Tritium-Verteilung, Durchmischungsverhältnisse und Altersstruktur der Wassermasse im Vierwaldstättersee

Von M. M. Bezzegh, H. L. Le Roy und K. Steiner

Eidg. Anstalt für Wasserversorgung, Abwasserreinigung und Gewässerschutz (EAWAG) und Eidg. Technische Hochschule (ETH), Zürich

Manuskript eingegangen am 15. Juli 1977

ABSTRACT

Tritium of thermonuclear origin was measured in four different depth profiles in the Lake of Lucerne. Its concentration distribution yielded information on the mixing within the water mass under observation. A simple model was established for approximating the age structure of the water layers.

1. Einleitung

1.1 Allgemeines

Das radioaktive Isotop Tritium (^3H) wurde schon seit Urzeiten durch die Aktivierungsprozesse in der Lufthülle ständig erzeugt und der Erde mit dem Niederschlag zugeführt. Der durch diese *natürliche* Produktion und den Zerfall (Halbwertszeit: 12,3 Jahre) bedingte Tritium-Spiegel im Wasserkreislauf wurde durch das *künstlich* gebildete Tritium der oberirdischen Wasserstoffbombentests stark verändert. So wurde die Tritium-Konzentration in den Niederschlägen in Westeuropa seit 1954 auf das Hundert- bis Tausendfache des «natürlichen» Tritium-Pegels (der gemäss Literaturangaben etwa 3 bis 30 pCi/l Regenwasser betrug) erhöht. Maxima sind 1963 (Atomteststopp) mit Werten von 10^3 bis 10^4 pCi/l Regenwasser registriert worden. Danach ging das Tritium-Niveau im Niederschlag wieder zurück und liegt seit 1966 in einem Konzentrationsbereich zwischen 10^2 und 10^3 pCi/l Wasser. Der mit Tritium thermonuklearen Ursprungs markierte Niederschlag wurde fortlaufend der Erde zugeführt, worauf sich auch der Tritium-Pegel der Gewässer merklich erhöhte. Mit der allmählichen Auswaschung des Tritiumexzesses aus der Atmosphäre glich sich dann die seit 1954 gestörte Tritium-Verteilung wieder aus, so dass heute keine grossen Unterschiede mehr zwischen den Tritium-Konzentrationen in den Niederschlägen und in *gut durchmischten* Oberflächengewässern bestehen. Ausnahmen bilden einzelne lokale Vorkommnisse in mit Tritium kontaminierten Industriegebieten, welche in einer früheren Arbeit diskutiert wurden [1].

1.2 Gegenstand und Zweck der Arbeit

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit Untersuchungen über die Tritium-Konzentrationen in den Tiefenprofilen des Vierwaldstättersees, welche – im Anschluss an andere Versuche – von Juli 1973 bis August 1974 durchgeführt wurden. Die Zielsetzung war, anhand der *vertikalen Verteilung* von Tritium therm nuklearen Ursprungs in den Seeprofilen die Anwendbarkeit und die eventuellen methodischen Voraussetzungen der Tritium-Messung für das Studium limnologischer Fragen zu prüfen. Ähnliche Ziele wurden bereits bei früheren eingehenden Untersuchungen am Genfersee [2], Thunersee und Brienersee [3] verfolgt.

2. Methodisches

Die Tritium-Bestimmungen wurden in Aliquoten von Wasserproben ausgeführt, welche für hydrochemische Untersuchungen der Abteilung Limnologie unserer Anstalt erhoben worden waren. Das Versuchsmaterial umfasste Wasserproben

Abb. 1. Situationskarte der Probenerhebungen aus dem Vierwaldstättersee und den Zuflüssen.
a = Gersauer Becken; b = Vitznau-Weggis bei «Obermatt»; c = Kreuztrichter; d = Urnersee.
Figure 1. Map of the Lake of Lucerne and its affluents with indication of the sampling stations.
a = Basin of Gersau; b = Vitznau-Weggis at 'Obermatt'; c = Kreuztrichter; d = Urnersee.

aus dem Vierwaldstättersee und aus den Zuflüssen. Die *Seeproben* wurden monatlich an den folgenden Stellen erhoben:

- a) *Gersauer Becken* (Koord. 681 050/203 675);
- b) *Vitznau-Weggis* (bei «Obermatt») (Koord. 675 275/207 075);
- c) *Kreuztrichter* (Koord. 669 450/208 000);
- d) *Urnersee* (tiefste Stelle, Höhe Sisikon) (Koord. 688 750/200 825).

Die Einzelproben aus den *Zuflüssen* wurden aus dem Isenthalerbach, Riemenstaldenbach, der Reuss, Muota und Sarneraa an den Einmündungsstellen und aus der Engelbergeraa in etwa 3000 m Entfernung vor der Einmündung entnommen (Abb. 1).

Die Tritium-Messungen erfolgten ohne vorherige Anreicherung mit einem automatischen Flüssigkeits-Szintillations-Spektrometer unter Anwendung eines gebrauchsfertigen «Cocktails» (INSTA-GEL). Für die Messdauer wurden – je nach Tritium-Konzentration – am Gerät 4 bis 5 Stunden pro Probe gewählt, so dass der relative statistische Zählfehler (bei einer 95%-Vertrauensgrenze) stets weniger als 20% ausmachte. In Einzelfällen wurde er mittels wiederholter Messungen auf 10% reduziert.

