

# Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

Objektyp: **Group**

Zeitschrift: **Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz = Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse = Radioattività dell'ambiente e dosi d'irradiazione in Svizzera**

Band (Jahr): - **(2017)**

PDF erstellt am: **23.07.2024**

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Chapitre / Kapitel 7

**Messung von  
Spezialnukliden**

**Mesures de  
nucléides spéciaux**



# 7.1

## Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37

**Th. Stocker, P. Düring, R. Purtschert und T. Wagner**

Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 Bern

**S. Szidat**

Departement für Chemie und Biochemie, Universität Bern, Freiestrasse 3, 3012 Bern

**C. Schlosser, M. Konrad und S. Schmid**

Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, D-79098 Freiburg im Breisgau

**J. Eikenberg†, M. Heule**

Paul Scherrer Institut, 5232 Villigen PSI

**M. Saurer, A. Gessler**

Eidgenössische Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft (WSL)

### Zusammenfassung

Die Messungen des Gehalts an Kohlenstoff-14 ( $^{14}\text{C}$ ) im Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrlichtverbrennungsanlagen (Bern und Thun), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2017 weitergeführt. Als Referenzwert diente hierbei der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen und -Verdünnungen, an denen im Jahresverlauf je drei Messungen (im Mai, Juli und Oktober 2017) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2017 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert  $12 \pm 3\%$ .

Die 97 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um  $-25\%$  (W-72, Basel Brenntag) bis maximal  $+146\%$  (Kernkraftwerk Leibstadt, Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lagen die Höchstwerte bei  $4\%$  (E-34, Solitude) bzw.  $12\%$  (W-23, Gasstrasse). Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von nicht mehr als  $2 \mu\text{Sv}$  ( $1 \mu\text{Sv} = 10^{-6}$  Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zum Grenzwert für die Strahlenexposition einer Person aus der Bevölkerung durch künstliche Radioaktivität von  $1'000 \mu\text{Sv/a}$  fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr kaum ins Gewicht.

Die  $^{14}\text{C}$ -Messungen an den Baumblättern ermöglichen es die höheren  $^{14}\text{C}$ -Abgaben der KKW Leibstadt und Mühleberg (verglichen mit den KKW Gösgen und Beznau) sowie den Rückgang der  $^{14}\text{C}$ -Emissionen in Basel über die letzten Jahre aufzuzeigen.

Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ ) und Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ ) werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert.  $^{85}\text{Kr}$ , freigesetzt bei der Wiederaufbereitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von  $^{85}\text{Kr}$  auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

## Kohlenstoff-14 ( $^{14}\text{C}$ )

Die  $^{14}\text{C}$ -Messungen wurden in der Regel an einem der beiden Radiocarbonlabore der Universität Bern durchgeführt: im  $^{14}\text{C}$ -Labor der Klima- und Umweltphysik (KUP) des Physikalischen Instituts und/oder im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS, LARA (AMS: accelerator mass spectrometry) des Departements für Chemie und Biochemie. Ausnahmen sind erwähnt.

### Referenzwert

Zwischen 1955 und 1966 wurden im Rahmen von Nuklearwaffentests grosse Mengen an  $^{14}\text{C}$  in der Atmosphäre freigesetzt (so genannter Bomben-Peak). Zwar nimmt seitdem der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  durch Aufnahme von  $^{14}\text{C}$  durch die Ozeane und Verbrennung fossiler, d. h.  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe weltweit wieder ab, doch liegt dieser Gehalt gegenwärtig immer noch leicht über dem als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

$$^{14}\text{A}_0 = (13.56 \pm 0.07) \text{ dpm/gC} = (0.226 \pm 0.001) \text{ Bq/gC} \quad (1)$$

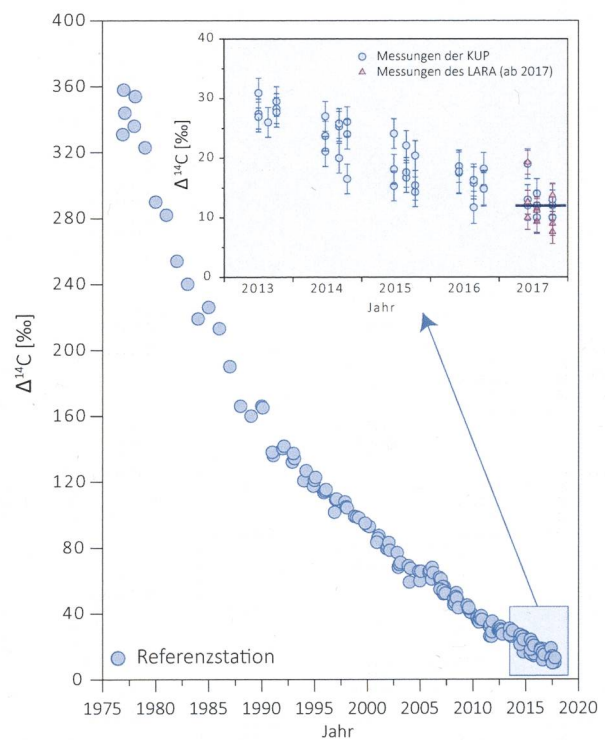
Auf lokaler Ebene lässt sich eine als «Süss»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen  $^{14}\text{C}$  nachweisen. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen  $^{14}\text{C}$ -Konzentration.

Radiocarbon-Quellen und -Verdünnungen (KKW, KVA, Industrie, Autobahnen) können den  $^{14}\text{C}$ -Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich somit als  $^{14}\text{C}$ -Monitor.

Die für diesen Bericht gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Werte werden mit dem Radiocarbonstandard  $^{14}\text{A}_0$  verglichen:

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} = (^{14}\text{A}_{\text{Probe}} / ^{14}\text{A}_0 - 1) \cdot 1'000 [\%] \quad (2)$$

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen oder -Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter gesammelt. Ihr  $^{14}\text{C}$ -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit  $^{14}\text{A}_0$  verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2017 ein Referenzwert für Laub in



**Figur 1:**  $\Delta^{14}\text{C}$ -Konzentrationen in Buchen- und Lindenblättern von den Referenzstationen. Die blaue Linie zeigt den bestimmten Referenzwert während der Vegetationszeit. Kreise: Messungen der KUP. Dreiecke in der Detailansicht (ab 2017): Messungen des LARA.

### Tabelle 1:

Messwerte 2017 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen unter Verwendung von Methode A durch beide Labore

Ort	Labor	$\Delta^{14}\text{C}$ [%]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
		Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	KUP	19	14	13	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald
	LARA	19	11	13			
Belpberg	KUP	12	12	10	606050 / 190800	825	Rotbuchen auf Krete
	LARA	10	9	9			
Ballenbühl	KUP	13	10	13	612550 / 192800	852	2 Linden, freistehend
	LARA	12	11	8			



ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die Ende Mai sowie im August und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2017}} = 12 \pm 3 \text{ [‰]} \quad (3)$$

Die Differenz

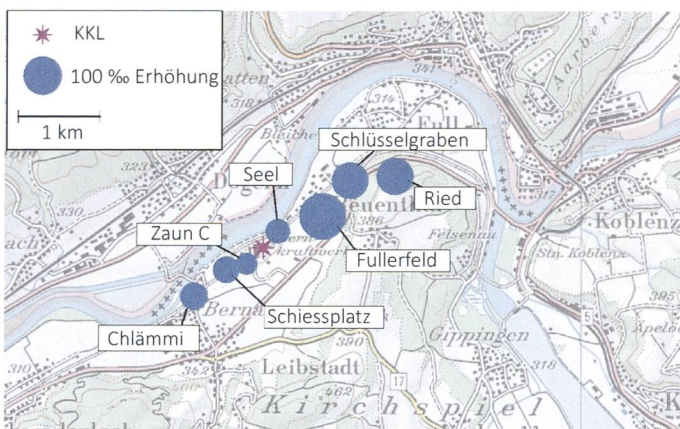
$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2017}} \quad (4)$$

weist auf  $^{14}\text{C}$ -Quellen (Netto  $\Delta^{14}\text{C} > 0$ ) oder -Verdünnungen (Netto  $\Delta^{14}\text{C} < 0$ ) hin.

