologischer Kontrolle werden diese kontrolliert an den Vorfluter Aare bzw. Rhein (KKW Leibstadt) abgegeben. Monatliche Abgaben der Kernkraftwerke variieren sowohl in der Gesamtaktivität, als auch im Verhältnis der Radionuklide zueinander (Abb. 2.1). Der für die KKW's Mühleberg und Beznau typische Anstieg der Abgaben während der Sommermonate hängt mit den Revisionen und den damit zusammenhängenden Reinigungsarbeiten zusammen.

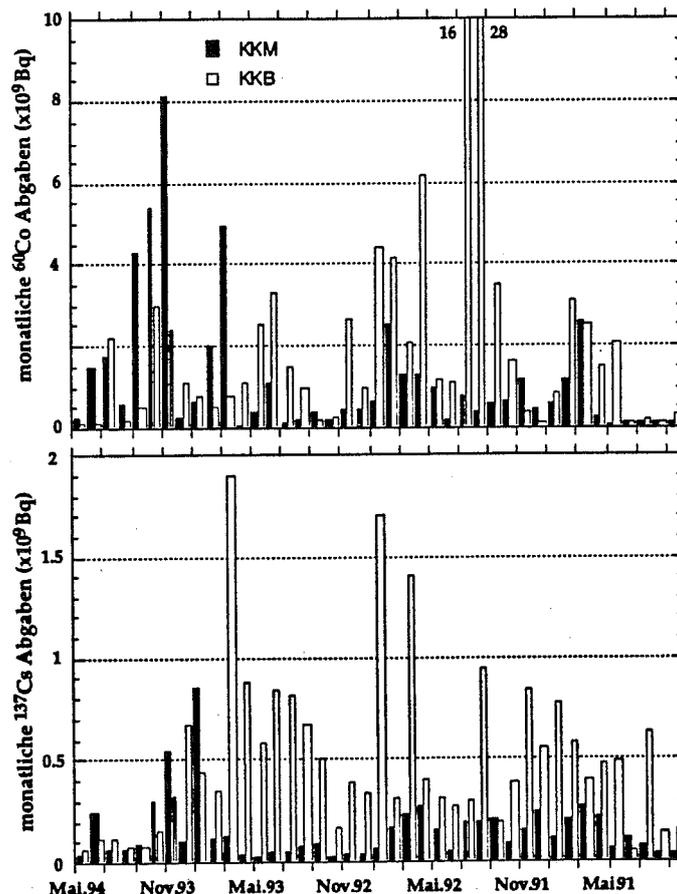


Abb. 2.1 : Monatliche Radionuklidabgaben der Kernkraftwerke Mühleberg (schwarz gefüllte Balken) und Beznau (weisse Balken) für den Zeitraum Januar 1991 bis Mai 1994. Die Abgaben der KKW's Leibstadt und Gösgen liegen z.T. um Faktoren  $>10$  niedriger.

## 2.2 Chemische Charakterisierung

Eine chemische Charakterisierung von Kobaltradionukliden in Kernkraftwerksabwässern führten Leonard et al. (1993) am Beispiel der englischen Atomanlage Winfrith durch. Obwohl von Abgabe zu Abgabe sehr starke Variationen auftraten, konnte eine wichtige generalisierende Aussage gemacht werden. Radiokobalt liegt sowohl in ionisch zweiwertig-gelöster Form vor, wie auch dreiwertig neutral komplexiert. Komplexierung und Reduktion beruhen auf dem Einsatz einer Lösung, die nebst reduzierender Metallionen ebenfalls Chelatliganden aufweist. Der Anteil des im Abwasser ionisch auftretenden Radiokobalt kann mittels Ni- oder Fe-Hydroxidfällung ermittelt werden, da das kationisch zweiwertige Kobalt quantitativ kopräzipitiert, das dreiwertig neutral komplexierte hingegen nicht. Je nach Anwendung der komplexierenden Lösung im KKW, stellten Leonard et al. (1993) zwischen 6 und 75% Co(III) im Abwasser fest, welches im Kontakt mit Meerwasser eine gewisse Stabilität beibehält.

Eine Abwasseranalytik wurde im Zuge dieser Studie nur für das Abwasser des KKW Mühleberg vom 25.1.94 durchgeführt (Fischer, 1994). Da im KKM keine komplexierenden oder reduzierenden Lösungen zum Einsatz kommen, konnte auf eine Analyse verschiedener Oxidationsstufen verzichtet werden. Die thermodynamisch stabilere, zweiwertige Form kann als gegeben bezeichnet werden. Dieses Co(II) kann jedoch in verschiedenen Ladungszuständen vorliegen (Ferrer, 1983). Neben dem kationisch vorliegenden Teil können durch Reaktion mit organischen Liganden negative Co-Organokomplexe entstehen. Neben der Ermittlung dieser negativen Komplexe im Abwasser sollten in Vorversuchen ebenfalls partikuläre und gelöste Anteile bestimmt werden. Der Versuchsaufbau ist in Abb. 2.2 skizziert. Das Abwasser vom 25.1.94 wurde zuerst mittels Nucleopore® Filter von Partikeln grösser 0.45 µm getrennt. Die partikulär gebundenen Anteile von  $^{60}\text{Co}$ , wie auch  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{137}\text{Cs}$ , wurden aufgrund von  $\gamma$ -spektrometrischen Analysen vor und nach der Filtration berechnet. In einem zweiten Schritt wurden Kationen- (BioRad AG® 1-X8, 60-170 mesh) und Anionentauschersäulen (BioRad DOWEX® 50W-X8, 80-140 mesh) mit filtriertem Abwasser beschickt. In diesem Fall konnte das Harz direkt  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen werden. Eine erste Abwasserbearbeitung fand am 3.2.94, also 9 Tage nach der Abwasserabgabe statt (Tab. 2.1), zwei weitere folgten am 8.2.94 und 15.2.94. Von Interesse ist besonders die Zunahme der partikulär gebundenen Übergangsmetalle  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  bei gleichzeitig stabilem Anteil von  $^{137}\text{Cs}$  (Abb. 2.3). So stieg der partikulär gebundene Anteil des  $^{60}\text{Co}$  von 23 % bis auf 76 %. Unter Benutzung dieses Trends kann eine Interpolation zum 25.1.94 vorgenommen werden und eine Abschätzung des partikulär gebundenen Anteils auf mehr oder weniger Null während der Abgabe vorgenommen werden.

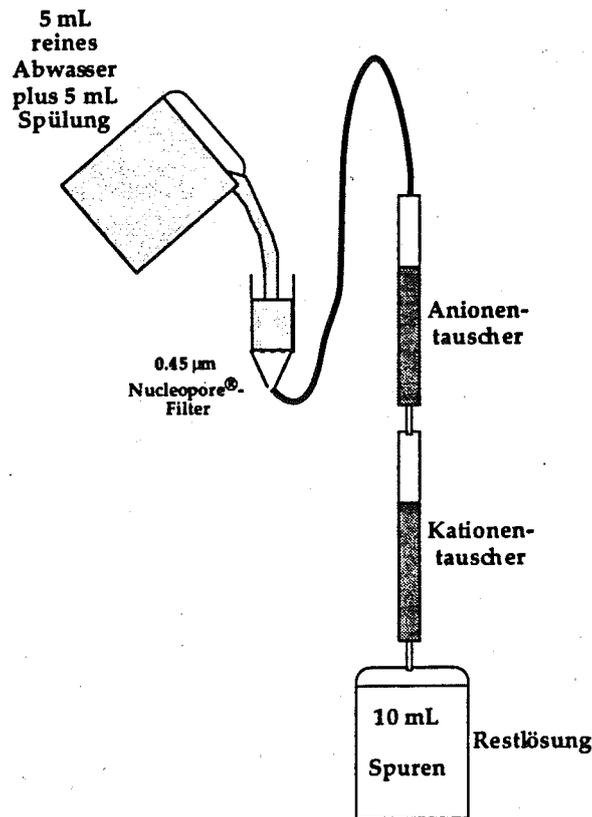


Abb. 2.2 : Versuchsaufbau zur Bestimmung des partikulär gebundenen und anionisch bzw. kationisch gelösten Anteils von Radionukliden aus reinen Abwasserproben.

Tab. 2.1 : Ergebnisse der Analyse des reinen Abwassers des KKW Mühleberg vom 25.1.94.

	rohes Abwasser		Abwasser Anteil			Kationentauscher			Anionentauscher			Eluat	
	Bq/ Probe	2 $\sigma$ (%)	Bq/ Probe	2 $\sigma$ (%)	partikulär (%)	Bq/ Probe	Anteil (%)	2 $\sigma$ (%)	Bq/ Probe	Anteil (%)	2 $\sigma$ (%)	Bq/ Probe	2 $\sigma$ (%)
Test 1	3.2.94												
<sup>54</sup> Mn	1.5	39	1.7	16	0	1.7	95	7	<NWG			<NWG	
<sup>60</sup> Co	173.7	4	133.9	4	23	134.6	101	4	0.9	1	10	0.3	14
<sup>65</sup> Zn	36.9	9	12.7	8	65	12.8	101	6	0.4	3	28	0.1	67
<sup>137</sup> Cs	4.5	13	3.1	9	32	3.0	97	6	<NWG			<NWG	
Test 2	8.2.94												
<sup>54</sup> Mn	1.0	8	0.9	8	11								
<sup>60</sup> Co	83.0	4	46.6	4	44								
<sup>65</sup> Zn	14.7	6	1.3	11	91								
<sup>137</sup> Cs	2.4	55	1.7	6	29								
Test 3	15.2.94												
<sup>54</sup> Mn	1.4	7	0.7	12	45								
<sup>60</sup> Co	91.5	4	21.7	4	76								
<sup>65</sup> Zn	18.5	6	<NWG		100								
<sup>137</sup> Cs	3.2	5	2.1	7	36								

Die Abnahme von <sup>60</sup>Co im Rohwasser im Laufe der Zeit zeigt deutlich ein methodisches Problem des Vorversuchs. Ein solcher Verlust kann nur durch Adsorption an Probenbehälterwände gedeutet werden. Es ist von Interesse, dass vom Gesamt-<sup>137</sup>Cs

während der Testphase stabil etwa 30% partikulär gebunden ist. Dieser Unterschied im Adsorptionsverhalten basiert auf unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der Übergangsmetalle im Vergleich zum Alkalimetall Caesium. Wegen der Adsorption von Radionukliden im Abwasser und der damit verbundenen Abnahme des gelösten Anteils, sind in Tab. 2.1 lediglich die Ionentauscherergebnisse vom 3.2.94 angegeben. Die Ergebnisse lassen sich leicht zusammenfassen, da sowohl die Übergangsmetalle  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  wie auch  $^{137}\text{Cs}$  in gelöster Form kationisch vorliegen. Spuren von  $^{60}\text{Co}$  (1%) und  $^{65}\text{Zn}$  (3%) auf dem Anionentauscher bzw. im Restwasser (< 1%) sind nicht von Bedeutung.

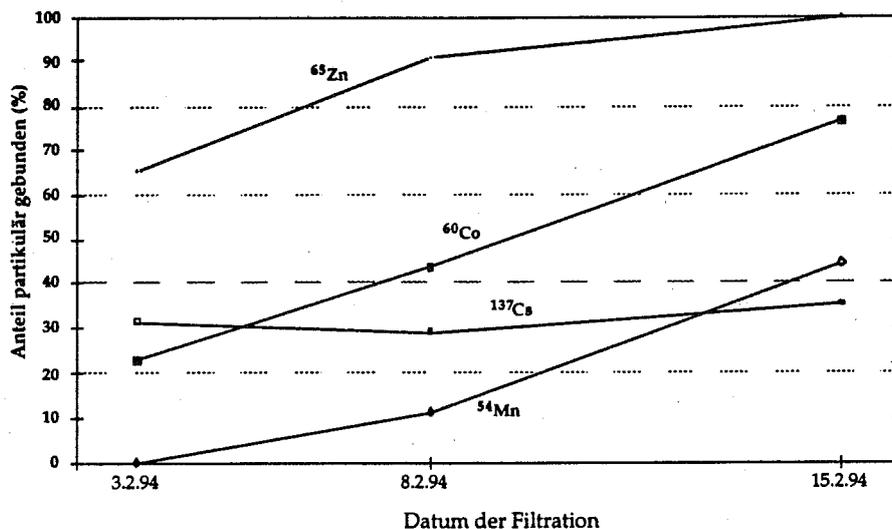


Abb. 2.3 : Zeitliche Entwicklung des partikulär gebundenen Radionuklidanteils einer Probe des KKW Mühleberg Abwassers vom 25.1.1994. Bei den Übergangsmetallen Co, Zn und Mn ist ein Trend zur Zunahme des partikulär gebundenen Anteils deutlich, ein Phänomen, dass das Alkalimetall Cs nicht aufweist.

### 3. Einspeisung und Vermischung

#### 3.1 Radionuklidchemismus nach Einspeisung

Diese Analyse wurde im Verlauf der vorliegenden Studie auf die Radionuklidabgabe vom 25.1.94 unterhalb des KKW Mühleberg beschränkt.

Aufgrund der starken Verdünnung des Abwassers mit Flusswasser konnten bei der Ermittlung der chemischen Form lediglich die Hauptradionuklide  $^{60}\text{Co}$  und  $^{65}\text{Zn}$  betrachtet werden. Im Lageplan (Abb. 3.2.1) sind die Lokalitäten der Abwassereinleitung wie auch der Probenahmestellen eingezeichnet. Die Wasserproben wurden 'in situ' von Partikeln >  $1\mu\text{m}$  und im Labor (Abb. 3.1.1) von Partikeln >  $0.2\mu\text{m}$  getrennt. Die Gesamtaktivitäten an beiden Probenahmestellen wurden mittels Parallelproben bestimmt und betragen an Stelle 1 für  $^{60}\text{Co}$  5.9 und für  $^{65}\text{Zn}$  0.74

Bq/Probe und an Stelle 2 jeweils 13 und 1.8 Bq/Probe. Da der Quotient  $^{60}\text{Co}/^{65}\text{Zn}$  vergleichbar ist (8.0 respektive 7.1), basieren die Unterschiede auf Inhomogenitäten im Fluss (siehe Abschnitt 3.2). Das Filtrat lief dann über eine Serie von Säulen, die mit Anionen- und Kationentauscherharz (siehe Abschnitt 2.2) und Aktivkohle gefüllt waren. Dieser Versuch wurde für jede Lokalität (je 25L) an zwei verschiedenen Tagen durchgeführt (Tab. 3.1.1). Obwohl die Wasserproben im Feld gut durchmischt und in einem abgedunkelten 4°C Raum gelagert wurden, findet man eine zeitlich abhängige Entwicklung, die besonders durch zunehmende Radionuklidverluste charakterisiert ist.

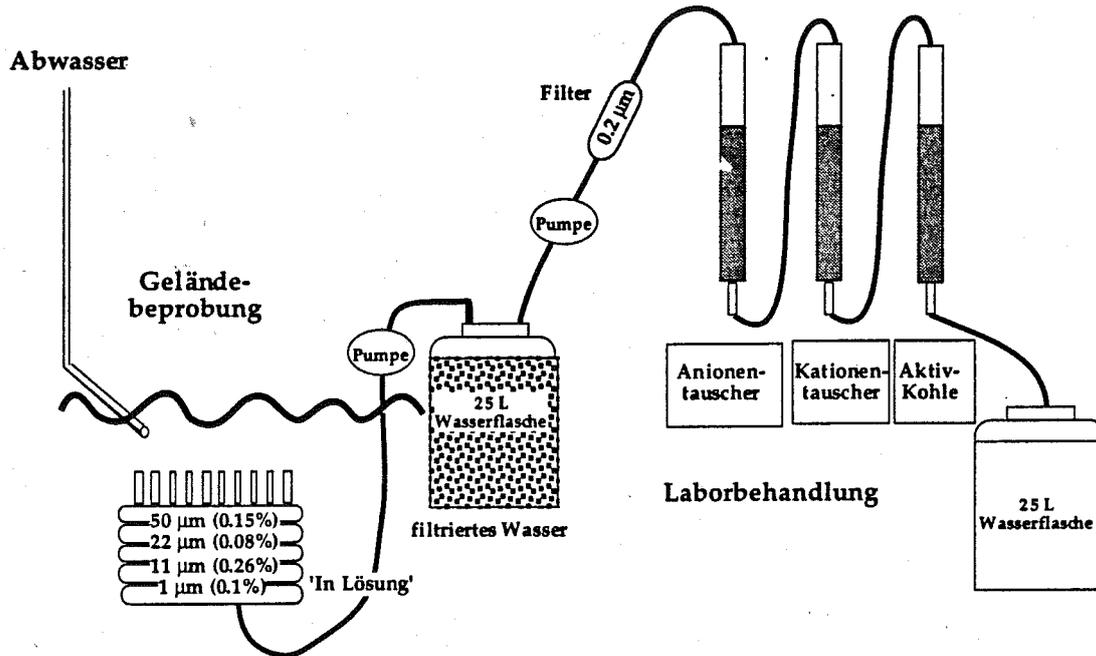


Abb. 3.1.1 : Versuchsaufbau (Gelände und Labor) zur Bestimmung des partikulär gebundenen und anionisch, kationisch, bzw. neutral gelösten Anteils von Abwasserradionukliden nach Kontakt mit Aarewasser.

Tab. 3.1.1 : Ergebnisse der Filtrations- und Säulentests an Abwasser/Aarewassergemisch unterhalb des KKW Mühleberg während der Abgabe vom 25.1.94

	partikulär 1 bis 0.2 µm			Anionentauscher			Kationentauscher			Eluat			Verlust
	Bq/ Probe (%)	2 σ (%)	Anteil (%)	Bq/ Probe (%)	2 σ (%)	Anteil (%)	Bq/ Probe (%)	2 σ (%)	Anteil (%)	Bq/ Probe (%)	2 σ (%)	Anteil (%)	Anteil (%)
Lokalität 1: $^{60}\text{Co}_{\text{gesamt}} = 5.9 \text{ Bq/Probe}$													
28.1.94 $^{65}\text{Zn}_{\text{gesamt}} = 0.7 \text{ Bq/Probe}$													
$^{60}\text{Co}$	0.12	9	2	2.3	6	39	2.2	7	38	< NWG		0	21
$^{65}\text{Zn}$	0.13	16	18	0.10	60	14	0.27	57	36	0.01	64	1	31
2.2.94													
$^{60}\text{Co}$	0.17	10	3	3.4	6	57	1.0	10	17	0.01	36	0	23
Lokalität 2: $^{60}\text{Co}_{\text{gesamt}} = 13.0 \text{ Bq/Probe}$													
8.2.94 $^{65}\text{Zn}_{\text{gesamt}} = 1.8 \text{ Bq/Probe}$													
$^{60}\text{Co}$	1.3	5	10	4.3	5	33	1.1	7	8	0.24	59	2	47
15.2.94													
$^{60}\text{Co}$	1.7	4	13	2.3	6	17	1.9	6	15	0.001	17	0	55

Die Verluste berechnen sich durch die Differenz der in verschiedenen chemischen Formen gemessenen Radionuklide (partikulär, kationisch und anionisch) und der an einer Zusatzprobe bestimmten Gesamtaktivität (Tab. 3.1.1 ). Für  $^{60}\text{Co}$  betragen diese Verluste am 28.1.94 (nach 3 Tagen) bereits 21% und nahmen bis zum 15.2.94 bis auf 55% zu. Es wird angenommen, dass diese Verluste durch Adsorption an die Wände der Probenbehälter zu erklären sind.

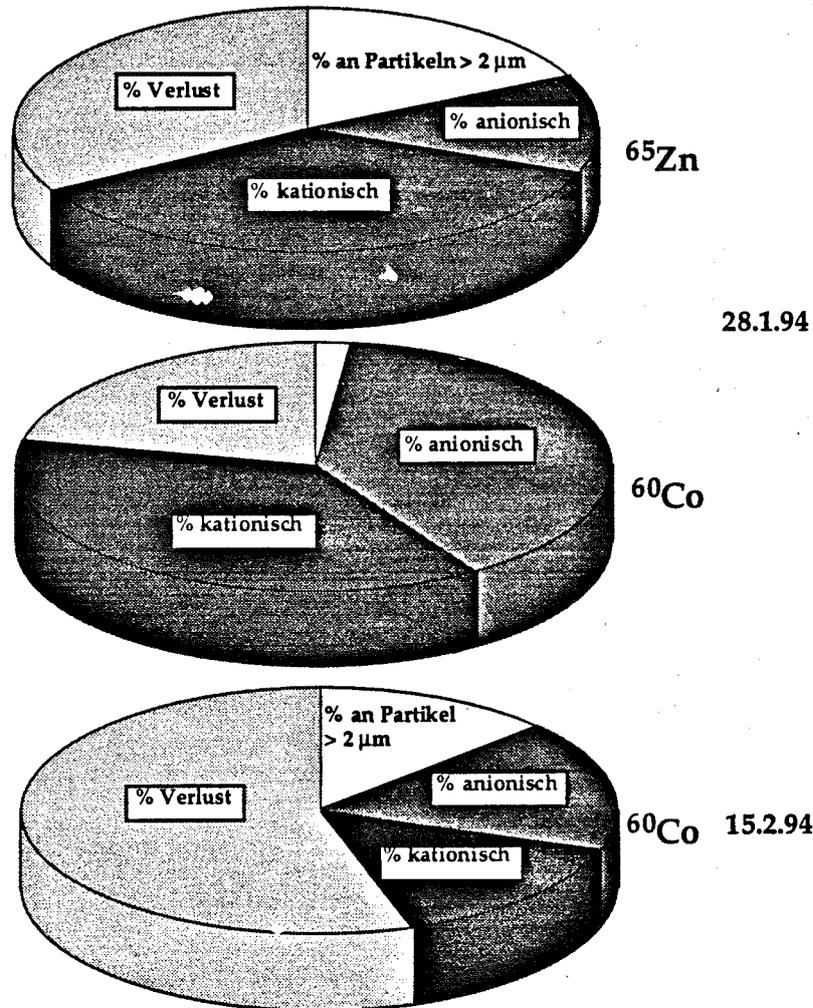


Abb. 3.1.2 : Anteil partikulär gebundener und kationisch bzw. anionisch gelöster Radionuklide in der Aare. Der Verlustanteil, der vom 28.1.94 bis zum 15.2.94 markant zunimmt, berechnet sich als die Differenz zwischen der Gesamtaktivität und der Summe der Einzelkomponenten. Dabei handelt es sich hauptsächlich um Radionuklide, die an Behälterwandungen adsorbierten.

Trotz dieser Komplikationen erlaubt dieser Versuch, eine wichtige chemische Veränderung der Radionuklide im Kontakt mit Aarewasser zu studieren. Wie die Versuche am reinen Abwasser zeigten (Kapitel 2), liegen die gelösten Radionuklide in kationischer Form vor. Nach Kontakt mit Aarewasser liegen 39% des  $^{60}\text{Co}$  und 14% des  $^{65}\text{Zn}$  in anionischer Form vor (Abb. 3.1.2 ). Obwohl diese Komplexe nicht genauer untersucht wurden, nehmen wir an, dass es sich dabei um Huminstoffe handelt. Die

negative Komplexierung von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{65}\text{Zn}$  ist ein Ergebnis der Adsorption an Huminstoffe (Leonard et al., 1994).

### 3.2 Vermischung und Abflussmodellierung

Die Phänomene der Vermischung von radioaktiven Abwässern mit Flusswasser können am Beispiel des KKW Mühleberg sehr deutlich illustriert werden. Da Kühlwasser und Abwasser an der gleichen Lokalität in den Fluss eingespiesen werden, können Flusstemperaturmessungen herangezogen werden um die Durchmischung als Funktion der Lokalität zu evaluieren. Die Ergebnisse einer solchen Studie sind in Abb. 3.2.1 dargestellt.

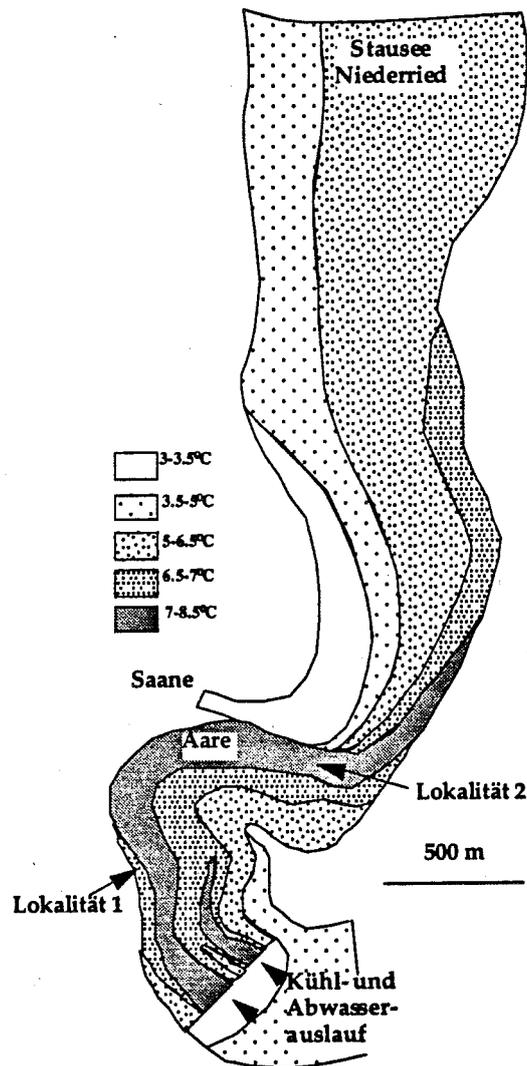


Abb. 3.2.1 : Variation der Wasseroberflächentemperatur der Aare zwischen dem Kühlwasserauslauf und dem Zentralbereich des Niederrieder Stausees basierend auf Messungen vom 17.2.1992 (AQUARIUS, 1992). Diese Darstellung verdeutlicht die unvollständige Durchmischung von Warmwasserfahne und Aare bis zur Saanemündung und von Saane und Aare bis in den Stausee Niederried. Die Lokalitäten beziehen sich auf Speziierungsversuche (Abschnitt 3.1)

In diesem Fall handelt es sich um Wasseroberflächentemperaturen vom 17.2.1992 zwischen dem Kernkraftwerk und dem Stausee Niederried (AQUARIUS, 1992). Im Bereich der Kühlwasseraustrittszonen herrschten Temperaturen von 8-8.5 °C. Die rechtsseitige Temperaturfahne vermischt sich relativ schnell mit Aarewasser, hingegen ist die linksseitige noch bis in den Bereich der Saanemündung deutlich auszumachen. Unterhalb der Saanemündung teilt sich der Fluss in eine saanedominierte linksseitige und eine aaredominierte rechtsseitige Hälfte. Die Partikelkonzentration der Saane (verursacht durch den Nebenfluss Sense) ist deutlich höher als diejenige der Aare, da im Wohlensee (Abb. 1.1) eine natürliche Filtration stattfindet. Deshalb findet man in der Zone zwischen der Saanemündung und dem Stauwehr bei Niederried einen deutlichen Temperatur- wie auch Partikelkonzentrationsgradienten quer zur Strömungsrichtung. Nach der Turbinierung im Wasserkraftwerk Niederried ist eine völlige Durchmischung gewährleistet.

Zur Modellierung des aquatischen Radionuklidtransports benutzten wir das Programm AQUASIM (Reichert, 1994a; b), das zur Simulation und Datenanalyse aquatischer Systeme entwickelt wurde. Das Programm AQUASIM erlaubt es, einen Flussabschnitt aus vorgegebenen Kompartimenten zusammensetzen, und diese durch advective oder diffusive Verbindungen zu verknüpfen. In den Kompartimenten können beliebige Umwandlungsprozesse für beliebige Substanzen definiert werden. Es können sowohl dynamische Prozesse (z.B. Sedimentation) als auch Gleichgewichtsreaktionen (z.B. Adsorptionsprozesse) spezifiziert werden. Zusätzlich zur Modelldefinition können auch gemessene Daten eingelesen werden. Auf das derart eingegebene System können die folgenden Methoden angewandt werden:

- Es können Simulationen der Zeitentwicklung des Systems durchgeführt werden.
- Mit Hilfe von Sensitivitätsanalysen kann die Bestimmbarkeit von Modellparametern (Größen, deren Wert indirekt aus Messungen bestimmt werden muss) beurteilt werden.
- Eingelesene Messdaten können dazu benutzt werden, optimale Parameterwerte für das Modell automatisch schätzen zu lassen. Dabei können mehrere Experimente mit universellen und von Experiment zu Experiment ändernden Parametern zu einer Berechnung vereinigt werden.
- Aus der Unsicherheit von Modellparametern und Daten kann die Unsicherheit von berechneten Resultaten (für das als sicher angenommene Modell) geschätzt werden.

Abflussmodellierungen wurden jeweils für die Flussabschnitte unterhalb der Kernkraftwerke Mühleberg und Beznau durchgeführt. Dafür wurden Daten über

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

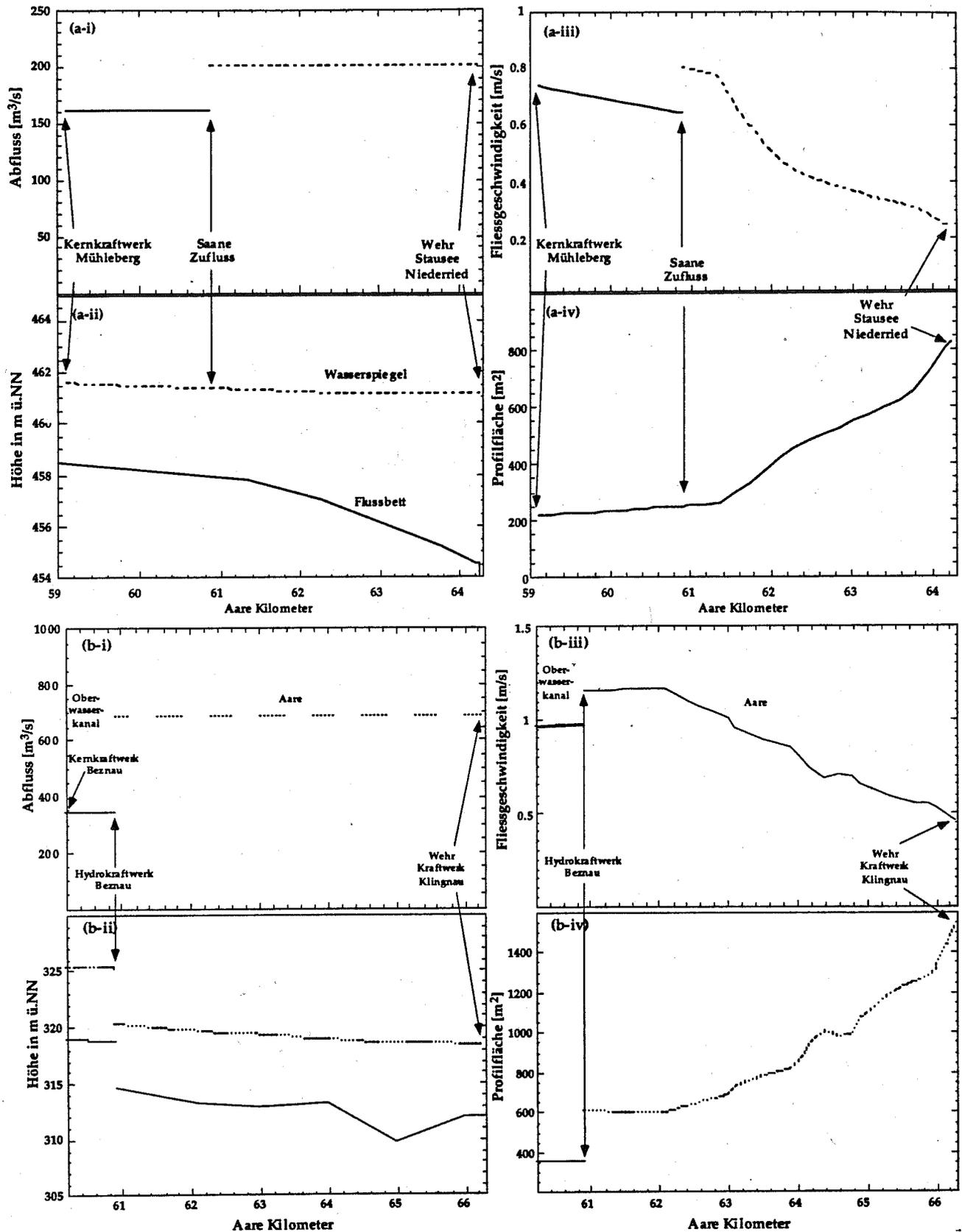


Abb. 3.2.2 : Abflussrate (i), Flussbett- und Wasserspiegelniveau (ii), Fließgeschwindigkeit (iii) und Querprofilfläche (iv) für Aareabschnitte unterhalb der Kernkraftwerke Mühleberg (a; Simulation der Situation von 17.12.92) und Bezau (b; 18.5.94).

Flussgeometrie, Reibungskoeffizient, Staukoten, Abflussmengen erhoben und in das Modell eingebaut (Abb. 3.2.2). Längsprofile hydraulischer Variablen für beide Flussabschnitte für die Abflusssituation vom 17.12.92 (unterhalb Mühleberg Abb. 3.2.2 a) und vom 18.5.94 (unterhalb Beznau Abb. 3.2.2 b) zeigen die wichtigsten Parameter und Variablen. In Abb. 3.2.2 a erkennt man die Zunahme des Aareabflusses unterhalb Mühleberg beim Zufluss der Saane ( $40 \text{ m}^3/\text{s}$  - i). Wegen der Bedeutung des Rückstaus oberhalb des Wehrs bleibt das Oberflächenniveau nahezu konstant (ii), berechnete Fliessgeschwindigkeiten sind demzufolge unabhängig von geschätzten Reibungskoeffizienten. Dies bedingt eine geringe Unsicherheit bezüglich der prognostizierten Abfluss- und Transportzeiten. Wegen der flussabwärts zunehmenden Wassertiefe nimmt die Durchschnittsflussgeschwindigkeit ab (mit Ausnahme des Saanezuflusses -iii) und die Querprofilfläche zu (iv). Die Abwässer des Kernkraftwerks Beznau werden im Bereich des Oberwasserkanals eingeleitet (Abb. 3.2.2 b, Abb. 1.1), wo die maximale Abflussmenge  $345 \text{ m}^3/\text{s}$  beträgt (i). Dies ist bedingt durch das hydraulische Kraftwerk Beznau, welches die Fallhöhe von  $\sim 5\text{m}$  ausnutzt (ii). Unterhalb des Wasserkraftwerks vereinigen sich Kanal und Aare wieder und es kommt zu einem Anstieg im Abfluss, der sich auf die Fliessgeschwindigkeit auswirkt, die auf einer Fliessstrecke von 1 km unterhalb des Kraftwerks ein Maximum erreicht (iii). Die Zunahme der Profilfläche (iv) deutet den Beginn des Stausees Klingnau an. Ähnlich wie in Niederried zeigt sich die Bedeutung des Rückstaus oberhalb des Stausees durch ein nahezu konstantes Oberflächenniveau (ii). Die berechneten Fliessgeschwindigkeiten sind demzufolge unabhängig von geschätzten Reibungskoeffizienten.

Zur Modellvaliditätskontrolle wurden mit den Kernkraftwerken Mühleberg und Beznau koordinierte Abwasserabgaben durchgeführt. Für die an diesen Tagen herrschenden Abflussregime wurden Durchbruchkurven (im besonderen  $^{60}\text{Co}$ ) für verschiedene flussabwärts gelegene Orte berechnet. Intervallprobenahmen an diesen Lokalitäten und Messung der Gesamtaktivitäten erlauben einen direkten Vergleich zwischen Modell und Realität. Für den Abschnitt unterhalb Mühleberg wurden zwei solche Versuche durchgeführt (Abb. 3.2.3), der erste am 17.12.92 bis zum Stauwehr von Niederried, der zweite am 1.4.93 bis in den Bielersee (Abb. 3.2.3 a). Unterhalb Beznau wurde am 18.5.95 eine Messung organisiert (Abb. 3.2.3 b), die den radioaktiven Flussabschnitt bis zur Aaremündung verfolgte.

Die Resultate sind im Anhang zusammengefasst (Tab. A1). Am 17.12.92 wurde im Bereich des Niederrieder Stauwehrs eine kontinuierliche Beprobung lediglich an der saanedominierten, linken Seite durchgeführt (Albrecht et al., 1995). Nur eine Probe entstammte der aaredominierten, rechten Flussseite. Die Resultate zeigen, dass an diesem speziellen Tag Aare ( $160 \text{ m}^3/\text{s}$ ) und Saane ( $40 \text{ m}^3/\text{s}$ ) bis zum Wehr nicht komplett durchmischt waren. Während des Feldexperimentes vom 1.4.1993 (Abb. 3.2.3 a) wurde an beiden Seiten eine kontinuierliche Beprobung durchgeführt. In diesem Fall

waren Aare ( $75 \text{ m}^3/\text{s}$ ) und Saane ( $65 \text{ m}^3/\text{s}$ ) jedoch recht gut durchmischt. Dies kann mit höheren Turbulenzen im Bereich des Saanezufluss' zusammenhängen, wenn die Differenz zwischen Saane- und Aareabfluss weniger deutlich ist.

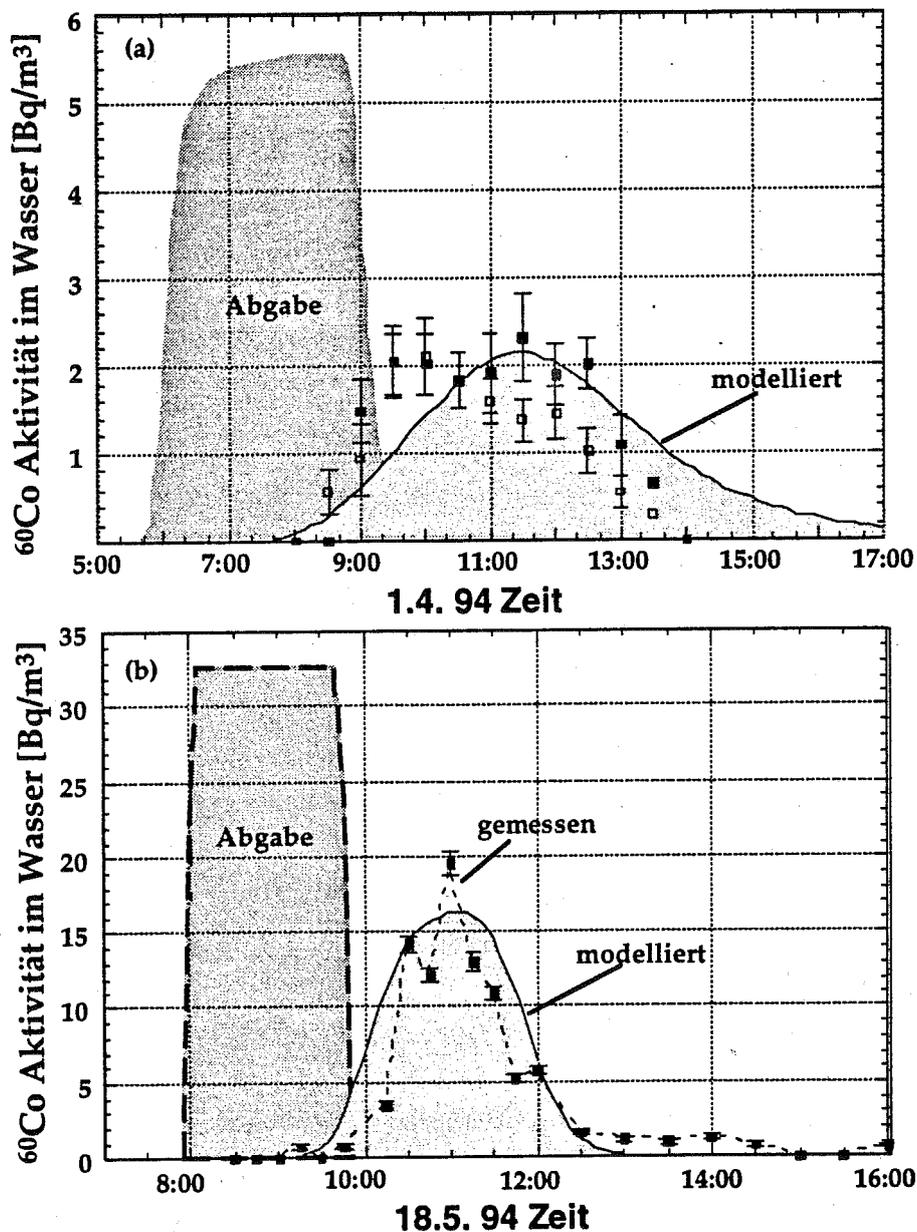


Abb. 3.2.3 : Vergleich zwischen modellierten und gemessenen Durchbruchkurven unterhalb der Kernkraftwerke Mühleberg (Stausee Niederried; rechtsseitig = offene Quadrate, linksseitig = gefüllte Quadrate) vom 1.4.92 (a) und Beznau (Stausee Klingnau) vom 18.5.94 (b). Neben den gemessenen Aktivitäten als Funktion der Zeit sind Inputfunktionen der Kernkraftwerke und modellierten Durchbruchkurven der Probenahmelokalitäten graphisch dargestellt. Die dargestellten Daten sind im Anhang 1 tabellarisch zusammengefasst.