3. Ergebnisse

3.1 *Verteilung von Tritium und Durchmischungsverhältnisse in den Tiefenprofilen*

Die Resultate der Seeuntersuchungen sind zur besseren Übersicht in dreidimensionalen graphischen Darstellungen zusammengestellt (Abb. 2 a–d). Für die oberen Wasserschichten (0 bis 10 m; 10 bis 20 m; 20 bis 30 m) wurden jeweils Durchschnittswerte verwendet, um Messungen an unterschiedlich erhobenen Proben (Mischproben, Einzelproben) untereinander vergleichen zu können. Aus den mehr oder weniger ähnlichen Aktivitätskonzentrationen in den Tiefenprofilen ist zu entnehmen, dass man es im grossen ganzen mit einer annähernd homogenen Verteilung des Tritiums zu tun hat. Nur die Messwerte für Gersau deuten auf systematische Heterogenitäten hin (Abb. 3 a–l). Für die oberen Wasserschichten (0 bis 30 m) ergaben sich häufig niedrigere, für das Wasser am Seeboden *regelmässig* leicht höhere Tritium-Konzentrationen, als das Seeprofil im Mittel aufwies. Die Konzentrationsunterschiede gehen deutlich aus den Durchschnittswerten der ganzen Beobachtungszeit hervor (Abb. 4a). Aus der Abb. 4b ist ersichtlich, dass die Tritium-Aktivität im Bereich von 50 m bis 200 m (vorläufiger Auswertungsbereich der Daten) regelmässig um 3,65 pCi/l pro 10 m Tiefe ansteigt. Der Wert, der für die mittlere Tiefe von 10 m (0–20 m) berechnet werden konnte, gehört noch eindeutig zu der eingezeichneten Regressionsgeraden. Für die Tiefe von 210 m würde laut berechneter Regression der Wert von 694,9 pCi/l gehören; beobachtet wurde jedoch die Aktivität von 733,6 pCi/l, und dieser Wert liegt nun wesentlich höher und charakterisiert somit eine systematische Abweichung in Richtung höherer Aktivität. Der berechnete Wert pCi/l an der Stelle a^* (Tiefe 210 m) ist jener Wert, der überschritten werden muss, damit die Abweichung nach höherer Aktivität als systematisch bezeichnet werden kann ($P=0,05$, einseitiger Test entsprechend der sachlogischen Vermutung erhöhter Aktivität in

VIERWALDSTÄTTERSEE
Kreuztrichter

Abb. 2 a-b. Tritium-Aktivitätskonzentrationen in den Tiefenprofilen *Obermatt* und *Kreuztrichter* zu verschiedenen Beobachtungszeiten.

Figure 2 a-b. Variation of the tritium activity concentrations in function of the time in the profiles at *Obermatt* and *Kreuztrichter*.

Abb. 2 c-d. Tritium-Aktivitätskonzentrationen in den Tiefenprofilen *Urnersee* und *Gersau* zu verschiedenen Beobachtungszeiten.

Figure 2 c-d. Variation of the tritium activity concentrations in function of the time in the profiles at *Urnersee* and *Gersau*.

Abb. 3 a-d. Tritium-Aktivitätskonzentrationen und dazugehörige statistische Zählfehler (95%-Vertrauensgrenze) im Tiefenprofil Gersau zu verschiedenen Probenahmedaten.

Figure 3 a-d. Tritium activity concentrations and their statistical errors (95% confidence level) in various depths at Gersau at different sampling dates.

Abb. 3e-h. Tritium-Aktivitätskonzentrationen und dazugehörige statistische Zählfehler (95%-Vertrauensgrenze) im Tiefenprofil Gersau zu verschiedenen Probenahmedaten.
Figure 3e-h. Tritium activity concentrations and their statistical errors (95% confidence level) in various depths at Gersau at different sampling dates.

Abb. 3 i-l. Tritium-Aktivitätskonzentrationen und dazugehörige statistische Zählfehler (95%-Vertrauensgrenze) im Tiefenprofil *Gersau* zu verschiedenen Probenahmedaten.

Figure 3 i-l. Tritium activity concentrations and their statistical errors (95% confidence level) in various depths at *Gersau* at different sampling dates.

Probenahmen : zwischen 3. Juli 1973
und 15. Juli 1974

Abb. 4a. Jahresdurchschnitte der Tritium-Aktivitätskonzentrationen und dazugehörige statistische Zählfehler (95%-Vertrauensgrenze) im Tiefenprofil Gersau.

Figure 4a. Annual mean values of tritium activity concentrations and statistical errors (95% confidence level) in the profile at Gersau.

Abb. 4b. Statistische Beurteilung der Systematik in der Tritium-Aktivität als Funktion der Seetiefe mit Hilfe der Regressionsrechnung.
Figure 4b. Statistical proof of the systematic distribution of tritium activity as a function of water depth.

Seegrundnähe). Würde von der gesamten beobachteten Streuung die durch Strömung bedingte Heterogenität abgezogen und bloss die zufallsbedingte Streuung der Messwerte an den verschiedenen Seetiefen in Rechnung gestellt, dann gelten an der Stelle 210 m die folgenden Werte, die vom beobachteten Wert überschritten werden müssen, damit die Irrtumswahrscheinlichkeit bei der Aussage «systematische Erhöhung» kleiner oder gleich P ist:

a mit $P=0,05$, b mit $P=0,01$ und c mit $P=0,001$.

Bei dieser Betrachtungsweise ist der beobachtete Wert von 733,6 pCi/l statistisch beurteilt als sehr stark signifikant erhöht zu bezeichnen, wobei diese Aussage mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit kleiner als 1 Promille behaftet ist.

Die Heterogenität kann der *unvollständigen Durchmischung* zugeschrieben werden, sofern man für die *vertikale* Tritium-Verteilung im See im wesentlichen turbulente Durchmischungsprozesse (Eddy-Diffusion [4]) voraussetzt. Es müssten dabei jüngere und ältere Tritium-Zufuhren mit verschiedener Intensität mehr oder weniger getrennt im Seeprofil verbleiben. Die annähernd homogene Verteilung von Tritium bei Obermatt, Kreuztrichter und Urnersee liesse sich hingegen auf relativ gute Durchmischungsverhältnisse zurückführen.