### Aufbereitung von Laubproben für die $^{14}\text{C}$ -Messung

Es kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

- Methode A:  $^{14}\text{C}$ -Bestimmung nur in der Blattohle<sup>1</sup>
- Methode B:  $^{14}\text{C}$ -Bestimmung im ganzen Blatt



An den Referenzstationen ergaben Messungen an der Blattohle (Methode A) im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt (Methode B) Unterschiede von weniger als 4‰. An belasteten Standorten können die Unterschiede zwischen den Resultaten der nach den Methoden A und B aufbereiteten Proben jedoch grösser sein.

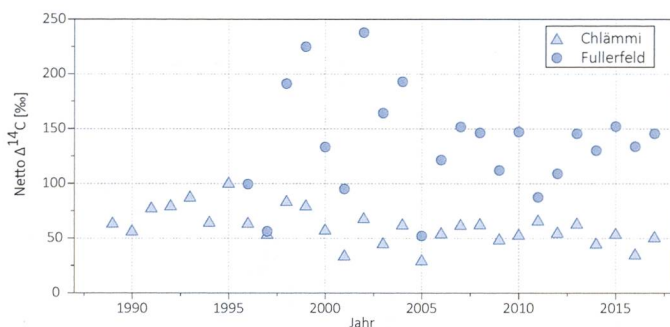
Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber den wahren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Blätter besser wiedergebende Methode B wird vom Radiocarbon-Labor der KUP in der Regel nur für Proben von Standorten verwendet, die in den Vorjahren deutlich höhere Werte zeigten bzw. bei denen ein erhöhtes Interesse am Fortführen der bestehenden Zeitreihen besteht. Das LARA am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern bereitet sowohl Holz- als auch Laubproben im Allgemeinen nach Methode B auf.

Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Blättern der Referenzstationen ist im Jahr 2017 gegenüber dem Vorjahr erneut abgefallen. Mit  $12 \pm 3\%$  liegt der Referenzwert um 4‰ unter dem Wert von 2016.

### $^{14}\text{C}$ im Umfeld der Schweizer Kernkraftwerke

Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] kam es 2017 in der Schweiz zu zwei Reaktorschnellabschaltungen. Im Kernkraftwerk Leibstadt musste im Februar eine Reaktorschnellabschaltung manuell ausgelöst werden und am 21.12.2017, nur wenige Tage nach dem Hochfahren im Anschluss an die Jahresrevision, kam es im selben Kraftwerk zu einer automatischen Reaktorschnellabschaltung [2].

**Figur 2:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2017. Revisionsabschaltung: 18.09.2017 bis 20.12.2017. Probenahme: 26.09.2017. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

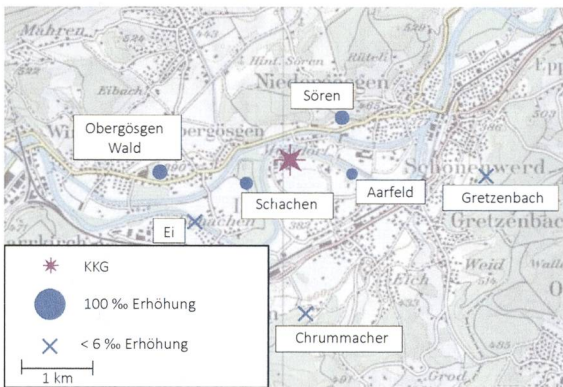


**Figur 3:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (△) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt (Standorte: siehe Figur 2). Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.

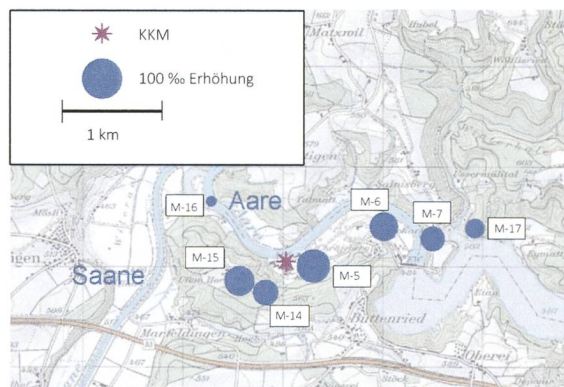
Das Jahr war zudem geprägt von den langen Unverfügbarkeiten zweier Kernkraftwerke: Beznau 1 war aufgrund von lang anhaltenden Sicherheitsüberprüfungen während des gesamten Jahres nicht am Netz, und das Kernkraftwerk Leibstadt wurde nach der Hauptrevision im Herbst 2016 erst am 20. Februar 2017 wieder in Betrieb genommen. Auch im Anschluss an die Hauptrevision 2017 blieb das Kraftwerk mehrere Monate lang

<sup>1</sup> Die Probe wird im Stickstoffstrom pyrolysiert. Dabei verflüchtigen sich gewisse Kohlenstoffverbindungen, die somit für die Analyse ihres  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes verloren sind.

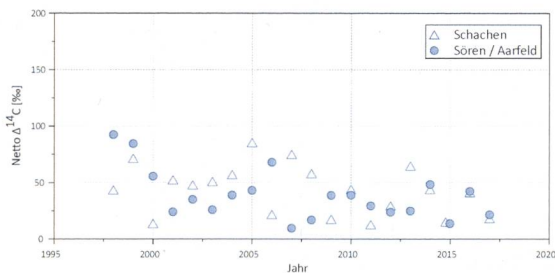




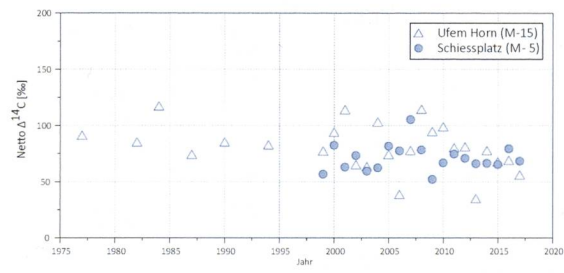
**Figur 4:** Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 04.06.2017 bis 30.06.2017. Probenahme: 27.06.2017. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 6:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2017. Revisionsabschaltung: 13.08.2017 bis 09.09.2017. Probenahme: 23.08.2017. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 5:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (△) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4. Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA



**Figur 7:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (△) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 6. Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.

ausser Betrieb. Am 18.12.2017 wurde der Reaktor mit verminderter Leistung wieder in Betrieb genommen, bis es wenige Tage später zu der oben erwähnten Schnellabschaltung kam. Bereits am Folgetag ging das Kraftwerk jedoch ordnungsgemäss wieder ans Netz.

Die Laubprobenahmen im Umfeld der Kernkraftwerke erfolgten im Allgemeinen während oder nach der Jahresrevision der entsprechenden Kraftwerke, um auch mögliche  $^{14}\text{C}$ -Abgaben während des Revisionsstillstands erfassen zu können. Mit Ausnahme der Messungen im Umfeld des Paul Scherrer Instituts und des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG), welche vom Paul Scherrer Institut durchgeführt wurden, erfolgten die Messungen jeweils im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern. Im Allgemeinen wurden ganze Blätter analysiert (Methode B, siehe oben).

### Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2017 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und auf ihren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt hin untersucht. Damit wurden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste  $^{14}\text{C}$ -Konzentration ergab sich wiederum in ca. 1'000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Fullerfeld (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Chlämli die höchsten Werte auf.

Figur 3 zeigt die gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämli seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2017 lag der höchste Messwert bei 145‰ (Fullerfeld). Der grösste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ (2002), ebenfalls am Standort Fullerfeld. In südwestlicher Richtung wurde 2017 am Standort Chlämli mit 50‰ ein geringfügig höherer Wert gemessen als am Standort Schiessplatz.



### Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 4 sind die Resultate der am 27. Juni 2017 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Sämtliche Messwerte liegen nahe bei den langjährigen Mittelwerten bzw. darunter. Die höchsten  $^{14}\text{C}$ -Messwerte resultierten in diesem Jahr mit einer Erhöhung von je ca. 22% an den Standorten Sören und Obergösgen Wald. Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topografisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert dieses Standorts ist praktisch identisch mit den Werten von unbelasteten Referenzstandorten. Dasselbe gilt im Jahr 2017 auch für die an einem Waldrand gelegenen Standorte Gretzenbach und Ei.