Im Flussabschnitt unterhalb des KKW Beznau treten ebenfalls Zonen unvollständiger Durchmischung auf. Diese können anhand von Temperaturgradienten quer zur Strömungsrichtung auch nach 4 km noch erkannt werden (Abb. 3.2.4). Hier

existierten am 20.4.94 linksseitig Maxialtemperaturen von 9.2 °C und rechtsseitig eine homogene Temperatur von 8.4 °C. Eine völlige Durchmischung kann erst unterhalb der Staumauer des Wasserkraftwerks Klingnau erwartet werden. Die Temperaturgradienten beruhen auf Temperaturunterschieden zwischen dem im alten Aarelauf fließenden Wasser (durch KKW Kühlwasser aufgewärmt) und dem Wasser des Kanals oberhalb des hydraulischen Kraftwerks Beznau (Abb. 1.1 ). Inhomogenitäten in der Temperatur weisen ebenfalls auf Inhomogenitäten in der Radionuklidfracht hin. Die Situation in Beznau ist gegensätzlich zur Situation unterhalb von Mühleberg. Das KKW Beznau speist das radionuklidführende Abwasser in den Oberwasserkanal ein. Demzufolge sind im Bereich des Klingnauer Stausees rechtsseitig neben niedrigeren Temperaturen höhere Aktivitäten zu erwarten. Ein Querprofil, welches am 18.5.94 beprobt wurde, zeigt deutlich die Zunahme der  $^{60}\text{Co}$  Aktivität von 6 Bq/m<sup>3</sup> linksseitig auf 20 Bq/m<sup>3</sup> rechtsseitig (Abb. 3.2.4 ).

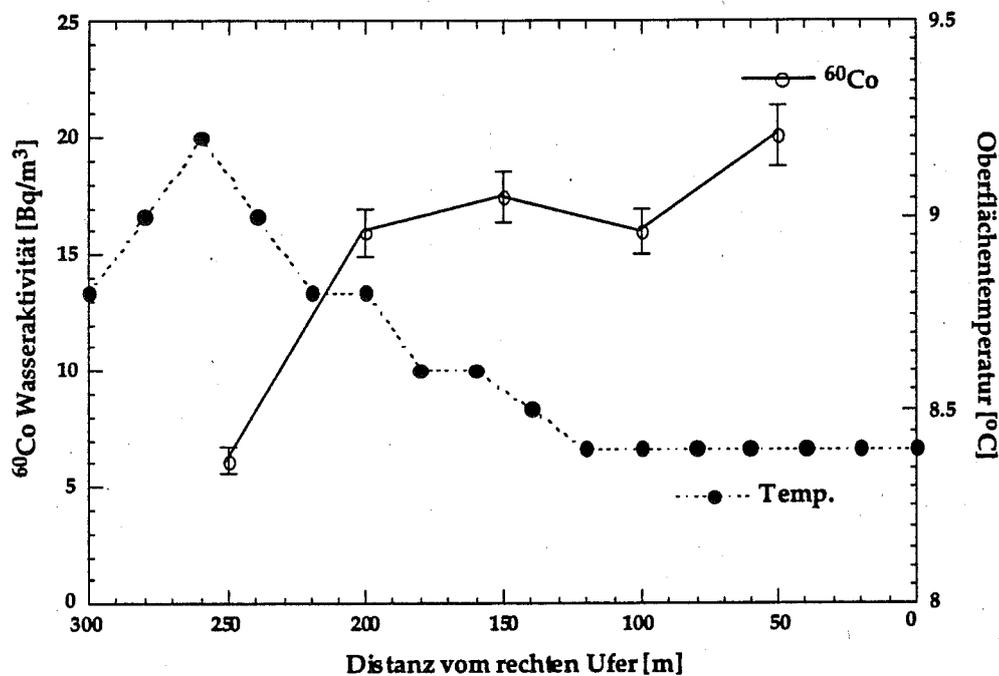


Abb. 3.2.4 : Aareinhomogenität im Bereich der Halbbrücke (Stausee Klingnau, Abb. 5.3.1) verdeutlicht durch ein Temperaturquerprofil vom 20.4.94 und ein Aktivitätsquerprofil vom 18.5.94.

Der in Abb. 3.2.3 b dargestellte Vergleich zwischen modellierten und gemessenen Durchbruchkurven zeigt deutlich die sehr ähnlichen Zeitfunktionen. Die Unterschiede bei den Amplituden sind vor allem auf nichtrepräsentative Beprobungen der im Fluss auftauchenden Inhomogenitäten zurückzuführen. Aktivitätsamplituden für den Versuch bei Niederried vom 1.4.93 zeigen (Abb. 3.2.3 a), dass bei guter Durchmischung und entsprechender Beprobung modellierte und gemessene Konzentrationen gut übereinstimmen. Da bei den AQUASIM-Modellierungen Radionuklidverluste durch

Sedimentation gleich Null gesetzt wurden, birgt diese Ähnlichkeit wichtige Informationen über die geringe Bedeutung der Sedimentation beim Radionuklidtransport direkt unterhalb von Kernkraftwerken (siehe Kapitel 5).

### 4. Suspensierte Partikel als Transportmedium

Der Radionuklidtransport tritt im Gewässer in zwei Formen auf, (1) gelöst und (2) an suspendierte Partikeln gebunden. Als gelöst definieren wir denjenigen Anteil, der mittels Durchflusszentrifuge oder In-Situ Filtration nicht abgetrennt werden kann (Partikel  $< 0.5$  bzw.  $< 1.0 \mu\text{m}$ ). Dass diese Fraktion neben ionisch gelösten Radionukliden ebenfalls an Kolloide bzw. langkettige organische Substanzen gebundene Radionuklide beinhaltet, spielt für praktische Anwendungen keine Rolle, da dieser Anteil, wie auch der ionisch gelöste vom Wasser transportiert wird und nicht sedimentiert. In diesem Kapitel sollen die Ergebnisse über Konzentration, Korngrößenverteilung und -zusammensetzung suspendierter Partikel zusammengefasst werden. Eine detailliertere Analyse von Adsorptionsphänomenen folgt im Kapitel 8, in Verbindung mit Ergebnissen aus der Sedimentanalyse (Kapitel 5).

#### 4.1 Konzentration und Zusammensetzung suspendierter Partikel

Zur Abschätzung des an Partikel gebundenen Radionuklidanteils ist es nötig, das Korngrößenspektrum der von der Aare transportierten Partikel zu analysieren.

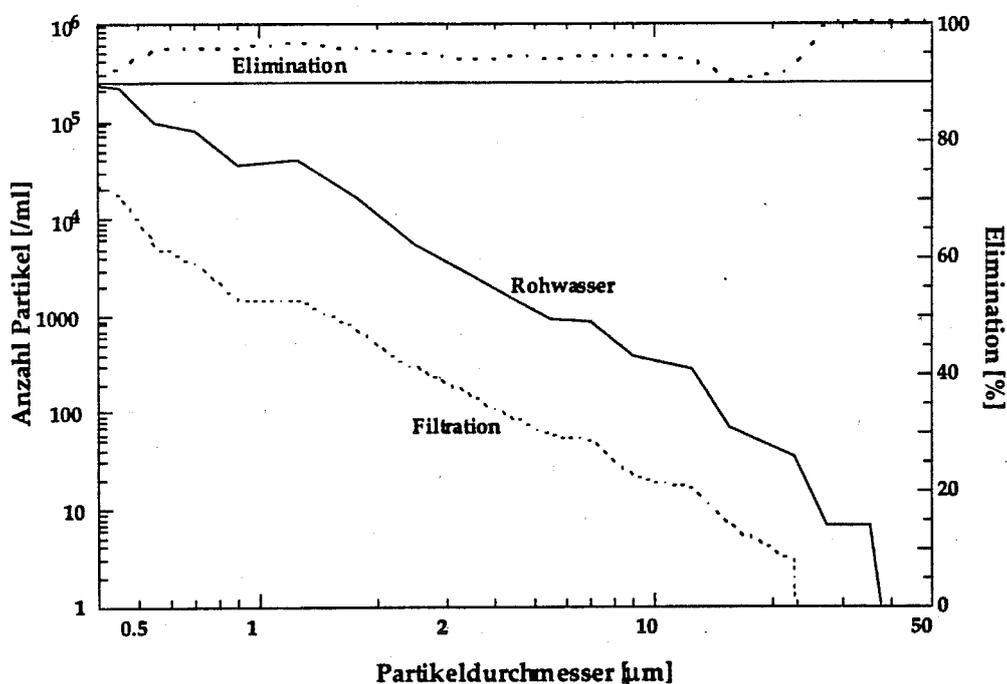


Abb. 4.1.1 : Vergleich zwischen Partikelanzahl als Funktion der Korngröße in unbehandeltem Flusswasser und polyethersulfon-in-situ-filtrierte Wasser (Aarberg 5.4.95). Ein Anteil von  $> 80 \%$  gilt für die erreichte Partikelabtrennung als zufriedenstellend.

Unter Benutzung eines Grimm Partikelzählgerätes kann im Feld die Partikelanzahl und die Grössenverteilung von Rohwasser und bearbeitetem Wasser bestimmt werden. Eine typische Partikelverteilung in natürlichen Gewässern (Aare bei Aarberg am 5.4.95; Abb. 4.1.1) zeigt die Zunahme der Partikelanzahl mit abnehmendem Korndurchmesser. Die Konzentration von Partikel mit einem Durchmesser um  $10\mu\text{m}$  lag bei etwa  $300/\text{ml}$ , für Partikel um  $1\mu\text{m}$  lag sie um den Faktor 100 höher (etwa  $30,000/\text{ml}$ ). Die Partikelkonzentration des mittels  $0.45\mu\text{m}$  In-situ Polyethersulfon gefilterten Wassers ist in der Abb. 4.1.1 ebenfalls dargestellt. Die Elimination (angegeben in %) liegt für Partikel  $> 0.45\mu\text{m}$  bei etwa 90%, was die Effektivität dieser Methode unterstreicht.

Die durch In-situ Filtration und Durchflusszentrifugierung gewonnenen Partikel können mittels Streulichtanalyse auf ihre Korngrössenverteilung untersucht werden. Die Ergebnisse können als Summen- und Verteilungskurve dargestellt werden (Abb. 4.1.2). Neben den Korngrössenverteilungen der mittels Durchflusszentrifuge abgetrennten Partikel sind zusätzlich in-situ filtrierte Partikel dargestellt. Trotz unterschiedlicher Umdrehungsgeschwindigkeiten sind die Korngrössenspektren beider Zentrifugen recht ähnlich. Unterschiedlich ist allerdings die Verteilung der in-situ abgetrennten Partikel. Dies beruht auf Verlusten grober Partikel während der Probenahme für die Durchflusszentrifuge.

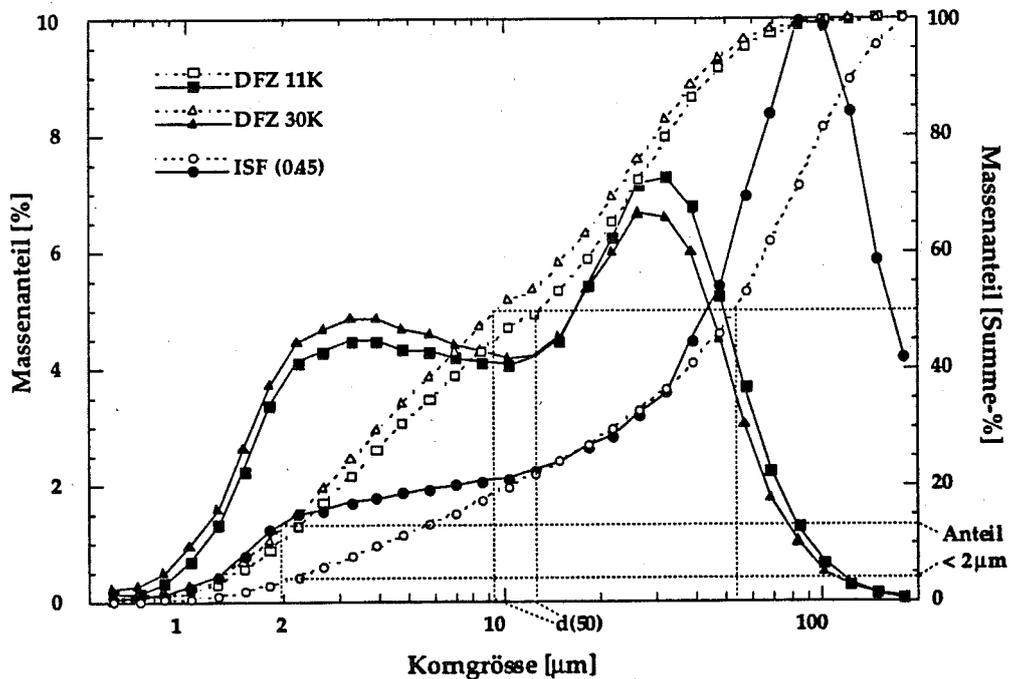


Abb. 4.1.2 : Darstellung der Korngrössenverteilung suspendierter, durch Zentrifugation (DFZ) und In-situ Filtration (ISF) aufkonzentrierter Partikel (Aarberg 5.4.94), die aufkonzentriert wurden. Die Summenkurve (gestrichelt) erlaubt die Erläuterung der in dieser Arbeit verwandten Korngrössenindizes Median  $d(50)$  und Anteil  $< 2\mu\text{m}$ . Die Verteilungskurve (durchgezogen) zeigt anschaulich, welche Korngrössenklassen den Hauptanteil bilden.

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

In der Tabelle 4.1.1 sind zur Aarepartikelcharakterisierung der Median  $d(50)$  und der Anteil Partikel  $\leq 2\mu\text{m}$  angegeben. Diese lassen sich mittels Korngrössensummenkurven ermitteln (Abb. 4.1.2). Der Median kennzeichnet den Schnittpunkt der Summenkurve bei 50% Anteil. Er wird als Durchschnittskorngrösse verwendet. Der Anteil  $\leq 2\mu\text{m}$  steht für den Anteil der Tonfraktion.

Tabelle 4.1.1 : Konzentration, Korngrösse und organischer Anteil suspendierter Aarepartikel aus dem Bereich KKW Mühleberg und KKW Leibstadt.

Proben-Nr.	Lokalität	Datum	Partikelkonzentration [g/m <sup>3</sup> ]	Korngrösse [ $\mu\text{m}$ ]		Kohlenstoff		Stickstoff [%]
				Median	% $\leq 2\mu\text{m}$	anorg. [%]	organisch [%]	
Aareabschnitt KKM bis Mündung im Bielersee								
Isl-St1	REWAG	27.1.94	1.7	8.84	9.42	2.57	6.40	0.88
ISL_D	REWAG	27.10.93	2.7	14.35	5.39	2.67	9.04	1.16
Isl_D1	REWAG	9.9.93	1.8	8.08	11.83	2.36	8.60	1.28
NR-D-01	Niederried	1.4.93	3.4	14.13	6.52	2.72	8.49	1.40
NR-D-02	Niederried	1.4.93	3.8	25.44	2.38	2.52	9.58	1.63
NR-D-03	Niederried	1.4.93	3.6	10.89	8.32	2.40	9.21	1.53
NR_D1	Niederried	9.9.93	10.3	9.87	10.16	2.71	8.50	1.36
AA_D1	Aarberg	9.9.93	31.3	10.2	11.07	3.46	2.31	0.25
AA_D_1	Aarberg	27.10.93	2.0	10.5	8.83	2.79	6.22	0.80
AA_D_2	Aarberg	27.10.93	1.9	14.42	6.29	2.63	6.25	0.86
AA_D_3	Aarberg	27.10.93	2.2	21.15	4.03	2.46	7.90	1.26
NDZ_5.4.	Aarberg	5.4.95	10.0	10	10	2.63	4.91	0.59
ADZ_5.4.	Aarberg	5.4.95	10.0	12.5	12	2.80	4.54	0.50
HG-D1	Hagneck	9.9.93	29.5	9.79	12.9	3.51	2.22	0.24
HG-D2	Hagneck	9.9.93	16.6	17.56	7.1	3.29	1.85	0.21
HG-D-01	Hagneck	1.4.93	2.7	30.26	1.94	2.57	10.24	1.71
HG-D-02	Hagneck	1.4.93	3.2	13.6	6.82	2.73	10.18	1.65
HG_D	Hagneck	27.10.93	2.6	9.71	9.51	3.00	5.62	0.69
Bielersee								
BS_B1	Delta	10.9.93	161.3	10.19	10.6	3.56	2.16	0.21
BS_B2	vor Delta	10.9.93	2.5	14.06	8.2	2.52	11.51	2.09
BS-W3	Epilimnion	10.9.93	1.6	14.12	7.4	2.35	12.28	2.27
BS-W2	Sprungschicht	10.9.93	3.6	11.47	10.9	2.93	6.46	0.76
BS-W1	Hypolimnion	10.9.93	16.6	7.19	17.8	3.15	2.66	0.31
BS-P/W_1	0 m depth	22.8.94	3.2	10.9	7.3	4.90	11.50	1.60
BS-P/W_2	34 m depth	22.8.94	0.4	5.06	25	3.30	5.30	0.74
Aare/Rheinabschnitt ab Bielersee								
Biel_01	bei Biel	10.9.93	1.4	26.4	3.1	2.54	10.65	1.86
Biel_02	bei Biel	15.9.93	4.2	10.7	8.6	3.48	6.91	1.16
GOE_08	Schönenwert	24.8.93	20.1	14.05	5.64	2.72	6.16	0.69
KLI_08	Stausee Klingnau	16.8.93	7.8	15.97	4.3	2.70	5.05	0.60
DZW_01/2	Stausee Klingnau	18.5.93	10.0			2.56	8.54	0.90
DZW_02/2	Stausee Klingnau	18.5.93	12.4			2.60	7.02	0.79
Rhein_01	Rhein bei Leibstadt	1.10.93	5.5	22.38	3	3.16	5.96	0.75

Es sollte nicht versäumt werden, die bei Partikeltrennung und Analyse auftretenden methodischen Probleme aufzulisten. Zwei rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von aufkonzentrierten suspendierten Partikeln (Abb. 4.1.3) veranschaulichen diese Punkte:

(1) Natürliche Partikel haben weder eine wohl definierte Korngrösse, noch eine wohl definierte Zusammensetzung. Partikelagglutination ist unspezifisch und erlaubt eine Verklebung von organischen mit anorganischen Bestandteilen. Dieses Verwachsen von Partikeln verschiedenster Korngrössen macht eine Interpretation sehr schwierig.

(2) Die für eine Analyse notwendige Aufkonzentration von suspendierten Partikeln verursacht eine weiterfortschreitende Verklumpung. Um diese rückgängig zu machen, besteht die Möglichkeit, vor der Korngrössenanalyse das Partikelkonzentrat aufzuschwemmen und mit Hilfe von Ultraschall in die 'natürliche', im Fluss vorhandenen Form zurückzuführen. Inwieweit dies gelingt, ist nur schwer zu evaluieren, da die in-situ Partikelverteilung meistens nicht bekannt ist.

(3) Bei den angewandten Methoden der Partikelkonzentration arbeitet die in-situ Filtration direkt mit dem Prinzip der Abtrennung nach Korngrössen. Obwohl die Filterporengrösse mit zunehmender Verstopfung abnimmt und systematische Fehler auftreten können, werden organische und anorganische Anteile nicht fraktioniert. Eine solche Fraktionierung kann jedoch bei Durchflusszentrifugierung auftreten, da die Trennung hier auf Dichteunterschieden beruht, die bei anorganischen Partikeln ( $2.6 \text{ g/cm}^3$ ) markanter sind als bei organischen ( $1.05 \text{ g/cm}^3$ ).

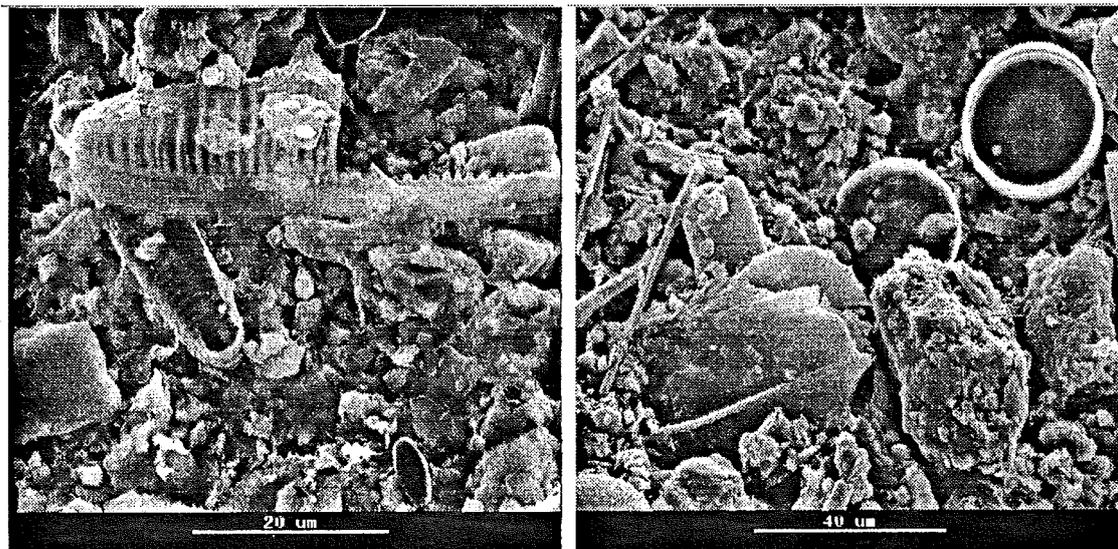


Abb. 4.1.3 : Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme von suspendierten Partikeln aus der Aare bei Aarberg (5.4.1995). Diese Partikel wurden mittels Durchflusszentrifuge aufkonzentriert, gefriergetrocknet zur Partikelanalyse aufgeschwemmt und mit Ultraschall behandelt. Zu erkennen sind Partikel unterschiedlichsten organischen und anorganischen Ursprungs, individuelle Körner verschiedenster Grösse, sowie Bereiche intensiver Verklumpung bzw. Koagulation.

Wegen dieser Komplikationen besitzen Partikelspektren einen beschreibenden Charakter. Sie erlauben es, Informationen über das Einzugsgebiet und die Bedeutung von Abflussmenge und Fliessgeschwindigkeit zu sammeln und saisonale und lokale Schwankungen abzuschätzen.

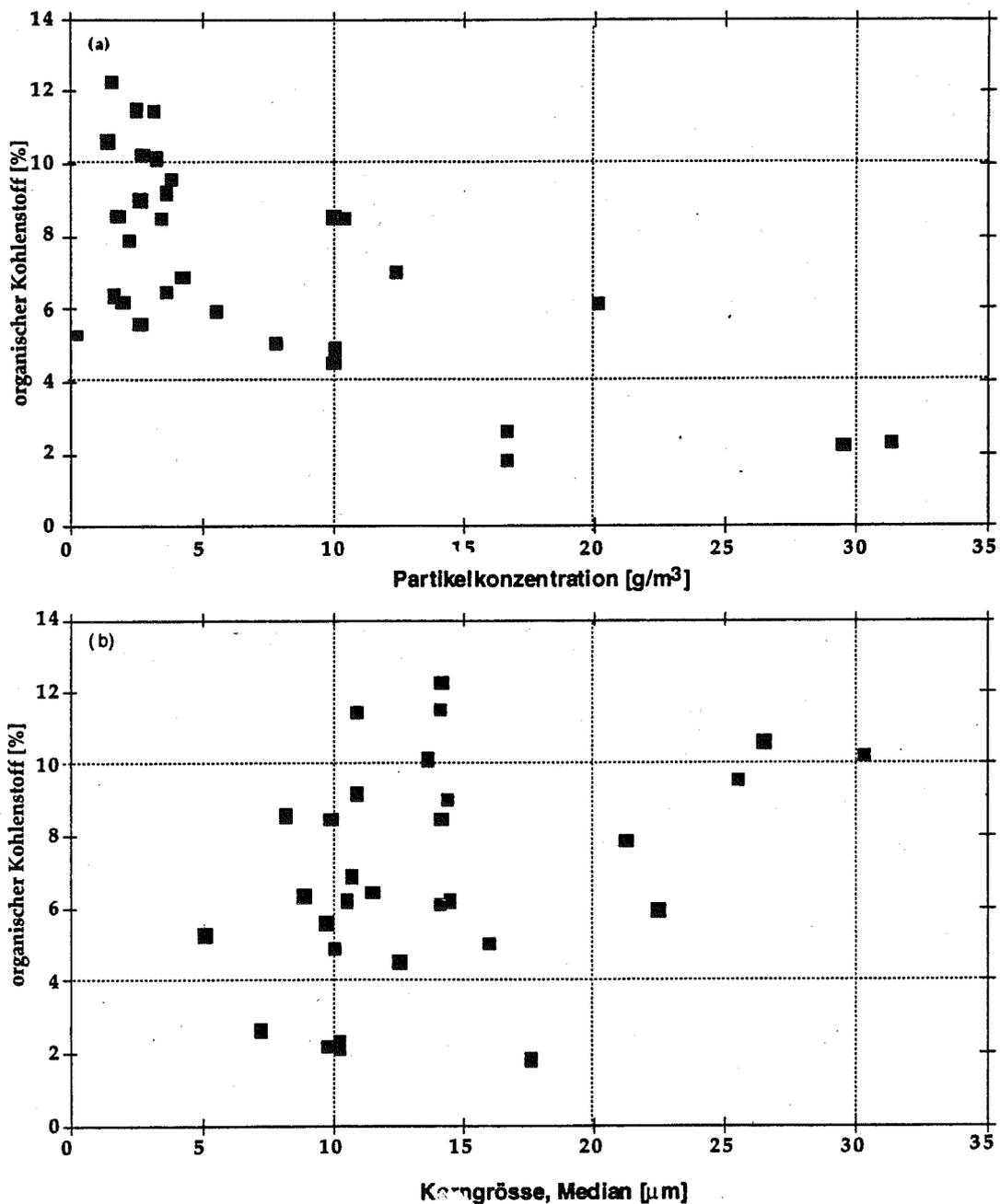


Abb. 4.1.4 : Beziehung zwischen organischem Anteil und Partikelkonzentration (a) und organischem Anteil und Korngröße (b).

Die in Tab. 4.1.1 zusammengefassten Ergebnisse über suspendierte Partikel erlaubt es, Beziehungen zwischen den aufgelisteten Parametern Partikelkonzentration, organischer Anteil und Korngröße aufzustellen (Abb. 4.1.4). Eine klare Korrelation existiert zwischen der Partikelkonzentration und dem organischen Anteil (a). Eine Zunahme in der Partikelkonzentration hängt mit dem Anstieg der Abflussmenge und der verstärkten Erosion im Einzugsgebiet zusammen. Im Fall der Aare handelt es sich dabei vorwiegend um Molassegesteine. Der organische Anteil wird durch die Zunahme an

anorganischen Partikeln verdünnt. Zwischen dem organischen Anteil und der Korngrösse liegt für Gesamtproben keine signifikante Korrelation vor (Abb. 4.1.4 b).

Eine Kohlenstoff-Stickstoffanalyse von in-situ getrennten Partikeln unterschiedlicher Korngrösse verdeutlicht die fehlende Beziehung zwischen Korngrösse und organischem Partikelanteil (Tab. 4.1.2 ). Variationen zwischen suspendierten Partikeln unterschiedlicher Lokalität sind zwar erheblich, Schwankungen innerhalb einzelner Korngrössenklassen bleiben jedoch gering.

Tab. 4.1.2 : organischer Anteil von Partikeln unterschiedlicher Korngrösse getrennt mittels In-situ Filtration

Probenlokalität, Datum	organischer C (%)	Stickstoff (%)
Niederried, 9.9.93		
10-22 $\mu\text{m}$	4.0	0.15
22-50 $\mu\text{m}$	3.5	0.08
> 50 $\mu\text{m}$	3.0	0.09
Hagneck, 9.9.93		
10-22 $\mu\text{m}$	3.9	0.22
22-50 $\mu\text{m}$	3.5	0.16
> 50 $\mu\text{m}$	2.8	0.12
Klingnau, 18.5.94		
10-22 $\mu\text{m}$	2.7	0.61
22-50 $\mu\text{m}$	2.7	0.49
> 50 $\mu\text{m}$	2.5	0.65

Mikroskopische Betrachtung der im Aaresystem auftretenden organischen Partikel haben gezeigt, das Phytoplankton neben Zooplankton und Teilen verschiedenster Wasserpflanzen ein dominante Rolle spielen. Das Partikelspektrum dieser organischen Substanzen reicht vom  $\mu\text{m}$ - bis in den mm- Bereich. Dies verdeutlicht ebenfalls die fehlende Korrelation zwischen Korngrösse und organischem Gesamtpartikelanteil.

#### 4.2 Aktivitäten suspendierter Partikel

An dieser Stelle soll nur eine Andeutung zu dem Thema geliefert werden, welches im Kapitel 8 "Adsorption-eine Synthese" im Detail besprochen wird. Eine einfache Methode zur Aufkonzentration von Partikeln und zur Messung der angelagerten Radioaktivität ist das Aushängen von Algennetzen. Diese Netze sammeln kontinuierlich Partikel mit einem Korndurchmesser, der grösser ist als die Maschenweite des Netzes (in unserem Fall 80 $\mu\text{m}$ ). Während eines ersten mit einer Abgabe durch das KKW Mühleberg koordinierten Versuchs am 2.11.94 im Bereich des Stausees Niederried (Abb. 1.1 ) wurde ein partikulär gebundener radioaktiver Anteil für  $^{60}\text{Co}$  von 35.2 Bq/kg gemessen. Die Ergebnisse eines zweiten Versuchs, durchgeführt am 20.7.95 unter Benutzung des gleichen Algennetzes sollten die Veränderung der partikulären Radioaktivität als Funktion der Distanz zum Kernkraftwerk, und damit als Funktion der für die Adsorption zur Verfügung stehenden Zeit zeigen. Für  $^{60}\text{Co}$  wurde direkt unterhalb des KKW Mühleberg (5-10 Minuten Reaktionszeit) eine Aktivität von 16.4 Bq/kg gemessen, partikulär gebundenes  $^{65}\text{Zn}$  blieb bei dieser Lokalität unterhalb

der Nachweisgrenze. In Aarberg, nach etwa 4 Stunden Reaktionszeit, stieg die Aktivität für  $^{65}\text{Zn}$  zwar auf 11.8 Bq/kg an, die  $^{60}\text{Co}$  Aktivität veränderte sich jedoch kaum (14.9 Bq/kg). Diese Versuch zeigen die Tendenz eines Teils der Radionuklide an Partikel zu adsorbieren. Dies ist für das folgende Kapitel über Sedimentation von Bedeutung. Die Details der Adsorptionsprozesse sollen jedoch erst im Kapitel 8 diskutiert werden.

### 5. Sedimentation

In diesem Kapitel sollen die Prozesse erklärt werden, die zur Ablagerung von Partikeln im fließenden aquatischen Milieu führen. Mit Hilfe einer Quantifizierung dieser Sedimentationsvorgänge und Radionuklidmessungen im Sediment kann der Anteil der in Fluss- und Seesedimenten abgelagerten Radionuklide ermittelt werden.

#### 5.1 Wohlensee

Sedimente des Wohlensees sollen herangezogen werden um (1) Sedimentratenbestimmung und Radionukliddeposition zu erläutern und (2) die Radionuklidbelastung in der Aare vor dem KKW Mühleberg zu erfassen. Da die Aare bereits durch den Briener und Thunersee natürlich gefiltert wurde, werden in den Wohlensee nur feinkörnige Partikel (meist tonig-siltig; Korngrösse 1 - 30  $\mu\text{m}$ ) transportiert und gelangen hier zur Ablagerung. Sedimentkerne aus dem Wohlensee zeigen deutlich feinpartikuläre Lagen. Diese archivieren Sedimentationsvorgänge und Stoffflüsse in das Sediment. Zur Datierung rezenter Sedimente können zwei Zonen markanter  $^{137}\text{Cs}$  Anreicherung herangezogen werden (Abb. 5.1.1). Zum einen handelt es sich um Radionukliddeposition, die mit den atmosphärischen Atombombenversuchen der 50er und 60er Jahre zusammenhängen und ein Maximum in 1963 erreichten (Edington und Robbins, 1975; Wan et al., 1987), zum anderen um Ablagerungen als Folge des Tschernobylunfalls (Devell et al., 1986; Santschi, et al., 1988). Da während des Tschernobylfallouts neben  $^{137}\text{Cs}$  ebenfalls  $^{134}\text{Cs}$  (im Verhältnis 2:1) abgelagert wurde, welches trotz seiner kurzen Halbwertszeit von 2 Jahren noch oberhalb der Nachweisgrenze liegt, können der 1986er und 1963er Peak unterschieden werden. In den Sedimenten des Wohlensees konnten in dieser Studie keine Neutronenaktivierungsprodukte nachgewiesen werden. Radionuklide, wie  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ , die flussabwärts des Kernkraftwerks nachgewiesen werden, stammen demzufolge ausschliesslich aus der Kernanlage. In Abb. 5.1.1 sind die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten berechnet auf den Zeitpunkt der Probenahme (Januar 1994) und den Zeitpunkt der Sedimentation. Die Tiefenpositionierung dieser Peaks erlaubt es, diese zwei Sedimentlagen mit 1963 und 1986 zeitlich gleichzusetzen und Sedimentationsraten zu berechnen. Für die Periode 1963 bis 1986 errechnet sich eine Sedimentationsrate von 40cm/23a (1.7 cm/a) und für die Periode 1986-1993 eine Rate von 18cm/7a (2.6 cm/a). Die Korrektur auf den Zeitpunkt der Sedimentation basiert auf der Annahme konstanter Sedimentationsraten zwischen den Zeitmarkern.

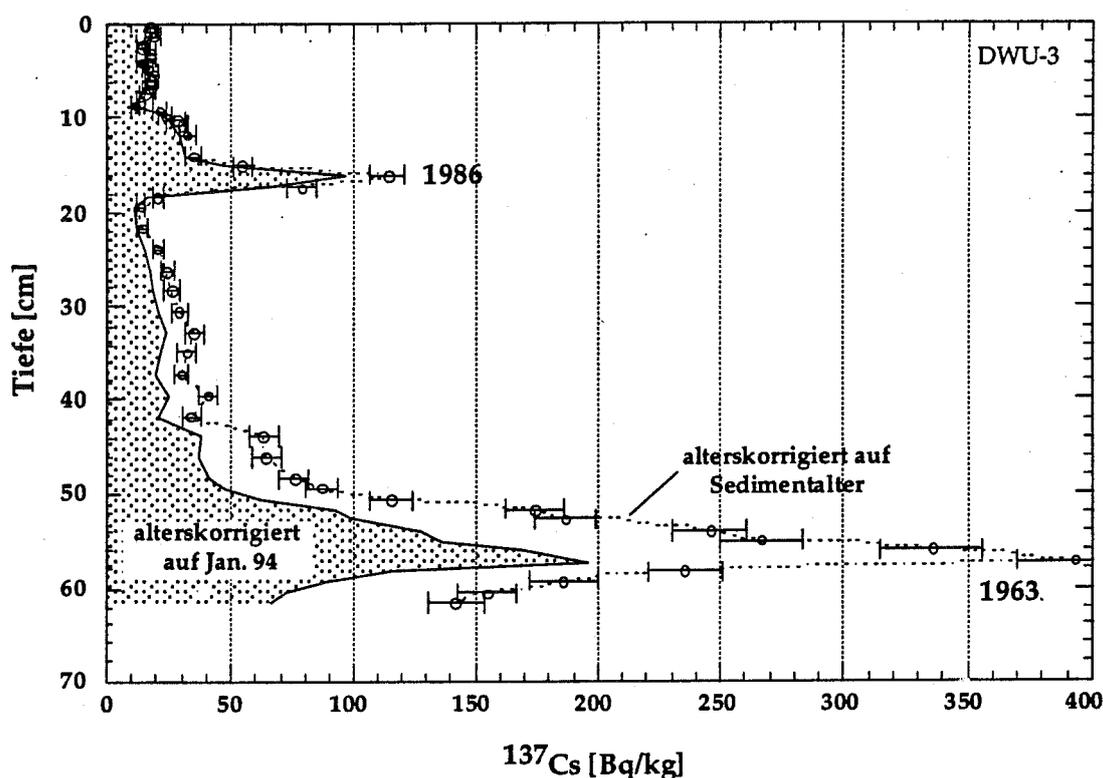


Abb. 5.1.1 :  $^{137}\text{Cs}$  Tiefenprofil eines Sedimentkerns aus dem unteren Bereich des Wohlensees. Dargestellt sind die massenbezogenen Aktivitäten korrigiert auf den Zeitpunkt der Kernstechung (Jan. 1994), sowie alterskorrigiert basierend auf den Aktivitätsmaxima von 1963 (atmosphärische Atombomben) und 1986 (Tschernobyl).

Wir ordnen den Wohlensee in die Reihe der Flusssysteme ein. Dementsprechend wird ein Grossteil des Radionuklideintrags nicht direkt atmosphärisch, sondern in Lösung, bzw. partikulär gebunden lateral eingetragen. Die Amplituden der Peaks können dazu benutzt werden, die Radionukliddeposition ins Sediment abzuschätzen, jedoch nicht die atmosphärische Deposition. So schwankten die atmosphärischen Ablagerungen nach dem Tschernobylunfall für  $^{137}\text{Cs}$  zwischen 3.8 und 20  $\text{kBq/m}^2$  (KUeR, 1989; Santschi et al., 1988) und die für atmosphärische Atombombenversuche zwischen 2.5 und 5.5  $\text{kBq/m}^2$  (Albrecht et al., 1995b; Wan et al., 1987).

Weitere Beispiele von Flusssystemen, in denen Radionuklide lateral transportiert und teilweise sedimentiert werden, existieren unterhalb der Schweizer Kernkraftwerke (Staufstufen, Reservoirs, Todarme). Der Anteil der Radionuklide, welche in diesen Zonen zur Ablagerung gelangt, soll im folgenden evaluiert werden.

## 5.2 Niederrieder Stausee

Im Niederrieder Stausee herrscht eine markante lokale und zeitliche Dynamik, die durch die beiden Flüsse Saane und Aare bestimmt ist. Das Aarewasser wird im Wohlensee natürlich gefiltert, Partikelkonzentrationen liegen zwischen dem Wohlensee und der

Saanemündung recht konstant bei weniger als  $3 \text{ gTrockensediment/m}^3$  (Tab. 4.1.2). Die Saane ist lediglich teilweise reguliert, es kommt zu natürlicher Erosion und Partikelkonzentrationen können während Hochwasserereignissen bis auf  $160 \text{ gTrockensediment/m}^3$  ansteigen. Monatlich gemittelte Abflussraten für die Aare liegen im Winter bei  $50 \text{ m}^3/\text{s}$  und steigen in den Sommermonaten auf  $200 \text{ m}^3/\text{s}$  an. Die Saane zeigt weniger saisonale Variabilität, mit einem unabhängigen monatlichen Durchschnitt von  $\sim 50 \text{ m}^3/\text{s}$ , jedoch starke tägliche Fluktuationen zwischen  $10$  und  $160 \text{ m}^3/\text{s}$ .