3.2 Altersstruktur der Wassermassen an den Beobachtungsstellen

Ausgehend von den seit 1954 stark angestiegenen und während vieler Jahre grossen zeitlichen Variationen unterworfenen Tritium-Konzentrationen in den Gewässern kann eine Datierung von tritierten Wassermassen vorgenommen werden. So lässt sich aus den gemessenen Tritium-Konzentrationen im Vierwaldstättersee feststellen, dass die Hauptwassermasse im Seebecken zur Zeit der Beobachtung jünger als 20 Jahre alt sein musste, da die Tritium-Konzentration mit Werten von 10^2 pCi/l den 1952 aufgetretenen «natürlichen» Tritium-Pegel stark übersteigt (vgl. Tab. 2 und 4). Berücksichtigt man den Rückgang des Tritium-Gehaltes der Niederschläge (und folglich auch der Flüsse) während der vergangenen Jahre, so kann man aus den relativ niedrigen Tritium-Konzentrationen in den Oberflächenschichten (Abb. 4) auf rezente Tritium-Zufuhren durch Regen, Schnee und Zuflüsse schliessen. Messungen an Stichproben aus den Zuflüssen bestätigen die Richtigkeit dieser Schlussfolgerung, denn sie wiesen in der Beobachtungsperiode durchschnittlich niedrigere Tritium-Konzentrationen auf (Tab. 1) als der Hauptteil der Wassermasse im See. Man findet also, dass die Oberflächenschichten «jüngeres» Wasser führen und dass sich die Zuflüsse meist im oberen Teil des Seeprofiles eingeschichtet haben. Die in bezug auf das Gesamt-Seeprofil relativ höheren Tritium-Konzentrationen im Wasser am Seeboden lassen hingegen auf die Existenz von älteren Wassermassen folgern. Dafür sprechen auch die folgenden Beobachtungen:

Ein Sediment-Bohrkern [5] mit einer Länge von etwa 70 cm wurde in etwa 10 cm hohe zylindrische Stücke aufgeteilt und in deren Porenwasser das Tritium bestimmt. Wie die Abb. 5 zeigt, nimmt die Tritium-Konzentration mit zunehmender Sedimenttiefe ab. Im obersten Abschnitt finden sich ähnliche Konzentrationen wie im überstehenden Wasser (ca. 780 pCi/l Wasser, vgl. Abb. 2a). *Im Rahmen des*

Tabelle 1. Tritium-Aktivitätskonzentrationen in den Zuflüssen vom Urnersee, Vierwaldstättersee und Alpnachersee (Aktivität in pCi/l; statistischer Zählfehler bei 95%-Vertrauensgrenze; in Klammern: Datum der Probenahme).

Zuflüsse zum Urnersee			Zuflüsse zum Gersauersee		Zufluss zum Alpnachersee
Isenthalerbach	Reuss	Riemenstaldenbach	Muota	Engelbergeraä	Saarneraä
680 ± 120 (27.7.73)	460 ± 100 (27.7.73)	570 ± 110 (27.7.73)	650 ± 120 (27.7.73)		
	520 ± 70 (30.7.73)		590 ± 70 (30.7.73)	650 ± 70 (30.7.73)	660 ± 70 (30.7.73)
490 ± 90 (10.8.73) (Wasserführung: ca. 0,01 m ³ /sec)	400 ± 80 (10.8.73)	570 ± 90 (10.8.73) (Wasserführung: ca. 1 m ³ /sec)	570 ± 90 (10.8.73) (Wasserführung: ca. 15 m ³ /sec)		
	450 ± 70 (10.9.73)		640 ± 70 (10.9.73)	480 ± 70 (10.9.73)	590 ± 70 (10.9.73)
	540 ± 90 (8.10.73)		530 ± 90 (8.10.73)	600 ± 90 (8.10.73)	610 ± 90 (8.10.73)
	590 ± 90 (22.10.73)		500 ± 90 (22.10.73)	520 ± 90 (22.10.73)	570 ± 90 (22.10.73)
$\bar{M} = 585 \pm 75$	493 ± 34	570 ± 71	580 ± 37	563 ± 40	607 ± 40

$\bar{M}$ = Mittelwert.

Abb. 5. Tritium-Aktivitätskonzentrationen im Porenwasser des Sedimentes bei Obermatt.
Figure 5. Tritium activity concentrations in the interstitial water of a sediment core at Obermatt.

Gesamt-Seeprofiles weist diese Sedimentschicht den höchsten Wert auf, d.h. sie enthält die grösste Menge von «älterem» Wasser. (Die Frage des Konzentrationsgradienten im Sediment wird in einer separaten Arbeit behandelt.) Der untersuchte Bohrkern stammte aus der Nähe von Obermatt. Somit muss auch bei Obermatt – analog zur Stelle Gersau – älteres Wasser am Seeboden auftreten, auch wenn es mit den Schöpfproben nicht erfasst werden konnte.

Näheres über das «Alter» der tritierten Wassermasse ist mit Hilfe von Berechnungen zu erfahren, denen eines der verschiedenen Durchflussmodelle [3, 6] zugrunde gelegt werden kann. Wir haben uns eines Modells bedient, in welchem volle Durchmischung des Zuflusses mit dem Seewasser vor seinem Abfluss angenommen und den von Jahr zu Jahr stark wechselnden Zuflussverhältnissen Rechnung getragen wird. Der gesamte Zufluss bzw. der Abfluss (deren Volumen gleichgesetzt wird) soll dabei schubweise, jeweils am Ende eines Jahres, erfolgen. Aufgrund dieses stark vereinfachten Modells und mit Hilfe von zusätzlichen Annahmen, welche wegen fehlender Detailinformationen notwendig waren, wurde die Tritium-Bilanz des Sees für die ganze Periode von 1952 bis 1974 jahresweise fortschreitend erstellt. Die recht gute Übereinstimmung der so berechneten Tritium-Konzentration im See für das Jahr 1973 mit dem gemessenen Mittelwert zeigte, dass das

Modell doch wesentliche Informationen zu vermitteln vermag. Diese Feststellung erlaubt, die Altersstruktur des Wassers im See anhand der verfügbaren hydrographischen Daten zu schätzen.