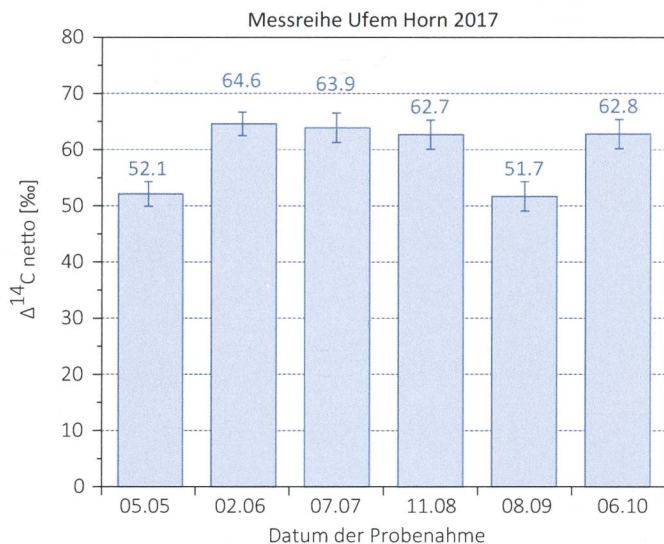
In Figur 5 sind die z.T. seit Messbeginn ermittelten höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Werte >100% wurden in dieser Zeitspanne nie festgestellt. Höchstwerte resultierten jeweils in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer in derselben Windrichtung.

### Kernkraftwerk Mühleberg

Figur 6 zeigt die Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM). Die grösste Erhöhung wurde am Standort M-5 (Schiessplatz) mit 68% gemessen. Die Probenahme erfolgte am 23. August 2017, d.h. während der jährlichen Revision des Reaktors.

Die 2017 gemessenen Proben liegen unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116% höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984. In Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen

höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2017 liegen in der Bandbreite des langjährigen Mittels.



Figur 8: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte am Standort M-15 (Ufem Horn). Standort: siehe Figur 6.

Zusätzlich zur regulären jährlichen Probenahme an den sieben in Figur 6 dargestellten Standorten wurde von der KUP am Physikalischen Institut der Universität Bern erstmals ein und derselbe Baum (Standort M-15, Ufem Horn) während der gesamten Vegetationsperiode einmal pro Monat beprobt, um die Einlagerung von  $^{14}\text{C}$  im Jahresgang zu verfolgen. Gemäss Loosli/Oeschger [3] findet die Einlagerung von  $^{14}\text{C}$  in die Laubstruktur von Bäumen hauptsächlich in den Monaten Mai und Juni statt. Dies konnte in den vorliegenden Messungen bestätigt werden. Der Netto  $^{14}\text{C}$ -Gehalt des Laubs bewegte sich von Mai bis September, d. h. nach dem Ausschlagen des Baumes im Frühjahr bis zum Laubfall



Figur 9: Laubproben vom Standort M-15 (Ufem Horn) vom 5. Mai 2017 ( $\Delta^{14}\text{C}$ : 54 ‰) und 2. Juni 2017 ( $\Delta^{14}\text{C}$ : 66 ‰). Standort: siehe Figur 6.



im Herbst, in einem relativ engen Rahmen zwischen 54‰ und 66‰ (Figur 8). Zum Vergleich: Die Probenahme für das LARA (Figuren 6 und 7) erfolgte zeitlich zwischen den KUP-Probenahmen im August und September, und der entsprechende Messwert liegt mit 55‰ ebenfalls zwischen den von der KUP ermittelten Messwerten für diesen Zeitraum.

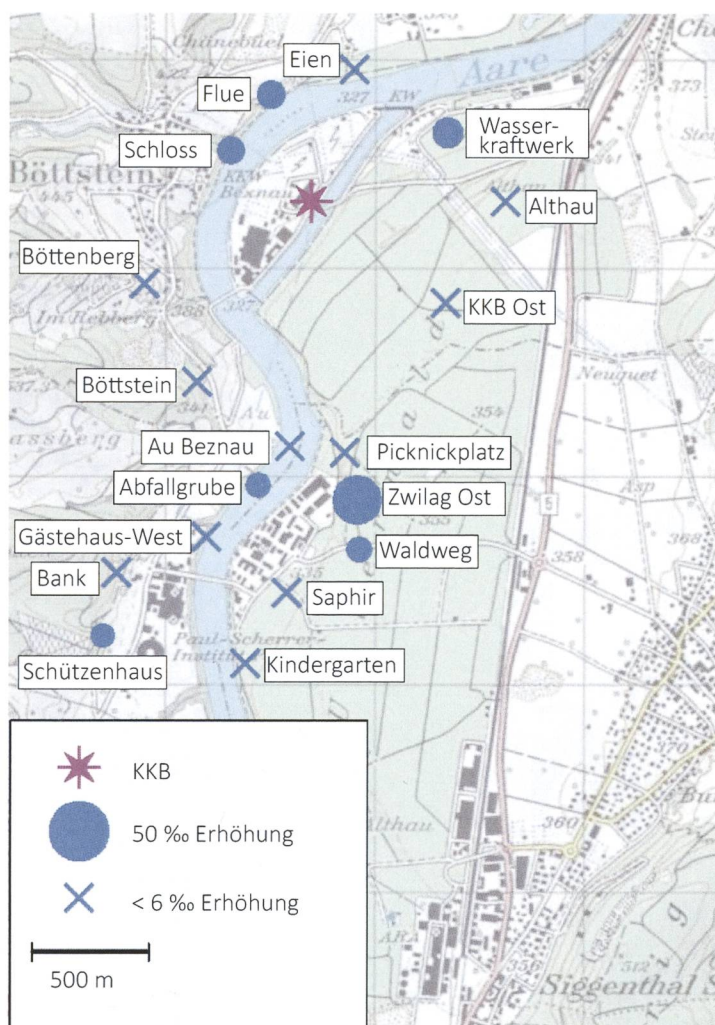
Bemerkenswert ist der relativ hohe Gehalt an  $^{14}\text{C}$  schon bei der ersten Messung an noch sehr jungem Laub, welches bereits Anfang Mai gepflückt wurde (links in Figur 9). Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt des Laubs ist bereits zu diesem Zeitpunkt um 54‰ höher als bei Laub von unbelasteten Referenzstationen (12‰). Möglicherweise handelt es teilweise um  $^{14}\text{C}$  aus dem Vorjahr, das in Form von Zucker in den Wurzeln des Baumes deponiert und beim Austreiben des Laubs in die Blätter integriert wurde. Ob eine solche Überschneidung von einem Jahr zum nächsten tatsächlich auftritt, soll im Rahmen von weiteren Messungen untersucht werden, da dies vor allem im Hinblick auf den Rückbau des Kernkraftwerkes Mühleberg ab 2020 wichtige Rückschlüsse erlauben würde.

Ab Anfang Juni (rechts in Figur 9) war das Laub voll ausgebildet. Die auf dem rechten Blatt sichtbaren so genannten «Gallen» rühren von einem Befall des Baumes mit der Buchengallmücke her und wurden vor der Verarbeitung der Blätter entfernt.

### Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau

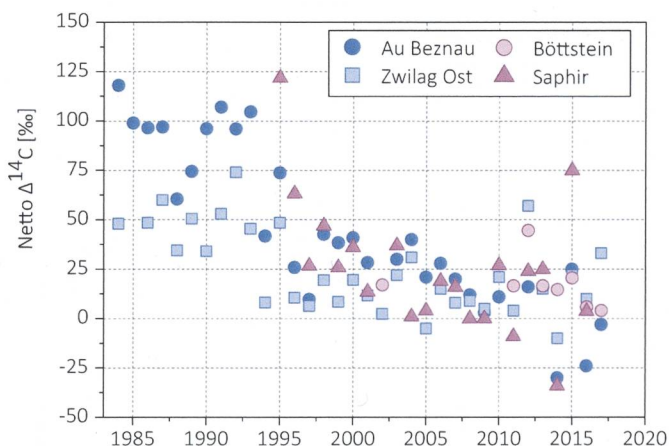
Die zu diesen Standorten gehörenden  $^{14}\text{C}$ -Messungen in den Blattproben wurden am Paul Scherrer Institut (PSI) bzw. im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) des Departements für Chemie und Biochemie der Universität Bern durchgeführt. Die Messungen der Standorte Eien, Althau, KKB Ost, Böttstein, Flue, Schloss, Böttenberg erfolgten am LARA, die restlichen Messungen am PSI.