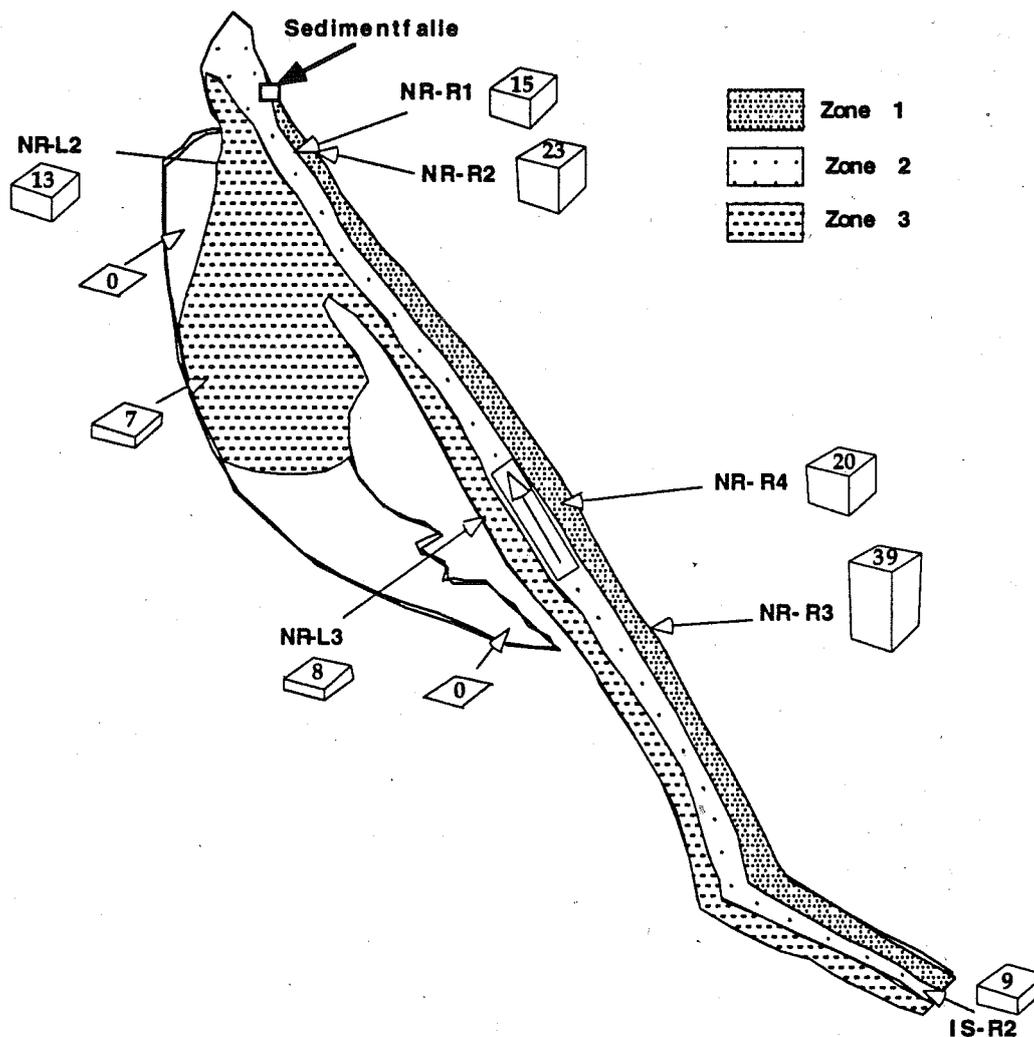


Abbildung 5.2.1 Probenlokalisierung (NR bezieht sich auf Sedimentkerne) und Zonierung des Stausees Niederried. Daten in Kästchen geben Oberflächenaktivitäten für  $^{60}\text{Co}$  in  $\text{Bq/kgTrockensediment}$  an.

Wegen dieser erheblichen Variabilität in den Abflussraten und wegen der unvollständigen Quermischung von Saane- und Aarewasser im Bereich des Niederrieder Stausees wurden entsprechende sedimentologische und radiologische Inhomogenitäten in den Ablagerungen des Reservoirs erwartet. Um diese in etwa zu erfassen wurden am 14. Oktober 1992 innerhalb der 3 Hauptzonen (Abb. 5.2.1) sieben

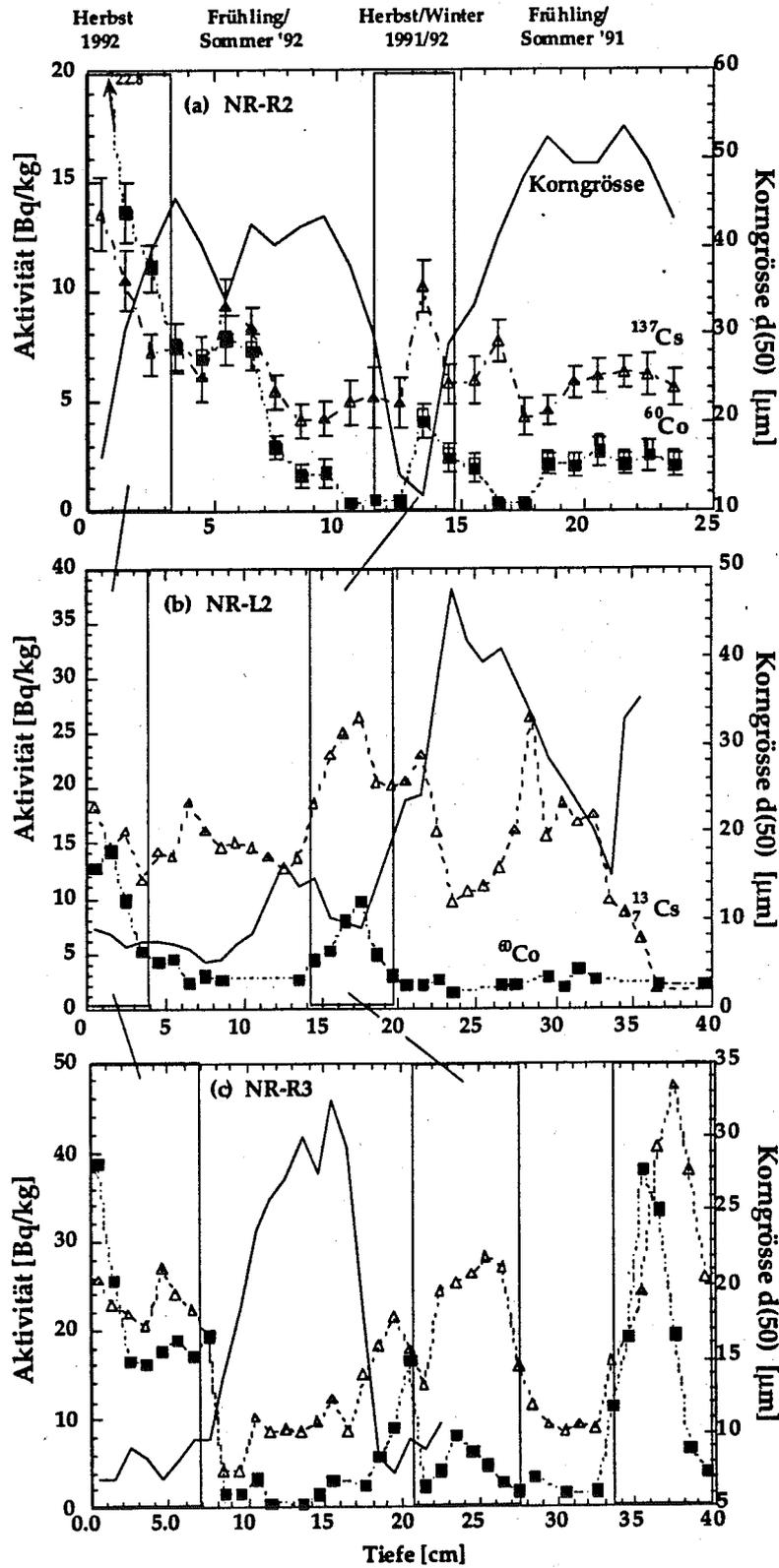


Abbildung 5.2.2 :  $^{60}\text{Co}$  (gefüllte Quadrate) und  $^{137}\text{Cs}$  (offene Dreiecke, mit  $2\sigma$  Messfehler in a) als Funktion von Tiefe und Korngrösse in Sedimentkernen des Stausees Niederried (siehe Abb. 5.2.1). Beide Radionuklide variieren in Abhängigkeit von der Korngrösse (durchgezogene Kurven) und damit der Aareflussgeschwindigkeit. Alterskorrekturen (offene Quadrate in NR-R2) sind wegen multipler Erosionsereignisse besonders für ältere Sedimentlagen fraglich.

Sedimentkerne gestochen und am 22.12.94 im Bereich des Todarms Oberflächenproben gesammelt. Die Hauptzonen unterscheiden sich vor allen Dingen durch ihre Hydrodynamik und dementsprechende Sedimentationsbedingungen. (1) der rechtsseitige Bereich geringerer Fließgeschwindigkeit, (2) die Zone mit maximalen Fließgeschwindigkeiten im Zentralbereich des Flusses und (3) die Ruhigwasserzone des Todarmbereichs und die linke Aareseite. Sedimente, die im Zentralbereich abgelagert werden, sind grobkörniger als die des Todarms (Zone 3). Sedimente der Flussrandbereiche (Zone 1 und 3) bilden den Übergang und zeigen je nach Abflusssituation gröbere bzw. feinere Sedimentablagerungen. Radionuklidaktivitäten sämtlicher Sedimentproben sind im Anhang (A2a) aufgelistet und für drei typische Kerne in Abb. 5.2.2 graphisch dargestellt.

Erhöhte Aktivitäten für  $^{60}\text{Co}$  (Maximalwert von 39 Bq/kg) sind jeweils in den oberflächennahen Schichten zu finden. Mit der Tiefe nehmen die Aktivitäten in der Regel ab. Für  $^{137}\text{Cs}$  sind die Tiefenfluktuationen beachtlicher. Maxima treten nicht an der Oberfläche auf, sondern in grösserer Tiefe (47 Bq/kg in 37 cm). Beide Radionuklide zeigen eine umgekehrte Korrelation mit der Sedimentkorngrösse.

Zur Ermittlung des mineralogischen Faktors wurden von Sedimentproben und Proben von suspendierten Partikeln Mineralbestimmungen mittels Röntgenfluoreszenzanalyse durchgeführt (Tab. 5.2.1). Suspendierte Partikel werden durch zwei Proben charakterisiert: eine verdeutlicht normale Abflussbedingungen, die zweite eine Hochwassersituation.

Tab. 5.2.1 : Mineralogie von suspendierten Partikeln und von Sedimentproben bestimmt mittels Röntgenfluoreszenzanalyse.

a) suspendierte Partikel

Probe	s. s.*	% Anteil an Gesamtprobe					
		Quarz	K-feldspat	Plagioklas	Kalzit	Dolomit	Aragonit
Hochwasser	47	22	b.d.	3.6	25	2	<NWG
Normalsituation	57	5.7	5.4	0.9	12	<NWG	19

b) Sedimentkerne

Probe *	ss**	% Anteil an Gesamtprobe					% rel. Anteil der Fraktion < 2µm			
		Quarz	K-spat	Plagioklas	Kalzit	Dolomit	Smectit	Mica	Chlorit	Kaolinit
NR-R2 [1-2]	33	38	2.7	6.4	19	0.8	8.4	50	29	13
" [12-13]	27	37	1.7	5.3	27	2.2	7.7	50	27	16
" [19-20]	45	36	1.5	6.7	11	0.5	5.0	54	24	17
NR-L2 [1-2]	34	28	2.9	4.4	29	2.1	7.0	51	25	18
" [11-12]	33	34	4.5	4.3	24	1.0	10.5	49	24	16
" [17-18]	37	28	1.2	5.2	26	2.5	8.1	51	25	16
L. Wohlen	53	19	1.3	2.6	21	3.7	9.8	50	29	12

\* [ - ] bedeutet Tiefe in cm

\*\* ss = Schichtsilikate, inklusive organisches Material

Ein Vergleich beider Situationen macht die mineralogischen Unterschiede deutlich. Während Normalabflussbedingungen nehmen Quarz, Plagioklas und der

Karbonatgehalt im Vergleich zur Hochwasserperiode deutlich ab. K-feldspat, Aragonit und Schichtsilikate gewinnen an Bedeutung.

Zusätzlich wurden je drei Proben von einem rechtsseitigen und einem linksseitigen Kern entnommen und analysiert. Vergleicht man Mineralgehalte der suspendierten Partikel mit diesen Sedimentanalysen, so erkennt man die Ähnlichkeit zwischen Hochwasserpartikeln und Sedimenten. Die Unterschiede zwischen der rechten und linken Seite des Reservoirs sind erkennbar durch höheren Kalzit, Dolomit und K-Feldspatgehalt und niedrigeren Plagioklas- und Quarzgehalt auf der rechten (saane-) dominierten Seite. Diese Unterschiede können jedoch nicht mittels Hoch- oder Niedrigwasserablagerungen korreliert werden.

### 5.2.1 Datierung von Sedimenten des Stausees Niederried

Die für Inventarberechnungen notwendigen Informationen bezüglich Sedimentationsraten konnten im Stausee Niederried nicht wie für den Wohlensee mit Hilfe von Caesiumradionukliden ermittelt werden. Dies ist eine Folge von Resuspensions- und Erosionserscheinungen, die typischerweise besonders während Hochwasserperioden auftreten. Unter Zuhilfenahme von  $^7\text{Be}$  Aktivitäten in den obersten Sedimentschichten und jahreszeitlichen Korngrössenschwankungen ist eine Abschätzung möglich. Während der Frühjahrs- und Sommerperiode, wenn der Abfluss ein Maximum erreicht, dominieren Transport und Ablagerung von grobkörnigen Sedimenten, in der Herbst-Winterperiode gelangen hingegen feinkörnige Sedimente zur Ablagerung.

In den für ausgewählte Kerne dargestellten Tiefenprofilen (Abb. 5.2.2) sind neben der Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$  ebenfalls der Median der Korngrösse dargestellt. Auffallend ist die Antikorrelation zwischen Radionuklidaktivität und Korngrösse. Dies hängt mit der grösseren spezifischen Oberfläche (Anzahl an Adsorptionsplätzen) kleiner Partikel zusammen. Aktivitäten von  $^{60}\text{Co}$  variieren in den obersten cm von 15 bis 39 Bq/kg und für  $^{137}\text{Cs}$  von 15 bis 25 Bq/kg in Abhängigkeit von der Lokalität. In den Kernen NR-R2, R3 und L2, in denen neben Radionuklidaktivitäten auch Korngrössenverteilungen gemessen wurden, können die abrupten Variationen als Folge saisonaler Zyklen interpretiert werden. Während der Schneeschmelze im Frühjahr und Sommer, wenn der Aareabfluss 200 bis 300 m<sup>3</sup>/s erreicht, transportieren Aare und Saane zusammen > 100 g/m<sup>3</sup> Partikel, von denen die grobkörnigen im Reservoir zur Ablagerung gelangen. Feinkörnige Partikel werden während der Herbst/Winter-Periode abgelagert, wenn der Aare/Saane Durchschnittsabfluss bei 50m<sup>3</sup>/s liegt. Für die im Oktober 1992 entnommenen Kerne kann deshalb eine Stratigraphie erarbeitet werden. Die obersten cm bestehend aus Ton- und Siltpartikeln repräsentieren Ablagerungen während der Niedrigwasserperiode Herbst 1992. Der plötzliche Anstieg in der Korngrösse und die Abnahme in  $^{60}\text{Co}$  und

$^{137}\text{Cs}$  reflektieren die Sedimentationsperiode Frühling/Sommer 1992. Herbst-Winterablagerungen sind wiederum charakterisiert durch geringere Korngrösse und höhere Radionuklidaktivitäten. In Kernen, in denen Messungen bis zu Tiefen von 43, respektive 50 cm durchgeführt wurden (NR-R3 und NR-L2, Abb. 5.2.2 ), wird diese Zählmethode mit zunehmender Tiefe schwieriger. Die Existenz von erosiven Perioden wird durch Untersuchung des  $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$  Verhältnis' deutlich. Im Abwasser war dieses Verhältnis nie kleiner 1. Da sich dieser Trend zu deutlich geringeren  $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$  Verhältnissen nicht auf der Basis von Zerfall und Jahresauszählung erklären lässt, müssen erosive Perioden eine Rolle gespielt haben. Trotz dieser Probleme erlaubt diese Methode ein Abschätzung jährlicher Sedimentationsraten. Diese variieren zwischen 14cm/a im Kern NR-R2 und 8 - 12 cm/a in der Kernen NR-L2 und NR-R3. Dies stimmt mit sedimentologischen Überlegungen überein, denn Kern NR-R2 wurde in grösserer Entfernung vom Ufer gezogen, wo höhere Fliessgeschwindigkeiten und demzufolge geringere Sedimentationsraten erwartet werden im Vergleich zu den ruhigeren Randzonen, aus denen die anderen Kerne stammen.

Eine weitere Methode zur Abschätzung der Sedimentationrate basiert auf dem Zerfall von  $^7\text{Be}$  in den obersten Sedimentschichten.  $^7\text{Be}$  ist ein atmosphärisch gebildetes Radionuklid mit einer Halbwertszeit von 53 Tagen, welches über die Hydrosphäre in die Sedimente transportiert wird. Anwendung von  $^7\text{Be}$  zur Bestimmung von Sedimentationsraten verlangt einen konstanten Fluss ins Sediment, konstante Sedimentationsraten und Adsorptionsbedingungen (siehe  $^{210}\text{Pb}$  Methode, Krishnaswami et al., 1971). Obwohl keiner dieser Parameter in Flusssystemen konstant ist, erlaubt diese Methode eine grobe Abschätzung der Sedimentationsraten (Abb. 5.2.1.1 ). Basierend auf einer Initialaktivität von 64 Bq/kg lässt sich eine Sedimentationsrate von 1cm/45Tage, oder 8 cm/a ermitteln. Der Fehler dürfte bei etwa 50% liegen. Die recht gute Übereinstimmung zwischen der  $^7\text{Be}$ -Methode (8 +/-4 cm/a) und der Auszählung saisonaler Schwankungen (8-14 cm/a) erhöht die Vertrauenswürdigkeit dieser Abschätzungen.

### 5.2.2 Radiokobaltinventar

Die Ermittlung der in Sedimenten des Stausees Niederried abgelagerten Radionuklide basiert auf Informationen bezüglich der Abgaben des KKW Mühleberg (Abb. 2.1 ), der Aktivitäten in den Sedimenten (Tab. A2a im Anhang) und der Sedimentationsraten. Integration der Sedimentaktivitäten über die Gesamtfläche des Niederrieder Stausees basiert auf der in Abb. 5.2.1 vorgeschlagenen Zonierung. Details der Budgetierung sind in Tab. 5.2.2.1 zusammengefasst. Sedimentaktivitäten sind am höchsten im rechtsseitigen Randbereich des Reservoirs mit repräsentativen Aktivitäten von 25Bq/kg (Zone 1, 17% der Gesamtoberfläche). Dieses Maximum zeigt zum einen die Bedeutung feiner Partikel in den Randzonen, zum anderen die Dominanz von

radionuklidführendem Aarewasser. In Zone 2 (23%), wo hauptsächlich Sande abgelagert werden, wird 9 Bq/kg als Maximalaktivität benutzt. Am linken Ufer und in einem Bereich des Todarms (<42%) sollen 10 Bq/kg als Modellaktivität verwandt werden. Unter Verwendung einer Sedimenttrockendichte von  $1.2 \text{ g/cm}^3$  für die oberen cm und  $1.6 \text{ g/cm}^3$  für tiefere Sektionen und von Sedimentationsraten zwischen 5 - 10 cm/a, kann der Anteil des in Reservoirsedimenten abgelagerten  $^{60}\text{Co}$  auf 2-13% berechnet werden. Zwei bedingt unabhängige Berechnungen wurden durchgeführt, eine für die obersten Sedimentschichten (45-75 Tage) und eine für die obersten 8-14 cm (1 Jahr).

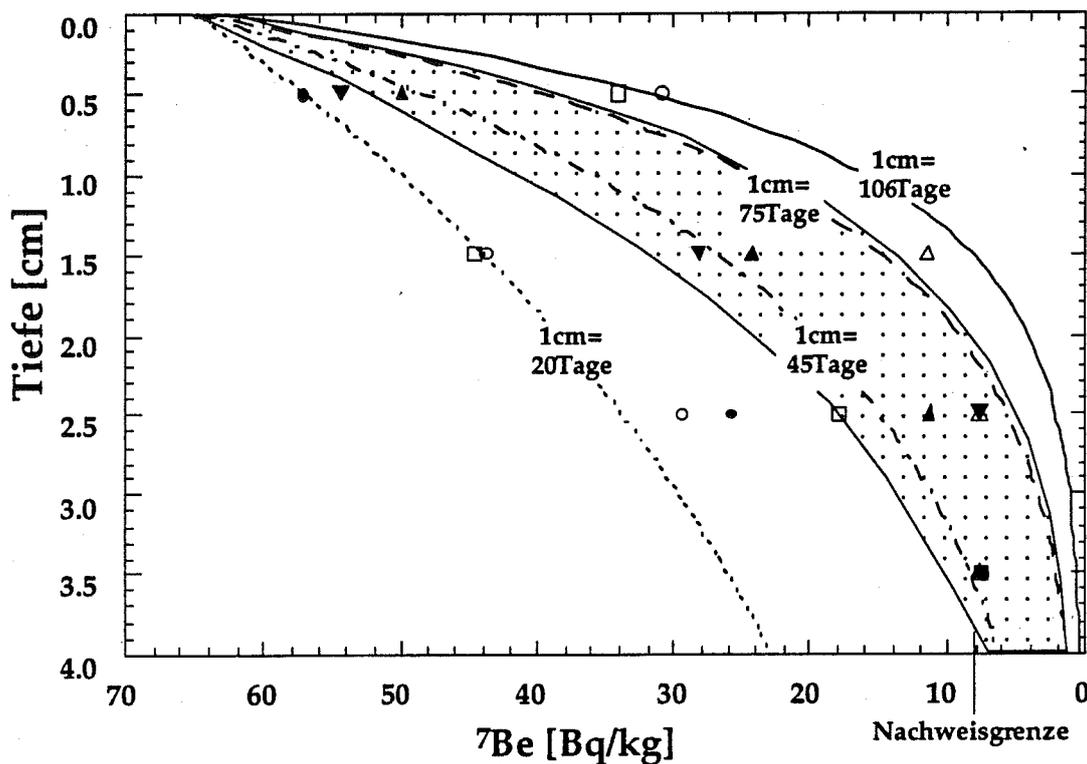


Abb. 5.2.1.1 : Sedimentationsratenbestimmung unter Heranziehung des Zerfalls von  $^7\text{Be}$  ( $T_{1/2}=53\text{Tage}$ ). Modellkurven basieren auf einer Partikelinitialaktivität von  $64\text{Bq/kg}_{\text{Trockensediment}}$ . Offene Quadrate repräsentieren die jüngsten Sedimente des Kerns NR-R1, gefüllte Dreiecke NR-R2, gefüllte Punkte NR-R3, offene Kreise NR-R4, gefüllte, gedrehte Dreiecke NR-L2, offene Dreiecke IS-L2. Die Streuung im Diagramm erklärt sich aufgrund von Bioturbation und periodisch schneller Sedimentation; in beiden Fällen ist  $^7\text{Be}$  in den obersten Schichten homogenisiert. Starke Korngrößenvariationen in den obersten Sedimentlagen tragen ebenso zur Streuung bei.

Der Maximalanteil von  $^{60}\text{Co}$ , der in Reservoirsedimenten zurückgehalten wird, beläuft sich auf < 13%. Die im Einjahresinventar durchgeführten Berechnungen basieren auf Sedimentationsraten von 14 und 8 cm/Jahr für Zone 1 respektive die Zonen 2 und 3. Diese beruhen auf saisonalen Sedimentvariationen. Der Inventarabschätzung der obersten cm liegt die  $^7\text{Be}$ -Altersberechnung zugrunde. Beide Inventare liefern trotz der

unterschiedlichen Sedimentratenabschätzung für die Ablagerung von  $^{60}\text{Co}$  im Stausee Niederried mit 2 - 13 %, respektive 6 % vergleichbare Werte. Dies bekräftigt die Zuverlässigkeit dieser Abschätzung. Der reale Wert liegt wahrscheinlich auf der niedrigeren Seite, da im zentralen Flussbett (Zone 2) sedimentfreie Bereiche auftreten und da es während Hochwasserperioden zu Erosion und Resuspension bereits abgelagerter Radionuklide kommt.

Tab. 5.2.2.1 : Abschätzung des  $^{60}\text{Co}$  Anteils in Sedimenten des Stausees Niederried basierend auf Sedimentdaten

Inventar oberste cm (Sedimentdichte= 1.2 g/m <sup>3</sup> )				
Zone (siehe Abb. 5.2.1)	Fläche [m <sup>2</sup> ]	Sediment- masse [x10 <sup>6</sup> kg]	Sediment- aktivität [Bq/kg]	Gesamt- Aktivität [Bq]
1	133157	1.61	25	4.0x10 <sup>7</sup>
2	175920	2.13	9	1.9x10 <sup>7</sup>
3	326790	3.95	10	4.0x10 <sup>7</sup>
Gesamt- reservoir	775446	7.69		1.2x10 <sup>8</sup>
Abgabe durch das KKW Mühleberg				
Sedimentatio- nsrate (siehe Abb. 5.2.1.1)	Zeit- abschnitt [1992]	[Bq]		Anteil in Sedimenten [%]
1 cm/75 days	1.8.-14.10.	4.5x10 <sup>9</sup>		2
1cm/45 days	1.9.-14.10.	7.4x10 <sup>8</sup>		13
Einjahresinventar (Sedimentdichte = 1.6 g/m <sup>3</sup> )				
		Sediment- masse [x10 <sup>6</sup> kg/yr]	Sediment- aktivität [Bq/kg]	Gesamt- Aktivität [Bq/yr]
		30	12.5	3.7x10 <sup>8</sup>
		23	4.5	1.0x10 <sup>8</sup>
		42	5	2.1x10 <sup>8</sup>
		95		6.9x10 <sup>8</sup>
Abgabe durch das KKW Mühleberg Oktober 1991 - September 1992 1.1x10 <sup>10</sup> Bq				Anteil in Sedimenten [%] 6

### 5.2.3 Sedimentfallendaten

Zur Kontrolle der durchgeführten Abschätzungen der Radionuklidablagerung im Stausee Niederried wurde im Bereich der Zone 1 (Abb. 5.2.1) ab dem 13.9.94 eine Sedimentfalle aufgestellt. Die in der Falle gesammelten Sedimentproben wurden monatlich untersucht. In Tab. 5.2.3 sind Sedimentationsraten und Sedimentaktivitäten den Abgaben durch das KKW Mühleberg gegenübergestellt. Radionuklidflüsse ( $AF$ ) für Zone 1 werden anhand folgender Gleichung berechnet:

$$AF = \frac{A_{SF} M_{SF}}{F_{SF}} \quad 5.2.3 a$$

$A_{SF}$  stellt die massenbezogene Aktivität der Sedimente aus der Sedimentfalle dar (Bq/kg),  $F_{SF}$  die Gesamtfläche der Sedimentfalle (0.0252 m<sup>2</sup>) und  $M_{SF}$  die

Gesamtsedimentmasse (kg). Eine Abschätzung der Gesamtablagerung ( $A_{ges.}$ ) kann unter Anwendung des folgenden Algorithmus durchgeführt werden:

$$A_{ges.} = \frac{AF}{AZ_1} \sum_{i=1}^3 (F_{Zi} A_{Zi}) \quad 5.2.3 \text{ b}$$

wobei  $A_{Zi}$  die Durchschnittsaktivität der Sedimente in der Vergleichszone (hier Zone 1, Bq/kg),  $A_{Zi}$  ( $i=1-3$  für das Niederried Reservoir) die Durchschnittsaktivität der einzelnen Zonen (Bq/kg) und  $F_{Zi}$  die Fläche ( $m^2$ ) dieser Zonen (siehe Tab. 5.2.2.1) repräsentiert.

Tab. 5.2.3 : Sedimentfallendaten und Berechnung von Radionuklidablagerungen in Sedimenten des Stausees Niederried im Vergleich mit Abgaben durch das Kernkraftwerk Mühleberg. Von  $^{65}Zn$  wurden lediglich Spuren nachgewiesen.

Name	Sammelperiode (S)		Sedimentationsrate		Aktivitäten in Bq/kg				Abgabe KKM ( $\times 10^7$ Bq)	
	Start	Ende	cm/S	cm/a	$^{60}Co$	$2\sigma$	$^{137}Cs$	$2\sigma$	$^{60}Co$	$^{137}Cs$
828_01	13.9.94	29.9.94	1.1	25	15	1	5	1	93.5	3.3
828_02	29.9.94	2.11.94	0.4	4	65	4	15	2	95.2	4.9
828_03	2.11.94	6.12.94	0.3	3	49	3	18	3	377.0	16.2
828_04	6.12.94	22.12.94	0.3	7	47	5	16	5	52.8	2.2
828_05	22.12.94	23.1.95	0.6	7	15	2	14	3	24.2	1.6
828_06	23.1.95	16.2.95	5.5	84	<1		5	1	7.3	0.3
828_07	16.2.95	14.3.95	0.6	8	4	1	5	1	25.9	2.5
828_08	14.3.95	12.4.95	1.1	14	4	1	7	1	24.8	1.2
828_09	12.4.95	11.5.95	1.3	16	10	1	5	1	45.6	0.9
828_10	11.5.95	13.6.95	10	111	4	1	3	1	27.3	1.2
Total	13.9.94	13.6.95	21.2	28					773.6	34.2

Name	Start	Ende	Nuklidflüsse (Bq/m <sup>2</sup> /Tag)		Gesamtsedimentation ( $\times 10^7$ Bq)		Anteil im Sediment (%)	
			$^{60}Co$	$^{137}Cs$	$^{60}Co$	$^{137}Cs$	$^{60}Co$	$^{137}Cs$
828_01	13.9.94	29.9.94	31.3	10.4	16.4	5.5	17	167
828_02	29.9.94	2.11.94	22.7	5.2	25.2	5.8	27	119
828_03	2.11.94	6.12.94	16.8	6.2	18.6	6.8	5	42
828_04	6.12.94	22.12.94	21.3	7.3	11.2	3.8	21	174
828_05	22.12.94	23.1.95	9.6	9.0	10.1	9.4	42	584
828_06	23.1.95	16.2.95	0.0	27.5	0.0	21.6	0	7890
828_07	16.2.95	14.3.95	2.8	3.5	2.4	3.0	9	120
828_08	14.3.95	12.4.95	4.7	8.1	4.4	7.7	18	644
828_09	12.4.95	11.5.95	13.1	6.6	12.5	6.2	27	728
828_10	11.5.95	13.6.95	40.4	30.3	43.6	32.7	160	2679
Total	13.9.94	13.6.95			144.3	102.6	19	300

Besonders zu erwähnen sind die starken Schwankungen in den jährlich gemittelten Sedimentationsraten. Diese variieren zwischen 3 cm/a während November 1994 und 111 cm/a während Mai/Juni 1993. Schwankungen ähnlichen Ausmasses zeichnen die Radionuklidaktivitäten der einzelnen Sedimentproben aus. Für  $^{60}Co$  liegen diese zwischen der Nachweisgrenze von 1 Bq/kg für Januar/Februar 1995 und 65 Bq/kg für Oktober 1994. Eine Analyse der Daten (Tab. 5.2.3) zeigt den wechselnden Einfluss der Abgaben durch das KKW und der Sedimentationsraten. Der saisonale Trend der massenbezogenen Aktivitäten (Bq/kg) spiegelt sowohl die geringeren

Sedimentationsraten der Periode 1 (Herbst/Winter), wie auch der höheren Abgaben wieder. Während der Periode 1 liegen die Sedimentationsraten meistens unter 10 cm/a,

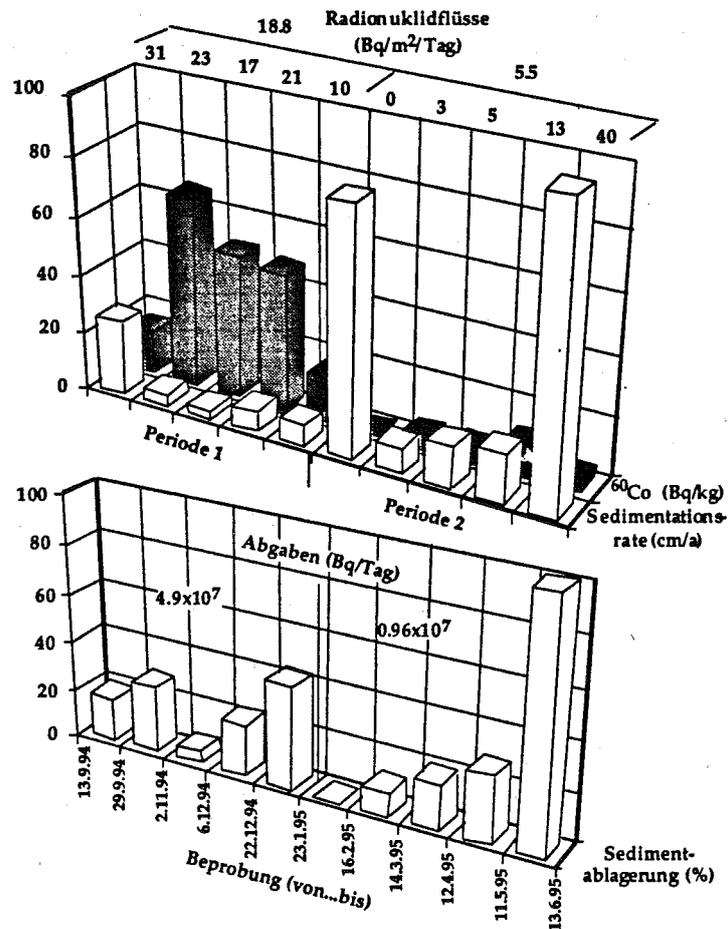


Abb. 5.2.3.1 : Massenbezogene  $^{60}\text{Co}$  Aktivität, Sedimentationsraten und  $^{60}\text{Co}$  Sedimentablagerungen im Stausee Niederried als Funktion der Zeit basierend auf Sedimentfallendaten. Die  $^{60}\text{Co}$ -Ablagerung ist hochgerechnet auf die gesamte Seefläche und verglichen mit Abgaben durch das KKW Mühleberg (Sedimentablagerung in %). Ziffern oberhalb der oberen Graphik geben Radionuklidflüsse (in Bq/m<sup>2</sup>/Tag) für die einzelnen Beprobungsperioden und für jede Periode an, Ziffern in der unteren Graphik informieren über durchschnittliche  $^{60}\text{Co}$  Abgaben des KKW Mühleberg (in Bq/Tag) während der beiden Periode.

wohingegen sie während der Periode 2 (Frühjahr/Sommer) deutlich höher liegen. Die Berechnung der  $^{60}\text{Co}$  Sedimentablagerungen (unterer Graph der Abb. 5.2.3.1) berücksichtigt sowohl Änderungen der Sedimentationsraten, wie auch monatliche Abgaben durch das Kernkraftwerk. Saisonal bedingte Variationen in den Radionuklidablagerungen sind hier nicht mehr zu erkennen.

Die zuletzt gehobene Probe (11.5 bis 13.6.95) gestattet eine kritische Evaluation von Sedimentfallendaten. Während dieser Periode wurden eine Gesamtablagerung von 160% für  $^{60}\text{Co}$  modelliert. Dies zeigt deutlich die Überschätzung der auf Sedimentfallen basierenden Sedimentationsbestimmungen. Die auf Sedimentfallendaten

beruhende jährliche Sedimentationsrate beträgt 28 cm/a, während Abschätzungen basierend auf Sedimentkernen um den Faktor 3 niedriger liegen (8-12 cm/a). Diese Unterschiede beruhen auf dem Sedimentfallendesign, die eine Erosion abgelagerter Partikel verhindert. Während der Sedimentation in den Fallen muss es ebenfalls zur Ablagerung von wiederaufgearbeiteten (resuspendierten) Partikeln kommen, die  $^{60}\text{Co}$  führen, welches zu früheren Zeitpunkten von KKW abgegeben wurde. Von daher handelt es sich sowohl bei den Sedimentationsraten, wie auch bei den Abschätzungen der Gesamtrationuklidablagerungen um Überschätzungen. Für  $^{60}\text{Co}$  wurde der Anteil des im Sediment abgelagerten  $^{60}\text{Co}$  auf 19% modelliert. Da jedoch die Sedimentationsraten in den Fallen um einen Faktor 3 höher liegen, muss dieser Wert um den entsprechenden Faktor reduziert werden. Der Wert von 6 % liegt im gleichen Rahmen unabhängig ermittelter Abschätzungen (Durchbruchkurven, < 10%, Abschnitt 3.2; Sedimentkerne, 3-13 %, Abschnitt 5.2.2 ).

Für  $^{137}\text{Cs}$  zeigt sich auch hier deutlich, dass das KKW Mühleberg im Vergleich zu Ablagerungen, die mit den atmosphärischen Atombombenversuchen bzw. dem Tschernobylunfall in Verbindung stehen, eine untergeordnete Rolle spielt. Insgesamt wurde dreimal mehr  $^{137}\text{Cs}$  in den Sedimenten von Niederried modelliert, als durch das KKW in dieser Zeitspanne abgegeben wurde.

### 5.3 Klingnauer Stausee

Der Klingnauer Stausee (Abb. 5.3.1 ) liegt 4 bis 7 km unterhalb des Kernkraftwerks Beznau. Seit dem Aufstau 1935 verlandet die linke Seebucht und ist heute grösstenteils nur noch wenige Zentimeter tief. Unterhalb der Brücke in Kleindöttigen hat sich die Vegetation langsam flussabwärts ausgebreitet. Zwischen dem durch starke Strömung charakterisierten Flussbett ( $\sim 1\text{m/s}$  bei  $690\text{ m}^3/\text{s}$  Abfluss) und der zunehmend verlandeten Bucht befindet sich eine Schwelle, die den Wasseraustausch erschwert und gleichzeitig zu hydraulisch niedrigeren Energieniveaus führt. Dies verursacht zum einen die Ablagerung selbst feiner, toniger Partikel und erschwert Resuspensions- und Erosionvorgänge in dieser Zone. Zum Vergleich dieser Zonen wurden am 27. Oktober 1994 im Klingnauer Stausee Sedimentkerne im Ruhigwasserbereich und im strömungszugeneigten Schwellenhang gezogen. Wie in den vorhergehenden Sedimentkernen wurde auch hier versucht mittels der Tiefenverteilung der Caesiumradionuklide eine Altersdatierung zu erstellen (Abb. 5.3.2 ). Die  $^{137}\text{Cs}$  Tiefenverteilung im Kern KL-94-3 zeigt einen rapiden Anstieg von 50 bis 260 Bq/kg, gefolgt von einem graduellen Abklingen auf ein heutiges Niveau von 60 Bq/kg. Die beiden Kerne aus dem hydrodynamisch energetischeren Bereich (KL-94-8,10; nicht dargestellt, siehe Anhang A2-b) zeigen zwar immer noch  $^{137}\text{Cs}$  Maxima, die mit dem

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

1986er Tschernobylunfall korreliert werden können, die Gesamtaktivitäten sind jedoch deutlich niedriger und die Maxima nur geringfügig oberhalb des Hintergrunds.

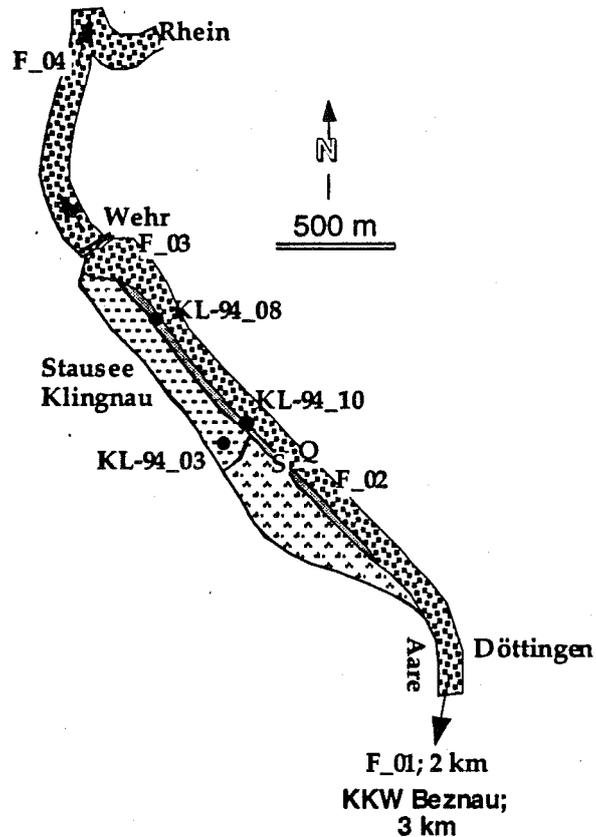


Abb. 5.3.1 : Aareabschnitt zwischen der Brücke bei Döttingen unterhalb des KKW Beznau und der Rheinmündung. Innerhalb des Klingnauer Stausees können 3 Zonen unterschieden werden: eine Zone hoher Fließgeschwindigkeiten, eine Ruhigwasserzone und eine Schwelle, bzw. Randzone intermediärer, stark wechselnder Hydrodynamik. Angegeben sind Lokalisationen der Kernstechung der Sedimente (KL), der Sedimentfalle (S), der Querprofile (Q) und der In-Situ Filtration (F).

Im Kern KL-94-10 existiert ein noch recht markanter Maximalwert von 70 Bq/kg, der nach einer Prä-Tschernobylaktivität von 6 Bq/kg deutlich das 1986 Ereignis archiviert. Im Kern KL-94-8 ist trotz eines Maximums von 10 Bq/kg eine klare Zuordnung zum Tschernobylunfall nicht möglich, da ein kontinuierlicher Aktivitätsanstieg von 1 auf 10 Bq/kg während einer Depositionsperiode von 8 cm verlief. Anhand dieser Tschernobyl-Maxima können Sedimentationraten bestimmt werden. Für den Kern aus der Ruhezone berechnet sich eine Sedimentationrate von 13.5cm/8a, also 1.7 cm/a, für die Kerne der Randzone 15cm/8a, demzufolge 1.9 cm/a. Die Sedimentkerne des Klingnauer Stausees zeigen deutliche lokal bedingte Aktivitätsvariationen. Der Aktivitätsrückgang, das Verwischen des Tschernobylmaximums und die z.T. hohen Posttschernobyl <sup>137</sup>Cs-Aktivitäten dienen erneut als Beispiel für flussdominierte Ablagerungsbedingungen.