3.21 Das Modell der TAK-Veränderung

Die Berechnung der Tritium-Aktivitätskonzentration (TAK) im Wasser des Vierwaldstättersees¹⁾ für die Zeit der Zufuhr von Tritium thermonuklearen Ursprungs zum See wird im Modell (I) mit folgenden vereinfachenden Annahmen formuliert:

- a) Das dem See zugeführte Tritium wird vor dem Abfluss im See – infolge voller Durchmischung des Zuflusses mit dem Seewasser – homogen verteilt.
- b) Der gesamte Zufluss (Neuwasser) erfolgt schubweise, jeweils am Ende eines Beobachtungsjahres (gilt analog für das Abflusswasser).
- c) Die TAK des Niederschlages entspricht der TAK des Zuflusses. Die Aktivitätsfracht des Zuflusses wird deshalb aus der Aktivitätskonzentration des Niederschlages und des Zuflussvolumens berechnet, wobei der totale Zufluss, d.h. das Neuwasservolumen des Sees, dem Abflussvolumen (Reuss bei Luzern) gleichgesetzt wird. (Diese starke Vereinfachung ist als erster Ansatz zu werten.)
- d) Die natürliche TAK des Seewassers wies 1952 einen Wert von rund 30 pCi/l auf.
- e) Die TAK der Niederschläge im Einzugsgebiet des Vierwaldstättersees entspricht der TAK der Niederschläge von Westeuropa [7].
- f) Das Seevolumen (Q) bleibt konstant.
- g) Die Verdunstung des Seewassers kann vernachlässigt werden.

Mit den festgelegten 7 Annahmen lässt sich die mittlere TAK ($\bar{A}$) im Seewasser für das Ende des Beobachtungsjahres x ($\bar{A}_x$) wie folgt darstellen:

$$\bar{A}_x = (1 - q_x) [\bar{A}_{x-1} Z] + q_x \bar{A}_{Rx} \quad \text{mit } 0 < q_x = Q_x / Q < 1, \quad (I)$$

wobei

- $\bar{A}_x$ TAK im Seewasser für das Ende des Beobachtungsjahres x
 Z 0,945 (konstant) = Zerfallsfaktor für Tritium
 $\bar{A}_{Rx}$ jahresdurchschnittliche TAK im Niederschlag von Westeuropa im Jahre x
 Q 11,8 km³ = konstant = Seevolumen
 Q_x Neuwasser am Ende des Jahres x (= abgeflossene Wassermenge)
 q_x Q_x / Q = relativer Anteil des Neuwassers im Jahre x
 $1 - q_x$ relativer Anteil von Seewasser aus dem Jahre x-1 am Seewasser des Jahres x («Überlebensquote»)

Alle Parameter beziehen sich auf die Einheit Jahr.

1) Die Anwendbarkeit dieses Modells für andere Seen müsste noch untersucht werden.

Ausgehend von $\bar{A}_{x=1952} = 30$ pCi/l und der $\bar{A}_{R_x}$ -Werte in Tabelle 2, resultiert die folgende Reihe für die $\bar{A}_x$ -Werte:

x	$\bar{A}_{x-1}$	$\bar{A}_{R_x}$	Q_x	q_x	$\bar{A}_x = \bar{A}_{x-1} Z(1 - q_x) + q_x \bar{A}_{R_x}$
1953	30	48	3,50	0,2966	34,18
1954	34,18	640	3,66	0,3102	220,81
1955	220,81	96	3,91	0,3314	171,33
1956	171,33	320	3,66	0,3102	210,95
		usw.			

Die auf ganze Einheiten gerundeten Werte $\bar{A}_x$ sind in der Tabelle 2 enthalten ($x = 1952$ bis $x = 1973$).

Die TAK für die Beobachtungsperiode Juli 1973 bis Juli 1974 ergab – über 4 Messorte und über verschiedene Seetiefen ermittelt – den folgenden Wert:

$$\bar{A} = 648 \pm 5 \text{ pCi/l} \quad (P = 0,05).$$

Der mittlere Wert von 648 pCi/l stimmt mit dem berechneten Wert von 633 pCi/l gut überein. Die Formel (I) – als einfachster Ansatz – zeitigt somit eine gute Approximation, und es darf vermutet werden, dass dieses einfache Modell vernünftige TAK-Werte zu berechnen erlaubt.

Tabelle 2. Berechnete TAK-Werte für das Wasser des Vierwaldstättersees ($\bar{A}_x$) am Ende des Beobachtungsjahres x.

x	$\bar{A}_{R_x}$ in pCi/l	Q_x in km ³ /l)	$\bar{A}_x$ in pCi/l ²⁾
1952	–	–	30
1953 = x_0	48	3,50	34
1954	640	3,66	221
1955	96	3,91	171
1956	320	3,66	211
1957	280	3,28	222
1958	1020	3,85	474
1959	1280	2,78	644
1960	380	3,82	535
1961	420	3,22	482
1962	1980	3,06	851
1963	7040	3,31	2553
1964	4160	2,62	2801
1965	1600	4,07	2286
1966	1020	3,78	1795
1967	700	3,82	1374
1968	610	3,78	1078
1969	700	3,28	930
1970	580	4,35	769
1971	670	2,52	714
1972	640	2,74	667
1973 = x_m	640	3,44	633

1) $Q_x = (Q_{1953} + \dots + Q_{1973})/21 = 3,45$ bzw. $q_x = 0,2924$.

2) Auf ganze Einheiten gerundet.