Das Kernkraftwerk Beznau (KKB) war 2017 nur mit reduzierter Leistung im Einsatz: der seit 2015 ausser Betrieb befindliche Block 1 wurde auch im Jahr 2017 nicht wieder hochgefahren, Block 2 wurde Anfang August für Reparaturzwecke einige Tage lang abgeschaltet und vom 18.08.2017 bis zum 24.09.2017 im Rahmen der ordentlichen Revision erneut



Figur 10:

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerkes Beznau (KKB) im Jahr 2017 (J. Eikenberg, M. Heule, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Revisionsabschaltung KKB II: 18.08.2017 bis 24.09.2017. Probenahme: 26.09.2017. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 11:

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (■▲) und westlich (●○) des PSI/ZWILAG sowie des Kernkraftwerkes Beznau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 8. Messungen bis 2016: KUP (Standort Böttstein) und PSI. Messungen ab 2017: LARA (Standort Böttstein) und PSI.



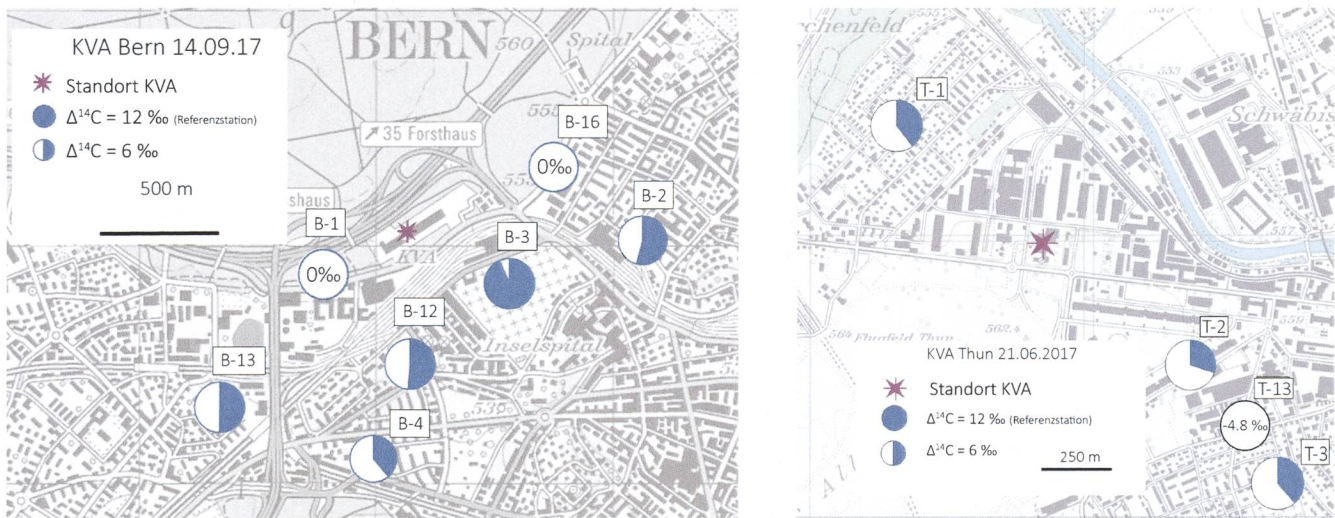
heruntergefahren. Dies spiegelt sich in den relativ geringen Erhöhungen der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte im Umfeld des KKB wider. Die höchsten Werte wurden am Ufer der Aare gegenüber dem KKB-Gelände sowie in nordöstlicher Richtung am Standort Wasserkraftwerk gemessen. Der höchste Messwert aus dem Umfeld des Paul Scherrer Instituts stammt vom Standort Zwilag Ost.

In Figur 11 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden. Alle hier dargestellten Messungen ausser dem Standort Böttstein (Symbol  $\odot$ ) erfolgten durch das PSI.

### Kehrichtverbrennungsanlagen

In Blättern von Bäumen, die im Umfeld von Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA) gesammelt wurden, konnte an keinem Standort eine erhöhte  $^{14}\text{C}$ -Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Messpunkte wiesen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte  $\leq 12\text{‰}$  auf. Dies als Folge der Abgase aus fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen im Stadtgebiet aufgenommen werden.

In Figur 12 sind die Messwerte als Kreise dargestellt. Die weisse Kreisfläche entspricht jeweils der Absenkung gegenüber den Referenzstationen (siehe «Suess»-Effekt, weiter oben). Diese Absenkung ist vor allem an einer belebten Strassenkreuzung in Thun (Standort T-13) sowie in Bern in Autobahnnähe (an den Standorten B-1 und B-16) besonders ausgeprägt und beträgt in Thun zum Teil mehr als 12%. Dies bedeutet, dass die  $^{14}\text{C}$ -Konzentration in diesen städtischen Umgebungen wieder auf ähnliche Werte wie vor dem so genannten Bomben-Peak abgefallen ist. An verkehrsarmen Standorten wie im Zentrum des Berner Bremgartenfriedhofs (B-3) ist die Absenkung deutlich schwächer ausgeprägt.



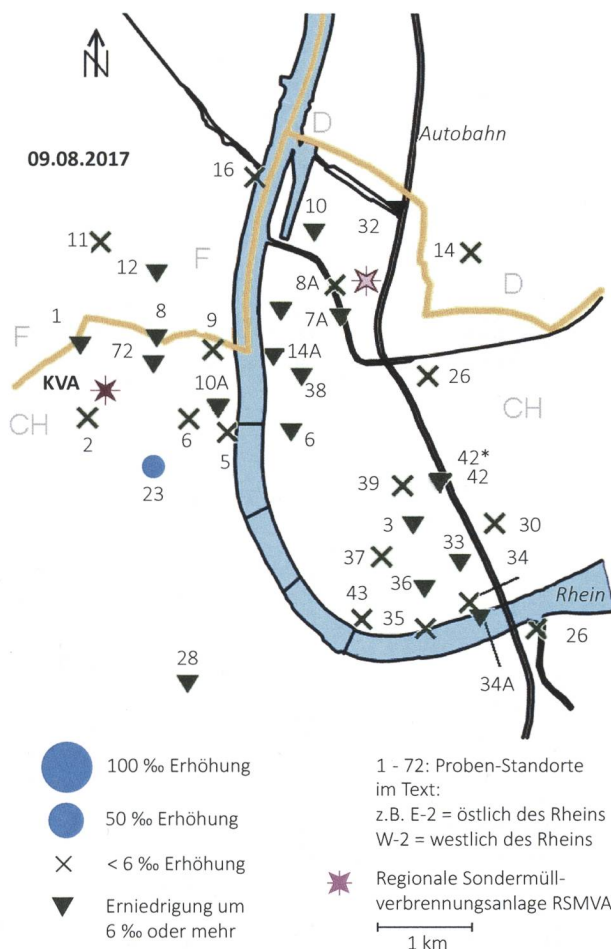
Figur 12 :  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in der Umgebung der KVA Bern und Thun.

### Messungen in der Region Basel-Stadt

Auch im Jahr 2017 fand die Hauptprobenahme in Basel im August statt. Im Westen des Stadtgebiets befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten diejenigen um das Areal der Firma F. Hoffmann-La Roche, ganz im Norden diejenigen um das Areal der regionalen Sondermüllverbrennungsanlage (RSMVA). Die höchsten am 09.08.2017 gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betragen westlich des Rheins  $+12\text{‰}$  (Gasstrasse, Standort W-23) und östlich  $+2\text{‰}$  (Tierpark, Standort E-26). Allfällige Erhöhungen der  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration werden also durch den «Suess»-Effekt in den meisten Fällen mehr als kompensiert, sodass an praktisch allen Standorten eine Verdünnung der  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt wurde.

Auch im französischen und deutschen Grenzgebiet nördlich des Novartis-Werks St. Johann bzw. östlich der RSMVA wurden keine Erhöhungen registriert. An 19 Standorten wurden aufgrund des «Suess»-Effekts Erniedrigungen um 6‰ oder mehr ermittelt (Figur 13, Symbol  $\blacktriangledown$ ).





Figur 13: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Kohlenwasserstoffe, die sich bei der Blattverkohlung möglicherweise verflüchtigen würden, werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewandt, wo in der Vergangenheit Höchstwerte aufgetreten sind oder Interesse an der Fortsetzung der bisherigen Zeitreihen besteht (siehe Tabelle 2).