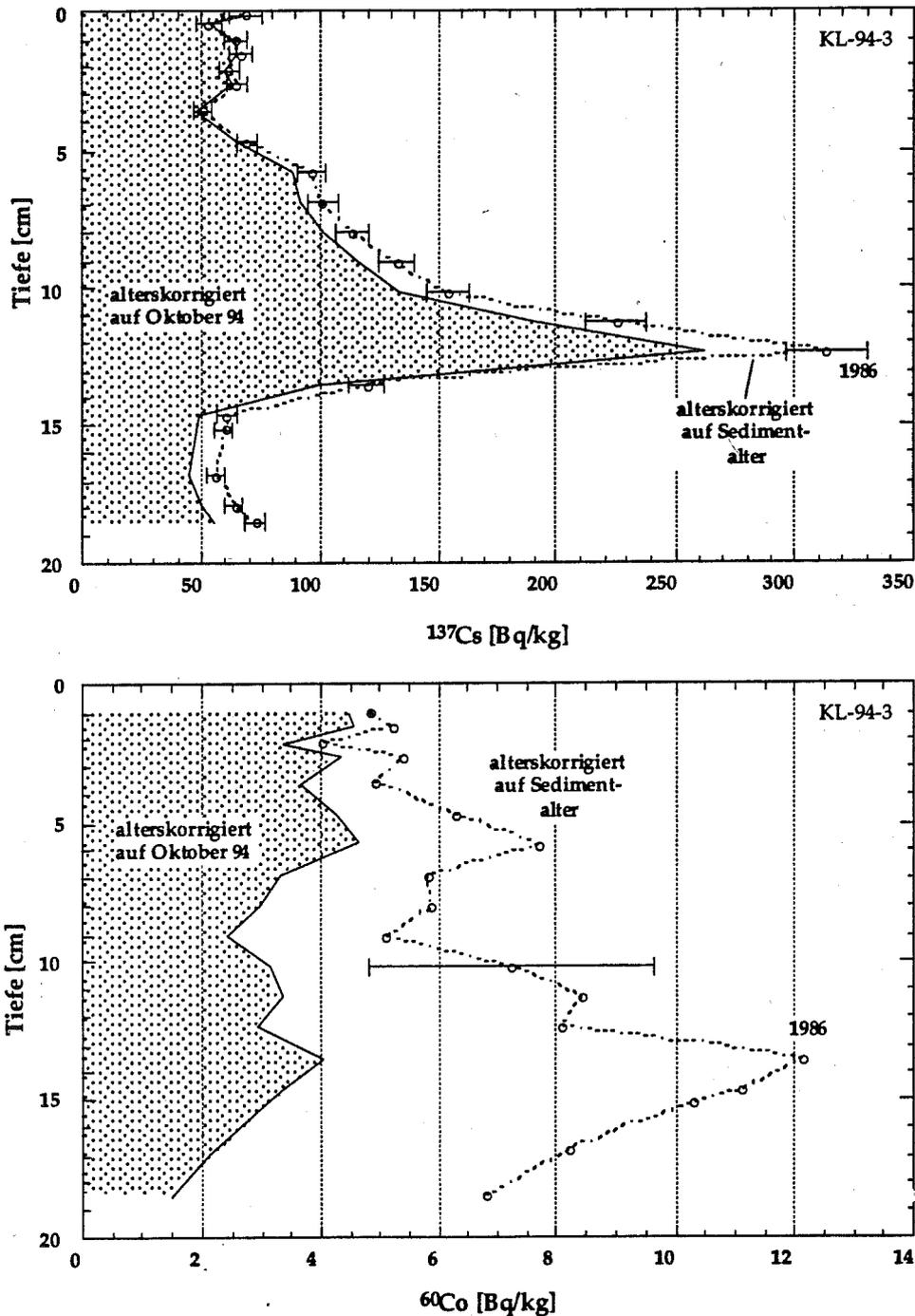


Abb. 5.3.2: Tiefenverteilung der Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$  (a) und  $^{60}\text{Co}$  (b) im Kern KL-94-3 des Klingnauer Stausees (Abb. 5.3.1). Durchgezogene Linien mit punktierter Untergrundfläche zeigen die massenbezogenen Aktivitäten korrigiert auf das Datum der Sedimentstechung. Die punktierte Kurve (mit offenen Kreisen und  $2\sigma$  Messfehlern) gibt Aktivitäten korrigiert auf das Sedimentationsalter an

Obwohl  $^{137}\text{Cs}$  auch vom KKW Beznau abgegeben wird, kann davon ausgegangen werden, dass die hier gemessenen Aktivitäten hauptsächlich dem Fallout von Tschernobyl zuzuordnen sind. Dies zeigen schon die deutlich niedrigeren Aktivitäten vor 1986. Eine Anschlussfrage nach der Sedimentbelastung durch  $^{60}\text{Co}$ ,

bzw.  $^{58}\text{Co}$  kann mit Hilfe der Sedimentkerne beantwortet werden. Auch für  $^{60}\text{Co}$  zeigt sich eine Korrelation mit der Sedimentlokalität, der Hydrodynamik, bzw. der Korngrösse. Im Kern der Ruhigwasserzone (KL-94-3) konnte  $^{60}\text{Co}$  auf der Gesamtlänge des Kerns nachgewiesen werden. Aktivitäten, die auf den 27.10.94, dem Datum der Kernziehung korrigiert sind, zeigen eine recht stabile Tiefenvariation.  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten, welche auf den Zeitpunkt der Ablagerung zerfallskorrigiert sind, zeigen jedoch deutlich, dass im Laufe der letzten 10 Jahre der sedimentär gebundene Radiokobaltanteil zurückgegangen ist. In den Kernen der Flussbettrandzone konnte nur sporadisch  $^{60}\text{Co}$  nachgewiesen werden.  $^{58}\text{Co}$  tritt ebenfalls nur in selteneren Fällen auf. Eine mögliche Korrelation der  $^{60}\text{Co}$  Tiefenverteilung mit Abgaben des KKW Beznau wird im Abschnitt 5.4. zusammen mit der Auswertung des Kerns vom Stausee Augst diskutiert.

Zur Kontrolle der niedrigen Radionuklidablagerungen wurde auch im Bereich des Klingnauer Stausees eine Sedimentfalle aufgestellt (Abb. 5.3.1). Die in Tab. 5.3.1 zusammengefassten Daten untermauern die Ergebnisse der Sedimentkernanalyse. In den mittels Sedimentfallen gesammelten Proben lagen die gemessenen Aktivitäten von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  unterhalb der Messgrenze, dies trotz der vom KKW Beznau in den Zeiträumen der Beprobung durchgeführten Abgaben. Beim abgelagerten  $^{137}\text{Cs}$  dürfte es sich -wie bei den Sedimentablagerungen- um umgelagerte Tschernobylablagerungen handeln.

Tabelle 5.3.1 : Zusammenfassung von Sedimentationsraten und Sedimentablagerungen im Stausee Klingnau basierend auf Sedimentfallendaten

Name	Sammelperiode (S)			Sedimentationsrate		Aktivitäten in Bq/kg			Abgaben KKW Beznau ( $\times 10^7$ Bq)		
	Start	Ende	Tage	cm/S	cm/a	$^{60,58}\text{Co}$ $^{54}\text{Mn}$	$^{137}\text{Cs}$	$2\sigma$	$^{54}\text{Mn}$	$^{60}\text{Co}$	$^{137}\text{Cs}$
808_01	16.2.95	14.3.95	26	2.8	39	<1	8.5	1	1.6	96.7	5.7
808_02	14.3.95	12.4.95	29	2.3	29	<1	11.7	1	2.7	51.7	18.1
808_03	12.4.95	11.5.95	29	3.4	43	<1	7.8	1	1.1	20.2	28.1
808_04	11.5.95	13.6.95	33	13	144	<1	5.0	1			
Total	16.2.95	13.6.95	117	21.5	67						

### 5.3.1 Partikelkorngrössen und organischer Anteil

Wie für den Aarebereich unterhalb Mühleberg bereits diskutiert wurde, zeigt die Aare merkliche jährliche Schwankungen. Diese zeigt sich sowohl in den Abflussmengen und der damit zusammenhängenden Partikelfracht, als auch im Anteil biologischer Feststoffe. Korngrösse, Mineralzusammensetzung und biologischer Anteil der Partikelfracht beeinflussen das Adsorptionsverhalten von Radionukliden (Kapitel 8). Damit Tiefenvariationen in einem Sedimentkern zur Rekonstruktion von Kernkraftwerksabgaben herangezogen werden können, müssen saisonale

Schwankungen in Partikelgrösse und -zusammensetzung analysiert werden. Zu diesem Zweck sollen hier die Korngrösse und der Anteil von Stickstoff dienen. Die Korngrösse birgt indirekte Informationen bezüglich der Mineralzusammensetzung. Eine Korngrössenabnahme gibt Hinweise auf höhere Anteile feinkörniger, toniger Minerale, dagegen gibt eine Korngrössenzunahme einen höheren Anteil von Mineralien wie Kalzit, Feldspat oder Quarz an. Eine Abnahme der Korngrösse bedeutet im Normalfall eine wirkungsvollere Radionuklidadsorption. Der Einfluss biologischer Partikel auf das Adsorptionsverhalten von Metallen (Radionukliden) ist unumstritten (Morel und Hudson, 1985) Details sollen in Kapitel 8 diskutiert werden. Da es zu markanten saisonalen Änderungen in der Biomasse (siehe Bielersee) kommt, muss deren Einfluss bei der Interpretation von Radionuklidtiefenverteilungen im Sediment evaluiert werden. Hier geht es um die Veränderung des organischen Anteils mit der Tiefe im Sediment und in wieweit saisonale Schwankungen erkennbar sind. Als Beispiel soll der Kern KL-94-3 herangezogen werden (Abb. 5.3.1.1), da hier die Sedimentation ungestört ablief. Die Korngrösse wurde bis zu einer Tiefe von 18 cm (entspricht 1983) gemessen, Stickstoff lediglich bis zu einer Tiefe von 2.5 cm (Sommer 1993). Der Median des Partikeldurchmessers variiert mit der Tiefe zwischen 5.5 und 8.5  $\mu\text{m}$ . Die markante Zunahme von 7 auf 8.5  $\mu\text{m}$  im Sommer 1993 zeichnet eine Hochwasserperiode nach. Ein weiterer markanter Anstieg spiegelt Ereignisse der Jahre 1983-1985 wieder. Darauf folgend kam es zur Ablagerung feinerer Partikel mit einem Korngrössenminimum um 1985/86. Die Bedeutung dieses Korngrössenminimums zeigt sich bei einem Vergleich mit der Radionuklidtiefenverteilung (Abb. 5.3.2), da es mit dem  $^{60}\text{Co}$  Maximum korreliert. Erneut zeigt sich die Schwierigkeit, die Einflüsse sedimentologischer Faktoren (z.B Änderung der Korngrösse) von Veränderungen der KKW-Abgaben zu trennen. Der Sedimentkern des geschützten Beckens des Klingnauer Stausees spiegelt zwar grössere Hochwasserereignisse wieder, er erlaubt jedoch nicht, saisonale Veränderungen zu erkennen. Obwohl der Stickstoffgehalt der Sedimentproben nur in den obersten Schichten gemessen wurde, kann eine Analogie zu anderen Sedimentkernen (Abb. 5.4.1.1) erkannt werden. Der Stickstoffgehalt hat ein deutliches Maximum in den jüngsten Sedimentlagen. Nach einer deutlichen Abnahme, bleibt die N-Konzentration im Kern in etwa konstant. Die Abnahme innerhalb der ersten cm basiert auf Oxidation und Rücklösung von organischem Material (Håkanson und Jansson, 1983). Die Bedeutung dieses Rücklösungsprozesses für adsorbierte Radionuklide wird im Kapitel 8 genauer diskutiert.

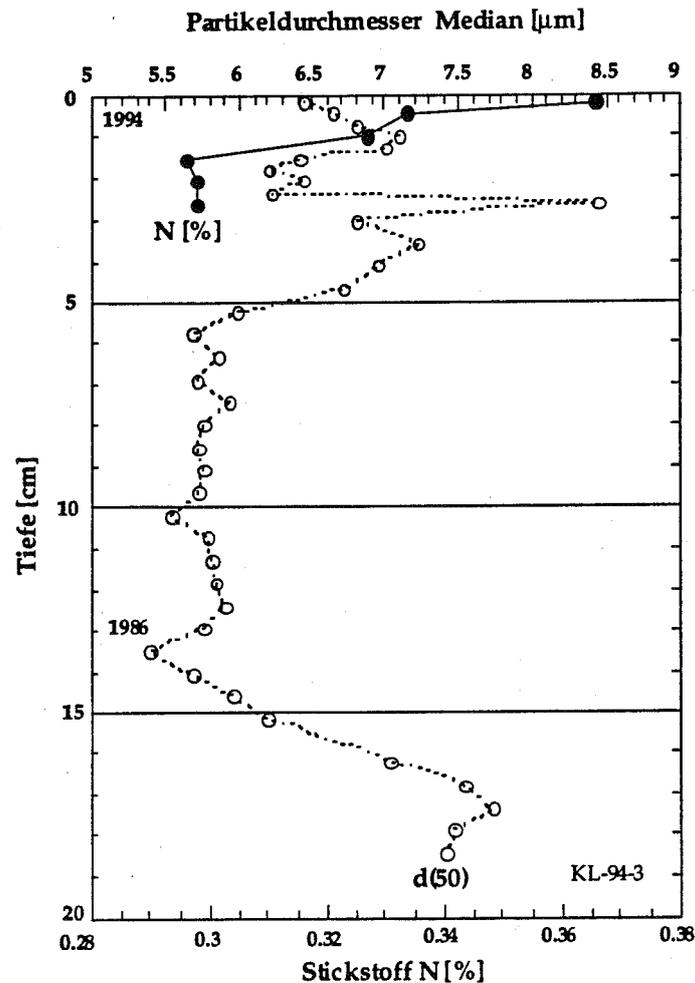


Abb. 5.3.1.1: Variation von Stickstoff und Korngrösse im Kern KL-94-3 aus dem Stausee Klingnau.

## 5.4 Rhein Todarm bei Augst

Als Vergleich wird neben dem Stausee Klingnau eine weiter entfernt liegende Lokalität herangezogen. Zu diesem Zweck wurde in einer Rheinstaufe bei Augst (Abb. 1.1) am 5. Mai 1995 ein Sedimentkern gestochen. In diesem Kern wurde neben  $^{137}\text{Cs}$  ebenfalls  $^{60}\text{Co}$  nachgewiesen (Abb. 5.4.1). Die Aktivitäten sind auf den Tag der Kernstechung und den Zeitpunkt der Sedimentation alterskorrigiert. Die  $^{137}\text{Cs}$  Tiefenverteilung ist von besonderem Interesse, da sie zur Datierung herangezogen werden kann (Abb. 5.4.1 a). Der Tschernobyl-bezogene Anstieg der Radioaktivität beginnt in einer Tiefe von 16 cm sehr scharf mit einem Anstieg von 90 auf 330 Bq/kg. Die Aktivitätsabnahme in jüngeren Sedimentschichten ist zuerst stufenförmig, sie nimmt dann zunehmend kontinuierlich ab, um die heutige  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität von 75 Bq/kg zu erreichen. Vor 1986 treten im Kern 3 zusätzliche  $^{137}\text{Cs}$  Maxima auf, von denen der tiefere mit den atmosphärischen Atombombenversuchen (Maximum 1963) im Zusammenhang steht.

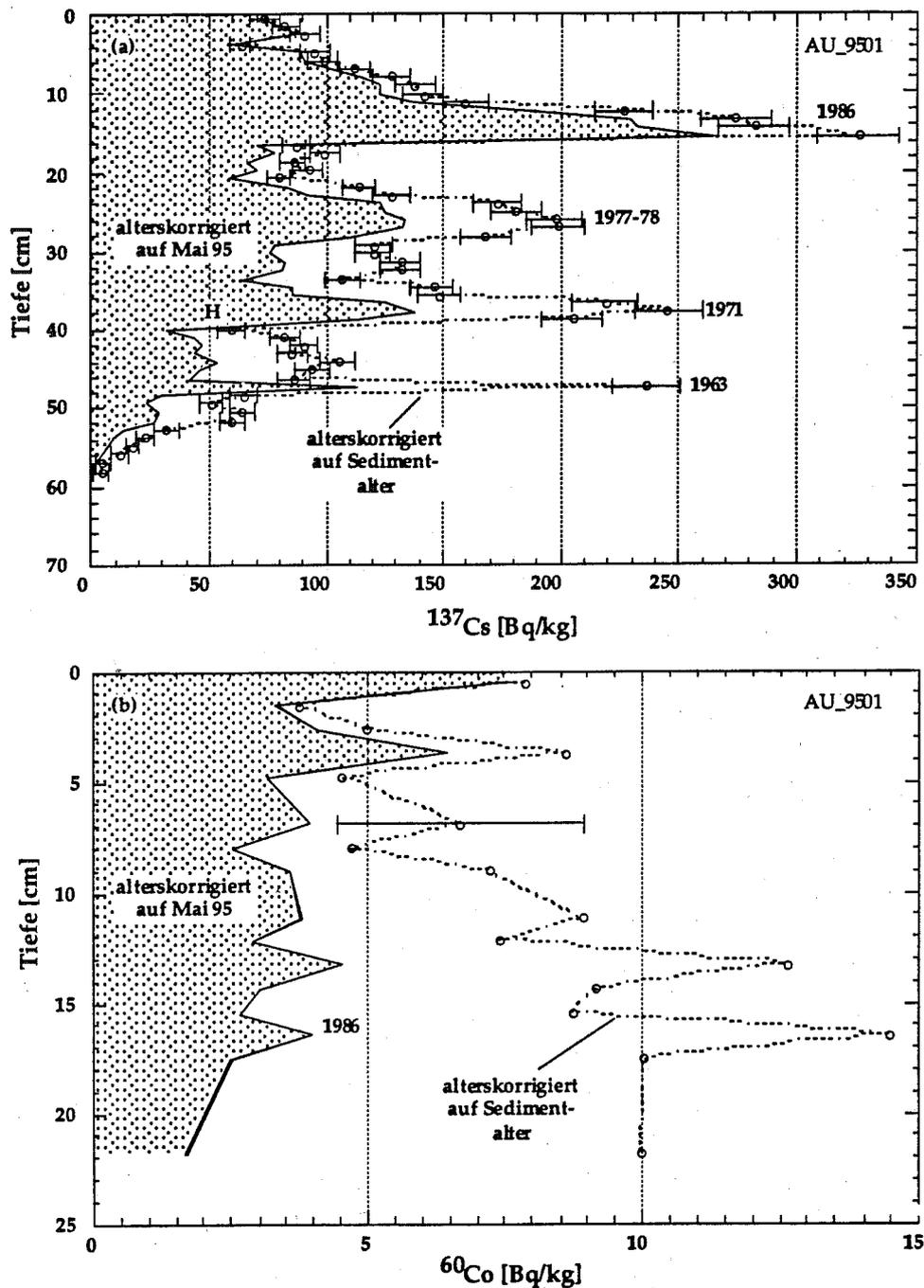


Abb. 5.4.1 : Tiefenverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  (a) und  $^{60}\text{Co}$  (b, jeweils mit  $2\sigma$  Messfehler) im Sedimentkern der Staustufe Augst. Zu erkennen sind die Aktivitäten korrigiert auf den Zeitpunkt der Beprobung (Mai 1995) und auf das Sedimentalter.

Aufgrund der - unter Benutzung der Tschernobyl- und Bombenmaxima - berechneten Sedimentationsraten von 1.8 cm/a für die Periode 1986-1995, und 1.4 cm/a für 1963-1986, lassen sich die zusätzlichen Maxima auf 1971 und 1977/78 datieren. 1971 sind im KKW Beznau ca.  $3\text{m}^3$  kontaminiertes Wasser aus einem Sammel-tank ausgelaufen und in den Boden versickert. Das Erdreich ist dann ausgebagert und als bilanzierte Abgabe in die Aare entsorgt worden. Ein Teil dieses Bodens kam im Stausee

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Augst zur Ablagerung und erklärt die erhöhte  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität. Ob bei diesem Vorkommnis ebenfalls andere Radionuklide wie  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  oder  $^{65}\text{Zn}$  in die Aare geleitet wurden, kann in den Sedimenten messtechnisch nicht mehr festgestellt werden, da diese Aktivitäten aufgrund ihrer kurzen Halbwertszeiten abgeklungen sind. Das zweite zusätzliche Maximum, welches etwa um 1977/78 liegt, bedarf noch weiterer Abklärung.

Ablagerungen von  $^{60}\text{Co}$  (Abb. 5.4.1 b) im Bereich des Stausees Augst sind gering. Die höchsten gemessenen Aktivitäten befinden sich in den jüngsten Sedimenten mit 8 Bq/kg. Aktivitäten korrigiert auf den Zeitpunkt der Sedimentablagerung zeigen ein Maximum etwa um 1986, was jedoch nicht mit den Abgaben von  $^{60}\text{Co}$  durch das KKW Beznau korreliert. Aufgrund der hohen Messfehler ist eine vertiefte Interpretation der  $^{60}\text{Co}$  Ablagerungen kritisch. Es soll jedoch darauf hingewiesen werden, dass die alterskorrigierten  $^{60}\text{Co}$  Tiefenverteilungen von Augst und Klingnau nahezu identisch sind.

Tab. 5.4.1 : Abschätzung der jährlichen  $^{137}\text{Cs}$  Abgaben durch das Kernkraftwerk Beznau während der Perioden 1970/71 und 1977/78 unter Benutzung von Sedimentkerndaten aus der Rheinstaufstufe bei Augst.

Sedimentkern Rhein Staustufe Augst 5.5.1995									
Sedimentationsraten:		1995-1986: 1.71 cm/a			1986-1963: 1.39 cm/a				
Probe	Tiefe [cm]		Alter [Datum]		Cs- $^{137}$ [Bq/kg]				
Nr.	oben	unten	oben	unten	*	**	***		
Ende Vergleichsperiode									
18	18.1	19.1	22.10.84	16.1.84	66.0	85.6	25.6	Abgabe KKW Beznau	
19	19.1	20.2	16.1.84	11.4.83	70.0	92.4	32.4	1982-1984 incl.	
20	20.2	21.3	11.4.83	5.7.82	59.2	79.6	19.6	4.1x10 <sup>10</sup> Bq	
21	21.3	22.3	5.7.82	28.9.81	83.6	114.3	54.3	1.3x10 <sup>10</sup> Bq/Jahr	
Beginn Vergleichsperiode				1120 Tage			0.03	Durchschnitt [Bq/kg/Tag]	
Ende erhöhter Abgabe 1977/78									
23	23.4	24.5	22.12.80	17.3.80	122.6	173.7	113.7		
24	24.5	25.5	17.3.80	11.6.79	125.5	181.0	121.0	Modellabgabe KKB	
25	25.5	26.6	11.6.79	4.9.78	134.3	197.1	137.1	März 77-März 80	
26	26.6	27.6	4.9.78	28.11.77	133.0	198.7	138.7	4.0x10 <sup>10</sup> Bq/Jahr	
27	27.6	28.7	28.11.77	21.2.77	110.5	168.0	108.0		
Beginn erhöhter Abgabe 1977/78				1400 Tage			0.09	Durchschnitt [Bq/kg/Tag]	
Ende erhöhter Abgabe 1970/71									
33	34.0	35.1	22.4.73	16.7.72	86.2	145.8	85.8		
34	35.1	36.2	16.7.72	10.10.71	86.1	148.2	88.2	Modellabgabe KKB	
35	36.2	37.2	10.10.71	3.1.71	125.0	218.9	158.9	July 69-April 73	
36	37.2	38.3	3.1.71	29.3.70	137.8	245.6	185.6	4.3x10 <sup>10</sup> Bq/Jahr	
37	38.3	39.3	29.3.70	22.6.69	112.9	204.8	144.8		
Beginn erhöhter Abgabe 1970/71				1400 Tage			0.09	Durchschnitt [Bq/kg/Tag]	

korrigiert auf Datum der Kernstechung (\*) bzw. Sedimentalter (\*\*)

\*\*\* Altlast Atombombencaesium = 60 Bq/kg (Nr. 38)

Die Abwässer des KKW Beznau wurden in den 70er Jahren noch nicht  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen. Aus diesem Grund liegen keine Informationen über die

Abgaben individueller Nuklide vor. Es besteht allerdings die Möglichkeit, anhand der Sedimentaktivitäten einen Vergleich mit späteren Abgabeperioden durchzuführen. Berechnungen für die beiden Maxima 1970/71 und 1977/78 sind in Tab. 5.4.1 zusammengefasst. Als Vergleichsperiode mit bekannten  $^{137}\text{Cs}$  Abgaben durch das Kernkraftwerk wurde der Zeitabschnitt 1982-1984 gewählt. Die Ermittlung der Abgaben in den 70er Jahren basieren auf einer Amplitudenmessung der im Kern gemessenen massenbezogenen Aktivitäten. Dabei muss davon ausgegangen werden, dass das Adsorptionsverhalten (und damit die Partikelfracht), wie auch die Sedimentationsraten für die fraglichen Zeitabschnitte und die Vergleichsperiode ähnlich sind. Eine vom KKW unabhängige Hintergrundaktivität, die durch Transport und Ablagerung von Atombomben- $^{137}\text{Cs}$  erklärt wird, ist im Kern von Augst durch die Probe Nr. 38 archiviert (Fig. 5.4.1 ; Tabelle in Anhang). Diese Probe ist weder durch KKW-Abgabe, noch durch Tschernobylcaesium affektiert und gibt ein Minimum nach 1963 von 60 Bq/kg wieder. Während der Vergleichsperiode von 1982-84 fand eine tägliche Ablagerung von 0.03 Bq/Kg statt. Diese berechnet sich durch Division der altlastkorrigierten, durchschnittlichen  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität (33 Bq/kg) mit Länge der Vergleichsperiode (1120 Tage). Die Abgaben durch das KKW Beznau betragen während dieser Periode  $4.1 \times 10^{10}$  Bq oder  $1.3 \times 10^{10}$  Bq/Jahr. Im Vergleich dazu stiegen die täglichen Ablagerungen während 1970/71 und 1977/78 auf 0.09 Bq/kg an, was zur Berechnung jährlicher Abgaben durch das KKB von  $4.3 \times 10^{10}$  Bq, bzw.  $4.0 \times 10^{10}$  Bq für diese Zeiträume führt.

#### 5.4.1 Partikelkorngrößen und organischer Anteil

Die Verteilung von Stickstoff verdeutlicht auch im Kern des Stausees Augst Variationen im organischen Anteil. Der Tiefenverlauf ist ähnlich dem in Klingnau; ein Maximum von 0.35% in den jüngsten Schichten, eine Abnahme mit der Tiefe hin zu einem in etwa stabilen Wert von 0.25% (Abb. 5.4.1.1). Im Bereich der erhöhten  $^{60}\text{Co}$  Ablagerungen (um 1986) ist dieser stabile Wert erreicht. Die Korngrößenverteilung der Augster Sedimente zeigen, ähnlich wie Sedimente im Stausee Niederried (Abschnitt 5.2), saisonale Variationen. Während der Sommerhochwassersituation kommen zunehmend grobe Partikel zur Ablagerung, was einen Anstieg des Partikeldurchmessers zur Folge hat. Während der Wintermonate, reversiert sich die Situation und feinere Partikel gelangen zur Ablagerung. Diese Korngrößenvariationen gestatten -unabhängig vom  $^{137}\text{Cs}$ - eine Sedimentationsratenbestimmung. Zwischen den Ablagerungen des Winters 90/91 und dem Zeitpunkt der Kernstechung Mai 1995 wurden 10cm Sediment abgelagert; dies entspricht einer Sedimentationsrate von 2.2cm/a. Dies stimmt mit der Sedimentationsrate von 1.8cm/a ermittelt durch Tschernobyl- $^{137}\text{Cs}$  in etwa überein. Die markante Korngrößenabnahme zwischen 1992 und 1993 muss mit lokalen Abflussbedingungen zusammenhängen, die hier nicht näher eruiert werden sollen.

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Diese saisonalen Schwankungen spiegeln sich in den Radionuklidtiefenprofilen wieder, was die Bedeutung der Korngrösse bei Adsorptionsprozessen untermauert.

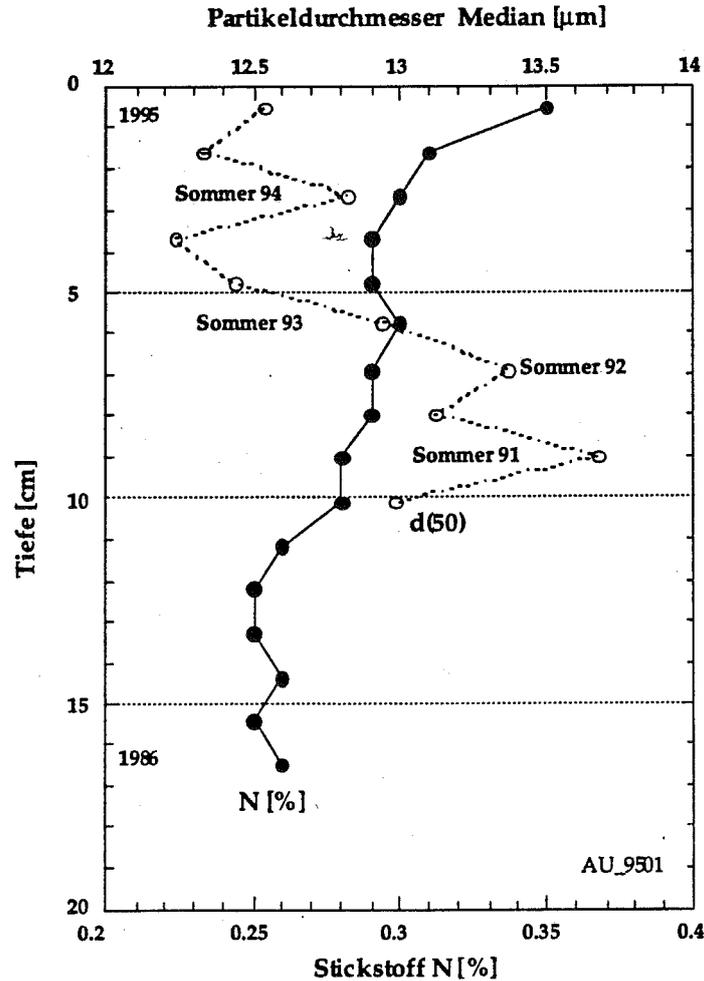


Abb. 5.4.1.1 : Verteilung von Stickstoff und Variation der Korngrösse mit der Tiefe im Sedimentkern der Staustufe Augst.

### 5.5. Bielersee

Wie im Wohlensee (Abschnitt 5.1) können die  $^{137}\text{Cs}$  Maxima von 1963 (atmosphärische Atombombenversuche) und 1986 (Tschernobyl Unfall) zur Datierung von Sedimentkernen herangezogen werden. Diese Datierung gestattet es, den zeitlichen Verlauf des Eintrags anthropogener Substanzen auch für den Bielersee zu bestimmen. Neben der chronologischen Betrachtung interessieren die seeinternen Prozesse, die die Stoffablagerung in Seesedimenten kontrollieren. Die zeitliche Variation der Radionuklidablagerung im Bielersee soll mit der Fragestellung nach den Transfermechanismen gekoppelt werden. Das Augenmerk gilt dabei den Radionukliden  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ , welche vom Kernkraftwerk Mühleberg in gelöster Form an die Aare abgegeben werden und welche in Bielerseesedimenten nachgewiesen werden können. Dieser Radionuklidanteil verteilt sich auf 4 Zonen (Abb. 5.5.1). Zone

1 bildet den Einflussbereich des Aaredeltas, Zone 2, 3 und 4 jeweils das NE, SE und SW Becken (Weiss, 1977).

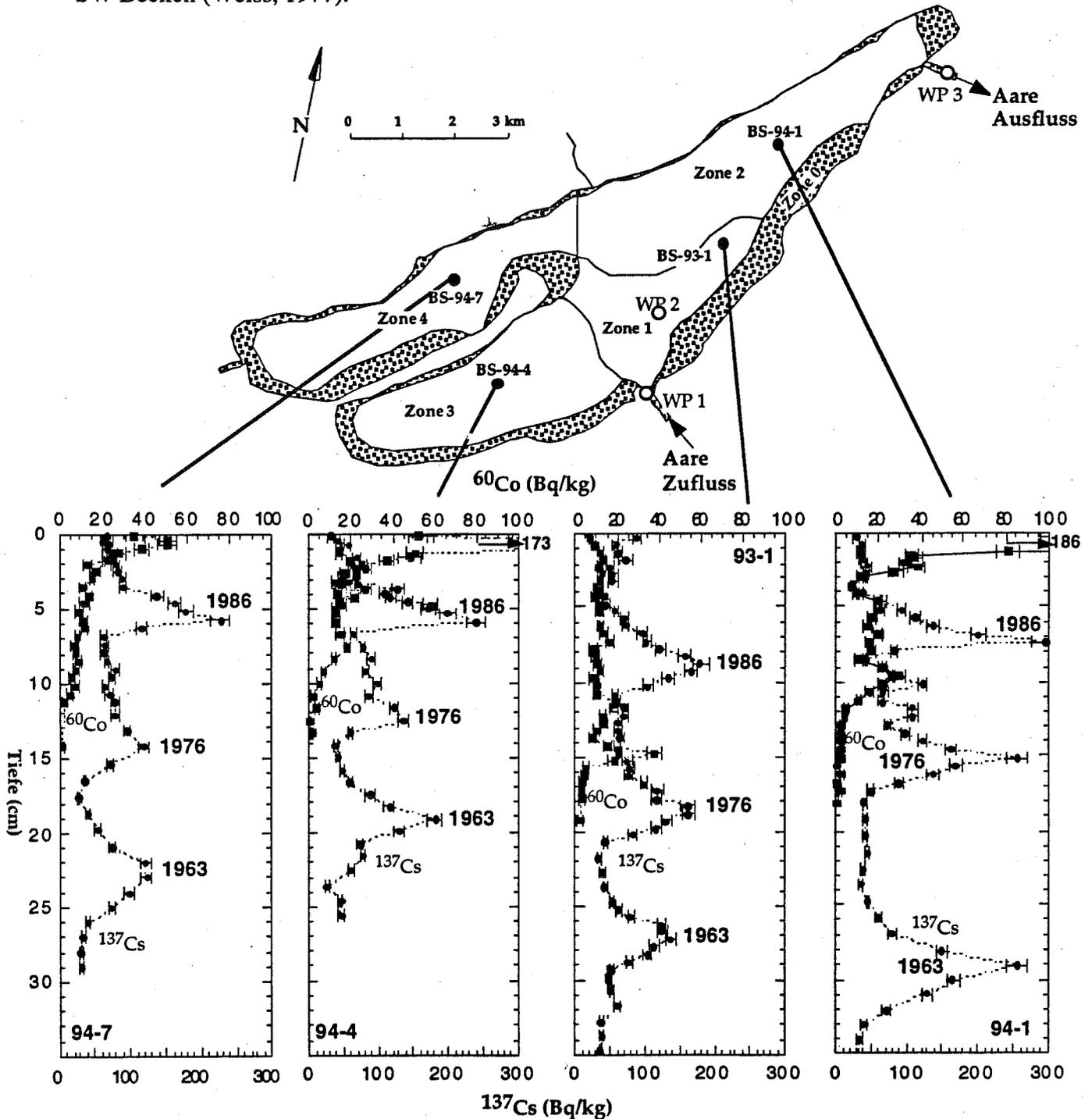


Abb. 5.5.1 : Karte des Bielersees mit Zoneinteilung und Angabe alle Probenlokalitäten (gefüllte Kreise = Sedimentkerne, WP = Ort der Wasserprobenahme). Die angegebenen Tiefenprofile zeigen die Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$  (gefüllte Kreise) und  $^{60}\text{Co}$  (gefüllte Quadrate) in den Sedimenten (korrigiert auf den Tag der Kernziehung). Die Präsenz von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  (Maximum 1976) informiert über die Verteilung dieser Radionuklide im gesamten See.

In der Zone 0, der Randzone des Sees, kommt es zum steten Wechsel von Sedimentation und Erosion. Da sich diese Prozesse hier in etwa die Waage halten

kommt es nicht zu einer bleibenden Radionukliddeposition. Wir konnten nachweisen, dass mehr als 90% des vom KKM abgegebenen  $^{60}\text{Co}$  den Bielersee erreicht, wovon bis zu 80% in gelöster Form vorliegen (Albrecht et al., 1995a,b). Es gibt Hinweise darauf, dass diese Situation für die übrigen Radionuklide ähnlich ist, obwohl eine Detailstudie wegen der hohen Hintergrundbelastung ( $^{137}\text{Cs}$ ) bzw. wegen geringer Konzentrationen ( $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ) nicht möglich ist. Das Auftreten von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Sedimenten zeigt die Bedeutung des Radionuklidtransfers von der Wassersäule in die Sedimente.

### 5.5.1 Radionuklidtransport im Bielersee

Da mit Ausnahme von  $^{137}\text{Cs}$  alle Radionuklide ausschliesslich durch die Aare in den See transportiert werden, ist ein Verständnis der Einmischung des Aarewassers in den See essentiell. Während der Warmperiode (etwa Mitte April bis Mitte Oktober) erreicht die oberste Seeschicht (Epilimnion) 15-25°C und liegt über dem ~ 5°C kalten und somit dichteren Hypolimnion. Da die Aaretemperatur (und damit die Dichte) im Sommer ähnlich der Temperatur des Epilimnions ist, mischt sich die Aare in der obersten Seeschicht ein und verbleibt verhältnismässig kurz im Bielerseebecken, da es zwischen der Mündung bei Hagneck und dem Ausfluss bei Biel zu einem Kurzschluss kommt (Abb. 5.5.1). Die Minimalaufenthaltszeit des Aarewassers berechnet sich aufgrund des geschätzten Durchflussvolumens von  $1.4 \times 10^8 \text{ m}^3$  (9km lang, 1km breit, 15m tief) und eines durchschnittlichen Aareabflusses von 235  $\text{m}^3/\text{s}$  auf 6-7 Tage. Basierend auf dieser Abschätzung wurde koordiniert mit dem KKW Mühleberg am 9.9.93 eine Abgabe radioaktiver Substanzen ausgenutzt, um den Aaredurchfluss durch den Bielersee zu verfolgen. Die Radionuklide erreichten den Bielersee in der Nacht vom 9.9 auf den 10.9.93. Eine Radionuklidmessung in der Aare bei Hagneck (Wasserprobenahme - WP1 - Abb. 5.5.1) ergab eine  $^{60}\text{Co}$  Aktivität von 11.2  $\text{Bq}/\text{m}^3$ . Am 10.9. wurden im See nördlich der Aaremündung (WP2) Messungen auf unterschiedlicher Tiefe durchgeführt und ein Maximalwert von 1.7  $\text{Bq}/\text{m}^3$  in einer Tiefe von 15 m festgestellt. Zur gleichen Zeit wurde beim Aareausfluss bei Biel (Aare Output - WP3) eine Hintergrundaktivität von 0.09  $\text{Bq}/\text{m}^3$  gemessen. An der gleichen Stelle stieg die  $^{60}\text{Co}$  Aktivität am 15.9.93 auf 3.9  $\text{Bq}/\text{m}^3$  an. Diese Feldmessungen untermauern die seephysikalischen Messergebnisse. Ein beträchtlicher Teil der Aare verlässt während der Periode stabiler Schichtung nach einer Aufenthaltszeit von nur 6-7 Tagen den Bielersee.

Die stabile Seenschichtung bricht im Laufe des Spätherbstes zusammen und es kommt zur Totaldurchmischung des Sees. Die Seewassertemperatur sinkt in der gesamten Wassersäule auf 4-5°C ab und liegt nahe der Aaretemperatur. Die Wasserdichte wird in dieser Periode markant von der Ionenkonzentration beeinflusst (Abb. 5.5.1.1). Da das Aarewasser besonders in dieser Periode eine deutlich höhere Ionenkonzentration als das Seewasser aufweist, ist es schwerer als dieses und schichtet sich am Seegrund ein. Die Residenzzeit des Aarewassers im Bielersee erhöht sich

demzufolge im Vergleich zum Sommer drastisch. Der gesamte See wird vom Beginn dieser Periode an mit schwererem Aarewasser gefüllt, während das darüberliegende leichtere Seewasser in Biel abläuft. Unter Benutzung des Seegesamtvolumens von  $1.2 \text{ km}^3$  und einer durchschnittlichen Winterabflussrate von  $110 \text{ m}^3/\text{s}$  berechnet sich die Aufenthaltszeit im Winter auf 125 Tage.