3.22 Beziehung zwischen der mittleren Neuwassermenge und der mittleren TAK im Seewasser

Die beobachteten Werte Q_x zeitigen das folgende mittlere Abfluss- bzw. Neuwasservolumen pro Jahr:

$$Q_{\bar{x}} = \frac{1}{m+1} \sum_{x=x_0}^{x=x_m} Q_x = \frac{1}{(x_m - x_0) + 1} (Q_{x_0=1953} + \dots + Q_{x_m=1973}) \quad (\text{II})$$

= 3,45 (vgl. Tab. 2, Fussnote).

Weiter gilt:

$$q_{\bar{x}} = Q_{\bar{x}}/Q = 3,45/11,9 \text{ (km}^3\text{-Einheiten)} = 0,2924 \text{ (bzw. 29,24\%)}$$

= mittlerer relativer Neuwasseranteil pro Jahr.

Es sei

$$v_x = Q_x/Q_{\bar{x}} \quad (\text{III})$$

= Verhältnis des Neuwasservolumens für das Jahr x zum mittleren Neuwasservolumen der Periode von $m+1$ Jahre.

Setzt man eine willkürliche mittlere Neuwassermenge fest - also z.B. $Q_{\bar{x}}^*$ - und nimmt an, dass für diese Werte ebenfalls die beobachtete Proportion - also $v_x = Q_x^*/Q_{\bar{x}}^*$ - gelte, dann folgt:

$$Q_x^* = v_x \cdot Q_{\bar{x}}^* \quad \text{oder} \quad Q_x^* = \mu^* Q_x \quad \text{mit} \quad \mu^* = Q_{\bar{x}}^*/Q_{\bar{x}}. \quad (\text{IV a/b})$$

Wird für diese willkürlich gewählte Neuwassermenge $Q_{\bar{x}}^*$ die TAK im Seewasser bestimmt, dann erhält man für die Formel (I) den folgenden Ausdruck:

$$\bar{A}_x^* = (1 - \mu^* q_x) [\bar{A}_{x-1}^* Z] + \mu^* q_x \cdot \bar{A}_{R_x} \quad \text{mit} \quad \mu^* q_x = q_x^* = Q_x^*/Q. \quad (\text{Ia})$$

Für einige μ^* -Werte wurde, ausgehend von $\bar{A}_{1952} = 30$ pCi/l, der Wert $\bar{A}_{1973}^*$ berechnet. In Tabelle 3 sind die entsprechenden Ergebnisse zusammengestellt (vgl. auch Abb. 6).

Eine Gegenüberstellung der so ermittelten Werte $\bar{A}_{1973}^*$ zeigt (Tab. 3), dass zwischen den angenommenen durchschnittlichen Neuwassermengen $Q_{\bar{x}}^*$ und den berechneten TAK-Werten eine komplexe Abhängigkeit besteht (vgl. auch Abb. 6). Dies ist verständlich, wenn man überlegt, dass die am Ende des letzten Beobachtungsjahres im Seewasser aufgetretene TAK nicht nur von der Variation der Neuwassermenge, sondern auch von der Variation der TAK im Alt- und Neuwasser beeinflusst wird.

Tabelle 3. Die Werte $\bar{A}_{1973}^*$ für vorgegebene Werte $\mu^* = Q_R^*/Q$.

$q_R^* = Q_R^*/Q$	Q_R^* in km ³	μ^*	$\bar{A}_{1973}^*$
0,120	1,4160	0,410435	677,1
0,130	1,5340	0,444638	684,4
0,140	1,6520	0,478841	688,7
0,150	1,7700	0,513043	690,7
0,152	1,7936	0,519884	690,8
0,154	1,8172	0,526725	690,9
0,156	1,8408	0,533565	690,9
0,158	1,8644	0,540406	690,8
0,160	1,8880	0,547246	690,7
0,170	2,0060	0,581449	689,1
0,180	2,1240	0,615652	686,4
0,200	2,3600	0,684058	678,4

Hinweis: Die Berechnung der Werte $\bar{A}^*$ erfolgte analog zur Analyse, die die Werte in Tabelle 2 zeitigte (erfasstes Intervall: 1953 bis 1973).

Abb. 6. Die Abhängigkeit von $\bar{A}^*$ vom mittleren relativen Neuwasseraustausch q_R^* .

Figure 6. Dependence of $\bar{A}^*$ on the mean relative exchange of the water with subsequent water inflows q_R^* .

3.23 Der Altersaufbau des Seewassers

Ausgehend von der approximierten Gültigkeit der Formel (I) werden [unter den Annahmen, welche für die Formel (I) gelten] die prozentualen Anteile der Zuflüsse am Seewasservolumen berechnet und daraus Rückschlüsse auf die Altersstruktur des Seewassers gezogen.

Es sei

$q_x = Q_x/Q$ = relative Neuwassermenge am Ende des Jahres x [vgl. Formel (I)]

$p_x = 1 - q_x$ = relativer Altwasseranteil am Ende des Jahres x

Am Ende des nächsten Jahres ($x+1$) erfolgt ein analoger Austausch. Von der Wassermenge aus dem Jahre x mit der «Struktur» $p_x + q_x$ wird bloss der Anteil p_{x+1} im See verbleiben, da wiederum ein Neuwasseranteil von q_{x+1} in Rechnung zu stellen ist. Somit gilt für die «Altersstruktur» am Ende des Jahres x , $x+1$ usw. die folgende Zusammenstellung:

Jahr	Struktur (relative Anteile von Alt- und Neuwasser)		
	Altwasser	Neuwasser	Summe
x	p_x	q_x	1
$x+1$	$(q_x + p_x)p_{x+1}$	q_{x+1}	1
$x+2$	$[(q_x + p_x)p_{x+1} + q_{x+1}]p_{x+2}$	q_{x+2}	1
$x+3$	$[(q_x + p_x)p_{x+1} + q_{x+1}]p_{x+2} + q_{x+2}]p_{x+3}$	q_{x+3}	1
	usw.		