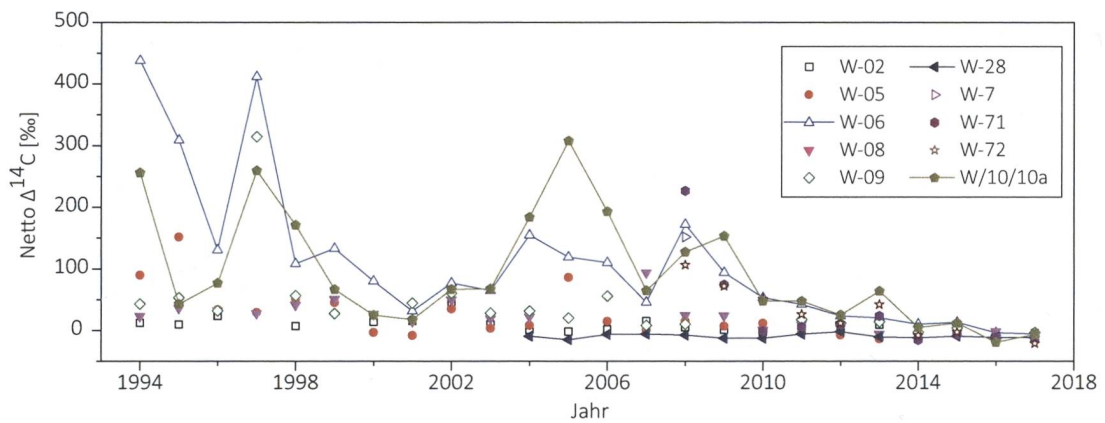
Die Figuren 14 und 15 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich auf einem sehr niedrigen Niveau stabilisiert. Der Rückgang gegenüber früheren Jahren ist darauf zurückzuführen, dass Novartis die  $^{14}\text{C}$ -Synthese in den letzten Jahren zunehmend ausgelagert hat. Im Falle der F. Hoffmann-La Roche AG ist der Rückgang mit durchschnittlich deutlich geringeren Anfangsaktivitäten bei den Synthesen zu erklären. Westlich des Rheins wurden die historischen Netto-Höchstwerte (Standorte W-06 und W-10) bereits seit einigen Jahren nicht mehr erreicht. Dasselbe gilt für die Standorte E-34 und E-36 östlich des Rheins: Hier wurde der 2002 gemessene Höchstwert von 320‰ (E-36) in den letzten Jahren jeweils deutlich unterschritten.

Tabelle 2:

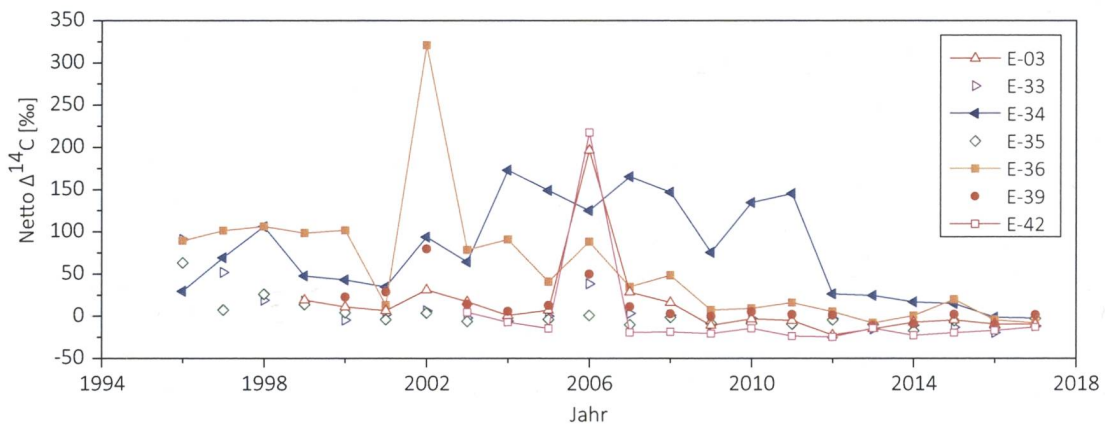
Im Jahre 2017 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 bis 2016) am Standort Basel östlich (E-nn) und westlich (W-nn) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42\*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von  $^{14}\text{C}$ -Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	2017 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2016 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2017 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2016 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]
E-03	-9	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	2	169 (1996)	-	-
E-34	1	106 (1998)	-2	173 (2004)
E-42	-17	4 (2003)	-	-
E-42*	-7	218 (2006)	-	-
W-06	-4	438 (1994)	3	172 (2008)
W-10A	-5	259 (1997)	-2	308 (2005)
W-28	-8	-6 (2007)	-9	-13 (2013)
W-71	-13	227 (2008)	-13	75 (2009)
W-72	-21	107 (2008)	-15	115 (2010)





Figur 14: Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Am Standort W-28 wird die von  $^{14}\text{C}$  unbelastete Stadtluft gemessen. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.



Figur 15: Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.

## Edelgas-Radionuklide

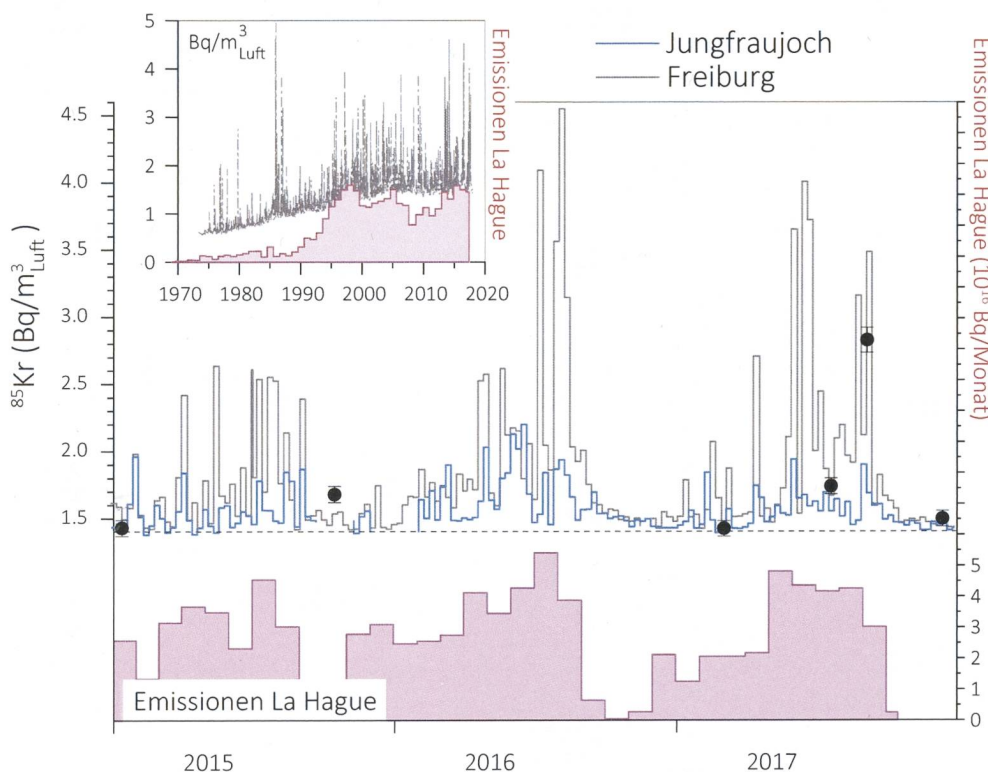
Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ ) und Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ ) werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert.  $^{85}\text{Kr}$ , freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10,76 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von  $^{85}\text{Kr}$  auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

### Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )

Das radioaktive Edelgasisotop  $^{85}\text{Kr}$  ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von  $10,76 \pm 0,02$  Jahren. Natürliches atmosphärisches  $^{85}\text{Kr}$  hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch  $^{84}\text{Kr}$  in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Inventar von etwa  $9 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$  oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von  $\sim 0,2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$ . Im Gegensatz dazu stammt das derzeitige  $^{85}\text{Kr}$  in der Atmosphäre hauptsächlich aus der Wiederaufarbeitung von Brennstäben und wird lokal und zeitlich gepulst freigesetzt. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Figur 16). Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6,2% ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von  $^{85}\text{Kr}$  übertroffen, was zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 16, kleines Bild). In der letzten De-

kade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von 1.4- 1.5 Bq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub> in Mitteleuropa zu beobachten. <sup>85</sup>Kr wird an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfrauoch gesammelt und im Edelgaslabor des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg im Breisgau analysiert werden [4] (Fig. 16). Zum Vergleich sind auch die entsprechenden Werte von Freiburg im Breisgau dargestellt. Die Zeitperioden von gehäuften Aktivitätsspitzen, die den Basiswert bei der Station Freiburg um bis zu einem Faktor 3 übersteigen, stimmen bei beiden Stationen überein mit Zeiten erhöhter Emissionsraten von La Hague [5]. Wegen der erhöhten Lage der Station Jungfrauoch wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf. Im Sommer 2017 war die Aufarbeitungsaktivität von La Hague hoch, was sich sehr deutlich an den Messwerten von Freiburg, aber auch vom Jungfrauoch widerspiegelt. In der Berichtsperiode 2017 wurde eine maximale Aktivitätskonzentration von 4 Bq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub> in Freiburg gemessen (Sammelzeitraum: 12.06.2017 bis 19.06.2017). Nach dem Emissionsstopp im Herbst konvergierten die Messwerte jeweils wieder gegen den Basiswert. Die durch den <sup>85</sup>Kr-Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca. 11 nSv/Jahr (8·10<sup>-9</sup> Sv/Bq m<sup>-3</sup> Jahr [6]) und ist damit gering in Relation zum Grenzwert für die Strahlenexposition einer Person aus der Bevölkerung durch künstliche Radioaktivität von 1'000 µSv/a.