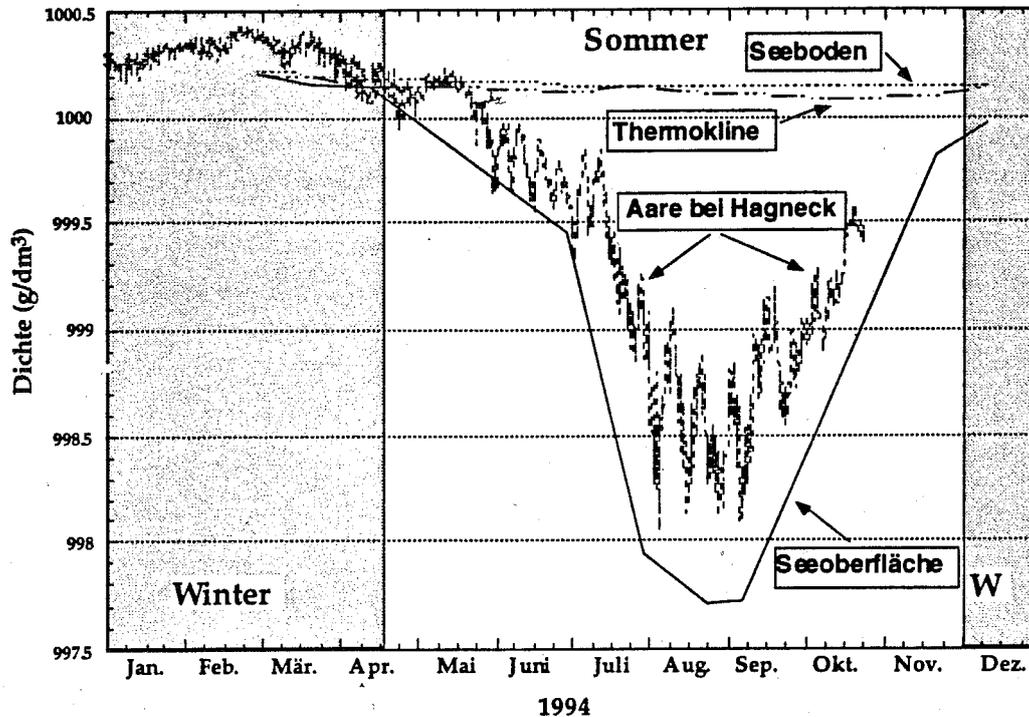


Abb. 5.5.1.1 : Zeitlicher Verlauf für 1994 der Dichte des Aarewassers (gestrichelte Linie) und des Wassers des Bielersees an der Oberfläche (durchgezogen), der Sprungschicht in 15 m Tiefe (Thermokline, strichpunktiert) und am Seeboden auf 70 m Tiefe (punktirt). Die Einschichtungstiefe der Aare im Bielersee ist durch deren Dichte relativ zum See bestimmt. Diese Tiefe wiederum ist direkt mit der Aufenthaltszeit der Aare im Bielersee verbunden. Es existieren zwei verschiedene Situationen: (1) Im Winter ist das Aarewasser schwerer als das gesamte Bielerseewasser und schichtet sich dementsprechend am Seeboden ein. (2) Im Sommer ist das Aarewasser fast so leicht wie das Seewasser an der Seeoberfläche und schichtet sich somit zwischen Seeoberfläche und Sprungschicht ein.

### 5.5.2 Radionuklide in Sedimentkernen, chronologische Betrachtungen

(a) 1940 - 1993: Radionuklidaktivitäten in Sedimenten des Bielersees sind im Anhang (Tab. Anhang A2-d) zusammengefasst. Aktivitäten der Radionuklide  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  und  $^{54}\text{Mn}$  (korrigiert auf den Zeitpunkt der Probenahme) variieren als Funktion der Lokalität und der Tiefe. Das Verschwinden von  $^{65}\text{Zn}$  und  $^{54}\text{Mn}$  unterhalb 2cm Sedimenttiefe kann durch deren Halbwertszeiten (244 und 312 Tage) erläutert werden, die deutlich unter der Halbwertszeit von  $^{60}\text{Co}$  liegen (5.3 Jahre). Maxima von  $> 180 \text{ Bq/kg}$  für  $^{60}\text{Co}$  in den Sedimentkernen der NE und SE Becken korrelieren mit Maxima für  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  und reflektieren höhere Abgaben durch das KKW Mühleberg (Abb. 2.1). Die 3 Radionuklide verhalten sich in den 3 Becken unterschiedlich.  $^{60}\text{Co}$  Maxima

(197Bq/kg) treten im NE Becken auf, wogegen Maxima für  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  in Proben des SE Beckens auftreten (7.4 und 29Bq/kg). Die Abnahme der  $^{60}\text{Co}$  Aktivitäten vom NE zum SW Becken ist um einen Faktor 4 (190 und 50 Bq/kg), für  $^{65}\text{Zn}$  um einen Faktor  $<2$  (19 und 11 Bq/kg) und für  $^{54}\text{Mn}$  sind die Maxima recht ähnlich (5.9 und 5.4 Bq/kg).

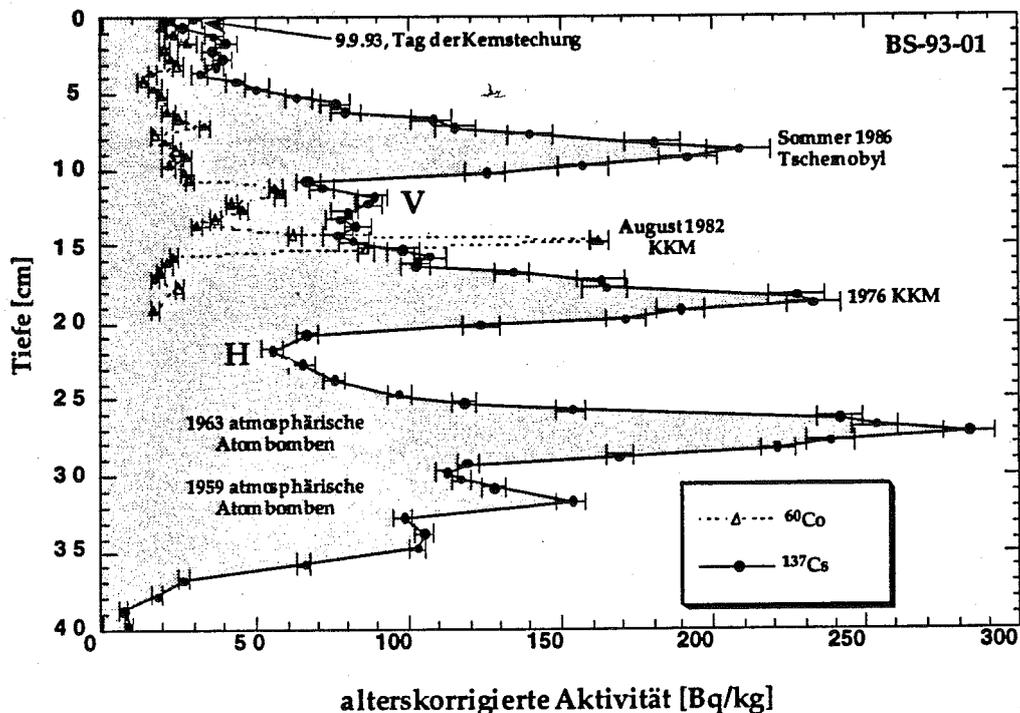


Abb. 5.5.2.1 : Alterskorrigierte Tiefenverteilung der Radionuklide  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in einem Sedimentkern des Aaredeltas (Zone 1). Zu erkennen sind  $^{137}\text{Cs}$  Maxima, die mit den atmosphärischen Atombombenversuchen (Maximum 1963), dem KKW Mühleberg (1976) und dem Tschernobylunfall (1986) in Zusammenhang stehen. Die Maxima für  $^{60}\text{Co}$  archivieren höhere Abgaben des Kernkraftwerks. V bezeichnet die Vergleichsperiode und H den bombenbedingeten Altlast benutzt in Tab. 5.5.2.

Die Bedeutung von Sedimentkernen zur Rekonstruktion von Radionuklidflüssen und damit zur Kontrolle der Abgaben nuklearer Einrichtungen macht der Kern BS-93-01 aus dem Bereich des Aaredeltas deutlich (Abb. 5.5.2.1). Dargestellt ist die massenbezogene Tiefenverteilung von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$ . Die angegebenen Aktivitäten sind auf den Zeitpunkt der Sedimentablagerung zerfallskorrigiert. Die Konstruktion der Altersskala beruht hauptsächlich auf den  $^{137}\text{Cs}$  Maxima von 1963 und 1986. Das Auftreten eines dritten Peaks ist charakteristisch für den Bielersee und ist auf die erhöhten Abgaben durch das KKW Mühleberg in der Mitte der 70er Jahre (mit einem Maximum um 1976, verursacht durch Brennstabhüllen niedrigerer Qualität) zurückzuführen. Die Abgaben von  $^{137}\text{Cs}$  durch das KKW gingen nach 1976 deutlich zurück.

Das erste Auftreten von  $^{60}\text{Co}$  in Bielerseesedimenten fällt mit der Inbetriebnahme des Kernkraftwerkes 1971 in etwa zusammen, obwohl aufgrund der Halbwertszeit von 5.3 Jahren die  $^{60}\text{Co}$  Aktivitäten der ersten Jahre nahe der Nachweisgrenze liegen. Das Maximum der  $^{60}\text{Co}$  Aktivitäten von 160 Bq/kg hängt mit der Entleerung eines Torus im KKW Mühleberg im August 1982 zusammen. Die vorhandene Schärfe aller Ablagerungsmaxima zeigt deutlich, dass Umlagerungs- und Rücklösungsprozesse in tieferen Bereichen des Bielersees nicht von grosser Bedeutung sind, was die Verwendung von Radionukliden zu chronologischen Zwecken erst ermöglicht.

**(b) 1991-1994:** Neben dem im Aaredelta gezogenen Kern wurden am 31. Mai 1994 weitere Kerne an den tiefsten Stellen der drei Hauptbecken gezogen (Abb. 5.5.1). Alle 4 Kerne zeigen aufgrund des hohen Tonmineralanteils (Albrecht et al., 1995a) für jede Zone Maximalaktivitäten. Tonminerale gelten aufgrund ihrer Kristallstruktur und Korngrösse als effiziente Adsorber, und damit als wichtiges Radionuklidtransportmedium. Um einen Vergleich zwischen Radionuklidabgaben durch das KKW Mühleberg und dem Transfer in das Sediment zu ermöglichen, müssen Inputfunktionen (basierend auf Abgaben des KKW's) und Outputfunktionen (Radionuklidablagerung im Sediment) jeweils als Flüsse dargestellt werden. Diese beziehen sich auf den Zeitabschnitt, der von der jeweiligen Sedimentprobe archiviert ist (siehe  $^{137}\text{Cs}$  Tiefenverteilung und Datierung). Zur Umrechnung der Radionuklidabgaben des Kernkraftwerkes (Bq) in Flüsse ( $\text{Bq}/\text{m}^2/\text{Tag}$ ) werden diese durch die Sedimentationsfläche (Zonen 1-4) und die Zeitperiode, welche die jeweiligen Proben abdecken, dividiert. Die Radionuklidflüsse in die Sedimente berechnen sich mit Hilfe der folgenden Gleichung:

$$F = \frac{A\rho\Delta d}{\Delta t} \quad \text{Gleichung 5.5.1}$$

$A$  ist die massenbezogene Aktivität des Sediments in vorgegebener Tiefe,  $\rho$  die Trockendichte des Sedimentmaterials,  $\Delta d$  die Dicke der beprobten Sedimentschicht und  $\Delta t$  das Zeitintervall, welches in der jeweiligen Sedimentschicht archiviert ist.  $\Delta t$  wurde aus den Sedimentationsraten in den obersten Zentimetern bestimmt, wobei eine jahreszeitliche Korrektur notwendig war, da 80% der Gesamtsedimentation während der Warmperiode (April, 15 - October 15) stattfindet (Wright et al., 1980). Da jeder Sedimentkern eine geringfügig unterschiedliche Sedimentationsrate aufweist (Albrecht et al., 1995a) ist  $\Delta t$  von Probe zu Probe unterschiedlich. In Abb. 5.5.2.2 sind die Radionuklidflüsse in den See (Input) und die Flüsse in die Sedimente (Output) für die Periode vom Frühjahr 1991 bis zum Frühjahr 1994 verglichen. Der Kern aus Zone 1 wurde im September 1993 gezogen, deshalb fehlt die Periode von September 1993 bis zum Mai 1994.

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

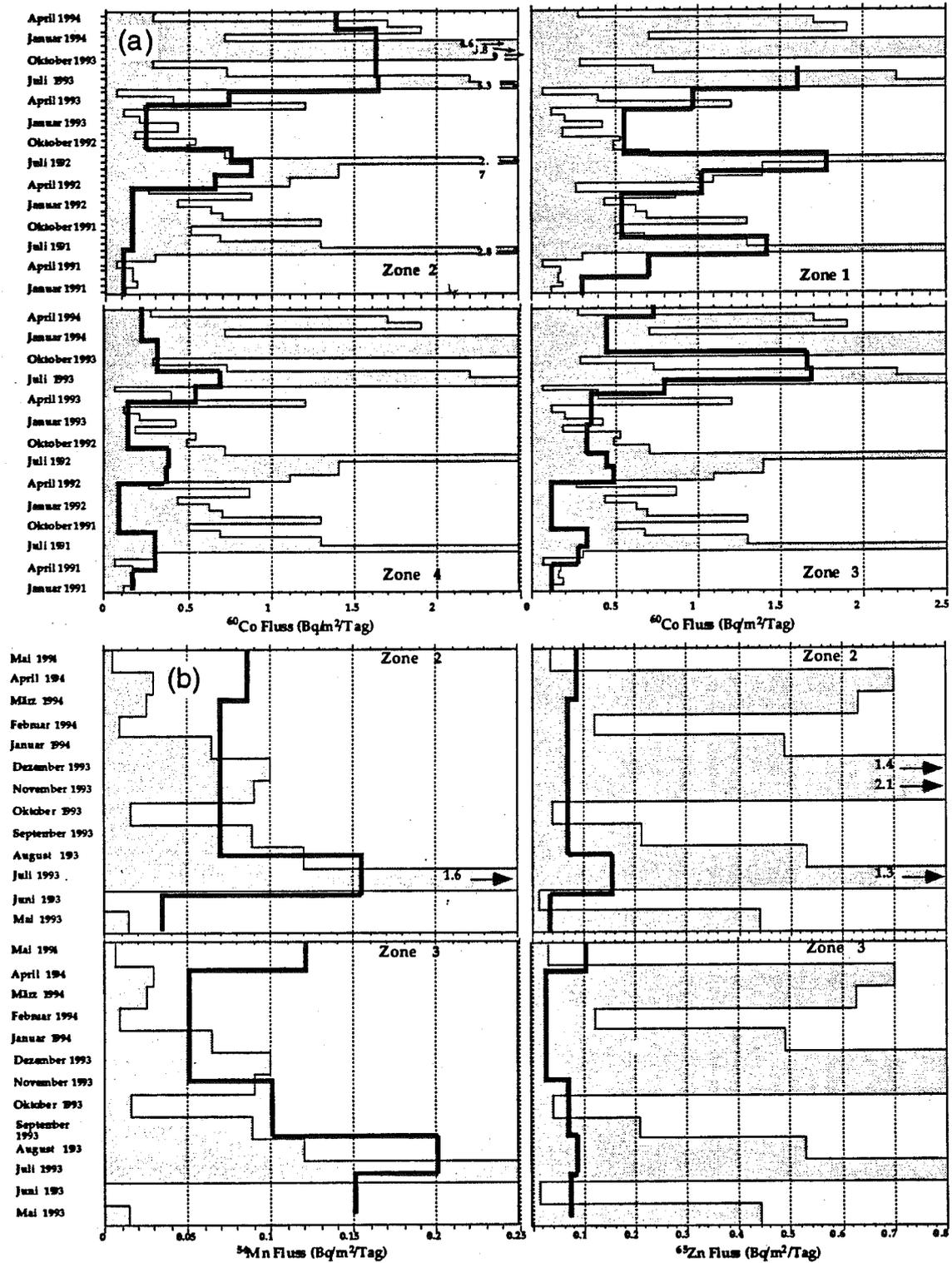


Abb. 5.5.2.2 : Vergleich zwischen  $^{60}\text{Co}$  (obere 4 Darstellungen - a),  $^{65}\text{Zn}$  und  $^{54}\text{Mn}$  (untere 4 Darstellungen - b) Radionuklideintrag (durchgezogene Linie, Fläche mit Punktsignatur verdeutlicht) durch das KKW Mühleberg) und dem Radionuklidfluss ins Sediment (fett durchgezogene Linie, berechnet aufgrund von Sedimentkerndaten) in den 4 Zonen des Bielersees (Abb.5.5.1 ). Diese Vergleich ermöglicht die Evaluation des Radionuklidtransfers von der Wassersäule ins Sediment als Funktion der Zeit (siehe Text).

Die Inputflüsse aller bearbeiteten Radionuklide zeigen eine gewisse jährliche Periodizität mit Maxima während des Spätsommers. Dieser Anstieg der Radionuklidabgaben hängt mit der Revision des KKW Mühleberg zusammen. Das Abgabenmaximum während der Herbstmonate 1993 erklärt sich durch eine Torusabgabe. Diese war wegen einer Torusreinigung zwecks Siebwechsel (Auflage HSK) notwendig. Die Korrelation zwischen den Input- und Sedimentoutputflüssen bestärkt die bereits diskutierte Sedimentdatierung. Zudem informiert die gute Korrelation über den raschen Transfer eines Teils der Radionuklide von der Wassersäule ins Sediment. Eine genauere Analyse dieser Daten ermöglicht eine saisonale Differenzierung. Die Maximalabgaben der Sommerperioden spiegeln sich direkt in Form erhöhter Radionuklidflüsse in den Sommerablagerungen wieder. Ein Vergleich der Ablagerungen vom Sommer 1992 zeigt für  $^{60}\text{Co}$  (Abb. 5.5.2.2 a) deutlich deren räumliche Verteilung. Maximalflüsse von  $1.8 \text{ Bq/m}^2/\text{Tag}$  liegen im Deltabereich vor (Zone 1). Sie nehmen dann kontinuierlich ab und erreichen im SW Becken (Zone 4) einen Wert von  $0.4 \text{ Bq/m}^2/\text{Tag}$ . Dies macht deutlich, dass ein Teil des Aarewassers auch in den Sommermonaten bis in das entfernteste Becken des Bielersees eine Auswirkung hat. Der rasche Transfer eines Teils des  $^{60}\text{Co}$  von der Wassersäule in das Sediment während der Sommerperiode hängt mit dem 4 mal höheren Partikelfluss zusammen, der zum einen durch den bedeutenderen Partikeltransport durch die Aare, wie auch mit der viel höheren Sommerprimärproduktion im See zusammenhängt. Die Situation ist für  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  sehr ähnlich, obwohl die Radionuklidflüsse hier deutlich geringer sind.

Der erhöhte Radionuklidinput während der Herbstmonate 1993 erlaubt es, das Verhalten der Radionuklide im Winter genauer zu analysieren. Trotz des merklich angestiegenen Inputs bleibt der Radionuklidfluss während der Wintermonate konstant (Abb. 5.5.2.2 a, Zone 2) bzw. nimmt ab um dann im Frühjahr ein erneutes Maximum zu erreichen (Abb. 5.5.2.2 a, Zone 3). Eine Abnahme im Radionuklidfluss kann auch für  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$  in den Zonen 2 und 3 beobachtet werden (Abb. 5.5.2.2 b). Dies kann wiederum mit dem Partikelfluss im See erklärt werden, der im Winter stark abnimmt. Gelöste Radionuklide adsorbieren an diese Partikel, die dann als Radionuklidtransportmedium in die Sedimente dienen. Eine genauere Betrachtung der obersten Proben der Kerne aus den Zonen 2 (für  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ ) und 3 (für  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{65}\text{Zn}$ ), die jeweils den Zeitraum von April-Mai 1994 repräsentieren, also einer Periode mit minimalem Radionuklideintrag, verdeutlichen den Anstieg im Radionuklidfluss ins Sediment während dieser Frühjahrsperiode. Dabei muss es sich um einen 'memory-effect' handeln. Die Radionuklide, die hier zur Ablagerung gelangten, verweilten während der Wintermonate im See und kamen erst mit dem Beginn des ansteigenden Partikelflusses im Frühjahr zur Ablagerung. Eine Verweildauer von drei Monaten kann mit Hilfe der Kerndaten ermittelt werden. Diese lange Residenzzeit ist in

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Einklang mit den seenphysikalischen Überlegungen, nach welchen die Aare während der Kaltperiode sich im Bereich des Seegrundes einmischt und den See von unten her auffüllt. Da der durchschnittliche Aareabfluss im Winter bei 110 m<sup>3</sup>/s liegt, beträgt die Winteraufenthaltszeit etwa 125 Tage.

Der Eintrag von <sup>137</sup>Cs in den Bielersee ist nicht vom KKW Mühleberg bestimmt, sondern von partikulär gebundenem <sup>137</sup>Cs, welches seinen Ursprung in Atombombenversuchen bzw. Tschernobyl hat. Dabei handelt es sich um Produkte von Erosionsprozessen im Einzugsgebiet der Aare. Der Anstieg des <sup>137</sup>Cs Flusses ins Sediment im Frühjahr ist direkt an den höheren Partikelfluss in den See gebunden.

**Radionuklidgesamtbudgetierung:** Basierend auf der vorgenommenen Zoneneinteilung des Bielersees (Abb. 5.5.1) sollen nun aus den Radionuklidflüssen (Abb. 5.5.2.2, Tab. A5) Gesamtdepositionen berechnet werden (Tab. 5.5.1). Um die Validität der Budgetierung abschätzen zu können, wurden ein Drei- und ein Einjahresbudget erstellt. Das Dreijahresbudget (A) beschränkt sich auf die Radionuklide <sup>137</sup>Cs und <sup>50</sup>Co, da <sup>54</sup>Mn und <sup>65</sup>Zn mit jeweils 312 und 244 Tagen zu diesem Zweck zu kurze Halbwertszeiten aufweisen. Im Einjahresbudget (B) wurden die Zonen 1 und 2 zusammengefasst, was mit der Probenahmedifferenz in Zusammenhang gebracht werden kann. In beiden Budgets (Tab. 5.5.1) sind die Zeiträume angegeben, die von den obersten Sedimentproben archiviert werden.

Tabelle 5.5.1 : Gesamtbudgetierung der Hauptradionuklide im Bielersee

A 3-Jahresinventar			Zeit- periode [Tage]	<sup>60</sup> Co		<sup>137</sup> Cs			
Zone	Probenalter			im [Bq]	Sediment [%]	im [Bq]	Sediment [%]		
1	oben 10.Sep.93	unten 22.Mär.91	903	3.7E+09	14	5.4E+09	131		
2	31.Mai.94	10.Jun.91	1086	9.1E+09	19	5.6E+09	97		
3	31.Mai.94	28.Apr.91	1129	4.4E+09	9	4.4E+09	72		
4	31.Mai.94	12.Apr.91	1145	2.2E+09	5	4.7E+09	78		
Gesamt				1.9E+10	46	2.0E+10	378		
KKM Abgabe [Bq]				4.3E+10		5.5E+09			
B 1-Jahresinventar			Zeit- periode [Tage]	<sup>60</sup> Co		<sup>54</sup> Mn		<sup>65</sup> Zn	
	Probenalter			im [Bq]	Sediment [%]	im [Bq]	Sediment [%]	im [Bq]	Sediment [%]
1+2	oben 31.Mai.94	unten 31.Mai.93	365	9.0E+09	30	4.7E+08	23	1.5E+09	21
3	31.Mai.94	18.Mai.93	378	2.7E+09	9	2.9E+08	15	1.6E+08	2
4	31.Mai.94	20.Apr.93	405	1.1E+09	4	1.8E+08	9	2.6E+08	4
Gesamt				1.3E+10	43	9.5E+08	47	1.9E+09	27
KKM Abgabe [Bq]				3.0E+10		2.0E+09		7.3E+09	

Die Gesamtablagerung für jede Probe errechnet sich durch Multiplikation der Radionuklidflussdaten mit der Fläche der Zone und der Zeitperiode der jeweiligen Ablagerung. Die Abgaben des KKW's wurden den Monatsberichten entnommen, die von der Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen (HSK) zur Verfügung gestellt wurden. Da die Zeitintervalle der verschiedenen Kerne nicht exakt die Ein- bzw. Dreijahresperiode abdecken, wurde ein Mittelwert bestimmt. In der letzten Spalte findet

sich der Radionuklidanteil, der in den vier Zonen im Verhältnis zur Gesamtabgabe abgelagert wird. Die Ablagerungsanteile für  $^{60}\text{Co}$  von 46% und 43%, die für eine Drei- bzw. Einjahresperiode berechnet wurden, liegen im gleichen Rahmen, was die Glaubwürdigkeit unserer Berechnungen bekräftigt. Für  $^{54}\text{Mn}$  liegt der im Sediment abgelagerte Anteil bei 47 %, also im gleichen Rahmen wie für  $^{60}\text{Co}$ . Für  $^{65}\text{Zn}$  ist dieser Anteil mit 27 % deutlich geringer. Diese Berechnung basiert auf einer homogenen Sediment- und damit Radionuklidverteilung in den Zonen. Die Sedimentwahl wurde so getroffen, dass Inhomogenitäten zur Verringerung der berechneten Radionuklidablagerungen führen. Die Fehlerabschätzung der Radionuklidflussbestimmungen ist beherrscht durch analytische Fehler (10% für  $^{60}\text{Co}$ , 30% für  $^{54}\text{Mn}$  und 40% für  $^{65}\text{Zn}$ ): Unter Heranziehung eines 5%-igen Fehlers für Sedimentdichte und Tiefenbestimmung und einem 10%igen Fehler für die Datierung, kann für  $^{60}\text{Co}$  ein Fehler von 16%, für  $^{54}\text{Mn}$  von 32% und für  $^{65}\text{Zn}$  von 42% ermittelt werden. Die Repräsentativität eines jeden Kerns für die gesamte Zone kann mit Hilfe von 14 Kernen ermittelt werden, die 1977 durch Müller (1982) auf ihre  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität untersucht wurden. Diese liegt bei etwa 45%. Der Gesamtfehler für Inventarberechnungen liegt demzufolge bei 48% für  $^{60}\text{Co}$ , 55% für  $^{54}\text{Mn}$  und 62% für  $^{65}\text{Zn}$ . Eine starke Varianz in der Verteilung wurde ebenfalls in einem Versuchssee festgestellt, nach Ablagerung von künstlich hinzugefügten Radionukliden (Hesslein 1987). In diesem Fall war das Verteilungsmuster für weniger partikelreaktive Nuklide, wie  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{75}\text{Se}$  sehr inhomogen. Für partikelreaktivere Elemente, wie  $^{60}\text{Co}$  und  $^{65}\text{Zn}$  wurde eine homogenere Verteilung bestimmt. Da die Varianz im Bielersee auf  $^{137}\text{Cs}$ -Messungen beruht, kann angenommen werden, dass für die Übergangsmetalle eine homogenere Verteilung vorliegt. Demzufolge sind die Fehlerabschätzungen für das Bielerseeinventar Überschätzungen.

Für  $^{137}\text{Cs}$  zeigt das Budget wie bereits erwähnt deutlich, dass das KKW Mühleberg im Vergleich zum Tschernobylunfall nur eine sekundäre Rolle spielt. In Sedimenten wurde etwa 3.5 mal soviel  $^{137}\text{Cs}$  gefunden, wie durch das KKW abgegeben wurde.

Die Gesamtabgaben des KKW Mühleberg für die Periode 1976-1980 können anhand der Amplitude des im Bielersee während dieser Zeit zur Ablagerung gelangten  $^{137}\text{Cs}$  abgeschätzt werden. Die Vorgehensweise ist ähnlich derer, die bereits für Beznau in Sedimenten der Staustufe Augst Anwendung fand. Verglichen werden massenbezogene  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitäten (Abb. 5.5.2.1). Als Vergleichsperiode wurde 1982-1984 herangezogen. In dieser Zeitspanne wurden vom KKW Mühleberg  $3.3 \times 10^{10} \text{Bq}$  abgegeben, was einer jährlichen Abgabe von  $1.3 \times 10^{10} \text{Bq}$  entspricht. Daraus berechnen sich tägliche Ablagerungen im Bielersee von 0.03 Bq/kg. Während der Zeitspanne erhöhter Abgaben (1976-79) stiegen diese täglichen Ablagerungen auf 0.09 Bq/kg an.

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Die Abgaben durch das KKW Mühleberg ermitteln sich demzufolge auf etwa  $4.1 \times 10^{10}$  Bq/Jahr (Tab. 5.5.2).

Tab. 5.5.2 : Ermittlung der  $^{137}\text{Cs}$  Abgaben durch das Kernkraftwerk Mühleberg Mitte bis Ende der 70er Jahre basierend auf Sedimentkerndaten des Bielersees.

Sedimentkern Bielersee 93-01; Probenahmedatum: 10.9.93

Tiefe (cm)	Tiefe (cm)	Alter [Datum]		$^{137}\text{Cs}$ [Bq/kg]			
		oben	unten	*	**	***	
Ende Vergleichsperiode							
12.0	12.5	26.11.84	26.6.84	70.5	86.7	31	
12.5	13.0	26.6.84	26.1.84	64.3	79.8	24	Abgabe KKW Mühleberg
13.0	13.5	26.1.84	27.8.83	61.9	77.6	22	Mitte 1982-1984
13.5	14.0	27.8.83	28.3.83	65.7	83.2	27	$3.3 \times 10^{10}$ Bq
14.0	14.5	28.3.83	27.10.82	60.2	77.0	21	$1.3 \times 10^{10}$ Bq/Jahr
14.5	15.0	27.10.82	4.5.82	63.6	82.1	26	
Beginn Vergleichsperiode		937 Tage			0.09	0.03	Durchschnitt [Bq/kg/Tag]
Ende erhöhte Abgabe 1976-79							
17.0	17.5	27.2.80	12.8.79	118.8	163.3	107	
17.5	18.0	12.8.79	25.1.79	118.7	165.2	109	Modellabgabe KKM
18.0	18.5	25.1.79	9.7.78	161.8	228.0	172	1976-1979
18.5	19.0	9.7.78	22.12.77	163.5	233.3	177	$4.1 \times 10^{10}$ Bq/Jahr
19.0	19.5	22.12.77	6.6.77	131.0	189.3	133	
19.5	20.0	6.6.77	19.11.76	117.1	171.4	115	
20.0	20.5	19.11.76	10.2.76	83.2	123.6	68	
Ende erhöhte Abgabe 1976-79		1478 Tage			0.12	0.09	Durchschnitt [Bq/kg/Tag]

korrigiert auf Datum der Kernziehung (\*) bzw. Sedimentalter (\*\*)

\*\*\* Altlast Atombombencaesium = 56 Bq/kg (bei 21.5 cm)

## 6. Allgemeines Flussmodell

Wegen des hohen Bedarfs an Industrierwasser wurde schon zu Beginn der Industrialisierung der Standort Fluss bevorzugt. Die Entsorgung der Abwässer konnte ebenfalls über den Fluss durchgeführt werden. Das Umweltbewusstsein hat sich in den letzten Jahrzehnten zwar in einigen Ländern verbessert, der Transport umweltbelastender Stoffe im fließenden aquatischen Milieu bleibt jedoch weiterhin, neben der atmosphärischen Verfrachtung, ein sehr bedeutender Prozess und gehört demzufolge zu einem wichtigen Aufgabenbereich der Umweltnaturwissenschaften. Wir wollen hier versuchen, die Einzelkonzepte des Flusstransports partikelreaktiver Substanzen allgemein zu erörtern, basierend auf den Ergebnissen der vorliegenden Radionuklidstudie. Die Bedeutung radioaktiver Stoffe für die Erforschung des Flusstransports wird besonders dann klar, wenn die Frage nach der Herkunft der anthropogenen Stoffe gestellt wird. Bei stabilen Metallen und verschiedenen organischen Substanzen, sind die Eintragsmechanismen oftmals diffus oder mehrquellig. Dies erlaubt weder die zeitliche Abhängigkeit von Adsorptionsprozessen im Fluss zu studieren, noch die genaue chemische Form zum Zeitpunkt der Immision festzustellen. Anthropogene Radionuklide stammen aus wenigen Punktquellen und

erlauben aufgrund ihres Zerfalls zusätzlich noch den Zeitfaktor zu quantifizieren. Sie stellen daher ein fast ideales Objekt zum Studium der Verfrachtung anthropogener Stoffe in Flüssen dar.

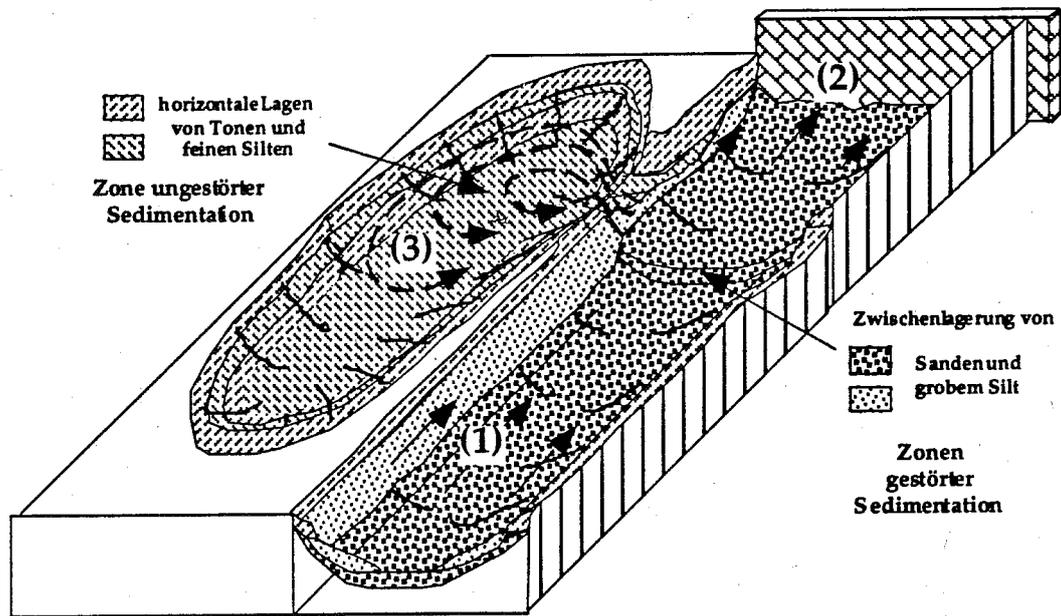


Abb. 6.1 : Blockdiagramm eines aufgestauten Flussbereiches zur Darstellung der in Flusssystemen wichtigen Untersysteme (1) frei fließende Zone, (2) Stauzone und (3) Ruhigwasserbereich und der dort charakteristischen sedimentären Ablagerungen.

Nach ihrem Eintrag in den Fluss lagert sich ein Teil an suspendierte Partikel. Der Weitertransport bzw. die Ablagerung dieser Partikel bestimmt dann ihr Schicksal und soll in diesem Kapitel zusammenfassend beschrieben werden. Der Teil, der gelöst bleibt, wird in den Ozean transportiert. In Abbildung 6.1 ist ein Fluss in die 3 Abschnitte frei fließender Bereich (1), aufgestauter Bereich (2) und Ruhigzone (3) unterteilt. Der frei fließende Bereich ist natürlich durch Rückstau beeinflusst, was hier für die konzeptuelle Beschreibung ausser Acht gelassen werden soll. Im Zentrum des frei fließenden Bereichs (1) erreichen die Fließgeschwindigkeiten ein Maximum, demzufolge werden hier grobe Partikel transportiert, bzw. kommen zur Ablagerung wenn sich der Abfluss verringert. Richtung Flussufer verringert sich die Fließgeschwindigkeit und damit die Korngröße der hier transportierten (und abgelagerten) Partikel. Da im Staubereich (2) die Fließgeschwindigkeiten abnehmen, kommt es besonders hier zur Ablagerung feiner bis grober Partikel. Diese werden jedoch mittels Wehrspülungen periodisch weiter flussabwärts transportiert. Da in den fließenden Flussabschnitten primär grobe Partikel zur Ablagerung gelangen, die ineffizient anthropogene Stoffe binden, kommt es in diesen Zonen nur zu geringen Gesamtablagerungen. Die starken saisonalen und zum Teil täglichen Variationen im Abfluss (und der Fließgeschwindigkeit) verursachen neben Sedimentation auch

Erosion. Diese erschwert Radionuklidatierungen und damit eine Quantifizierung der im Fluss zur Ablagerung gelangenden anthropogenen Substanzen. In Ruhezonen (3) nimmt die Fliessgeschwindigkeit sehr stark ab. Besonders während Ruhigwasserperioden kommt es zu Stillwassersituationen, in welchen feinstkörnige Partikel (z.T. effizient adsorbierende Tonmineralien) zu Ablagerung gelangen. Da diese Ruhigwasserzonen bei Hochwasser 'geschützt' bleiben, tritt hier ungestörte Sedimentation auf, welche eine Radionuklidatierung zulässt und damit eine Quantifizierung und zeitliche Rekonstruktion anthropogener Immissionen ermöglicht. Für die Betrachtung von Stoffablagerungen in Ruhigwasserzonen ist der Austausch mit der fliessenden Zone, die Lokalisierung des Eingabeortes, sowie der im Fluss ablaufenden Mischungsprozesse von Bedeutung. Liegt z.B. die Abgabelokalität oberhalb eines Nebenflusses und die Stillwasserzone auf Seiten dieses Nebenflusses, so kann aufgrund unvollständiger Querdurchmischung diese Immission nicht in Stillwassersedimenten nachgewiesen werden.

Kommt es zu 'erhöhten', 'nicht deklarierten' Abgaben, so können diese mit Hilfe eines Amplitudenvergleichs mit Bereichen deklarerter Abgaben ermittelt werden.

Es wäre zweckmässig diesem konzeptionellen Modell ein mathematisches folgen zu lassen. Ein solches Modell müsste sehr stark auf Adsorptionskonstanten basieren, deren Verständnis in komplexen Flusssystemen noch ziemlich rudimentär ist. Die Problematik dieser Adsorptionsvorgänge und seiner Steuerungsprozesse werden im Kapitel 8 diskutiert. Dabei wird ebenfalls ein Verweis auf eine Folgestudie angefügt, die sich mit Details von Adsorptionsprozessen im Fluss beschäftigen wird und deren Ziel eine mathematische Beschreibung des Flusstransportes ist.

### 7. Seemodell

Das in diesem Abschnitt diskutierte Konzept zum Radionuklidverhalten in Seen basiert primär auf Informationen über den Bielersee und ist von daher in erster Linie anwendbar für flussdominierte eutrophe bis oligotrophe Seen. Wegen der markanten Unterschiede in physikalisch-chemischen Parametern zwischen der kalten und warmen Jahreszeit ist das Modell in zwei Abschnitte getrennt (Abb. 7.1). Während der Warmperiode bildet sich im See eine stabile Dichteschichtung heraus (Abb. 7.1). Da das radionuklidtransportierende Aarewasser in diesem Fall eine ähnliche Dichte aufweist, wie Seewasser aus der oberen Zone (Epilimnion), mischt es sich hier ein. Unter diesen Bedingungen kann es den See zwischen Mündung und Ausfluss durchfliessen und mischt sich lediglich mit einem Teil des Seewassers. Das geschätzte Mischvolumen ist im Fall des Bielersees nur etwa 10-15% ( $0.14 \text{ km}^3$ , verglichen mit dem Gesamtvolumen von  $1.2 \text{ km}^3$ ). Für den Bielersee verringert sich folglich die Seedurchquerungszeit (als Funktion des Aareabflusses) auf 5 bis 7 Tage.