Das jeweilige Altwasser kann strukturmässig weiter unterteilt werden.

Für $x+3$ gilt z. B.:

$$\begin{aligned}
 [\dots] p_{x+3} &= p_x p_{x+1} p_{x+2} p_{x+3} + q_x p_{x+1} p_{x+2} p_{x+3} + q_{x+1} p_{x+2} p_{x+3} + q_{x+2} p_{x+3} \\
 &= p_{x:x+3} + q_{x:x+3} + q_{x+1:x+3} + q_{x+2:x+3},
 \end{aligned}$$

wobei

$p_{x:x+3}$ = Altwasseranteil für Altwasser aus dem Jahre x im Jahre $x+3$

$q_{x:x+3}$ = Neuwasseranteil für Neuwasser aus dem Jahre x im Jahre $x+3$

$q_{x+1:x+3}$ = Neuwasseranteil für Neuwasser aus dem Jahre $x+1$ im Jahre $x+3$

$q_{x+2:x+3}$ = Neuwasseranteil für Neuwasser aus dem Jahre $x+2$ im Jahre $x+3$

Die allgemeine Formulierung lautet, sofern x = Ausgangsjahr und $x+m$ = Jahr der Betrachtung:

$$p_{x:x+m} = \prod_{x^*=x}^{x^*=x+m} p_{x^*} = p_x p_{x+1} \cdots p_{x+m-1} p_{x+m}$$

$$q_{x:x+m} = q_x \left(\prod_{x^*=x+1}^{x^*=x+m} p_{x^*} \right) = q_x (p_{x+1} \cdots p_{x+m-1} p_{x+m}) = q_x \cdot P_x \quad (\text{vgl. Tab. 4})$$

$$q_{x+s:x+m} = q_{x+s} \left(\prod_{x^*=x+s+1}^{x^*=x+m} p_{x^*} \right) = q_{x+s} (p_{x+s+1} p_{x+s+2} \cdots p_{x+m-1} p_{x+m})$$

$$s+1 \leq m.$$

Es sei $x = 1970$. Die q - und p -Werte folgen den Angaben in Tabelle 2 (und 4). Wir finden die folgenden Wasseranteile:

Betrachtungsjahr	1)	Wasser aus dem Jahr
$x + m = x = 1970$	$q_{70} = 0,3686$ (36,86%) Neuwasser $p_{70} = 0,6314$ (63,14%) Altwasser	70 69 und früher
$x + m = 1971$	$q_{71} = 0,2136$ ($p_{71} = 0,7864$) $p_{70:71} = 0,6314 \cdot 0,7864 = 0,4965$ $q_{70:71} = 0,3686 \cdot 0,7864 = 0,2899$	71 69 und früher 70
$x + m = 1972$	$q_{72} = 0,2322$ ($p_{72} = 0,7678$) $p_{70:72} = p_{70:71} \cdot p_{72} = 0,4965 \cdot 0,7678 = 0,3812$ $q_{70:72} = q_{70:71} \cdot p_{72} = 0,2899 \cdot 0,7678 = 0,2226$ $q_{71:72} = q_{71} \cdot p_{72} = 0,2136 \cdot 0,7678 = 0,1640$	72 69 und früher 70 71
$x + m = 1973$	$q_{73} = 0,2915$ ($p_{73} = 0,7085$) $p_{70:73} = p_{70:72} \cdot p_{73} = 0,3812 \cdot 0,7085 = 0,2701$ $q_{70:73} = q_{70:72} \cdot p_{73} = 0,2226 \cdot 0,7085 = 0,1577$ $q_{71:73} = q_{71:72} \cdot p_{73} = 0,1640 \cdot 0,7085 = 0,1162$ $q_{72:73} = q_{72} \cdot p_{73} = 0,2322 \cdot 0,7085 = 0,1645$	73 69 und früher 70 71 72

1) Es gilt auch, dass $q_{x:x+m} = q_{x:x+m-1} p_x$.

In Abb. 7 ist die Altersstrukturveränderung für das durchgerechnete Beispiel (oben) dargestellt, und in Tabelle 4 ist die Altersstruktur bis ins Jahr 1953 zurückanalysiert angegeben.

Abb. 7. Modellmässige Interpretation der Altersstruktur (relative Anteile) des Seewassers für die Jahre 1970 bis 1973.

Figure 7. Interpretation of the age structure (relative volumes) of the lake water for the years 1970 to 1973 according to the model considered.

Tabelle 4. Prozentuale Anteile der Zuflüsse aus den Jahren x am Gesamt-Seevolumen am Ende 1973 («Altersstruktur»).

x	q_x ¹⁾	P_x	$P_x = \prod_{x^*=x+1}^{73} P_{x^*}$	Altersstruktur rel. $q_x P_x$	in % $D_x = q_x P_x \cdot 100\%$
Vor 1953				0,0007	0,07 ²⁾
53	0,2966	0,7034	0,0009817	0,0003	0,03
54	0,3102	0,6898	0,001396	0,0004	0,04
55	0,3314	0,6686	0,002087	0,0007	0,07
56	0,3102	0,6898	0,003026	0,0009	0,09
57	0,2780	0,7220	0,004191	0,0012	0,12
58	0,3263	0,6737	0,006221	0,0020	0,20
59	0,2356	0,7644	0,008138	0,0019	0,19
60	0,3237	0,6763	0,01203	0,0039	0,39
61	0,2729	0,7271	0,01655	0,0045	0,45
62	0,2593	0,7407	0,02234	0,0058	0,58
63	0,2805	0,7195	0,03106	0,0087	0,87
64	0,2220	0,7780	0,03992	0,0089	0,89
65	0,3449	0,6551	0,06093	0,0210	2,10
66	0,3203	0,6797	0,08965	0,0287	2,87
67	0,3237	0,6763	0,1326	0,0429	4,29
68	0,3203	0,6797	0,1950	0,0625	6,25
69	0,2780	0,7220	0,2701	0,0751	7,51
70	0,3686	0,6314	0,4278	0,1577	15,77
71	0,2136	0,7864	0,5440	0,1162	11,62
72	0,2322	0,7678	0,7085	0,1645	16,45
73	0,2915	0,7085	-	0,2915	29,15
Σ				1	100

1) $q_x = Q_x/Q$; Q_x -Werte aus Tabelle 2; $Q = 11,8 \text{ km}^3$.