Stichproben, genommen in wenigen Minuten und gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern, bestätigen den Aktivitätsbereich, der in Freiburg oder auf dem Jungfrauoch beobachtet wird. So wurde etwa eine Aktivitätswolke, die Anfangs September in Freiburg und auf dem Jungfrauoch nachgewiesen wurde, auch in der Messung in Bern sichtbar. Auch der Basiswerte von 1.4 Bq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub> stimmt für die Stationen Freiburg, Jungfrauoch und Bern überein.



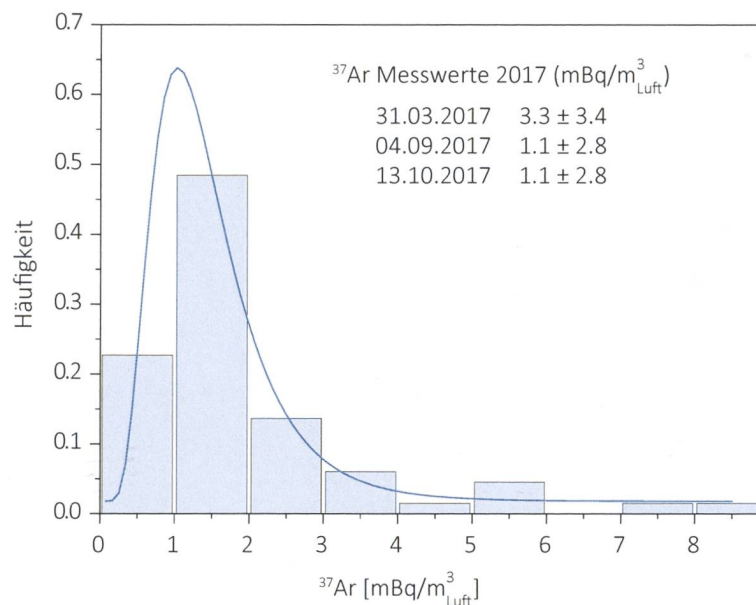
Figur 16:

Atmosphärische <sup>85</sup>Kr Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfrauoch (3500 m. ü. M.), Freiburg i. Br. (276 m. ü. M.) sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Uni Bern) über die letzten drei Jahre. Die Messungen der Proben von den beiden Stationen in Freiburg i. Br. und vom Jungfrauoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg i. Br. durchgeführt. Kleines Bild: Langzeitmessreihe der <sup>85</sup>Kr-Aktivitätskonzentration an der Station Freiburg i. Br. gemessen am BfS. Zum Vergleich ist auch der Verlauf der Emissionsraten der Aufbereitungsanlage von La Hague dargestellt (rote Balken in Einheiten von 10<sup>15</sup> Bq) [5]. Seit November 2017 stehen die Emissionsdaten von La Hague öffentlich nicht mehr zur Verfügung und fehlen daher in der Grafik.



### Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ )

$^{37}\text{Ar}$  wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion  $^{40}\text{Ar}(n,4n)^{37}\text{Ar}$  produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposphärischen Gleichgewichtsaktivität liegen bei ca.  $0.5 - 2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ , in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 7 Jahre am häufigsten gemessenen Werten (Fig. 17). Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Die drei im Jahr 2017 gemessenen Werte sind konsistent mit der langjährigen statistischen Verteilung (Fig. 17). Der leicht erhöhte Wert vom 31. März 2017 ist möglicherweise durch Emissionen vom Kraftwerk Mühleberg oder vom Zyklotron-Teilchenbeschleuniger am Berner Inselspital beeinflusst. Werte unter  $10 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$  können aber auch natürlichen Ursprungs sein. Im Vergleich zu  $^{85}\text{Kr}$  sind die Aktivitätskonzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  nochmals um einen Faktor 1'000 geringer und führen deshalb zu keiner zusätzlichen Strahlenbelastung.



Figur 17:

Atmosphärische  $^{37}\text{Ar}$ -Aktivitätskonzentrationen gemessen an 70 Luftproben, die über die letzten 7 Jahre in Bern gesammelt wurden. Die natürliche Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre liegt bei  $1 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ . Dies ist auch der am häufigsten gemessene Wert. Leicht erhöhte Werte von bis zu  $10 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$  können durch Beiträge von Boden- oder Stratosphärenluft verursacht sein. Auch Kernkraftwerke sind potenzielle Emittenten von  $^{37}\text{Ar}$ .

### Referenzen

- [1] <https://www.ensi.ch/de/2018/01/18/die-betreiber-haben-2017-die-kernanlagen-in-der-schweiz-sicher-betrieben>, besucht am 15. Februar 2018
- [2] <https://www.ensi.ch/de/2017/12/21/reaktorschnellabschaltung-im-kernkraftwerk-leibstadt>, besucht am 15. Februar 2018
- [3] Loosli/Oeschger [RADIOCARBON, VOL 31, No. 3, 1989, p. 747]
- [4] Schlosser, C., A. Bollhöfer, S. Schmid, R. Kraus, J. Bieringer, M. Konrad 2017, Analysis of radioxenon and Krypton-85 at the BfS Noble Gas Laboratory, Applied Radiation and Isotopes 126, 16-19. doi: 10.1016/j.apradiso.2016.12.043
- [5] <http://www.aveva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-aveva-la-hague-plant.htm> (bis Oktober 2017)
- [6] ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.). Table C.1., p. 61



# 7.2

## Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

**P. Froidevaux, P.-A. Pittet, F. Barraud, F. Bochud**

Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

### Résumé

Nous avons mesuré le Pu et l'Am dans des échantillons de sol, de sédiments, de filtres à air, de poissons, de plantes aquatiques, d'eau de surface et d'eau souterraine. Les résultats sont compatibles avec une contamination provenant essentiellement des retombées des essais nucléaires des années soixante. Ce dépôt est bien fixé dans le sol, comme en attestent les mesures des filtres à air, qui montrent des activités très faibles. Pour la première fois, le  $^{244}\text{Cm}$  a été mesuré au-dessus de la limite de détection dans des filtres à air de grand volume. Les mesures des plantes aquatiques prélevées dans les rivières en aval des centrales nucléaires montrent que l'activité présente dans les plantes est probablement liée au dépôt de carbonate de Ca ou de particules de sédiments enrichis en Pu sur les feuilles. Les poissons ne présentent pas d'activité en Pu et Am mesurable au-dessus de la limite de détection de la méthode, l'exception d'un seul échantillon, positif à  $^{241}\text{Am}$  (5.4 mBq/kg ms). Les activités en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépassent pas 5.5 mBq/m<sup>3</sup>, soit des valeurs très proches de celles mesurées les années précédentes et récemment par AMS dans deux rivières du karst jurassien, non impactées par les rejets des centrales nucléaires. Dans ce rapport, nous analysons aussi les résultats des milieux aquatiques en regard de nos travaux récents sur la biodisponibilité du plutonium dans les milieux aquatiques telle que déterminée par la technique de diffusion dans des films minces (DGT).

### Introduction

Le plutonium et l'américium sont deux radioéléments artificiels dont l'origine dans l'environnement remonte aux essais d'armes nucléaires en atmosphère durant les années soixante, à différents accidents nucléaires (Windscale, Tchernobyl, Mayak) ainsi qu'à des émissions (notamment dans l'eau) autorisées. Ces deux radioéléments représentent un risque radiologique s'ils sont incorporés dans l'organisme via la chaîne alimentaire.