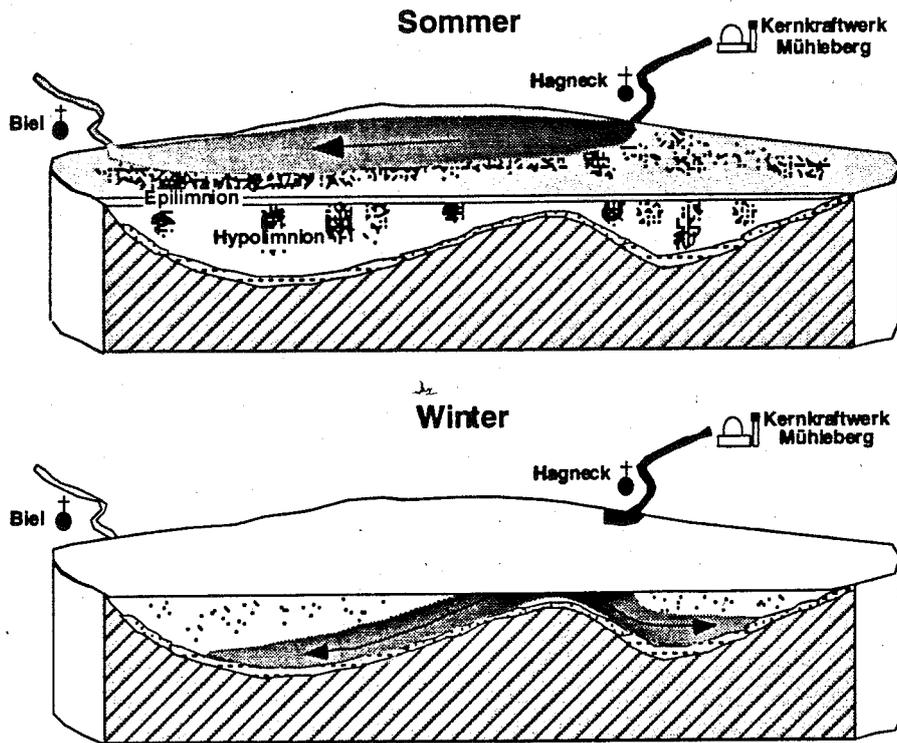


Abb. 7.1 : Konzeptionelle Darstellung des Verhaltens von Radionukliden in flussdominierten eutrophen Seen, basierend auf den Bielersee. Die obere Darstellung kennzeichnet die Sommersituation, wenn sich der Fluss in die obersten Seenschichten einschichtet und eine Durchmischung mit dem See nur begrenzt stattfindet. Die untere Darstellung bezieht sich auf die Wintersituation, wenn das schwere Flusswasser in grössere Seetiefen absinkt und sich von daher räumlich gleichförmiger im See verteilt.

Während des Transits verringert sich die Aktivität aufgrund der Durchmischung mit Seewasser und aufgrund der Sedimentation radionuklidtragender Partikel. Obwohl die Partikelflüsse im Sommer ein Maximum erreichen, bleibt dieser letzte Prozess ineffizient. Dies hängt mit dem hohen Anteil an gelösten Radionukliden zusammen, die in den See geleitet werden, wie auch der langsamen Adsorptionskinetik in natürlichen Systemen (Li et al. 1984). Ein markanter Anteil der suspendierten Partikel ist biogen. Die Abnahme des biogenen Anteils von suspendierten Partikeln mit der Tiefe und den deutlich geringeren Gehalten in Sedimenten, verdeutlicht den Grad der Zersetzung und Rücklösung biogener Materie in der Wassersäule. Algen spielen eine Rolle im Radionuklidkreislauf des Epilimnions, gehen jedoch in tieferen Schichten (Hypolimnion) wieder in Lösung. Diese Radionuklidzunahme mit der Tiefe (z.B. für  $^{60}\text{Co}$ ) konnte während einer Beprobung des Bielersees am 22 August 1994 festgestellt werden, als an der Oberfläche eine Gesamtaktivität von  $0.03 \text{ Bq/m}^3$  und in einer Tiefe von 34 m  $0.19 \text{ Bq/m}^3$  gemessen wurden. Da sich während des Sommers im gesamten Seebereich Radionuklide ablagern, muss ein Teil des Aarewassers und die darin transportierte Radionuklidfracht in das seeweite Zirkulationssystem mit einbezogen

werden (Nydegger 1976 a, b). Kommt es im Sommer zu einer erhöhten Radionuklideinleitung, so ist diese innerhalb eines Monats in Sedimentablagerungen erkennbar. Dies gilt sowohl für redoxsensitive Elemente wie Co und Mn, wie auch für redoxinsensitive wie Cs oder Zn. Eine Abhängigkeit vom Redoxverhältnis wurde nicht festgestellt.

Während der kalten Periode (Abb. 7.1) hat das Aarewasser aufgrund eines grösseren Salzgehaltes eine durchschnittlich höhere Dichte als das Bielerseewasser. Es taucht deshalb bis auf den Seegrund ab und füllt den See wie ein leeres Becken, was zu erhöhten Aufenthaltszeiten führt. Dies erlaubt mehr Zeit für Adsorptionsprozesse. Da der Partikelfluss in der Kaltperiode jedoch deutlich abnimmt, ist die Radionuklidsedimentation auch in den Wintermonaten nicht effizient.

Eine Kombination der Sommer- und Wintermodelle erlaubt zusammenfassend das Radionuklidverhalten im See zu erklären. Während der kalten Periode werden Radionuklide in profundale Bereiche des Sees transportiert. Hier adsorbiert ein geringer Anteil an Partikel und verlässt die Wassersäule. Ein Grossteil der Radionuklide verbleibt bis zum kommenden Frühjahr, wenn der Partikelfluss wieder zunimmt. Dies erklärt den verzögerten Transfer in das Sediment. Das Modell erlaubt es, den niedrigen, in Sedimenten abgelagerten Radionuklidanteil einfach zu erläutern.

### 8. Radionuklidadsorption; eine Synthese

In diesem Kapitel sollen die wichtigsten Prozesse zusammengefasst werden, die Radionuklidadsorption beeinflussen. Diese Prozesse steuern ebenfalls die in den vorhergehenden Kapiteln aufgezeichneten Prozesse wie Sedimentation und Transport.

Eine Betrachtung von Radionuklidkonzentrationen an Partikeln unterschiedlicher Korngrösse soll den ersten Schritt auf dem Weg zu einem besseren Verständnis der Metall-Partikel Wechselbeziehungen im aquatischen Milieu bilden. Der hier ausschlaggebende Faktor ist das Verhältnis Oberfläche zu Volumen, welches bei gleicher Mineralform mit abnehmender Grösse zunimmt. Dieser auf theoretischer Basis aufgebaute Bezug konnte bereits bei Sedimenten festgestellt werden, wo eine Abnahme der Korngrösse oft mit einer Zunahme der Radionuklidaktivität gekoppelt war. Die Ergebnisse der in-situ Filtration (Tabelle Anhang 3) ermöglichen es, die Bedeutung von Korngrössenunterschieden für Adsorptionsprozesse in natürlichen Systemen zu evaluieren. Die im Laufe des Projektes durchgeführten in-situ Filtrationen können in zwei Gruppen unterteilt werden (Abb. 8.1-3), die erste Gruppe, bei der die massenbezogenen Aktivitäten von der Korngrösse unabhängig sind (Abb. 8.1 a) und eine zweite Gruppe, bei der eine klare Korngrössenabhängigkeit festzustellen ist (b). Die unter (c) dargestellte Einzelprobe ist Teil der Gruppe 1, wurde jedoch wegen der hohen Aktivitäten ausgegliedert. Sie soll hier hauptsächlich dazu dienen, partikulär

gebundene Maximalaktivitäten aufzuzeigen. Die der Gruppe 2 zugehörigen Proben illustrieren eine mögliche Korngrößenabhängigkeit der Adsorption. Diese wird jedoch durch die grössere Anzahl Korngrößenunabhängiger Verteilungen (Gruppe 1) nicht untermauert.

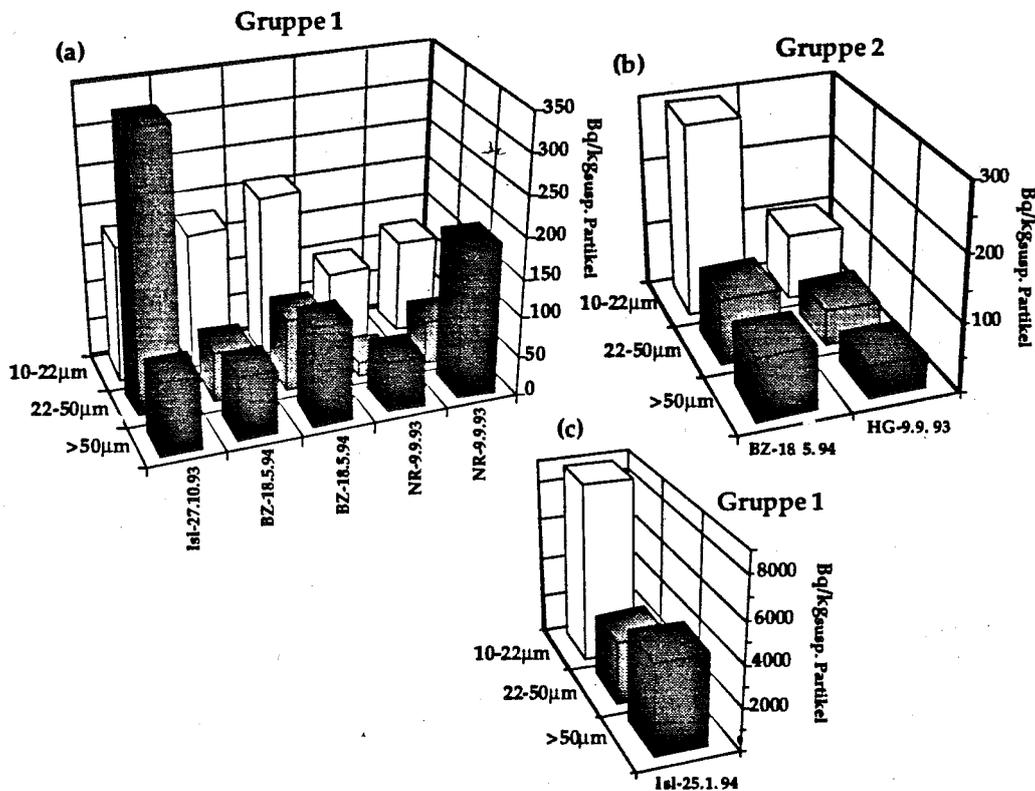


Abb. 8.1 : Darstellung der massenbezogenen  $^{60}\text{Co}$  Aktivitäten von Partikel unterschiedlicher Korngrößenklassen, die mittels In-situ Filtration getrennt wurden. Zur Gruppe 1 (a) zählen Proben mit Korngrößenunabhängigen  $^{60}\text{Co}$  Aktivitäten. In der Gruppe 2 nimmt die Aktivität mit zunehmender Korngrösse ab. Die unter (c) dargestellte Probe gibt die höchsten während dieses Projektes gemessenen Aktivitäten an. Neben Informationen über die Lokalität (Isl=1 km unterhalb KKW Mühleberg); NR=Niederried; HG=Hagneck; BZ=Beznau, siehe Abb. 1.1) sind die Beprobungsdaten angegeben.

Die theoretische Bedeutung der Korngrösse ist besonders dann zwingend, wenn es keinen Wechsel in der Mineralzusammensetzung gibt. Dass mit dem Wechsel der Korngrößenklasse ebenso ein Wechsel in der chemischen Zusammensetzung einhergeht, haben die Kohlenstoff und Stickstoffanalysen (Kapitel 4) gezeigt. So variierte der Stickstoffanteil als Funktion der Korngrösse. Bei der Probe HG-9.9.93 (Gruppe 2) nahm der Stickstoffanteil mit zunehmender Korngrösse ab (0.22% - 0.12%). Bei Proben der Gruppe 1 -ähnlich wie bei den Aktivitätsverteilungen- wurden sehr unregelmässige Anteile gemessen. Wir schlagen deshalb vor, neben der Korngrösse auch den organischen Anteil als Adsorptionsregulator hervorzuheben. Damit folgen wir den Arbeiten von Amiard-Triquet und Foulquier (1978), die  $^{60}\text{Co}$ -

Anreicherungs-faktoren von 600 für die Alge *Chlorella* und 4000 für die Wasserpflanze *Elodea* ermittelten. In einem natürlichen Milieu, wie demjenigen der Aare unterhalb des KKW Mühleberg, führen jedoch Inhomogenitäten zu starken Variationen sowohl was Korngrößenverteilung, Partikelkonzentration oder Zusammensetzung anbelangt. So liegt der organische Phosphatanteil des Gesamtphosphors im Aareabschnitt vor der Saanemündung bei 30%, während er bei Saanepartikeldominanz in Hagneck vernachlässigbar ist. Korngrößenabhängige Aktivitäten (Gruppe 2) zeigen eine Dominanz anorganisch-klastischer Partikel an, wie sie im Aarebereich unterhalb des KKW Mühleberg durch Saanepartikel verursacht werden. Im Bereich der Aare vor dem Zufluss der Saane (Abb. 8.1 c) spielt der biologische Einfluss eine grössere Rolle bezüglich des Adsorptionsverhaltens als die Korngrösse. Da der organische Anteil bei Partikel  $\geq 50 \mu\text{m}$  ansteigt (Kapitel 4), kann es ebenfalls zu erhöhten massenbezogenen Aktivitäten kommen. Unterhalb des Kernkraftwerks Beznau kann ein Wechsel von biologischer zu anorganisch klastischer Partikelführung nur aufgrund von verändertem Algenwachstum im Seebereich diskutiert werden. Wegen Mangel an genaueren Daten soll an dieser Stelle darauf verzichtet werden. Die Bedeutung von biologischen resp. anorganisch-klastischen Partikeln kann ebenfalls mittels Partikelkonzentrationen abgeschätzt werden (Abb. 8.2). Dies kann durch die Unterschiede in der spezifischen Dichte beider Fraktionen (organische Partikel =  $1.05 \text{ g/cm}^3$ , anorganische Partikel =  $2.6 \text{ g/cm}^3$ ) erläutert werden. Die im Wohlensee natürlich gefilterte Aare führt bis zur Saanemündung deutlich geringere Partikelfrachten ( $< 0.25 \text{ g/m}^3$  pro Korngrößenklasse) als unterhalb (z.T.  $> 10 \text{ g/m}^3$ ). Eine starke Zunahme der Partikelfracht weist deshalb auf einen höheren anorganischen Anteil hin. Jedoch kann auch die Partikelfracht nicht als eindeutiges Charakteristikum für organische bzw. anorganische Dominanz herangezogen werden. Die Frage nach Quantifizierung der relativen Bedeutung von Korngrösse bzw. organischem Anteil muss momentan noch offen bleiben.

In Abb. 8.2 wurde ebenfalls das Korngrößenintervall 1-10  $\mu\text{m}$  dargestellt. Da die Massenanteile in diesem Intervall verschwindend gering waren, konnte deren Aktivitäten z.T. nicht gemessen werden, bzw. sie sind mit grossen Fehlern behaftet. Aus diesem Grund sind sie in den Abb. 8.1 und 8.2 nicht aufgeführt. Wegen der recht unterschiedlichen Massenanteile der Korngrößenklassen erlauben massenbezogene Aktivitäten (Abb. 8.1) zwar Aussagen über relative Adsorption, deren Bedeutung beim Transport bzw. bei Sedimentation kann erst eine volumenbezogene Aktivitätsdarstellung liefern (Abb. 8.3). Ähnlich wie bei der massenbezogenen Aktivitätsdarstellung (Abb. 8.1) zeichnet sich die Gruppeneinteilung erneut ab, jedoch mit einer grösseren Regelmässigkeit. Für Proben der Gruppe 1 existieren lediglich leichte Unterschiede in den Radionuklidanteilen der Korngrössengruppen, im Allgemeinen ist ihre Bedeutung beim Radionuklidtransport gleichwertig. Selbst bei den Proben der Gruppe 2, die eine grössere Korngrößenadsorptionsabhängigkeit aufweisen,

halten sich die Unterschiede zwischen den Korngrößenklassen in Grenzen, somit spielen sämtliche Korngrößenklassen bei Adsorption und Transport eine Rolle.

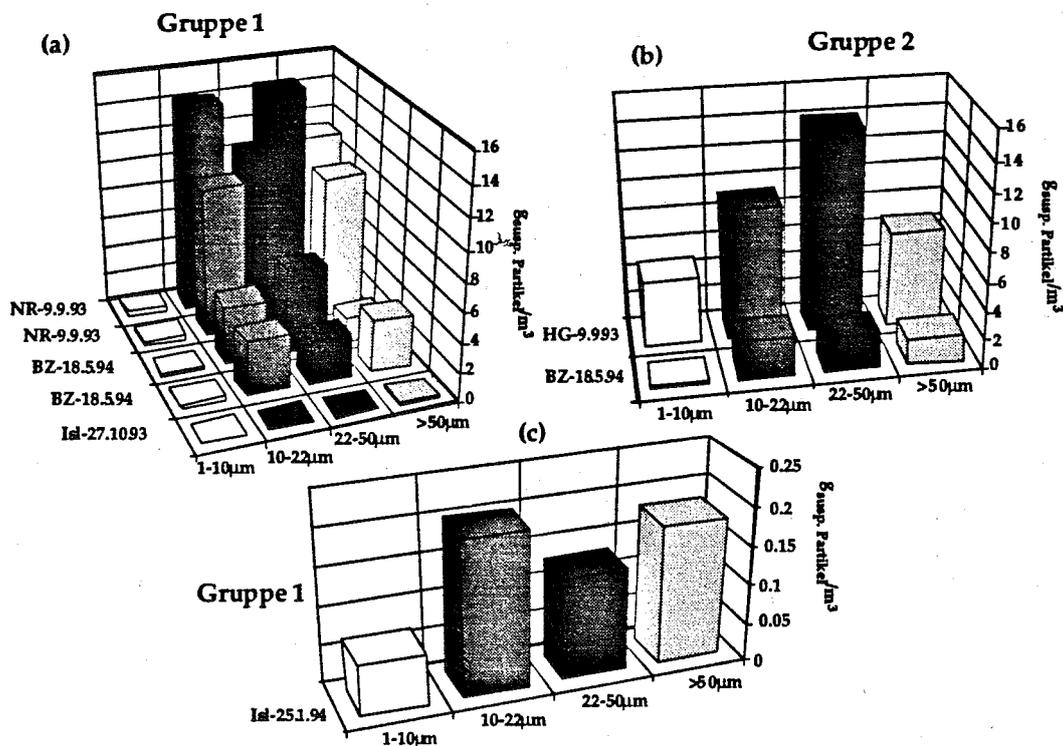


Abb. 8.2 : Verteilung suspendierter Partikel unterschiedlicher Korngrösse in der Aare. (siehe Abb. 8.1 für weiter Hinweise).

Die grosse Spannweite in partikulär gebundenen volumenbezogenen Aktivitäten innerhalb der Gruppe 1 geben bereits einen Hinweis auf die Kinetik des Adsorptionsprozesses, da die Zunahme der partikelaktivität eine Funktion der Distanz zum KKW ist. Dies wird unter Hinzuziehung der gelösten Anteile detaillierter diskutiert, welche wie folge definiert ist:

$$\% \text{Lösung} = \frac{[Bq / m^3]_{\text{Lösung}}}{[Bq / m^3]_{\text{gesamt}}} \cdot 100, \quad 8.1$$

Die Angaben über % in Lösung (Tabellen 8.1 und 8.2) basieren neben Radioaktivitätsmessungen an Partikeln zusätzlich auf Aktivitätsmessungen im Restwasser. Tab 8.1 fasst die Ergebnisse der In-situ Filtration zusammen, die  $\gamma$ -spektrometrisch auswertbare Ergebnisse lieferten. Dabei wurden die Daten der einzelnen Korngrößenklassen aufsummiert (siehe Tab. Anhang 3 für Einzelmessungen sämtlicher Filtrationen). Die Ergebnisse der Aarewasserproben, die mittels Durchflusszentrifugen von suspendierten Partikeln separiert wurden, sind in Tab. 8.2 zusammengefasst. Diese sind in die 3 Arbeitsabschnitte Aare zwischen den KKW

Mühleberg und der Mündung in den Bielersee, den Bielersee selbst, und den Aareabschnitt bis in den Rhein unterteilt.

Die starken Schwankungen sind damit in Zusammenhang zu setzen, dass die bestimmenden Faktoren, insbesondere Partikelkonzentration, Korngrösse und Flusschemie von Lokalität zu Lokalität im gleichen Flusssystem als auch zeitlich am gleichen Ort variieren.

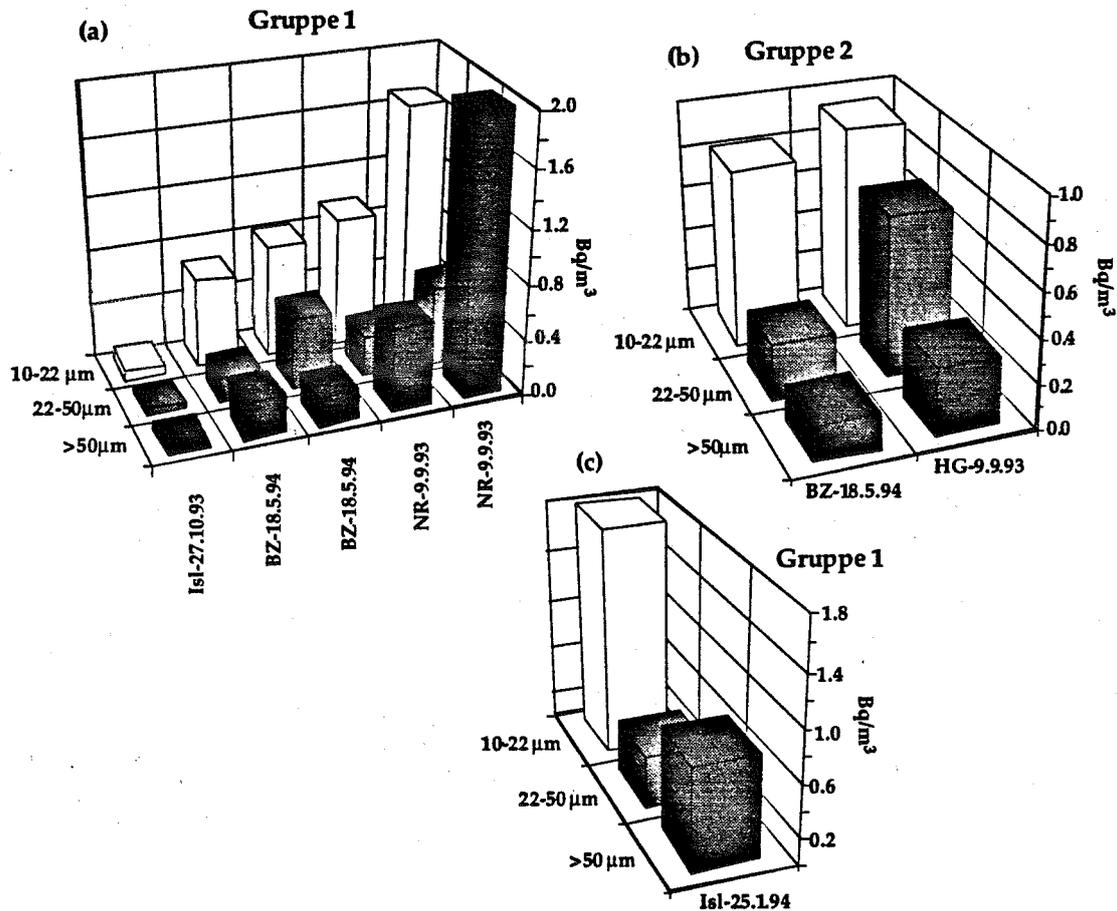


Abb. 8.3: Volumenbezogene Aktivitäten des an Partikel gebundenen  $^{60}\text{Co}$ . Diese können mit Hilfe der massenbezogenen Aktivitäten (Abb. 8.1) und Partikelkonzentrationen der einzelnen Proben berechnet werden. Sie geben Informationen über die Bedeutung der einzelnen Korngrössenklassen beim  $^{60}\text{Co}$  Transport (siehe Abb. 8.1 für weitere Hinweise).

Die Angaben über % in Lösung erlauben es den Adsorptionsprozess als Funktion der Zeit im Fluss zu studieren (Abb. 8.4). Sowohl unterhalb des Kernkraftwerks Mühleberg, wie Beznau erkennt man den Anstieg des adsorptiv an Partikeln gebundenen  $^{60}\text{Co}$  Anteils. Dabei handelt es sich um Durchschnittswerte der in den Tabellen 8.1 und 8.2 angegebenen Einzelmessungen. Bei den Messungen unterhalb Mühleberg handelt es sich um Einzelmessungen, die an verschiedenen koordinierten Abgabeterminen durchgeführt wurden.

Tabelle 8.1 : Zusammenfassung wichtigster Ergebnisse der mittels In-situ Filtration separierten Proben

Lokalität	Datum	Partikel- konzentration [g/m <sup>3</sup> ]	60Co Aktivitäten			60Co	
			suspendierte Partikel (Bq/m <sup>3</sup> )	Partikel (Bq/kg)	Restwasser (Bq/m <sup>3</sup> )	K <sub>D</sub> (l/kg)	in Lösung (%)
Aarberg	5.4.95	113.2	1.71	15	6.7	2258	80
Aarberg	5.4.95	85.3	1.15	13	4.9	2768	81
Klingnau	18.5.94	10.6	0.16	15	3.8	3993	96
Klingnau	18.5.94	7.3	1.22	168	19.0	8866	94
Klingnau	18.5.94	10.4	1.12	107	16.3	6573	94
Klingnau	18.5.94	11.4	1.55	136	16.4	8261	91
REWAG	25.1.94	0.6	1.29	1995	235.6	8469	99
REWAG	25.1.94	0.6	4.50	7753	516.9	14999	99
REWAG	27.10.93	1.3	0.22	169	3.7	45121	94
Aarberg	27.10.93	5.3	0.45	84	3.9	21295	90
Hagneck	27.10.93	5.1	0.36	71	5.5	12755	94
Hagneck	27.10.93	3.1	0.11	36	6.3	5634	98
Niederried	9.9.93	35.9	4.36	121	39.9	3044	90
Niederried	9.9.93	35.9	1.84	51	26.1	1958	93
Hagneck	9.9.93	34.6	2.73	79	20.3	3898	88
Hagneck	9.9.93	54.7	3.22	59	20.4	2882	86
Niederried	1.4.93	2.3	0.06	26	0.6	41641	91
Niederried	1.4.93	2.6	0.10	38	2.1	17973	96
Niederried	1.4.93	2.6	0.54	204	1.6	125061	75
Niederried	1.4.93	2.6	0.06	23	0.8	29957	93

Tabelle 8.2 : Radionuklidanalysen suspendierter Partikel abgetrennt mittels Durchflusszentrifuge aus Aarebereichen unterhalb der Kernkraftwerke (Lokalitäten siehe Abb. 1./)

Proben Nr.	Lokalität	Datum	Partikel- konz. [g/m <sup>3</sup> ]	60Co Aktivitäten			60Co			
				suspendierte Partikel [Bq/ m <sup>3</sup> ]	Partikel [Bq/ kg]	Restwasser [Bq/ m <sup>3</sup> ]	2σ [%]	K <sub>D</sub> [l/kg]	in Lö- sung [%]	
Aareabschnitt KKM bis Mündung im Bielersee										
Isl-St1	REWAG	27.1.94	1.7	2.75	1638	6	165.50	4	9898	98
ISL_D	REWAG	27.10.93	2.7	0.29	109	15	2.94	14	37165	91
Isl_D1*	REWAG	9.9.93	1.8	5.69	3188	4	5.93	16	537629	51
NR-D-3	Niederried	1.4.93	3.6	0.21	59	16	0.83	24	71100	80
NR_D1	Niederried	9.9.93	10.3	1.54	149	7	34.86	10	4283	96
AA_D1*	Aarberg	9.9.93	31.3	15.28	488	4	16.57	10	79464	52
AA_D1	Aarberg	27.10.93	2.0	0.27	137	15	10.42	6	13096	97
AA_D2*	Aarberg	27.10.93	1.9	0.52	273	11	5.56	11	49072	91
AA_D3*	Aarberg	27.10.93	2.2	2.91	1319	5	2.67	14	494501	48
ADZ-5-4	Aarberg	5.4.95	10.0	0.18	19	14	3.87	6	4787	95
NDZ-5-4	Aarberg	5.4.95	10.0	0.27	27	10	3.41	7	7822	93
HG-D1	Hagneck	9.9.93	29.5	2.19	74	9	14.57	11	5098	87
HG-D2	Hagneck	9.9.93	16.6	2.02	122	6	9.20	10	13234	82
HG-D-1	Hagneck	1.4.93	2.7	0.10	36	20	0.59	23	61601	86
HG-D-2	Hagneck	1.4.93	3.2	0.18	54	16	1.17	19	46486	87
HG_D	Hagneck	27.10.93	2.6	0.30	117	16	5.55	8	20999	95
Bielersee										
BS_B2	vor Delta	10.9.93	2.5	0.11	45	17	0.34	34	134139	75
BS-W1	Tiefe	10.9.93	16.6	0.63	38	9	1.08	45	35172	63
Aare/Rheinabschnitt ab Bielersee										
Biel_02	bei Biel	15.9.93	4.2	0.13	32	13	3.81	53	8325	97
GOE_08	Gösigen	24.8.93	20.1	0.31	15	13	1.18	30	12944	79
KLI_08	Klingnau	16.8.93	7.8	0.09	12	19	0.49	20	23676	84
DZW_1	Klingnau	18.5.93	10.0	0.64	64	12	8.10	10	7943	93
DZW_2	Klingnau	18.5.93	12.4	0.64	52	11	8.45	9	6136	93

Dies erklärt die starke Streuung in den Partikelkonzentrationen, wie auch in den adsorptiv gebundenen  $^{60}\text{Co}$ -Anteilen (siehe Tabellen 8.1 und 8.2).

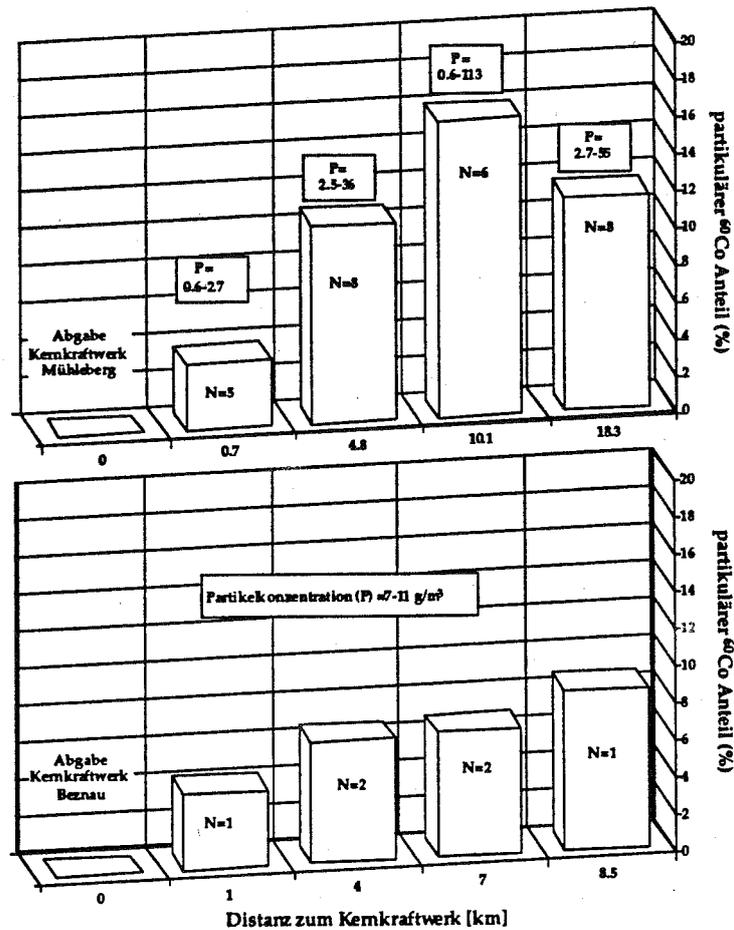
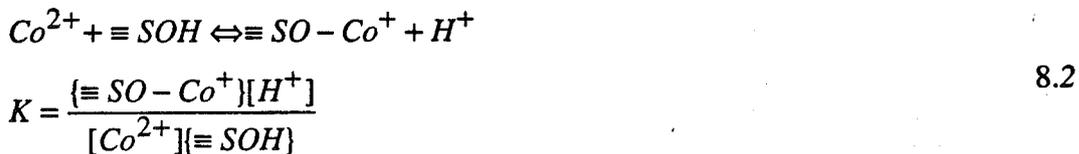


Abb. 8.4 : Zunahme des partikulär gebundenen  $^{60}\text{Co}$  Anteil als Funktion der Distanz zum Kernkraftwerk und damit als Funktion der zur Adsorption zur Verfügung stehenden Zeit. Die Angaben in % geben Durchschnittswerte der N Einzelmessungen wieder. P zeigt die Spannweite der gemessenen Partikelkonzentrationen.

Die Messungen unterhalb Beznau repräsentieren die Situation am 18.5.94, als die gleiche Durchbruchkurve an 4 verschiedenen Orten beprobt wurde. Die hier dargestellten Ergebnisse bestätigen den Ablauf von Adsorptionsprozessen in natürlichen Gewässern. Unter Hinzunahme der Messwerte in Bielersee (37 und 25% partikulär gebunden) überrascht jedoch die langsame Kinetik dieser Prozesse. Dass selbst nach 24 Stunden Kontaktzeit mehr als 70% in Lösung bleibt, ist für Modellierungen des Radionuklidtransports äusserst wichtig.

Die Messung von Radionuklidaktivitäten sowohl an Partikeln, wie in 'gelöster' Form ermöglicht die Berechnung von  $K_D$ -Werten. Diese Werte ermöglichen eine Abschätzung des an Partikel gebundenen Radionuklidanteils. Je höher der  $K_D$ -Wert eines Radionuklids ist, desto effizienter wird das Nuklid an Partikel adsorbieren.  $K_D$ -Werte spielen bei theoretischen Betrachtungen von Wechselwirkungen zwischen

gelösten Stoffen und Partikeln eine grosse Rolle. Modellierungen dieser Metall-Oberflächenwechselbeziehungen wurden sowohl auf experimenteller als auch theoretischer Basis entwickelt (Schindler 1975). Eine Vorgehensweise basiert auf der Anwendung des Massenwirkungsgesetzes zu Ionenaustauschphänomenen unter Verwendung von thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten (Garrels und Christ 1965). Drei Fragen drängen sich auf bei der Anwendung solcher Theorie auf natürliche Systeme: (1) Handelt es sich bei den in Experimenten benutzten Phasen um natürliche Analoge? (2) Wird ein Equilibrium in einem dynamischen System, wie einem Fluss je erreicht? (3) Wie lange bedarf es, um dieses Equilibrium zu erreichen? In Tab. 8.1 und 8.2 sind  $K_D$  Werte dieser Arbeit aufgelistet. Um die grossen Variationen zu verstehen, ist es von Interesse, die Herleitung dieses Konzeptes zu rekapitulieren. Die Bindung von  $Co^{2+}$  an Partikeloberflächen wird beschrieben durch eine Gleichgewichtsreaktion, in der Oberflächen OH-Gruppen als Liganden agieren (Stumm und Morgan 1981).



S stellt eine Partikeloberfläche dar, K die thermodynamische Gleichgewichtskonstante, Variablen in eckigen Klammern beziehen sich auf Konzentrationen, Werte in geschwungenen Klammern geben die Anzahl vorhandener Oberflächenplätze an. Weitere Angaben über den Verteilungskoeffizienten definiert als:

$$K_D = \frac{\{\equiv SO - Co\}}{[Co^{2+}]}, \text{ in } \frac{Bq / kg}{Bq / L} \quad 8.3$$

können der Arbeit von Sigg (1987) entnommen werden. Gleichung 8.2 verdeutlicht, dass die thermodynamische Gleichgewichtskonstante K signifikant abhängt von Parametern wie pH und der Konzentration an Oberflächenplätzen, jedoch unabhängig ist von der Partikelkonzentration. Li et al. (1984) demonstrierten in Laborversuchen, dass  $K_D$  Werte mit zunehmender Partikelkonzentration ansteigen. Diese Feststellung hilft dem Verständnis der in der Natur auftretenden starken Variabilität von  $K_D$ 's, da die Partikelkonzentrationen als Funktion des Ortes und der Zeit stark variieren.

Variationen von Partikelkonzentrationen als Funktion der Zeit sind z.T. erheblich. Sie beliefen sich während einer 3-stündigen Periode in Niederried auf 300%. Proportionen, Konzentrationen, wie auch Korngrösse der Hauptminerale Smektit, Glimmer, Chlorit, Kaolinit, Quarz, Feldspat, Kalzit und Dolomit variieren entsprechend. Da diese Parameter bereits an der gleichen Lokalität als Funktion der Zeit Veränderungen unterworfen sind, muss dies im Verlauf eines Flusses oder beim

Vergleich verschiedener Flüsse noch frappierendere Auswirkungen haben. Aus diesem Grund ist es unumgänglich, Informationen über Partikelkonzentrationen, Korngrößenverteilungen und Mineralogie anzugeben, bevor ein Vergleich mit anderen Lokalitäten unternommen wird.

Bei Anwesenheit von biologischer Materie oder hohen organischen Ligandkonzentrationen liegt Co nicht nur als  $\text{Co}^{2+}$  Ion in Lösung vor, sondern kann ebenfalls in Form von anionischen, wie neutrale Kobaltkomplexe auftreten (Ahrlund, 1975; Nolan et al., 1992), was das Adsorptionsverhalten grundlegend ändert. Demzufolge sind neben Partikelfracht und -konzentration auch organische Komplexierung bei Adsorptionsprozessen von Bedeutung. Da diese in  $K_D$  Berechnungen nicht einfließen, ist deren Interpretation oftmals irreführend.

Labortests haben gezeigt, dass unter Verwendung natürlicher polymineralischer Sedimente auch nach 25 Tagen noch kein Gleichgewicht zwischen gelöster und adsorbierter Form erreicht ist (Santschi et al. 1986). In den kalten Monaten, wenn die Aarewasseraufenthaltszeit und damit auch die Radionuklidverweilzeit bis auf 3 Monate erhöht wird, ist das Transportmedium (Tonmineralien) reduziert (Kapitel 5.5). Zum anderen spielen chemische Faktoren eine Rolle. So wird z.B. bis zu 50% des  $^{60}\text{Co}$  nach der Abgabe durch das KKW Mühleberg, wo der gelöste Anteil kationisch vorliegt, in der Aare negativ komplexiert (Albrecht et al. 1994). Diese Komplexierung, welche wahrscheinlich auf einer Verbindung mit organischen Substanzen wie Fulvin- oder Huminsäuren beruht, erklärt die Passivität eines beachtlichen  $^{60}\text{Co}$  Anteils während der im aquatischen Milieu ablaufenden Adsorptionsprozesse. Es ist noch nicht klar, inwieweit diese Erklärung auch für Zn und Mn herangezogen werden kann.

### Zusammenfassung

(1) Die von den Schweizer Kernkraftwerken emittierten Radionuklide können im Flusswasser unterhalb der Kernkraftwerke nachgewiesen werden. Der Anstieg der Radioaktivität hängt direkt mit den Abgaben der Kernkraftwerke zusammen. Voraussetzung für die Beprobung solcher Abgaben sind Kenntnisse über den Abgabetermin und das hydraulische Regime des Flussabschnitts. Modellierete und gemessene Ergebnisse stimmen recht gut überein. Ausserhalb der direkt an Abgaben gebundenen Impulse liegen die Aktivitäten unterhalb der Nachweisgrenzen bzw. sind vernachlässigbar.

(2) Im Bielersee steigt die Residenzzeit der Radionuklide im Winter bis auf mehrere Wochen an. Dadurch wird der Abgabeimpuls sehr stark verdünnt. Im Sommer kann sich zwischen dem Aarezufluss und -ausfluss eine Kurzschluss bilden. Dies verringert

Aufenthaltszeit und Durchmischung und erlaubt es, den Impuls auch durch den See zu verfolgen.

(3) Während des Transport kommt es zur Anlagerung eines Teils der Radionuklide an suspendierte Partikel. Dieser Adsorptionsprozess läuft für die verschiedenen Elemente sehr unterschiedlich ab, was von der Elementchemie wie auch der Flusschemie abhängt. Die Übergangsmetalle haben die Eigenschaft, im Fluss verschiedenste Komplexe zu bilden, die eine Adsorption erschweren und damit einen Weitertransport ermöglichen. Im Fluss wurde sowohl für  $^{60}\text{Co}$ , als auch  $^{65}\text{Zn}$  eine langsame Adsorptionskinetik ermittelt. So lagerten sich nach 24 Std nur etwa 30 % des  $^{60}\text{Co}$  an Partikel  $> 0.5 \mu\text{m}$ . Dies erklärt die geringen Anteile der Übergangsradiionuklide, die in Sedimenten innerhalb der Schweiz zur Ablagerung gelangen (siehe 4). Cs hat keine intensiv komplexbildenden Eigenschaften und lagert sich effizienter an suspendierte Partikel an.

(4) Innerhalb von Ruhezonen im Fluss (im Fall der Schweiz handelt es sich vorwiegend um Stauseen und Reservoirs) oder innerhalb des Bielersees gelangen radionuklidtragende Partikel zur Ablagerung. Die hier auftretenden Sedimente fungieren als Archive sowohl zur Rekonstruktion von Radionuklidabgaben durch die Kernkraftwerke, wie auch zur Ermittlung der Adsorptionskinetik. So finden sich in Sedimentkernen, die nur wenige km unterhalb der Anlagen liegen nur geringe Aktivitäten. Diese nehmen dann mit zunehmender Entfernung zu, besonders im Bereich des Bielersees. Schwankungen sind besonders eine Folge der stark wechselnden, lokalen Sedimentationsereignisse. Im Bereich der Schweiz werden etwa 50% des vom KKW Mühleberg abgegebenen  $^{60}\text{Co}$  in Sedimenten abgelagert, für das KKW Beznau liegt der Anteil bei nur 10 %.