2) Als Differenz zu 1 berechnet.

3.24 Die Schätzung des prozentualen Anteils der verschiedenen Neuwassermengen im Seevolumen der Schicht' («Altersstruktur»): Einfachster Ansatz

Es gelte in der Schicht' (analog zum Seebecken insgesamt):

$$q'_x = Q'_x / Q'$$

wobei

Q' Wasservolumen der Schicht'

Q'_x Neuwasservolumen für die Schicht'

Q'_x mittleres Neuwasservolumen für die Schicht' über $m+1$ Jahre (x_0 bis x_m)

Als vereinfachende Annahme gelte, dass

$$Q'_x / Q'_x = Q_x / Q_x = v_x \quad \text{bzw.} \quad Q'_x = v_x Q'_x \quad (\text{A})$$

$$Q'_x = \mu' Q_x \quad \text{mit} \quad \mu' = Q'_x / Q_x.$$

Weiter sei

$$q_x^* = Q_x^*/Q = Q_x'/Q' \quad (B)$$

= mittlerer relativer Neuwasseraustausch über die Periode der $m + 1$ Jahre.

Somit gilt:

$$Q_x' = q_x^* Q' \quad (\text{aus B}). \quad (C)$$

Aus (A) und (C) folgt:

$$Q_x' = v_x Q_x' = v_x q_x^* Q'. \quad (D)$$

Da $q_x' = Q_x'/Q' = v_x q_x^* Q'/Q' = v_x q_x^*$, finden wir analog zu $q_{x:x+1} = q_x p_{x+1}$
 $= q_x (1 - q_{x+1})$

$$q_{x-1:x} = q_{x-1}' p_x' = q_{x-1}' (1 - v_x q_x^*). \quad (E)$$

Wenden wir diese Beziehung auf die Schicht' an. In dieser Schicht' wurde im Jahre 1973 ($=x+m$) ein $\bar{A}$ -Wert von rund 730 pCi/l gemessen (unterste Seeschicht). Zu diesem $\bar{A}'$ -Wert kann aufgrund der $\bar{A}^*$ -Werte der mutmassliche q_x^* -Wert aus der Tabelle 3 entnommen werden. Der dem beobachteten $\bar{A}'$ -Wert am nächsten stehende $\bar{A}^*$ -Wert ist 690,9 pCi/l. Der dazugehörige q_x^* liegt in einem Bereich zwischen 0,154 und 0,156, d. h. $q_x^* \approx 0,155$.

Da $v_x = Q_x/Q_x' = Q_x'/Q_x'$ vorausgesetzt wurde, kann für alle x -Werte der Wert $q_x' = v_x q_x^*$ bestimmt werden, und mit dieser Reihe der q_x' - bzw. p_x' -Werte kann, analog zu den Hinweisen auf Seite 219, die Strukturanalyse für das Seewasser der untersten Schicht (') durchgeführt werden. Für die Jahre 1970–1973 gilt das folgende Schema:

Jahr x	$Q_x/Q_x' = v_x$ (Tab. 2)	$q_x' = v_x q_x^*$ $q_x^* = 0,155$	p_x'	P_x'	$q_x' P_x'$	$D_x' = q_x' P_x' \cdot 100\%$ % Wasser aus dem Jahr	
1969	–	(1)	–	0,5290	0,5290	52,90	69 und früher
1970	1,2609	0,1954	0,8046	0,6574	0,1285	12,85	70
1971	0,7304	0,1132	0,8868	0,7414	0,0839	8,39	71
1972	0,7942	0,1231	0,8769	0,8454	0,1040	10,40	72
1973	0,9971	0,1546	0,8454	(1)	0,1546	15,46	73
						100	

In Tabelle 5 ist die Struktur für die Neuwasseranteile bis zum Jahr 1953 angegeben.

Tabelle 5. Prozentuale Anteile der Zuflüsse aus den Jahren 1953 bis 1973 am Wasservolumen der untersten Seeschicht am Ende des Jahres 1973.

Jahr des Zuflusses	$D'_x(\%)$	Jahr des Zuflusses	$D'_x(\%)$
Vor 1953	2,89	1963	2,76
1953	0,54	1964	2,48
1954	0,67	1965	4,71
1955	0,87	1966	5,27
1956	0,98	1967	6,43
1957	1,03	1968	7,66
1958	1,46	1969	7,79
1959	1,21	1970	12,85
1960	2,00	1971	8,39
1961	1,97	1972	10,41
1962	2,17	1973	15,46