Le plutonium possède une chimie d'oxydoréduction complexe et existe sous des formes physico-chimiques variées dans l'environnement. En conséquence, déterminer son comportement géochimique (dont sa mobilité) et sa biodisponibilité représente un véritable défi. Pu peut être présent simultanément dans ses formes réduites (+III et +IV) et oxydées (+V et +VI), bien que les formes Pu(IV) et Pu(V) sont les plus représentées. Pu(IV) est fortement hydrolysé en Pu(OH)<sub>4</sub> insoluble mais peut être remobilisé lors de l'oxydation en Pu(V), une forme de Pu moins sensible à l'hydrolyse et à l'adsorption sur des particules colloïdales. Pu peut également former des complexes avec la matière organique (NOM) dissoute dans l'eau, ce qui va jouer un rôle important dans sa biodisponibilité.



Depuis 15 ans, la technique de diffusion dans des films minces (DGT) est utilisée pour mesurer la fraction libre et la fraction labile des complexes de métaux lourds avec la matière organique (NOM) dans les milieux aquatiques. Les modèles montrent que la technique DGT permet la mesure intégrée sur le temps de la fraction bio-disponible de ces cations métalliques. Le principe de la technique DGT consiste à exposer dans l'eau un système comprenant un gel-résine capable de fixer les ions métalliques qui auront pu diffuser à travers un gel de polyacrylamide (APA) contenant plus de 80% d'eau. Cet assemblage imite l'interface entre l'eau et un système vivant, comme les plantes ou des organismes simples. Nous avons récemment adapté cette technique pour la mesure de la biodisponibilité du plutonium dans les systèmes aquatiques d'eau douce [1-4].

L'américium possède une chimie en tous points similaires à celle des lanthanides et le meilleur analogue stable pour l'Am(III) est l'Eu(III). De ce point de vue Am est également facilement hydrolysable mais ne possède qu'un degré d'oxydation stable (+III). Comme les Ln(III), il forme des complexes forts avec des ligands comme EDTA ou des ligands naturels comme les acides carboxyliques ou le citrate.

Dans ce travail, nous avons déterminé l'activité en Pu et Am de différents compartiments de l'environnement représentés par le sol, les sédiments de rivières, l'air, l'eau souterraine et l'eau de rivière ainsi que les plantes aquatiques et les poissons. Les sites de prélèvements sont principalement les environs des centrales nucléaires suisses et plus particulièrement les rivières dans lesquelles elles rejettent leurs effluents liquides. La compréhension des mécanismes de mobilité et de biodisponibilité du Pu et de l'Am est donc un prérequis indispensable à l'interprétation de ces données. Pour cela nous avons analysé les résultats de ce travail en fonction de résultats obtenus récemment sur la biodisponibilité du Pu dans les systèmes aquatiques telle que mesurée par DGT à l'aide de la spectrométrie de masse par accélération (AMS) adaptée aux actinides, grâce à une collaboration fructueuse avec le laboratoire de physique des faisceaux d'ions de l'ETHZ [4].

### Méthodes

Les méthodes d'analyses du plutonium et de l'américium dans les différents compartiments de l'environnement sont décrites en détail dans la référence [5].

## Résultats et discussion

Le tableau 1 présente les résultats obtenus dans la mesure des sols échantillonnés sur l'ensemble du territoire suisse, avec une focalisation sur les sites aux environs des centrales nucléaires suisses. En vue du démantèlement de la centrale nucléaire de Mühleberg, 7 sites spécifiques autour de la centrale ont été échantillonnés et analysés indépendamment. En plaine, les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  ne dépassent pas 300 mBq/kg de sol sec. Cette activité peut monter jusqu'à 750 mBq/kg dans les alpages d'altitude (ex. Mürren). La mesure du rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et du rapport isotopique  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  permet de déterminer l'origine de la contamination par comparaison avec les mêmes rapports des retombées des essais nucléaires des années soixante. Ces rapports doivent être proches de 0.03 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et de 0.4 pour  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  si on attribue la contamination aux retombées radioactives des essais nucléaires. Le combustible irradié d'une centrale nucléaire montre en général des rapports  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  supérieurs à 1. Dans ce travail, nous avons augmenté la quantité de sol mesurée de 25 à 50 g afin d'être en mesure de déterminer  $^{238}\text{Pu}$  au-dessus de la limite de détection pour chaque prélèvement. Les résultats montrent un rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  de  $0.027 \pm 0.005$  (n=21) et un rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  de  $0.37 \pm 0.06$  (n=23). Ces mesures confirment que toutes les activités des sols mesurées ont pour origine les retombées des essais nucléaires des années soixante.

Les activités des filtres à air, autant aux abords des centrales nucléaires que des sites de référence (Posieux et Liebefeld), sont inférieures à 1.7 nBq/m<sup>3</sup> pour le  $^{239+240}\text{Pu}$  et à peine supérieures à 0.8 nBq/m<sup>3</sup> pour  $^{241}\text{Am}$  (Tableau 2). Ces activités sont très comparables à celles mesurées en 2016 (max 1.4 nBq/m<sup>3</sup>). Malgré ces faibles activités, les méthodes utilisées permettent une détermination assez précise de ces valeurs (incertitudes <50%). On constate également que la mesure de  $^{238}\text{Pu}$  n'est réalisable au-dessus de la limite de détection que lorsque les volumes d'air analysés sont d'au moins 5 millions de m<sup>3</sup>.

Lors de la mesure de l'américium dans les filtres à air du plan OFSP 2017, des traces de  $^{244}\text{Cm}$ , dont la chimie est très similaire à celle de l'américium, ont été mises en évidence dans 4 des 6 filtres à air analysés (Figure 1). Les filtres à air impliqués sont tous issus de collecteurs à haut débit dont le volume annuel de



Tableau 1:

Activités (Bq/kg de matière sèche MS) en plutonium et américium dans les échantillons de sol (0 - 5 cm) collectés sur le territoire suisse en 2017 (incertitudes à 95%).