## Literaturnachweis

Ahrland, S. (1975), "Metal complexes in sea water". in E. D. Goldberg, Ed., *Dahlem workshop on the nature of sea-water*. Berlin, Abakon Verlagsgesellschaft. pp. 219-244.

Albrecht, A., Beer, J., Gloor, M., Fischer, A. and Mattle, N. (1994), Aquatic transport behavior of cobalt deduced from nuclear reactor derived  $^{60}\text{Co}$ . *Mineralogical magazine*. 58A, 13.

Albrecht, A. (1995a), Anthropogene Radionuklide im Bielersee: Wissenschaftliche Betrachtungen und Kontrollaspekte. Jahresbericht Bundesamt für Gesundheitswesen, SUEr, Chemin du Musée, CH-1700 Fribourg, im Druck.

Albrecht, A., Reichert, P., Beer, J. and Lück, A. (1995b), Evaluation of the importance of reservoir sediments as sinks for reactor-derived radionuclides in riverine systems. *Journal of Environmental Radioactivity*. 28, 239-269.

- Amiard-Triquet, C. and Foulquier, L. (1978), Modalités de la contamination de deux chaînes trophiques dulcaquicoles par le cobalte 60: I: Contamination directe des organisme par l'eau. *Water, Air, and Soil Pollution*. 9, 475-489.
- AQUARIUS. (1992), Biologische Untersuchungen der Aare im Hinblick auf die Flusserwärmung infolge der Kühlwassernutzung. Bericht: Environnement et sciences aquatiques, Case Postale 67 - CH 2001 Neuchâtel
- Devell, L., Tovedal, H., Bergström, U., Appelgren, A., Chryssler, J. and Andersson, L. (1986), Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl. *Nature*. 321, 192-193.
- Edington, D. N. and Robbins, J. A. (1975), The behaviour of plutonium and other long-lived radionuclides in Lake Michigan. II. Patterns of deposition in the sediments. IAEA Conference: Impacts of nuclear releases into the aquatic environment. 245-260.
- Ferrer, M. C. (1983), Étude expérimentale du comportement de huit radionucléides artificiels dans le cours terminal du Rhône. L'Université de Bordeaux I, Dissertation No. 1833.
- Fischer, A. (1994), Die Spezierung von <sup>60</sup>Co im fließenden aquatischen Milieu. Praktikumsbericht, EAWAG CH-8600 Dübendorf.
- Garrels, R. M. and Christ, C. L. (1965), *Solutions, Minerals, and Equilibria*. New York, Harper and Row.
- Håkanson, L. and Jansson, M. (1983), *Principles of Lake Sedimentology*. Berlin, Springer.
- Hesslein, R. H. (1987), Whole lake metal radiotracer movement in fertilized lake basins. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 44, 74-82.
- Krishnaswami, S., Lal, D., Martin, J. M. and Meybeck, M. (1971), Geochronology of lake sediments. *Earth and Planetary Science Letters*. 11, 407-414.
- KUeR. (1989), Bericht der eidg. Kommission zur Überwachung der Radioaktivität für die Jahre 1985-1986 Zuhänden des Bundesrates. Bericht Nr. :311.310.1 d
- Leonard, K. S., Harvey, B. R., Woodhead, R. J., Brooks, T. and McCubbin, D. (1994), Assessment of an ultrafiltration technique for the fractionation of radionuclides

- associated with humic material. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*. 181, 309-320.
- Leonard, K. S., McCubbin, D. and Harvey, B. R. (1993), Chemical speciation and environmental behaviour of  $^{60}\text{Co}$  discharged from nuclear establishment. *J. Environ. Radioactivity*. 20, 1-21.
- Li, Y.-H., Burkhardt, L., Buchholtz, M., O'Hara, P. and Santschi, P. H. (1984), Partition of radiotracers between suspended particles and seawater. *Geochimica et Cosmochimica Acta*. 48, 2011-2019.
- Morel, F. M. M. and Hudson, R. J. M. (1985), "The geobiological cycle of trace elements in aquatic systems: Redfield revisited". in W. Stumm, Ed., *Chemical processes in lakes*. New York, John Wiley. pp. 251-281.
- Müller, K. (1982), Die Bielerseesedimente. Dissertation Universität Bern.
- Mundschenk, H. (1991), Zum Verhalten der Kobaltisotope  $^{58}\text{Co}$  und  $^{60}\text{Co}$  aus Kernkraftwerken in Fließgewässern am Beispiel des Rheins. *Z. Wasser-Abwasser-Forsch.* 24, 268-284.
- Mundschenk, H. and Tolksdorf, W. (1988), Methodische Untersuchungen zur Sedimentation mit Hilfe radioaktiver Leitstoffe am Beispiel eines Kleinhafens am Mittelrhein. *Deutsche Gewässerkundliche Mitteilungen*. 32, 110-119.
- Nolan, C. V., Fowler, S. W. and Teyssie, J.-L. (1992), Cobalt speciation and bioavailability in marine organisms. *Marine Ecology Progress Series*. 88, 105-116.
- Nydegger, P. (1976a), Strömungen in Seen. Untersuchungen in situ und an nachgebildeten Modellseen. *Beitr. Geol. Schweiz, kl. Mitt.* 66, 142-177.
- Nydegger, P. (1976b), Untersuchungen über Feinstofftransport in Flüssen und Seen, über Entstehung von Trübungshorizonten und zuflussbedingten Strömungen im Bielersee und einigen Vergleichsseen. *Beitr. zur Geologie der Schweiz. Hydrologie*. 16,
- Reichert, P. (1994a), AQUASIM - A tool for simulation and data analysis of aquatic systems. *Water Sci. Tech.* 30, 21-30.

- Reichert, P. (1994b), Concepts underlying a computer program for the identification and simulation of aquatic systems. Schriftenreihe der EAWAG, 7, EAWAG CH-8600 Dübendorf.
- Santschi, P. H., Bollhalder, S., Farrenkothen, K., Lück, A., Zingg, S. and Sturm, M. (1988), Chernobyl Radionuclides in the Environment: Tracers for the Tight Coupling of Atmospheric, Terrestrial, and Aquatic Geochemical Processes. *Environmental Science & Technology*. 22, 510-516.
- Santschi, P. H., Nyffeler, U. P., Anderson, R. F., Schiff, S. L., O'Hara, P. and Hesslein, R. H. (1986), Response of radioactive trace metals to acid-base titrations in controlled experimental ecosystems: Evaluation of transport parameters for application to whole-lake radiotracer experiments. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 43, 60-77.
- Schindler, P. W. (1975), Removal of trace metals from the oceans: A zero order model. *Thal. Jugoslavica*. 11, 101-111.
- Sigg, L. (1987), "Surface chemical aspects of the distribution and fate of metal ions in lakes". in W. Stumm, Ed., *Aquatic surface chemistry*. New York, John Wiley. pp. 319-349.
- Stumm, W. and Morgan, J. J. (1981), *Aquatic Chemistry; An Introduction Emphasizing Chemical Equilibria in Natural Waters*. New York, John Wiley & Sons.
- UNSCEAR. (1993), Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation, United Nations, New York, UN sales publication E.94.IX.2.
- Wan, G. J., Santschi, P. H., Sturm, M., Farrenkothen, K., Lück, A., Werth, E. and Schuler, C. (1987), Natural ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$ ) and fallout ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland. *Chemical Geology*. 63, 181-196.
- Weiss, H.-P. (1977), Sedimentologische und Isotopengeochemische Untersuchung der Lockergesteine im Bieler See. Diplomarbeit, Universität Bern.
- Wright, R. F., Matter, A., Schweingruber, M. and Siegenthaler, U. (1980), Sedimentation in Lake Biel, an eutrophic lake in northwestern Switzerland. *Schweiz. Z. Hydrol.* 42, 101-126.

---

## Danksagung

Ein besonderer Dank gilt den Herren M. Haller, C. Perotto und R. Schuh (Kernkraftwerk Mühleberg), U. Weidmann und H. Meier (KKW Beznau), H. Knüsel (BKW Bern), E. Schwab (Regionale Leitstelle Wasserkraftwerk Aarberg), R. Neuhaus (Freiburgische Elektrizitätswerke Schifflingen), G. Hiltbrand (Bielersee Kraftwerke Hagneck) B. Müller (Aarewerke AG, Kraftwerk Klingnau) und H. Krarup (Kraftwerk Augst) für die geleistete Unterstützung. Die technische Unterstützung im Labor und im Gelände durch A. Lück, wie auch durch C. Stengel, Y. Weidmann, S. Bollhalder und D. Kobler und A. Zwyssig soll hier mit besonderem Dank Erwähnung finden. Der Einsatz der Diplomanden D. Gerber, N. Mattle und H. Ehmman, sowie der Praktikanden A. Fischer und R. Mani hat sehr dazu beigetragen, diese Arbeit voranzutreiben. Befruchtende Kritik von Seiten der HSK (A. Leupin, Projektbegleiter und F. Cartier), der SUEP (H. Völkle, C. Murith) dem IRA (J. Valley, J.-J. Geering) und der KUEP sei hier dankend erwähnt. Für die Unterstützung bei Fließmodellierungen und konstruktiver Kritik geht der Dank an P. Reichert. Seephysikalische Daten vom Bielersee wurden uns von Herrn M. Zeh (Gewässer- und Bodenschutzlabor Kanton Bern) freundlicherweise zur Verfügung gestellt. Sie wurden unter Mithilfe von M. Gloor ausgewertet.

Anhang

**A1: Daten der koordinierten Abgaben (Radionuklidmessungen in Wasserproben)**

(a) Mühleberg-Niederried  
 ausbeutekorrigierte  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten im Flusswasser als Funktion der Zeit  
 1.4.93 Beginn der Abgabe 6:00

Beprobungs- zeit	$^{60}\text{Co}$ Saane dominierte Seite			$^{60}\text{Co}$ Aare dominierte Seite		
	Bq/m <sup>3</sup>	2 $\sigma$	Ausbeute[%]	Bq/m <sup>3</sup>	+/- 2 s	Ausbeute [%]
07:00	b.d.		44	b.d.		40
07:30	b.d.		40	b.d.		38
08:00	b.d.		38	b.d.		39
08:30	0.6	0.3	41	b.d.		32
09:00	0.9	0.4	43	1.5	0.4	37
09:30	2.0	0.4	40	2.1	0.4	42
10:00	2.1	0.4	41	2.0	0.4	38
10:30	n.d.			1.8	0.3	42
11:00	1.6	0.3	44	1.9	0.5	42
11:30	1.4	0.2	41	2.3	0.5	41
12:00	1.4	0.3	44	1.9	0.3	44
12:30	1.0	0.3	50	2.0	0.3	37
13:00	0.6	0.2	51	1.1	0.3	43
13:30	0.3		49	0.6		46
14:00	b.d.		47	b.d.		44
14:30	b.d.		41	b.d.		43
15:00	b.d.		39	b.d.		44
15:30	b.d.		40	b.d.		42
16:00	b.d.		43	b.d.		43

17.12.1992; Beginn der Abgabe 10:00

Beprobungsperiode		$^{60}\text{Co}$ Saane dominierte Seite, ausser *			
von	bis	Bq/m <sup>3</sup>	2 s	Ausbeute [%]	
10:31	10:38	0.6	0.2	54	
10:45	11:07	b.d.		53	
11:14	11:21	b.d.		54	
11:28	11:36	b.d.		28	
11:43	11:50	b.d.		25	
11:57	12:12	b.d.		30	
12:19	12:40	1.5	0.2	50	
12:48	13:09	2.7	0.3	19	
12:48*	13:09*	5.9	0.3	57	
13:16	13:38	3.9	0.3	23	
13:45	14:07	4.1	0.4	14	
14:14	14:36	4.3	0.4	11	
14:43	15:04	5.3	0.5	8	
15:12	15:26	4.2	0.4	10	
15:33	15:40	5.0	0.4	47	
15:48	15:55	4.4	0.3	54	
16:02	16:24	3.9	0.3	47	
16:31	16:38	2.8	0.3	51	

b.d. = unterhalb Nachweisgrenze; n.d. = nicht gemessen; \* = Aare dominierte Seite

(b) Beznau-Klingnau-Rhein, ausbeutekorrigierte  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten im Flusswasser als Funktion der Zeit

## Probnahme Halbbrücke Stausee Klingnau 18.5.94

Beginn der Abgabe 8:00 Kernkraftwerk Beznau; Aktivitäten in  $\text{Bq/m}^3$ 

Proben-Nr.	Zeit	Nuklid	gemessen	$2\sigma$	Ausbeute- faktor	korri- giert	$2\sigma$
W_02/2	8.15	$^{137}\text{Cs}$	0.4	0.2	für Cs nicht bestimmt		
		$^{210}\text{Pb}$	3.4	1.3			
W_03/2	8.30	$^{137}\text{Cs}$	0.3	0.2	1.0	3.5	1.3
W_04/2	8.45	$^{137}\text{Cs}$	0.4	0.1	1.0	2.6	0.8
		$^{210}\text{Pb}$	2.6	0.8			
W_05/2	9.00	$^{137}\text{Cs}$	1.6	0.3	1.0	4.8	1.3
		$^{210}\text{Pb}$	4.9	1.4			
W_06/2	9.15	$^{58}\text{Co}$	0.4	0.2	1.6	0.6	0.3
		$^{60}\text{Co}$	0.6	0.2	1.6	0.9	0.3
W_07/2	9.30	$^{137}\text{Cs}$	0.6	0.2	2.0	1.3	0.4
		$^{58}\text{Co}$	0.7	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	5.3	0.4			
W_08/2	9.45	$^{137}\text{Cs}$	0.9	0.2	1.6	2.0	0.5
		$^{58}\text{Co}$	1.2	0.3			
		$^{60}\text{Co}$	11.8	0.7			
W_09/2	10.00	$^{137}\text{Cs}$	1.5	0.3	1.8	1.3	0.5
		$^{58}\text{Co}$	0.7	0.3			
		$^{60}\text{Co}$	9.0	0.6			
W_10/2	10.15	$^{137}\text{Cs}$	2.4	0.3	1.8	2.0	0.4
		$^{58}\text{Co}$	1.1	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	11.2	0.7			
W_11/2_Q1	10.30	$^{137}\text{Cs}$	1.4	0.2	1.9	0.5	0.4
		$^{58}\text{Co}$	0.3	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	3.2	0.3			
W_12/2_Q1	10.30	$^{137}\text{Cs}$	0.9	0.2	1.8	1.6	0.5
		$^{58}\text{Co}$	0.9	0.3			
		$^{60}\text{Co}$	9.1	0.6			
W_13/2_Q1	10.30	$^{137}\text{Cs}$	1.3	0.3	1.7	2.1	0.5
		$^{58}\text{Co}$	1.2	0.3			
		$^{60}\text{Co}$	10.6	0.6			
W_14/2_Q1	10.30	$^{137}\text{Cs}$	1.3	0.3	1.9	1.7	0.4
		$^{58}\text{Co}$	0.9	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	8.6	0.5			
W_15/2_Q1	10.30	$^{137}\text{Cs}$	1.2	0.2	1.8	1.7	0.6
		$^{58}\text{Co}$	0.9	0.3			
		$^{60}\text{Co}$	11.4	0.7			
W_16/2	10.45	$^{137}\text{Cs}$	1.2	0.3	1.8	1.0	0.4
		$^{58}\text{Co}$	0.6	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	5.2	0.4			
W_17/2	11.15	$^{137}\text{Cs}$	1.2	0.2	1.8	0.6	0.3
		$^{58}\text{Co}$	0.3	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	2.9	0.3			
W_18/2	11.30	$^{137}\text{Cs}$	0.9	0.2	1.9	2.6	0.5
		$^{58}\text{Co}$	1.4	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	0.9	0.3			
W_19/2	11.45	$^{137}\text{Cs}$	6.4	1.6	1.2	7.7	1.9
		$^{58}\text{Co}$	0.3	0.2			
		$^{60}\text{Co}$	1.2	0.2			
W_20/2	12.00	$^{137}\text{Cs}$	0.4	0.2	1.9	1.1	0.3
		$^{60}\text{Co}$	0.6	0.1			
		$^{137}\text{Cs}$	0.6	0.1			
W_21/2	12.15	$^{60}\text{Co}$	0.6	0.2	1.9	1.1	0.3
		$^{137}\text{Cs}$	0.6	0.1			
		$^{58}\text{Co}$	0.2	0.2			
W_22/2	12.30	$^{60}\text{Co}$	0.5	0.2	1.9	1.0	0.3
		$^{137}\text{Cs}$	1.0	0.2			
		$^{58}\text{Co}$	0.8	0.2			
W_23/2	12.45	$^{60}\text{Co}$	0.8	0.2	1.9	1.6	0.4
		$^{137}\text{Cs}$	0.6	0.2			
		$^{58}\text{Co}$	0.6	0.2			
W_24/2	13.00	$^{60}\text{Co}$	0.6	0.2	1.8	1.0	0.3
		$^{137}\text{Cs}$	0.8	0.2			
		$^{58}\text{Co}$	0.5	0.2			
W_25/2	13.30	$^{60}\text{Co}$	0.5	0.2	1.9	1.0	0.3
		$^{137}\text{Cs}$	0.6	0.2			
W_26/2	14.00	$^{137}\text{Cs}$	0.6	0.1			

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

## Anhang A1 Daten der koordinierten Abgaben

Probnahme Wehr Stausee Klingnau 18.5.94

Beginn der Abgabe 8:00 Kernkraftwerk Beznau; Aktivitäten in Bq/m<sup>3</sup>

Proben-Nr.	Zeit	Nuklid	gemessen	2σ	Ausbeute-faktor	korri-giert	2σ
W_27/2	8.30	<sup>137</sup> Cs	0.5	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	12.4	1.5	1.2	14.5	1.7
W_28/2	8.45	<sup>137</sup> Cs	0.3	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	4.0	1.4	1.2	5.0	1.7
W_29/2	9.00	<sup>137</sup> Cs	0.6	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	7.4	2.1	1.2	8.6	2.4
W_30/2	9.15	<sup>60</sup> Co	0.4	0.1	2.0	0.7	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.6	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	7.8	1.4	1.1	8.9	1.6
W_31/2	9.30	<sup>58</sup> Co	0.3	0.2	2.1	0.6	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.3	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	4.1	1.3	1.2	4.8	1.6
W_32/2	9.45	<sup>58</sup> Co	0.2	0.2	2.0	0.4	0.3
		<sup>60</sup> Co	0.4	0.1	2.0	0.7	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.5	0.2			
W_33/2	10.15	<sup>210</sup> Pb	1.7	1.4	1.1	2.0	1.6
		<sup>58</sup> Co	0.2	0.1	2.0	0.4	0.2
		<sup>60</sup> Co	1.8	0.2	2.0	3.4	0.4
W_34/2	10.30	<sup>137</sup> Cs	0.5	0.1			
		<sup>210</sup> Pb	4.0	0.9	1.1	4.6	1.0
		<sup>58</sup> Co	0.8	0.3	1.8	1.4	0.5
W_35/2	10.45	<sup>60</sup> Co	7.9	0.5	1.8	14.2	1.0
		<sup>137</sup> Cs	1.2	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	3.2	1.3	1.1	3.6	1.5
W_36/2_Q2	11.00	<sup>58</sup> Co	0.4	0.3	1.7	0.7	0.4
		<sup>60</sup> Co	7.2	0.5	1.7	12.2	0.8
		<sup>137</sup> Cs	0.8	0.2			
W_37/2_Q2	11.00	<sup>210</sup> Pb	1.8	1.5	1.1	1.9	1.6
		<sup>58</sup> Co	1.2	0.2	2.0	2.3	0.4
		<sup>60</sup> Co	11.9	0.5	2.0	23.7	1.1
W_38/2_Q2	11.00	<sup>137</sup> Cs	1.3	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	2.9	1.1	1.1	3.3	1.2
		<sup>58</sup> Co	1.3	0.3	1.9	2.5	0.6
W_39/2_Q2	11.00	<sup>60</sup> Co	12.2	0.8	1.9	22.8	1.4
		<sup>137</sup> Cs	1.2	0.3			
		<sup>210</sup> Pb	3.4	1.4	1.2	4.0	1.7
W_40/2_Q2	11.00	<sup>58</sup> Co	0.8	0.3	2.2	1.8	0.6
		<sup>60</sup> Co	9.7	0.6	2.2	21.3	1.3
		<sup>137</sup> Cs	1.1	0.2			
W_41/2	11.15	<sup>58</sup> Co	1.1	0.2	2.0	2.2	0.5
		<sup>60</sup> Co	8.2	0.5	2.0	16.3	1.0
		<sup>137</sup> Cs	1.1	0.2			
W_42/2	11.30	<sup>210</sup> Pb	4.2	1.3	1.1	4.8	1.4
		<sup>58</sup> Co	0.8	0.2	2.0	1.6	0.4
		<sup>60</sup> Co	6.9	0.4	2.0	14.1	0.9
W_43/2	11.45	<sup>137</sup> Cs	1.0	0.2			
		<sup>58</sup> Co	1.0	0.2	1.8	1.8	0.4
		<sup>60</sup> Co	7.1	0.5	1.8	13.0	0.9
W_44/2	12.00	<sup>137</sup> Cs	0.9	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	5.0	1.0	1.1	5.6	1.1
		<sup>58</sup> Co	0.6	0.2	1.7	1.1	0.4
W_45/2	11.30	<sup>60</sup> Co	6.3	0.4	1.7	10.9	0.8
		<sup>137</sup> Cs	1.0	0.2			
		<sup>58</sup> Co	0.2	0.2	1.7	0.4	0.3
W_46/2	11.45	<sup>60</sup> Co	3.0	0.3	1.7	5.2	0.5
		<sup>137</sup> Cs	0.6	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	5.1	1.0	1.1	5.4	1.0
W_47/2	12.00	<sup>58</sup> Co	0.4	0.2	1.7	0.6	0.4
		<sup>60</sup> Co	3.4	0.3	1.7	5.8	0.6
		<sup>137</sup> Cs	0.7	0.2			
W_48/2	12.00	<sup>210</sup> Pb	3.9	1.4	1.0	4.1	1.5

Proben-Nr.	Zeit	Nuklid	gemessen	2 $\sigma$	Ausbeute-faktor	korri-giert	2 $\sigma$
W_45/2	12.30	<sup>60</sup> Co	1.0	0.2	1.6	1.7	0.4
		<sup>137</sup> Cs	0.5	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	1.9	1.6	1.0	1.9	1.6
W_46/2	13.00	<sup>60</sup> Co	0.7	0.2	1.6	1.1	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.4	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	6.9	1.2	1.1	7.4	1.2
W_47/2	13.30	<sup>60</sup> Co	0.6	0.2	1.8	1.0	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.4	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	6.0	1.4	1.1	6.4	1.5
W_48/2	14.00	<sup>60</sup> Co	0.7	0.2	1.8	1.3	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.5	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	4.8	1.3	1.1	5.1	1.4
W_49/2	14.30	<sup>60</sup> Co	0.5	0.2	1.6	0.8	0.3
		<sup>137</sup> Cs	0.7	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	2.2	1.8	1.0	2.3	1.8
W_50/2	15.00	<sup>137</sup> Cs	0.5	0.1			
		<sup>210</sup> Pb	4.9	0.9	1.0	5.1	1.0
W_51/2	15.30	<sup>137</sup> Cs	0.5	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	4.1	1.4	1.0	4.2	1.4
W_52/2	16.00	<sup>60</sup> Co	0.4	0.1	1.6	0.7	0.2
		<sup>137</sup> Cs	0.6	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	2.8	1.8	1.0	2.9	1.9
W_53/2	16.30	<sup>137</sup> Cs	0.8	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	4.5	1.0	1.2	5.3	1.2
W_54/2	17.00	<sup>137</sup> Cs	0.6	0.2			
		<sup>210</sup> Pb	4.0	1.8	1.0	4.1	1.8

Anhang A2: Radionuklide in Sedimentkernen

(a) Stausee Niederried

Kern NR R2

Tiefe [cm]		Korngrösse	% < 2 $\mu$ m	<sup>60</sup> Co		<sup>137</sup> Cs	
von	bis	Median [ $\mu$ m]	Tonfraktion	[Bq/kg]	+/- 2 $\sigma$	[Bq/kg]	+/- 2 $\sigma$
0	1	16	22	22.8	1.9	13.5	1.7
1	2	31	15	13.6	1.4	10.5	1.4
2	3	40	13	11.0	1.0	7.2	1.0
3	4	46	10	7.5	1.1	7.4	1.1
4	5	40	12	6.9	1.0	6.0	1.1
5	6	34	14	7.7	1.1	9.3	1.3
6	7	43	12	7.3	0.8	8.3	1.0
7	8	40	10	2.9	0.6	5.4	0.8
8	9	42	10	1.6	0.5	4.1	0.8
9	10	44	9	1.7	0.6	4.2	0.8
10	11	38	10	NWG		4.9	1.0
11	12	30	11	NWG		5.2	1.4
12	13	14	14	NWG		4.9	1.1
13	14	12	12	4.1	0.8	10.2	1.2
14	15	29	9	2.4	0.6	5.8	0.9
15	16	33	8	1.9	0.7	5.9	1.0
16	17	41	9	NWG		7.7	1.0
17	18	48	7	NWG		4.3	0.8
18	19	52	6	2.1	0.5	4.5	0.7
19	20	49	8	2.1	0.6	5.8	0.8
20	21	49	8	2.7	0.7	6.1	0.8
21	22	54	7	2.1	0.5	6.3	0.7
22	23	50	8	2.5	0.7	6.2	1.0
23	24	43	9	2.1	0.6	5.5	0.8

## Kern NR R3

Tiefe [cm]		Korngrösse	% < 2 $\mu$ m	$^{60}\text{Co}$		$^{137}\text{Cs}$	
von	bis	Median [ $\mu$ m]	Tonfraktion	[Bq/kg]	+/- 2 $\sigma$	[Bq/kg]	+/- 2 $\sigma$
0	1	7	29	38.9	3.4	25.7	3.0
1	2	7	28	25.7	2.4	22.9	2.6
2	3	9	25	16.6	1.9	21.8	2.3
3	4	8	26	16.3	1.6	20.4	1.9
4	5	7	28	17.8	1.9	27.0	2.6
5	6	8	26	19.0	1.6	24.0	2.1
6	7	10	24	17.1	1.4	22.2	1.8
7	8	10	24	19.3	1.6	19.3	1.7
8	9	14	20	1.6	0.5	4.1	0.8
9	10	19	19	1.7	0.6	4.2	0.8
10	11	24	16	3.2	0.7	10.1	1.1
11	12	26	16	NWG		8.5	1.4
12	13	27	16	NWG		8.9	1.0
13	14	30	14	NWG		8.4	0.9
14	15	28	16	1.5	0.6	9.6	1.1
15	16	33	7	3.0	0.9	12.1	1.5
16	17	29	15	NWG		8.4	1.4
17	18	17	21	2.5	0.9	15.0	1.5
18	19	8	25	5.8	1.4	18.1	2.1
19	20	7	27	9.0	1.7	21.4	2.4
20	21	10	24	16.7	1.1	17.8	1.4
21	22	9	27	2.3	1.0	13.8	1.5
22	23	11	24	4.1	1.3	24.4	2.3
23	24	23	18	8.1	1.4	25.3	2.3
24	25	29	15	6.3	1.1	26.2	2.1
25	26	34	14	4.8	1.1	28.2	2.2
26	27	23	17	2.8	1.1	27.0	2.3
27	28	13	21	1.9	0.9	15.8	1.6
28	29	12	21	3.5	1.2	11.4	1.5
29	30	12	22	NWG		9.3	1.1
30	31	10	24	1.7	0.8	5.4	1.2
31	32	9	25	NWG		9.3	1.4
32	33	8	26	1.8	0.6	8.8	1.0
33	34	7	28	11.4	1.5	16.5	1.8
34	35	12	22	19.1	1.7	19.1	1.8
35	36	12	21	37.9	2.7	24.3	2.1
36	37	21	19	33.5	2.3	40.4	2.7
37	38	33	15	19.4	2.0	47.3	3.5
38	39	29	16	6.5	1.3	37.7	3.0
39	40	31	13	4.0	1.0	25.9	2.4
40	41	30	14	NWG		26.7	2.1
41	42	26	16	NWG		24.6	2.0
42	43	n.b.	n.b.	3.1	0.6	29.1	1.9

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

### Kern NR L2

Tiefe [cm]		Korngrösse		<sup>60</sup> Co		<sup>137</sup> Cs	
von	bis	Median [µm]	% < 2 µm Tonfraktion	[Bq/kg]	+/- 2 σ	[Bq/kg]	+/- 2 σ
0	1	9	20	12.9	1.8	18.3	2.1
1	2	9	24	14.3	1.5	14.5	1.7
2	3	7	27	9.8	1.4	16	1.8
3	4	8	26	5.3	1.3	11.6	1.8
4	5	8	27	4.2	1.4	14.2	2
5	6	7	27	4.5	1.3	13.8	1.8
6	7	7	28	2.4	1.1	18.7	1.9
7	8	5	34	3	1	16	1.7
8	9	6	31	2.7	1.2	14.6	1.9
9	10	7	17	NWG		15.1	1.6
10	11	9	27	NWG		14.4	1.6
11	12	n.b.	n.b.	NWG		13.7	1.5
12	13	17	17	NWG		12.5	1.5
13	14	14	20	2.6	0.8	13.6	1.5
14	15	15	21	4.4	0.9	18.5	1.9
15	16	10	20	5.3	1.2	22.9 *	1.9
16	17	n.b.	n.b.	7.9	1.3	25 *	2.1
17	18	9	24	9.6	1.5	26.4 *	2.2
18	19	n.b.	n.b.	4.8	1	20.4	1.8
19	20	19	18	3	1	20.2 *	1.8
20	21	24	13	2.1	0.9	20.6	1.8
21	22	24	16	2.1	0.8	23	1.8
22	23	39	11	2.7	0.9	15.9	1.6
23	24	47	9	1.5	0.7	9.5	1.2
24	25	42	11	NWG		10.5	1.2
25	26	40	10	NWG		11	1.4
26	27	41	9	2.1	0.7	12.7	1.3
27	28	n.b.	n.b.	2	0.9	16.1	1.6
28	29	34	13	NWG		26.5	2
29	30	29	14	2.8	0.9	15.5	1.5
30	31	26	13	1.9	0.9	18.5	1.7
31	32	n.b.	n.b.	3.5	0.9	16.8	1.6
32	33	20	17	2.6	0.9	17.5	1.6
33	34	15	9	NWG		9.7	1.1
34	35	33	11	NWG		8.6 *	1.2
35	36	35	13	NWG		6.3	1.1
36	37	n.b.	n.b.	2.1	0.7	1.6	0.9
37	38	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
38	39	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
39	40	n.b.	n.b.	2	0.8	NWG	
40	41	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
41	42	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
42	43	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
43	44	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
44	45	n.b.	n.b.	2.7	0.8	NWG	

Kern NR L2  
(Fortsetzung)

Tiefe (cm)		Korngrösse	% < 2 $\mu\text{m}$	$^{60}\text{Co}$		$^{137}\text{Cs}$	
von	bis	Median [ $\mu\text{m}$ ]	Tonfraktion	[Bq/kg]	+/- 2 $\sigma$	[Bq/kg]	+/- 2 $\sigma$
45	46	n.b.	n.b.	1.4	0.6	NWG	
46	47	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
47	48	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
48	49	n.b.	n.b.	2.6	0.9	NWG	
49	50	n.b.	n.b.	4.2	1.3	NWG	
50	51	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
51	52	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
52	53	n.b.	n.b.	2.5	0.9	NWG	
53	54	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
54	55	n.b.	n.b.	NWG		1.6	1.1
55	56	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
56	57	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
57	58	n.b.	n.b.	2.1	0.9	NWG	
58	59	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
59	60	n.b.	n.b.	NWG		NWG	
60	61	n.b.	n.b.	NWG		2.6	1.3

n.b.= nicht bestimmt; NWG= < Nachweisgrenze; \* Spuren von  $^{134}\text{Cs}$

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

## Anhang A2 (b)

### Stausee Klingnau

27. Oktober 94 Sedimentationsrate 1986-1994

KL\_9403 1.6 cm/a

Aktivitäten in Bq/kg sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung (falls nicht anders angegeben)

Probe	Tiefe		Alter		<sup>40</sup> K	2σ	<sup>60</sup> Co	<sup>60</sup> Co	2σ	<sup>134</sup> Cs	2σ	<sup>137</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	2σ	<sup>210</sup> Pb	2σ	
	oben	unten	Durchschnitt	Jahre													Datum
Nr.	[cm]	[cm]	[cm]	Jahre	Datum												
03_01	0.0	0.3	0.2	0.1	9/22/94	748	143					68.6	68.7	7.3	60.1	34	
03_02	0.3	0.6	0.4	0.3	7/19/94	710	105					52.9	53.3	5.4	67.6	25	
03_04	0.9	1.1	1.0	0.6	3/16/94	650	66	4.5	4.8	1.7		63.7	64.6	4.7	82.6	14	
03_06	1.4	1.7	1.5	1.0	11/11/93	649	62	4.6	5.2	1.5	43.7	32.9	64.8	66.3	4.6	88.6	12
03_08	2.0	2.2	2.1	1.3	7/9/93	627	58	3.4	4.0	1.3			59.4	61.2	4.3	65.5	10
03_10	2.5	2.8	2.6	1.6	3/6/93	626	61	4.3	5.4	1.7			62.6	65.0	4.6	87.8	12
03_12	3.3	3.9	3.6	2.2	7/30/92	614	55	3.7	4.9	1.4	35.0	25.3	47.8	50.3	3.6	83.8	11
03_14	4.4	5.0	4.7	2.9	11/23/91	626	55	4.3	6.3	1.6			64.8	69.3	4.5	77.9	11
03_16	5.5	6.1	5.8	3.6	3/18/91	631	56	4.8	7.7	1.7	31.2	25.7	88.8	96.5	6.0	67.0	10
03_18	6.6	7.2	6.9	4.3	7/11/90	632	55	3.3	5.8	1.8	59.1	26.4	91.6	101.2	6.1	78.6	11
03_20	7.7	8.3	8.0	5.0	11/3/89	616	57	3.0	5.9	2.1	67.3	27.0	101.0	113.3	6.9	78.5	11
03_22	8.8	9.4	9.1	5.7	2/26/89	674	58	2.4	5.1	2.3			116.0	132.2	7.7	72.9	10
03_24	9.9	10.5	10.2	6.3	6/21/88	648	59	3.1	7.2	2.4	65.8	27.8	132.9	153.8	9.0	72.2	11
03_26	11.0	11.6	11.3	7.0	10/15/87	590	61	3.3	8.4	3.4	96.6	37.8	191.6	225.3	13.0	73.7	13
03_28	12.1	12.7	12.4	7.7	2/7/87	597	54	2.9	8.1	3.1	189.5	31.5	262.3	313.3	16.9	64.5	10
30_30	13.2	13.8	13.5	8.4	6/2/86	700	68	4.0	12.1	4.3	62.3	32.1	98.7	119.8	7.8	55.5	11
30_32	14.3	14.9	14.6	9.1	9/25/85	636	55	3.4	11.1	3.5			49.0	60.4	4.2	67.4	10
03_33	14.9	15.4	15.2	9.4	5/23/85	668	52	3.0	10.3	2.8			47.8	59.4	3.8	66.3	8
03_36	16.5	17.1	16.8	10.5	5/13/84	604	52	2.1	8.2	3.3			44.2	56.3	3.9	72.7	10
03_38	17.6	18.2	17.9	11.1	9/6/83	639	46						49.4	63.8	3.7	36.0	6
03_39	18.2	18.7	18.5	11.5	5/4/83	631	46	1.5	6.8	2.2			55.8	72.7	4.1	32.3	5

Probe	<sup>7</sup> Be		<sup>58</sup> Co	
	2σ	[Bq/kg]	2σ	[Bq/kg]
03_01	78.6	32.4	03_01	6.0 3.5
03_02	48.1	21.5	03_02	3.1 2.4
03_04	37.2	13.1	03_08	1.2 1.1
03_06	30.2	11.8	03_36	1.1 0.9
03_08	35.3	11.0		
03_10	37.1	11.9		
03_12	17.7	9.2		

### Anhang A2 (b) Stausee Klingnau

27. Oktober 94

KL\_9408

Aktivitäten in Bq/kg sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung

Probe	Tiefe [cm]		<sup>7</sup> Be	2σ	<sup>40</sup> K	2σ	<sup>60</sup> Co	2σ	<sup>134</sup> Cs	2σ	<sup>137</sup> Cs	2σ	<sup>210</sup> Pb	2σ
	oben	unten												
Nr.														
08_101	0.0	0.3	14.0	7.5	460.0	39.7	≤ 0.25		≤ 0.23		6.9	1.0	30.8	6
08_102	0.3	0.6	26.6	10.7	522.5	50.2					8.1	1.3	35.8	8
08_104	0.8	1.1	11.1	8.3	435.7	42.8		0.6	0.5		4.1	1.0	26.1	7
08_106	1.4	1.9			450.7	36.3					3.1	0.6	18.5	4
08_108	2.5	3.0			489.8	39.9					1.9	0.6	15.1	4
08_110	3.6	4.1			538.3	43.4					4.4	0.8	23.2	5
08_112	4.7	5.2			642.6	55.3					3.4	1.0	30.8	7
08_114	5.8	6.3			571.7	42.6					7.9	0.9	41.5	6
08_116	6.9	7.4			548.3	44.5					8.2	1.5	35.2	13
08_118	8.0	8.5			526.6	56.7					9.8	2.1	21.3	17
08_120	9.1	9.6			569.4	54.9					8.9	1.8	44.0	16
08_122	10.2	10.7			580.7	54.9					8.4	1.8	50.6	16
08_124	11.3	11.8			599.8	56.0		1.4	1.0		5.9	1.7	59.6	16
08_126	12.4	12.9			489.3	37.9					5.9	0.9	27.5	8
08_128	13.5	14.0			427.8	38.4					2.7	0.9	16.6	9
08_130	14.6	15.1			409.3	42.9					4.3	1.1	16.8	11
08_132	15.7	16.2			427.2	45.7					≤ 0.6		18.6	13

KL\_9410

Proben-Nr.	Tiefe oben	[cm] unten	<sup>7</sup> Be	2σ	<sup>40</sup> K	2σ	<sup>60</sup> Co	2σ	<sup>134</sup> Cs	2σ	<sup>137</sup> Cs	2σ	<sup>210</sup> Pb	2σ
10_63	0	0.28	≤ 6.7	0.0	537.6	51.3	≤ 0.78		≤ 0.55		8.5	1.5	23.6	13
10_64	0.28	0.55	43	11.9	507.8	47.7					10.6	1.5	32.1	12
10_66	0.83	1.10	46.91	10.3	518.1	43.8					11.4	1.3	34.4	11
10_68	1.38	1.93	17.59	8.1	507.1	38.4					8.1	1.0	20.8	8
10_70	2.48	3.03			527.8	42.5	3.1	0.7			9.2	1.2	17.6	9
10_72	3.58	4.13			505.5	42.4	3.5	0.9			11.6	1.4	12.1	9
10_74	4.68	5.23			505.6	38.8					14.9	1.3	20.8	8
10_76	5.78	6.33			523.4	41.8					16.8	1.5	23.0	9
10_78	6.88	7.43			485.1	36.5	1.6	0.5			10.9	1.0	9.6	7
10_80	7.98	8.53									33.2	2.4	28.6	11
10_82	9.08	9.63			466.0	33.5	1.6	0.4			29.1	1.7	20.3	7
10_84	10.18	10.73			568.3	46.1	2.9	0.8	1.1	0.7	49.3	3.2	35.7	10
10_86	11.28	11.83			538.7	48.3	1.4	0.7			29.3	2.5	25.5	11
10_88	12.38	12.93			432.4	36.6					28.1	2.0	8.1	6
10_90	13.48	14.03			530.8	37.5			1.6	0.4	72.3	3.9	28.0	7
10_92	14.58	15.13			494.0	42.4			1.4	0.6	44.2	3.0	23.3	10
10_94	15.68	16.23			409.6	35.3					4.5	0.9	18.5	8
10_96	16.78	17.33			482.7	44.1					8.3	1.4	25.2	11
10_98	17.88	18.43			516.7	44.7					6.6	1.2	23.1	10
10_100	18.98	19.53			571.7	40.2					13.2	1.1	22.2	8

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

## Anhang A2 (c)

Rhein bei Augst

Sedimentationsraten

5. Mai 1995

1995-1986: 1.71 cm/a

1986-1963 1.39 cm/a

Aktivitäten in Bq/kg sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung (falls nicht anders angegeben)