4. Schlussfolgerungen

4.1 Dynamik und Altersstruktur der Wassermasse im Vierwaldstättersee

Obwohl die Beobachtungen nur einmal die Winter- und knapp zweimal die Sommerperiode erfassten und sich lediglich auf monatliche Stichproben basieren, lassen die Ergebnisse einige Schlussfolgerungen bezüglich der Dynamik und der Altersstruktur des Seewassers zu. So kann man aus der vertikalen Verteilung des Tritiums in den Tiefenprofilen bei Vitznau-Weggis, Kreuztrichter und Urnersee auf annähernd vollständige, bei Gersau hingegen auf unvollständige Durchmischungsverhältnisse schliessen. Die gemessenen Tritium-Konzentrationen im See und die Tritium-Bilanzberechnungen, denen wir ein stark vereinfachtes Durchmischungsmodell zugrunde legten, in welchem unter anderem die Heterogenität bei Gersau vernachlässigt wurde, deuten ferner auf jährlich wiederkehrende, mehr oder weniger volle Durchmischung der ganzen Wassermasse im Seebecken hin. Die absoluten Grössen der Tritium-Konzentration bzw. ihre räumliche Verteilung geben schliesslich Hinweise auf die bevorzugten Einsichtungstiefen der Zuflüsse, nämlich im Bereich zwischen 0 und 50 m Seetiefe. Ausgehend von der annähernden Gültigkeit des Modells, welches den Tritium-Bilanzrechnungen zugrunde gelegt wurde, ist die Altersstruktur der Gesamt-Wassermasse und des Wassers am Seeboden ermittelt worden. Aus dem Unterschied zwischen den Altersstrukturen der betrachteten Wassermassen ist zu schliessen, dass am Seeboden bei Gersau eine in bezug auf das Gesamt-Seevolumen «ältere» Wasserschicht auftritt. Es sei hier aber nochmals betont, dass für die Berechnungen ein stark vereinfachtes Modell benutzt wurde, so dass die vorliegenden Resultate nur qualitative Hinweise darstellen. Dies um so mehr, als viele, noch zu untersuchende Faktoren, welche die Tritium-Konzentrationen beeinflussen können (beispielsweise die Wechselwirkung zwischen dem Tritium des Porenwassers im Sediment und jenem des Seewassers), ausser Betracht gelassen wurden.

4.2 Methodische Konsequenzen

Das Tritium trat in den Tiefenprofilen durchwegs in einem gut nachweisbaren Konzentrationsbereich auf (zwischen 10^2 und 10^3 pCi/l Wasser), so dass es ohne vor-

herige Anreicherung in den Proben mit dem Flüssigkeits-Szintillations-Spektrometer direkt gemessen werden konnte. Eine allzu grosse Änderung dieser Situation in der nächsten Zukunft ist weder beim Vierwaldstättersee noch bei anderen tiefen grossen Seen zu erwarten. Die Tritium-Bestimmungen erweisen sich deshalb in den kommenden Jahren noch als eine *einfache Methode* für die Aufklärung einzelner limnologischer Probleme bei Seen mit Dimensionen ähnlich jenen des Vierwaldstättersees. Man muss sich aber darüber klar sein, dass eine statistisch gesicherte Differenzierung zwischen den Tritium-Konzentrationen verschiedener Teile des Wasserkörpers nur mit grossen und über ausreichend lange Perioden ausgedehnten Probenserien möglich ist.

5. Zusammenfassung

Untersuchungen an vier Tiefenprofilen im Vierwaldstättersee ergaben, dass Messungen von Tritium thermonuklearen Ursprungs Informationen über die Durchmischungsverhältnisse in der betrachteten Wassermasse vermitteln. Aufgrund eines einfachen Modells konnte ferner die Altersstruktur des Seewassers approximativ bestimmt werden.

RÉSUMÉ

La concentration en tritium de genèse thermonucléaire, déterminée en quatre endroits à différents niveaux de profondeur du lac des Quatre-Cantons, renseigne sur le degré de brassage des couches d'eau dans la masse totale considérée. La structure de l'âge de ces couches d'eau de lac est déterminé à l'aide d'un modèle simple.

VERDANKUNGEN

Für die wertvollen Diskussionen über die vorliegende Arbeit möchten wir uns bei den Herren Prof. Dr. K. Wuhmann, Prof. Dr. H. Ambühl und H. Bührer bestens bedanken. Unser Dank gilt ebenfalls Herrn E. Szabó für die Organisation der Probenentnahmen, Herrn H.P. Kern für die Tritium-Messungen und Frl. Bolliger für die Anfertigung der Zeichnungen.

LITERATURVERZEICHNIS

- 1 Bezzegh, M.M.: Verschiebung des Tritium-Pegels der schweiz. Gewässer, der Niederschläge und des Porenwassers von Böden infolge zivilisatorischer Einflüsse. Gas Wass. Abwass. 55, Nr. 11, 787 (1975).
- 2 Meybeck, M., Hubert, P., Martin, J.M., und Olive, Ph.: Etude par le tritium du mélange des eaux en milieu lacustre et estuarien (Application au lac de Genève et à la Gironde), S. 523. Isotope Hydrologie 1970, Proceedings of a symposium, IAEA, Vienna 1970.
- 3 Siegenthaler, U.Ch.: Sauerstoff-18, Deuterium und Tritium im Wasserkreislauf, Beiträge zu Messtechnik, Modellierung und Anwendungen. Dissertation Universität Bern, 1971.
- 4 Lerman, A.: Time to chemical steady-states in lakes and ocean. In: Nonequilibrium systems in natural water chemistry. Advances in Chemistry Series 106, American Chemical Society, Washington, D.C., 1971.
- 5 Ambühl, H., und Bührer, H.: Zur Technik der Entnahme ungestörter Grossproben von Seesediment: ein verbessertes Bohrlot. Schweiz. Z. Hydrol. 37, 175 (1975).

- 6 Siegenthaler, U.Ch., und Oeschger, H.: Tritium and oxygen-18 in natural water samples from Switzerland, S. 373. Isotope Hydrologie 1970, Proceedings of a symposium, IAEA, Vienna 1970.
- 7 Oeschger, H., und Gugelmann, A.: Das geophysikalische Verhalten der Umweltisotope als Basis für Modellrechnungen in der Isotopenhydrologie. Öst. Wasserwirt. 26, Heft 3/4 (1974).

Adressen der Autoren: Frau Dr. M.M. Bezzegh, K. Steiner, EAWAG, Überlandstr. 133, CH-8600 Dübendorf - Prof. Dr. H.L. Le Roy, Institut für Tierproduktion, Gruppe Biometrie, ETH-Zentrum, CH-8092 Zürich.