Pro- ben	Tiefe [cm]		Tiefe	Alter Jahre	Alter Datum	<sup>40</sup> K	2s	<sup>60</sup> Co	<sup>60</sup> Co	2s	<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	2s	<sup>210</sup> Pb	2s
	oben	unten									Cs						
Nr.			Durchschnitt						alterskorreg.				alterskorreg.				
1	0.0	1.1	0.5	0.3	1/11/95	924	88	7.5	7.8	2.3	4.8	2.5	73.3	73.8	5.7	113.3	24.3
2	1.1	2.1	1.6	0.9	5/29/94	670	67	3.3	3.8	1.7			80.9	82.7	5.8	80.6	17.9
3	2.1	3.2	2.7	1.6	10/15/93	636	57	4.1	5.0	1.5			87.7	90.9	5.7	63.5	14.2
4	3.2	4.3	3.7	2.2	3/2/93	617	59	6.5	8.6	2.0			60.2	63.3	4.6	59.1	15.5
5	4.3	5.3	4.8	2.8	7/18/92	606	56	3.1	4.5	1.7	3.2	1.8	89.6	95.6	6.0	57.0	14.2
6	5.3	6.4	5.8	3.4	12/5/91	649	61						90.9	98.4	6.4	58.5	15.4
7	6.4	7.4	6.9	4.0	4/22/91	663	62	3.9	6.7	2.3	3.9	2.0	102.6	112.6	7.1	75.4	16.0
8	7.4	8.5	8.0	4.7	9/7/90	575	55	2.5	4.7	2.2			115.0	128.0	7.8	56.4	11.9
9	8.5	9.6	9.0	5.3	1/24/90	561	56	3.6	7.2	2.8	4.5	2.0	122.4	138.2	8.4	76.5	13.2
10	9.6	10.6	10.1	5.9	6/11/89	646	60				5.1	2.0	123.5	141.5	8.5	65.9	15.7
11	10.6	11.7	11.2	6.5	10/27/88	541	52	3.8	8.9	2.7			137.5	159.8	9.3	63.5	14.4
12	11.7	12.8	12.2	7.1	3/15/88	581	48	2.9	7.4	2.5			192.4	226.8	12.0	33.0	11.0
13	12.8	13.8	13.3	7.8	8/1/87	614	55	4.6	12.6	3.5	8.1	2.1	229.1	273.9	14.9	44.3	13.7
14	13.8	14.9	14.4	8.4	12/17/86	448	42	3.0	9.1	2.7	7.3	1.6	232.6	282.1	15.1	45.0	10.3
15	14.9	15.9	15.4	9.0	5/5/86	592	49	2.7	8.7	3.3	8.2	1.7	265.1	326.1	17.0		
16	15.9	17.0	16.5	9.8	7/29/85	631	58	4.0	14.4	4.7			70.1	87.8	6.0	56.1	14.7
17	17.0	18.1	17.5	10.5	10/22/84	648	57	2.5	10.0	4.1			77.7	99.1	6.3	59.1	13.4
18	18.1	19.1	18.6	11.3	1/16/84	605	54						66.0	85.6	5.7	43.9	13.0
19	19.1	20.2	19.7	12.1	4/11/83	644	58						70.0	92.4	6.2	64.2	14.4
20	20.2	21.3	20.7	12.8	7/5/82	662	49				2.9	1.2	59.2	79.6	4.7		
21	21.3	22.3	21.8	13.6	9/28/81	592	48	1.7	10.0	4.8			83.6	114.3	6.6	55.3	8.8
22	22.3	23.4	22.9	14.4	12/22/80	571	52						91.9	127.9	7.8	47.0	9.9
23	23.4	24.5	23.9	15.1	3/17/80	611	56						122.6	173.7	10.3	52.7	10.8
24	24.5	25.5	25.0	15.9	6/11/79	518	49						125.5	181.0	10.6	45.9	9.9
25	25.5	26.6	26.1	16.7	9/4/78	586	54						134.3	197.1	11.5	46.4	10.6
26	26.6	27.6	27.1	17.4	11/28/77	592	55						133.0	198.7	11.7	42.2	10.6
27	27.6	28.7	28.2	18.2	2/21/77	606	57						110.5	168.0	10.3	50.9	11.1
28	28.7	29.8	29.2	19.0	5/17/76	514	56						77.9	120.5	8.3	34.6	11.9
29	29.8	30.8	30.3	19.7	8/11/75	571	53						76.3	120.1	7.8	46.8	10.1
30	30.8	31.9	31.4	20.5	11/4/74	600	55						82.3	131.9	8.4	40.9	10.8
31	31.9	33.0	32.4	21.3	1/28/74	583	54						81.1	132.4	8.4	48.7	10.4
32	33.0	34.0	33.5	22.0	4/22/73	538	50						64.2	106.6	7.2	32.3	12.4
33	34.0	35.1	34.6	22.8	7/16/72	534	49						86.2	145.8	9.0	41.1	9.8
34	35.1	36.2	35.6	23.6	10/10/71	641	57						86.1	148.2	9.3	36.0	12.9
35	36.2	37.2	36.7	24.3	1/3/71	519	49						125.0	218.9	13.4	55.7	10.4
36	37.2	38.3	37.7	25.1	3/29/70	661	58						137.8	245.6	14.1	39.5	12.9
37	38.3	39.3	38.8	25.9	6/22/69	593	55						112.9	204.8	12.5	26.4	13.0
38	39.3	40.4	39.9	26.6	9/15/68	587	57						32.2	59.4	5.7	63.4	15.5
39	40.4	41.5	40.9	27.4	12/10/67	635	56						44.0	82.7	6.3	47.1	13.1
40	41.5	42.5	42.0	28.2	3/5/67	560	46						47.0	89.9	6.0	37.9	11.0
41	42.5	43.6	43.1	28.9	5/29/66	652	57						43.7	85.1	6.5	43.8	12.9
42	43.6	44.7	44.1	29.7	8/22/65	553	52						53.1	105.2	7.6	6.6	
43	44.7	45.7	45.2	30.5	11/15/64	584	54						46.6	93.9	7.1	43.5	12.8
44	45.7	46.8	46.3	31.2	2/9/64	615	55						41.8	85.9	6.7	35.5	12.7
45	46.8	47.8	47.3	32.0	5/5/63	633	56						113.0	236.1	14.1	44.4	13.0
46	47.8	48.9	48.4	32.8	7/29/62	583	54						30.5	64.8	6.0	21.5	12.6
47	48.9	50.0	49.4	33.5	10/22/61	618	54						23.4	50.6	5.0	47.1	12.3
48	50.0	51.0	50.5	34.3	1/15/61	618	56						29.0	63.9	5.8	50.7	12.9
49	51.0	52.1	51.6	35.1	4/10/60	532	51						26.6	59.6	5.5	33.1	9.7
50	52.1	53.2	52.6	35.8	7/5/59	622	60						14.0	31.9	5.0	44.3	14.8
51	53.2	54.2	53.7	36.6	9/28/58	518	49						9.8	22.8	3.8	28.3	12.0
52	54.2	55.3	54.8	37.4	12/22/57	593	44						7.2	17.1	2.4	4.6	
53	55.3	56.4	55.8	38.1	3/17/57	636	59						5.0	12.1	3.7	37.2	13.7
54	56.4	57.4	56.9	38.9	6/10/56	613	56						2.1	5.0	3.4	35.8	12.9
55	57.4	58.5	57.9	39.7	9/4/55	600	52						1.7	4.1	3.1	31.1	11.6
56	58.5	59.5	59.0	40.4	11/28/54	606	54									40.4	12.6
57	59.5	61.1	60.3	41.4	12/13/53	573	46									34.9	9.8
58	61.1	61.7	61.4	42.2	3/8/53	605	48									27.5	9.8
59	61.7	62.7	62.2	42.7	8/10/52	584	46									≤ 5	
60	62.7	63.8	63.3	43.5	11/4/51	619	54									20.4	11.9

Anhang A2 (c)

9. September 1993

BS-93\_01

Bielsee, Nordbecken (Delta)

Aktivitäten sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung

Tiefe [cm]		<sup>7</sup> Be	2σ	<sup>60</sup> Co	2σ	<sup>137</sup> Cs	2σ	<sup>210</sup> Pb	2σ
oben	unten	[Bq/kg]		[Bq/kg]		[Bq/kg]		[Bq/kg]	
0	0.5	146.2	15.2	29.5	2.1	21.7	2.0	57.0	14.2
0.5	1.0	40.2	11.5	18.9	1.7	26.5	2.1	68.9	14.6
1.0	1.5			20.8	2.2	36.3	3.2	80.1	13.3
1.5	2.0			24.0	2.8	39.4	3.6	94.7	15.3
2.0	2.5			16.5	2.1	34.5	3.1	75.2	12.4
2.5	3.0			17.7	2.2	37.9	3.3	63.9	11.4
3.0	3.5			18.3	1.9	35.4	2.9	66.1	11.0
3.5	4.0			11.5	1.7	30.5	2.6	37.4	9.5
4.0	4.5			9.4	1.7	41.0	3.3	71.7	11.7
4.5	5.0			11.4	1.9	46.9	3.6	66.6	11.6
5.0	5.5			12.1	2.0	58.6	4.4	72.2	20.8
5.5	6.0					69.3	4.9	89.4	14.2
6.0	6.5			12.1	1.7	71.8	5.1	55.8	10.1
6.5	7.0			13.5	2.3	96.4	6.4	68.6	22.0
7.0	7.5			17.0	2.0	102.5	6.5	64.2	11.5
7.5	8.0			8.8	1.8	123.1	7.5	70.3	12.3
8.0	8.5			9.7	1.9	157.6	9.4	79.2	20.4
8.5	9.0			10.8	1.7	180.6	10.8	72.8	11.5
9.0	9.5			11.9	1.6	165.0	9.5	67.7	11.3
9.5	10.0			8.8	1.7	134.2	8.0	54.5	18.9
10.0	10.5			10.6	1.6	105.9	6.8	61.1	10.8
10.5	11.0			10.5	1.6	56.3	4.0	66.4	10.8
11.0	11.5			19.4	2.2	59.6	4.3	75.0	20.2
11.5	12.0			18.8	1.8	72.9	4.9	65.2	9.6
12.0	12.5			13.0	1.6	70.5	4.5	68.1	10.2
12.5	13.0			13.5	1.7	64.3	4.4	44.6	16.5
13.0	13.5			10.3	1.6	61.9	4.5	52.4	10.4
13.5	14.0			8.1	1.5	65.7	4.6	52.6	10.1
14.0	14.5			15.5	2.1	60.2	4.7	70.3	13.0
14.5	15.0			37.7	3.1	63.6	4.6	58.1	18.5
15.0	15.5			18.7	2.3	75.1	5.3	52.7	18.2
15.5	16.0			4.8	1.5	80.9	5.6	50.6	10.6
16.0	16.5			4.0	1.3	76.5	5.0	22.5	15.5
16.5	17.0			3.4	1.3	98.9	5.9	51.1	16.3
17.0	17.5			2.9	1.3	118.8	7.9	52.0	11.7
17.5	18.0			3.8	1.4	118.7	7.3	39.1	17.4
18.0	18.5					161.8	9.3	34.2	17.3
18.5	19.0					163.5	8.9	55.4	14.5
19.0	19.5			2.1	1.2	131.0	7.5	44.5	15.3
19.5	20.0					117.1	6.7	51.6	14.5
20.0	20.5					83.2	5.7	48.9	19.9
20.5	21.0					44.1	3.7	25.9	17.0
21.5	22.0					35.2	3.1	52.4	16.7
22.5	23.0					39.5	4.0	50.5	23.1
23.5	24.0					43.5	3.5	37.6	16.3
24.5	25.0					53.4	4.0	42.0	16.6
25.0	25.5					63.4	4.3	34.9	13.9
25.5	26.0					80.3	5.1	34.6	13.9
26.0	26.5					123.8	7.5	35.5	16.3
26.5	27.0			1.5	0.9	126.7	7.3	34.4	14.6
27.0	27.5					138.7	8.3	36.3	19.4
27.5	28.0					114.1	7.5	39.1	18.5
28.0	28.5					103.3	5.8	33.8	12.4
28.5	29.0					77.3	4.3	35.1	10.2
29.0	29.5					53.2	3.9	30.4	17.4
29.5	30.0					49.0	3.7	37.1	15.7
30.0	30.5					49.9	3.0	28.0	10.4
30.5	31.0					53.2	3.9	42.8	15.1
31.5	32.0					61.1	4.5	47.2	18.9
32.5	33.0					37.3	3.0	25.8	13.7
33.5	34.0					38.1	3.0	36.9	14.0
34.5	35.0					35.5	2.4	30.6	11.0
35.5	36.0					21.8	2.3	32.2	14.1
36.5	37.0					8.4	1.5	30.9	13.0
37.5	38.0					5.5	1.5	25.6	13.7
38.5	39.0					2.1	1.3	20.5	14.0
39.5	40.0					2.4	1.0	29.8	12.6
44.5	45.0							19.7	12.0
49.5	50.0					1.1	0.6	12.2	8.6

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Anhang A2 (c)

Bielersee, Nordbecken

31.Mai.94

BS-94\_01

Aktivitäten sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung

Probe Nr.	Tiefe [cm]		<sup>7</sup> Be	<sup>40</sup> K	<sup>60</sup> Co	<sup>137</sup> Cs	<sup>210</sup> Pb
	oben	unten	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
1	0.0	0.6	151	639	102	30	92
2	0.6	1.1	66	679	186	38	111
3	1.1	1.4	25	689	81	34	103
4	1.4	1.7		665	36	36	109
5	1.7	1.9		633	37	38	91
6	1.9	2.2		575	33	39	66
7	2.2	2.5		704	38	46	91
8	2.5	2.8		890	28	44	93
9	2.8	3.3		835	12	42	52
10	3.3	3.9		887	8	23	38
11	3.9	4.4		799	9	36	69
12	4.4	5.0		758	20	67	30
13	5.0	5.5		651	21	93	90
14	5.5	6.1		654	17	111	93
15	6.1	6.6		683	15	138	50
16	6.6	7.2		595	20	201	86
17	7.2	7.7		675	16	294	78
18	7.7	8.3		677	17	83	23
19	8.3	8.8		577	11	44	64
20	8.8	9.4		701	22	62	90
21	9.4	9.9		589	30	78	83
22	9.9	10.5		722	22	123	70
23	10.5	11.0		652	16	68	84
24	11.0	11.6		725	11	64	81
25	11.6	12.1		655	5	109	62
26	12.1	12.7		716	4	108	67
27	12.7	13.2		610	3	73	62
28	13.2	13.8		741	3	98	68
29	13.8	14.3		642	3	123	53
30	14.3	14.9		751	3	163	72
31	14.9	15.4		686	2	256	81
32	15.4	16.0		575	1	169	69
33	15.95	16.5		673	3	137	61
34	16.5	17.05		571	1	89	52
35	17.05	17.6		685	2	51	64
36	17.6	18.7		747	0.5	40	46
37	18.7	19.8		594		4	56
38	19.8	20.9		691		43	53
39	20.9	22		724		45	65
40	22	23.1		638		39	40
41	23.1	24.2		537		37	37
42	24.2	25.3		632		46	47
43	25.3	26.4		566		60	40
44	26.4	27.5		669		80	38
45	27.5	28.6		685		150	47

Anhang A2 (c)

Bielersee, Nordbecken

31.Mai.94

BS-94\_02

Aktivitäten sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung

Probe Nr.	Tiefe [cm]		$^7\text{Be}$	$^{40}\text{K}$	$^{60}\text{Co}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{210}\text{Pb}$
	oben	unten	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[Bq/kg]
94-2-25	20.0	21.0		625	71	54	53
94-2-26	21.0	22.0		688	71	101	86
94-2-27	22.0	23.0		593	66	94	58
94-2-28	23.0	24.0		611	64	76	66
94-2-29	24.0	25.0		703	70	104	73
94-2-30	25.0	26.0		714	72	149	87
94-2-31	26.0	27.0		664	63	151	88
94-2-32	27.0	28.0		687	68	256	90
94-2-33	28.0	29.0		552	57	166	66
94-2-34	29.0	30.0		609	62	129	69
94-2-35	30.0	31.0		644	62	72	76
94-2-36	31.0	32.0		718	79	39	76
94-2-37	32.0	33.0		760	75	34	70
94-2-38	33.0	34.0		582	56	36	68
94-2-39	34.0	35.0		619	62	46	16
94-2-40	35.0	36.0		699	67	40	78
94-2-41	36.0	37.0		551	57	35	66

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

## Anhang A2 (d)

31.Mai.94

BS-94\_04

Bielsee, Südostbecken tiefste Stelle

Aktivitäten sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung

Probe	Tiefe O [cm]	Tiefe U [cm]	<sup>7</sup> Be [Bq/kg]	2σ	<sup>40</sup> K [Bq/kg]	2σ	<sup>60</sup> Co [Bq/kg]	2σ	<sup>137</sup> Cs [Bq/kg]	2σ	<sup>210</sup> Pb [Bq/kg]	2σ
Nr.												
101	0.0	0.3	150	28	729	86	52	4	32	4	80	24
102	0.3	0.6	121	23	643	67	104	6	41	4	122	17
103	0.6	0.8	73	27	615	71	173	9	56	5	126	18
104	0.8	1.1	43	18	591	64	108	6	44	4	118	16
105	1.1	1.4			761	77	51	4	44	4	133	17
106	1.4	1.7			726	104	48	5	69	7	134	38
107	1.7	1.9			624	76	37	4	58	5	117	18
108	1.9	2.2			652	69	25	3	62	5	39	11
109	2.2	2.5			784	81	27	3	67	5	111	23
110	2.5	2.8			734	68	17	2	68	5	57	11
111	2.8	3.0			846	83	16	2	67	5	81	20
112	3.0	3.3			952	77	13	2	57	4	84	12
113	3.3	3.6			776	73	16	2	70	5	88	19
114	3.6	3.9			894	86	27	3	128	8	149	20
115	3.9	4.1			548	63	14	2	109	7	98	21
116	4.1	4.4			660	66	22	2	118	8	105	14
117	4.4	4.7			704	70	14	2	142	9	34	11
118	4.7	5.0			671	73	15	2	176	10	103	23
119	5.0	5.2			727	70	13	2	172	10	90	14
120	5.2	5.5			686	64	13	2	199	11	49	11
81	5.5	6.3			591	60	13	2	239	13	110	21
82	6.3	7.2			575	56	15	2	64	5	87	12
83	7.2	8.0			547	46	18	2	77	5	63	9
84	8.0	8.8			547	49	12	1	89	5	79	15
85	8.8	9.6			600	57	7	1	82	5	92	13
86	9.6	10.5			587	56	5	1	98	6	58	11
87	10.5	11.3			621	57	2	1	87	5	55	10
88	11.3	12.1			602	55	4	1	123	7	58	10
89	12.1	12.9			548	51	1		136	8	58	10
90	12.9	13.8			616	48	1	1	60	4	64	8
91	13.8	14.6			595	54			39	3	66	10
92	14.6	15.4			536	50			41	3	67	10
93	15.4	16.2			585	47			47	3	59	8
94	16.2	17.1			606	53			59	4	17	7
95	17.1	17.9			617	62			88	6	71	12
96	17.9	18.7			603	53			116	7	21	8
97	18.7	19.5			588	54			182	10	55	10
98	19.5	20.4			492	50			129	8	63	11
99	20.4	21.2			521	48			74	5	56	9
100	21.2	22.0			583	50			77	5	66	9
BS-94_05												
94-5-020	20	21			651	61			101	6	73	13
94-5-021	21	22			726	67			122	7	68	18
94-5-022	22	23			631	61			150	9	60	13
94-5-023	23	24			628	60			111	7	56	17
94-5-024	24	25			650	60			61	4	65	12
94-5-025	25	26			590	59			26	3	60	13
94-5-026	26	27			574	56			45	4	57	12
94-5-027	27	28			692	67			47	4	68	19

Anhang A2 (d) Bielersee, Südwestbecken tiefste Stelle  
 31.Mai.94 Aktivitäten sind berechnet auf den Zeitpunkt der Kernstechung  
 BS-94\_07

Proben	Tiefe O	Tiefe U	<sup>7</sup> Be	2σ	<sup>40</sup> K	2σ	<sup>60</sup> Co	2σ	<sup>137</sup> Cs	2σ	<sup>210</sup> Pb	2σ
Nr.	[cm]	[cm]	[Bq/kg]		[Bq/kg]		[Bq/kg]		[Bq/kg]		[Bq/kg]	
46	0.0	0.3	120	29			35	4	68	6	99	26
47	0.3	0.6	47	25	537	69	51	4	61	5	133	28
48	0.6	0.8	58	27	477	71	50	4	69	6	95	26
49	0.8	1.1	40	23	432	61	39	4	66	5	124	26
50	1.1	1.4	12		498	70	28	3	75	6	124	27
51	1.4	1.7			505	49	25	2	72	5	104	13
52	1.7	1.9			579	62	23	2	68	5	41	11
53	1.9	2.2			471 <sub>z</sub>	55	13	2	79	5	108	21
54	2.2	2.8			421	49	17	2	81	6	91	13
55	2.8	3.3			501	43	15	1	88	5	64	9
56	3.3	3.9			446	41	11	1	90	5	87	14
57	3.9	4.4			495	43	14	1	137	8	88	10
58	4.4	5.0			472	56	12	2	162	10	99	15
59	5.0	5.5			443	59	9	2	177	11	80	22
60	5.5	6.1			466	59	11	2	227	14	63	14
61	6.1	6.6			480	50	12	2	116	7	83	12
62	6.6	7.2			425	49	8	2	62	4	64	17
63	7.2	7.7			462	49	7	1	64	5	78	12
64	7.7	8.3			442	49	8	2	63	4	88	13
65	8.3	8.8			462	55	9	2	67	5	71	19
66	8.8	9.4			473	54	8	1	79	6	68	12
67	9.4	9.9			460	45	6	1	73	5	82	11
68	9.9	10.5			486	53	7	2	65	5	29	10
69	10.5	11.0			483	51	5	1	70	5	72	12
70	11.0	11.6			445	45	2	1	78	5	70	11
71	11.6	12.7			458	47			78	5	63	10
72	12.7	13.8			459	46			95	6	67	11
73	13.8	14.9			423	45	2	1	118	7	56	10
74	14.9	16.0			465	46			71	5	51	9
75	16.0	17.1			476	43			36	3	55	8
76	17.1	18.2			377	35			27	2	9	6
77	18.2	19.3			440	44			40	3	52	9
78	19.3	20.4			503	48			54	4	31	8
79	20.4	21.5			517	50			74	5	52	10
80	21.5	22.6			506	48			122	7	49	10
BS-94_06												
94-6-020	20	21			617	65			72	5	90	24
94-6-021	21	22			462	46			87	5	68	11
94-6-022	22	23			667	61			75	5	83	18
94-6-023	23	24			539	51			80	5	61	11
94-6-024	24	25			727	67			104	7	74	20
94-6-025	25	26			576	58			102	7	67	19
94-6-026	26	27			438	48			122	7	52	11
94-6-027	27	28			552	56			99	6	74	19
94-6-028	28	29			454	48			74	5	58	12
94-6-029	29	30			640	61			40	3	51	17
94-6-030	30	31			506	50			34	3	57	11
94-6-031	31	32			554	52			30	3	49	15
94-6-032	32	33			444	45			32	3	40	10

# Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

## Zusammenfassung der wichtigsten Bielerseeerdaten

### BS-93-01 zone 1

ID	depth (cm)		water [%]	$\rho$ dry g/cm <sup>3</sup>	age [days]	<sup>65</sup> Zn [Bq/kg]	<sup>65</sup> Zn age- cor. 5.0	2 $\sigma$ [%]	<sup>54</sup> Mn [Bq/kg]	<sup>54</sup> Mn age- cor. 5.6	2 $\sigma$ [%]	<sup>60</sup> Co [Bq/kg]	<sup>60</sup> Co age-cor.	2 $\sigma$ [%]	<sup>137</sup> Cs- [Bq/kg]	<sup>137</sup> Cs age-cor.	2 $\sigma$ [%]
1	0	0.5	45.5	0.82	38	4.5		73	5.1	5.6	26	29.5	29.9	7	21.7	21.8	9
2	0.5	1.0	42.6	0.89	122				2.4	3.1	47	18.9	19.7	9	26.5	26.7	8
3	1.0	1.5	39.5	0.97	266							20.8	22.9	11	36.3	36.9	9
4	1.5	2.0	39.1	0.98	404							24.0	27.7	12	39.4	40.4	9
5	2.0	2.5	39.6	0.97	488							16.5	19.7	13	34.5	35.6	9
6	2.5	3.0	39.4	0.97	634							17.7	22.2	12	37.9	39.5	9
7	3.0	3.5	42.3	0.90	770							18.3	24.2	10	35.4	37.1	8
8	3.5	4.0	44.5	0.85	856							11.5	15.7	14	30.5	32.1	9
9	4.0	4.5	42.9	0.89	1001							9.4	13.4	18	41.0	43.6	8
10	4.5	5.0	41.4	0.92	1137							11.4	17.1	17	46.9	50.4	8
11	5.0	5.5	42.1	0.90	1223							12.1	18.7	17	58.6	63.3	7
12	5.5	6.0	42.1	0.91	1368										69.3	75.6	7
13	6.0	6.5	42.5	0.90	1503							12.1	20.8	14	71.8	79.0	7
14	6.5	7.0	43.8	0.86	1590							13.5	23.9	17	96.4	106.6	7
15	7.0	7.5	43.1	0.88	1735							17.0	31.8	12	102.5	114.3	6
16	7.5	8.0	41.7	0.91	1870							8.8	17.2	21	123.1	138.5	6
17	8.0	8.5	43.6	0.87	1957							9.7	19.5	20	157.6	178.3	6
18	8.5	9.0	42.5	0.90	2102							10.8	23.0	16	180.6	206.2	6
19	9.0	9.5	42.3	0.90	2236							11.9	26.6	13	165.0	190.0	6
20	9.5	10.0	42.4	0.90	2324							8.8	20.3	20	134.2	155.4	6
21	10.0	10.5	42.3	0.90	2469							10.6	25.7	15	105.9	123.7	6
22	10.5	11.0	43.5	0.87	2602							10.5	26.8	15	56.3	66.3	7

### BS-94-01 zone 2

1	0.0	0.6	85	0.17	69	12.6	13.4	53	5.9	6.2	45	102.1	102.9	6	30.4	30.5	12
2	0.6	1.1	73	0.32	286	19.4	30.1	36	5.8	8.1	39	186.0	196.6	5	38.4	38.8	9
3	1.1	1.4	70	0.36	340	10.1	22.9	49	4.2	8.0	48	80.6	89.4	7	34.3	35.0	10
4	1.4	1.7	68	0.40	401	2.2	5.7		0.8	1.7		35.5	40.1	9	36.0	36.8	10
5	1.7	1.9	68	0.40	598							36.9	42.7	8	37.9	38.9	9
6	1.9	2.2	69	0.38	655							32.7	39.4	10	38.9	40.2	10
7	2.2	2.5	68	0.40	716							37.7	47.2	10	45.6	47.5	10
8	2.5	2.8	68	0.40	776							27.7	35.4	11	44.3	46.2	9
9	2.8	3.3	66	0.43	1043							12.3	16.6	14	41.7	43.9	8
10	3.3	3.9	64	0.47	1314							7.6	11.0	19	22.9	24.4	11
11	3.9	4.4	62	0.50	1464							8.7	13.4	17	35.9	38.8	8
12	4.4	5.0	65	0.46	1738							20.1	33.4	9	66.8	73.0	7
13	5.0	5.5	67	0.42	1863							20.8	36.9	11	92.8	102.7	6
14	5.5	6.1	66	0.43	2130							16.7	31.6	11	111.4	124.6	6
15	6.1	6.6	64	0.46	2361							14.7	29.9	12	137.9	156.0	6
16	6.6	7.2	65	0.45	2541							20.3	44.1	11	200.7	229.8	6
17	7.2	7.7	66	0.43	2808							16.0	37.1	12	293.8	340.4	6
18	7.7	8.3	65	0.45	2942							16.9	41.8	11	83.4	97.7	6

### BS-94-04 zone 3

101	0.0	0.3	83	0.19	19	10.1	10.6	73	8.5	8.8	34	52.4	52.7	8	31.9	32.0	12
102	0.3	0.6	80	0.23	113	12.3	16.9	48	9.5	12.2	26	103.7	108.0	6	41.0	41.3	9
103	0.6	0.8	78	0.25	229	29.0	55.5	27	6.5	10.8	43	172.5	187.3	5	55.9	56.8	9
104	0.8	1.1	77	0.27	295	18.6	43.1	33	7.4	14.1	30	108.1	120.2	6	43.6	44.4	9
105	1.1	1.4	76	0.29	350	12.0	32.4	44	4.9	10.7	40	50.8	57.7	8	44.2	45.2	9
106	1.4	1.7	75	0.30	445	4.8			2.1			48.4	56.9	11	68.9	70.8	10
107	1.7	1.9	74	0.31	573							37.5	46.1	10	58.1	60.3	9
108	1.9	2.2	73	0.32	665							25.3	32.1	11	62.1	64.7	8
109	2.2	2.5	72	0.34	730							26.9	34.9	11	66.8	69.9	8
110	2.5	2.8	71	0.36	867							17.5	23.8	12	68.2	72.0	7
111	2.8	3.0	69	0.39	1008							16.3	23.4	14	66.6	71.0	7
112	3.0	3.3	67	0.42	1088							12.9	19.1	13	57.4	61.5	7
113	3.3	3.6	68	0.40	1236							15.6	24.3	14	70.2	75.9	7
114	3.6	3.9	69	0.38	1381							27.3	44.8	11	128.1	139.8	6
115	3.9	4.1	70	0.37	1454							13.6	23.0	15	109.0	119.5	6
116	4.1	4.4	68	0.40	1597							21.6	38.3	10	117.9	130.4	7
117	4.4	4.7	68	0.40	1743							14.5	27.1	14	141.6	158.0	6
118	4.7	5.0	67	0.42	1823							15.3	29.5	16	175.6	197.0	6
119	5.0	5.2	65	0.45	1976							12.7	25.8	14	171.7	194.5	6
120	5.2	5.5	66	0.43	2129							12.6	27.1	14	198.5	227.0	6
81	5.5	6.3	67	0.42	2363							12.6	29.5	15	239.3	277.7	6
82	6.3	7.2	66	0.43	2748							15.3	41.1	12	63.6	75.6	7

### BS-94-07 SW basin

46	0.0	0.3	74.3	0.31	68	3.2	3.7		3.4	4.0	87	35.0	35.9	11	67.9	68.2	8
47	0.3	0.6	75.9	0.28	202	11.2	17.5	46	5.4	8.4	47	51.0	54.8	8	61.0	61.8	8
48	0.6	0.8	74.7	0.30	302	9.2	18.0	76	4.8	9.3	49	50.4	56.2	9	68.9	70.3	8
49	0.8	1.1	73.8	0.31	370	2.6	5.9		4.2	9.6	49	39.0	44.5	9	65.9	67.4	8
50	1.1	1.4	73.6	0.32	509				1.1			27.8	33.4	12	74.7	77.1	8
51	1.4	1.7	72.7	0.33	649							24.8	31.3	9	71.9	74.9	7
52	1.7	1.9	72.1	0.34	724							22.9	29.7	11	67.9	71.1	7
53	1.9	2.2	70.8	0.36	870							13.4	18.4	15	78.5	82.9	7
54	2.2	2.8	70.0	0.37	1061							17.0	24.8	12	81.3	87.0	7
55	2.8	3.3	68.8	0.39	1298							15.2	24.2	9	88.3	95.9	6
56	3.3	3.9	67.9	0.40	1610							11.3	20.2	11	89.8	99.4	6
57	3.9	4.4	66.8	0.42	1929							14.0	28.0	10	137.3	155.1	6
58	4.4	5.0	66.3	0.43	2254							11.8	26.7	16	161.8	186.5	6
59	5.0	5.5	65.5	0.44	2536							9.2	22.9	22	177.1	207.8	6
60	5.5	6.1	66.2	0.43	2799							11.2	30.6	16	226.9	270.7	6

## Anhang A3: Daten bezüglich sämtlicher in-situ Partikeltrennungen

Proben-Nr. Datum/Ort	Korngrößenbereich [µm]	suspensierte Partikel		filtriertes Volumen [l]	<sup>60</sup> Co Aktivität		
		Masse [g]	Konzentration [g/m <sup>3</sup> ]		[Bq/m <sup>3</sup> ]	[Bq/kg]	2σ [%]
IS_F 27.10.93 REWAG	1-10	0.0107	0.03	350	0.03	1136	40
	10-22	0.1407	0.40		0.07	173	29
	22-50	0.0505	0.14		0.05	348	34
	>50	0.2537	0.72		0.07	90	28
	Gesamt	0.4556	1.30		0.22	169	
ISL-St.1 27.1.93 REWAG	1-10	0.036	0.10	350	0.23	2224	13
	10-22	0.110	0.31		0.62	1982	8
	22-50				0.07		26
	>50	0.081	0.23		0.37	1607	9
	Gesamt	0.226	0.65		1.29	1995	
ISL-St.2 27.1.93 REWAG	1-10	0.03	0.07	450	1.52	22800	5
	10-22	0.091	0.20		1.79	8861	5
	22-50	0.059	0.13		0.40	3046	8
	>50	0.081	0.18		0.79	4378	6
	Gesamt	0.261	0.58		4.50	7753	
NRF1 9.9.93 Niederried	1-10	0.009	0.37	23.5			
	10-22	0.332	14.13		1.70	120	17
	22-50	0.244	10.38		0.56	54	42
	>50	0.259	11.03		2.10	190	13
	Gesamt	0.844	35.91		4.36	121	
NRF2 9.9.93 Niederried	1-10	0.009	0.22	40			
	10-22	0.404	10.11		0.94	93	19
	22-50	0.637	15.93		0.29	18	40
	>50	0.387	9.69		0.61	63	22
	Gesamt	1.438	35.94		1.84	51	
NRF01 1.4.93 Niederried	1-10	-0		194			
	10-22	0.076	0.39				
	22-40	0.061	0.32				
	>40	0.306	1.58		0.06	37	32
	Gesamt	0.443	2.28		0.06	26	
NRF02 1.4.93 Niederried	1-10	0.028	0.06	431			
	10-22	0.047	0.11				
	22-40	0.091	0.21				
	>40	0.329	0.76				
	Gesamt	0.495	1.15				
NRF03 1.4.93 Niederried	1-10	-0		238			
	10-22	0.060	0.25				
	22-40	0.078	0.33		0.10	298	20
	>40	0.479	2.01				
	Gesamt	0.617	2.59		0.10	38	

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Proben-Nr. Datum/Ort	Korngrößenbereich [µm]	suspendierte Partikel		filtriertes Volumen [l]	<sup>60</sup> Co Aktivität		
		Masse [g]	Konzentration [g/m <sup>3</sup> ]		[Bq/m <sup>3</sup> ]	[Bq/kg]	2s [%]
NRF04 1.4.93 Niederried	1-10	0.007	0.03	222	0.10	415	18
	10-22	0.072	0.33				
	22-40	0.055	0.25				
	>40	0.452	2.04				
	Gesamt	0.586	2.64				
NRF05 1.4.93 Niederried	1-10	-0	-0	201	0.06	149	25
	10-22	0.049	0.24 <sup>±</sup>				
	22-40	0.079	0.40				
	>40	0.385	1.91				
	Gesamt	0.513	2.55				
NRF2 17.12.92 Niederried	1-11	0.024	0.16	148			
	11-53	0.186	1.26				
	>53	0.016	0.11				
	Gesamt	0.226	1.53				
NRF3 17.12.92 Niederried	1-11	-0	-0	137			
	11-53	0.159	1.16				
	>53	0.016	0.12				
	Gesamt	0.175	1.28				
NRF4 17.12.92 Niederried	1-11	0.023	0.35	65	0.14	44	30
	11-53	0.212	3.26				
	>53	0.020	0.30				
	Gesamt	0.254	3.90				
NRF5 17.12.92 Niederried	1-11	-0	-0	148	0.20	176	13
	11-53	0.169	1.14				
	>53	0.020	0.14				
	Gesamt	0.190	1.28				
NRF6 17.12.92 Niederried	1-11	0.007	0.05	152	0.08	69	18
	11-53	0.176	1.16				
	>53	0.011	0.07				
	Gesamt	0.194	1.28				
NRF7 17.12.92 Niederried	1-11	0.013	0.09	140	0.11	82	25
	11-53	0.186	1.33				
	>53	0.023	0.16				
	Gesamt	0.222	1.58				
NRF8 17.12.92 Niederried	1-11	0.018	0.11	170	0.08	65	21
	11-53	0.216	1.27				
	>53	-0	-0				
	Gesamt	0.234	1.38				
NRF9 17.12.92 Niederried	1-11	0.012	0.24	50	0.16	49	44
	11-53	0.166	3.32				
	>53	0.016	0.33				
	Gesamt	0.194	3.88				

Proben-Nr. Datum/Ort	Korngrößenbereich [µm]	suspensierte Partikel		filtriertes Volumen [l]	<sup>60</sup> Co Aktivität		
		Masse [g]	Konzentration [g/m <sup>3</sup> ]		[Bq/m <sup>3</sup> ]	[Bq/kg]	2s [%]
AA_F_01	1-10	0.021	0.21		0.13	624	44
27.10.93	10-22	0.175	1.75		0.31	179	26
Aarberg	22-50	0.1298	1.30				
	>50	0.2036	2.04				
	Gesamt	0.5294	5.29	100	0.45	84	
HG1_F_01	1-10	0.0158	0.16		0.09	562	57
27.10.93	10-22	0.1173	1.17		0.27	233	30
Hagneck	22-50	0.0403	0.40				
	>50	0.3379	3.38				
	Gesamt	0.5113	5.11	100	0.36	71	
HG2_F_01	1-10	0.022	0.22		0.11	495	48
27.10.93	10-22	0.1131	1.13				
Hagneck	22-50	0.0449	0.45				
	>50	0.1264	1.26				
	Gesamt	0.3064	3.06	100	0.11	36	
HGF4	1-10	0.227	4.72		0.77	162	27
9.9.93	10-22	0.442	9.21		0.93	101	16
Hagneck	22-50	0.673	14.02		0.73	52	17
	>50	0.320	6.66		0.31	46	29
	Gesamt	1.662	34.62	48	2.73	79	
HGF01	1-10	≤0					
1.4.93	10-22	0.053	0.25				
Hagneck	22-40	0.062	0.29		0.03	91	50
	>40	0.405	1.92		0.11	59	20
	Gesamt	0.520	2.46	211	0.14	57	
HGF02	1-10	~0					
1.4.93	10-22	0.112	0.59				
Hagneck	22-40	0.036	0.19				
	>40	0.207	1.09				
	Gesamt	0.355	1.87	190			
HGF03	1-10	0.008	0.04				
1.4.93	10-22	0.049	0.23				
Hagneck	22-40	0.057	0.27				
	>40	0.158	0.76		0.09	121	22
	Gesamt	0.272	1.30	209	0.09	70	
HGF04	1-10	0.045	0.25				
1.4.93	10-22	0.100	0.56				
Hagneck	22-40	0.045	0.25		0.04	175	44
	>40	0.149	0.84		0.10	123	29
	Gesamt	0.339	1.91	178	0.15	78	
HGF05	1-10	0.042	0.20				
2.4.93	10-22	0.098	0.47				
Hagneck	22-40	0.062	0.30				
	>40	0.227	1.09		0.05	50	36
	Gesamt	0.428	2.07	207	0.05	27	

## Verhalten von Radionukliden aus Kernkraftwerken in Aare und Rhein

Proben-Nr. Datum/Ort	Korngrößenbereich [µm]	suspendierte Partikel		filtriertes Volumen (l)	<sup>60</sup> Co Aktivität		
		Masse [g]	Konzentration [g/m <sup>3</sup> ]		[Bq/m <sup>3</sup> ]	[Bq/kg]	2s [%]
HGF06	1-10	-0					
2.4.93	10-22	0.061	0.29				
Hagneck	22-40	0.051	0.25				
	>40	0.270	1.30		0.12	94	23
	Gesamt	0.382	1.84	208	0.12	66	
HGF07	1-10	0.030	0.16				
2.4.93	10-22	0.079	0.43				
Hagneck	22-40	0.055	0.30				
	>40	0.199	1.08		0.05	45	48
	Gesamt	0.361	1.96	184	0.05	25	
BZ-FP_01	1-10	0.009	0.13				
18.5.93	10-22	0.259	3.70		0.16	43	
Beznau	22-50	0.242	3.46				
	>50	0.232	3.31				
	Gesamt	0.742	10.60	70	0.16	15	
BZ-FP_02	1-10	0.014	0.22				
18.5.93	10-22	0.174	2.76		0.81	293	
Beznau	22-50	0.158	2.51		0.25	100	
	>50	0.111	1.76		0.16	91	
	Gesamt	0.457	7.25	63	1.22	168	
BZ-FP_03	1-10	0.016	0.23				
18.5.93	10-22	0.261	3.73		0.65	174	
Beznau	22-50	0.208	2.97		0.19	64	
	>50	0.245	3.50		0.28	80	
	Gesamt	0.730	10.43	70	1.12	107	
BZ-FP_04	1-10	0.006	0.10				
18.5.93	10-22	0.236	3.93		0.82	208	
Beznau	22-50	0.342	5.70		0.52	91	
	>50	0.102	1.70		0.21	124	
	Gesamt	0.686	11.43	60	1.55	136	