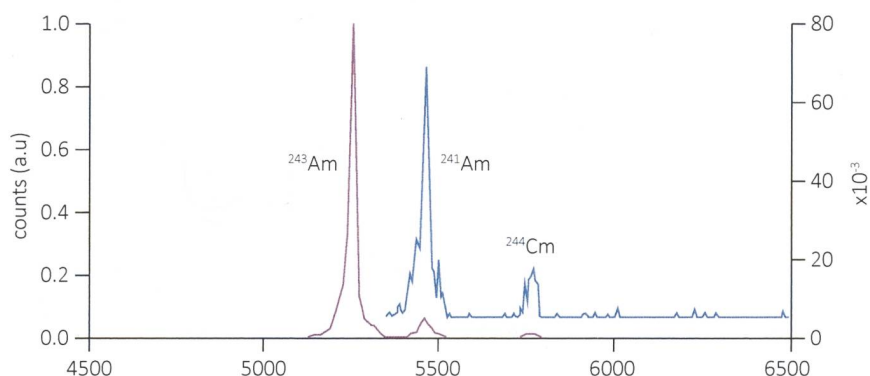
Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg MS	$^{238}\text{Pu}$ Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}$ Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}/$ $^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/$ $^{239+240}\text{Pu}$
Arenenberg	0.172 ± 0.012	0.0030 ± 0.0002	0.054 ± 0.006	0.31 ± 0.04	0.017 ± 0.001
Beznau	0.181 ± 0.019	< 0.004	0.076 ± 0.010	0.42 ± 0.07	< LD
Cadenazzo	0.162 ± 0.011	0.0054 ± 0.0002	0.044 ± 0.006	0.27 ± 0.04	0.034 ± 0.003
CERN (Meyrin)	0.092 ± 0.009	< 0.003	0.026 ± 0.004	0.28 ± 0.05	< LD
Gösgen (Däniken)	0.270 ± 0.013	0.0069 ± 0.0002	0.115 ± 0.011	0.43 ± 0.04	0.026 ± 0.002
Güttingen	0.175 ± 0.010	0.0054 ± 0.0015	0.049 ± 0.006	0.28 ± 0.04	0.031 ± 0.009
Leibstadt	0.198 ± 0.012	0.0057 ± 0.0016	0.077 ± 0.009	0.39 ± 0.05	0.029 ± 0.009
Mühleberg, Rewag	0.194 ± 0.012	0.0044 ± 0.0015	0.079 ± 0.007	0.41 ± 0.05	0.023 ± 0.008
Mühleberg, Salvisberg	0.206 ± 0.013	0.0054 ± 0.0017	0.085 ± 0.007	0.41 ± 0.04	0.026 ± 0.009
Mühleberg, Ufem Horn	0.176 ± 0.012	0.0034 ± 0.0013	0.071 ± 0.007	0.40 ± 0.05	0.019 ± 0.008
Mühleberg, Niederruntigen	0.046 ± 0.005	< 0.0012	0.015 ± 0.003	0.34 ± 0.07	< LD
Mühleberg, Oberruntigen	0.305 ± 0.016	0.0069 ± 0.0019	0.092 ± 0.011	0.30 ± 0.04	0.023 ± 0.006
Mühleberg, Fuchsenried	0.181 ± 0.011 0.174 ± 0.021	0.0048 ± 0.0002 0.0054 ± 0.0028	0.069 ± 0.006	0.39 ± 0.06	0.027 ± 0.002 0.031 ± 0.017
Mühleberg, KKW	0.152 ± 0.009	0.0043 ± 0.0002	0.064 ± 0.006	0.42 ± 0.05	0.028 ± 0.002
Posieux	0.163 ± 0.010	0.0028 ± 0.0002	0.061 ± 0.006	0.37 ± 0.05	0.018 ± 0.001
Villigen (PSI)	0.142 ± 0.010	0.0043 ± 0.0014	0.064 ± 0.008	0.45 ± 0.06	0.031 ± 0.010
Würenlingen (ZWILAG)	0.158 ± 0.010	0.0039 ± 0.0001	0.051 ± 0.007	0.32 ± 0.05	0.025 ± 0.002
Caslano	0.084 ± 0.007 0.150 ± 0.012	< 0.003 0.0043 ± 0.0002	0.067 ± 0.007	0.44 ± 0.06	< LD 0.029 ± 0.003
Stabio	0.351 ± 0.017	0.0118 ± 0.0042	0.115 ± 0.010	0.33 ± 0.03	0.034 ± 0.002
Gimmelwald	0.526 ± 0.031	0.0141 ± 0.0007	0.144 ± 0.011	0.27 ± 0.03	0.027 ± 0.002
Mürren	0.745 ± 0.037	0.0206 ± 0.0008	0.300 ± 0.022	0.40 ± 0.04	0.028 ± 0.002
Fahrni	0.502 ± 0.026	0.0134 ± 0.0028	0.180 ± 0.015	0.36 ± 0.04	0.027 ± 0.006
Diesse	0.417 ± 0.0029	0.0125 ± 0.0034	0.179 ± 0.012	0.43 ± 0.04	0.030 ± 0.008
			moyenne	0.37 ± 0.06 (n=23)	0.027 ± 0.005 (n=21)

Le pompage est d'environ 10 fois supérieur à celui des filtres à faible débit. Nous avons alors procédé à l'analyse de filtres à air à haut débit ne figurant pas dans le plan annuel de mesure (CERN, Güttingen et Cadenazzo), afin de confirmer ou d'infirmer la présence de  $^{244}\text{Cm}$ . Les filtres à air de Cadenazzo ont été analysés en premier car une contamination en  $^{106}\text{Ru}$  y avait été observée en automne par l'OFSP. Cette contamination en  $^{106}\text{Ru}$  avait été confirmée au niveau européen et la source semblait être située en Russie. Les résultats des mesures montrent que seuls les filtres à air de Klingnau, Posieux et Liebefeld ont montré la présence de  $^{244}\text{Cm}$ . Ce radioélément est issu de la fission nucléaire et est présent dans les barres de combustible irradié. Il est associé chimiquement à l'américium. Toutefois les activités mesurées sont négligeables (< 0.1 nBq/m<sup>3</sup>) et la mise en évidence de ce radioélément au-dessus de la limite de détection a nécessité de pomper plus de 3.5 millions de m<sup>3</sup> d'air.

L'activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  du site de Cadenazzo est environ deux fois plus élevée que celle des autres sites de Suisse, et ceci pour les deux semestres analysés. Sans apport d'activité par une contamination atmosphérique additionnelle, les activités en Pu et Am des filtres à air sont dues à la resuspension de particules de sol. Le dépôt de radioactivité lié aux essais nucléaires des années soixante étant plus élevé au Tessin qu'ailleurs en Suisse, il est normal d'observer une activité supérieure dans les filtres à air du Tessin. Pour tous les filtres, le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  moyen est de  $0.50 \pm 0.12$  (n=12), ce qui confirme que l'analyse des filtres à air correspond à l'analyse de particules de sol par resuspension, celui-ci étant proche de 0.4 pour les sols (Tableau 1). Si on ne tient compte que des filtres dans lesquels le  $^{244}\text{Cm}$  a été identifié, auquel on ajoute l'échantillon de Mühleberg, on constate que le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  est plus élevé ( $0.61 \pm 0.10$ , n=5), ce qui



semblerait indiquer une présence accrue d' $^{241}\text{Am}$  dans les filtres contenant du  $^{244}\text{Cm}$ . Pour les échantillons restant, le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  est alors de  $0.43 \pm 0.05$  ( $n=7$ ), soit une valeur plus proche de celle déterminée sur les sols (Tableau 1). Cette analyse confirme que la présence de  $^{244}\text{Cm}$  est associée à celle de  $^{241}\text{Am}$ , toutefois l'amplitude des incertitudes de mesure ne permet pas d'être catégorique sur ces conclusions.



**Figure 1 :**  
Spectre alpha de la fraction américium mesuré à partir des filtres à air de Liebefeld du 1<sup>er</sup> semestre. La trace bleue représente un agrandissement des ROIs de  $^{241}\text{Am}$  et  $^{244}\text{Cm}$ . A noter que la surface sous le pic de  $^{241}\text{Am}$  ne représente pas l'activité nette, car il faut encore soustraire la contribution de l'impureté de  $^{241}\text{Am}$  dans le traceur  $^{243}\text{Am}$  (env. 0.2%) et de la contribution de  $^{241}\text{Am}$  dans le traceur  $^{242}\text{Pu}$  (env. 2.1%), issue de la décroissance de l'impureté de  $^{241}\text{Pu}$  présent dans le traceur  $^{242}\text{Pu}$ .

Les activités des eaux souterraines et de rivière sont présentées dans le tableau 3. L'activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  des eaux de surface n'a pas dépassé  $5.5 \text{ mBq/m}^3$  (Rhin). Elle est au maximum de  $2.1 \text{ mBq/m}^3$  pour les eaux souterraines (Aarberg). L'activité du  $^{238}\text{Pu}$  est restée inférieure à la limite de détection dans tous les cas. Le rapport moyen  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.52 \pm 0.08$  ( $n=5$ ), indiquant ici aussi que l'origine de la contamination vient des essais nucléaires des années soixante, bien que la chimie en solution de ces deux éléments ne soit pas identique et peut provoquer une séparation des éléments.

Dans les rivières des régions karstiques, Pu peut être présent sous forme de complexes carbonatés et de complexes associés à la matière organique dissoute.

A partir d'un pH neutre, l'hydrolyse est

aussi une réaction importante, produisant  $\text{Pu}(\text{OH})_4$  insoluble qui s'adsorbe fortement aux colloïdes organiques ou minéraux. Dans ce travail, la fraction analysée est la fraction filtrée à  $0.45 \mu\text{m}$  par une membrane de filtration lors du prélèvement. Cette fraction peut contenir des radioéléments associés à des colloïdes organiques ou minéraux ou encore des radioéléments sous forme de complexes de faible poids moléculaires. De la distribution de ces espèces dans l'eau va dépendre sa biodisponibilité pour les espèces aquatiques comme les plantes ou les poissons. Les résultats montrent également qu'il est nécessaire de prélever au moins 200 litres d'eau pour être en mesure de déterminer les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  avec une sensibilité suffisante.

**Tableau 2:**

Activités ( $\text{nBq/m}^3$ ) en Pu et Am des filtres à air de grands volumes collectés en 2017 en Suisse. Les filtres hebdomadaires sont rassemblés pour former un échantillon annuel pour les mesures de plutonium et d'américium, ou dans certains cas, un échantillon semestriel (incertitudes à 95%).

Lieu	Volume $\text{m}^3$	$^{239+240}\text{Pu}$ $\text{nBq/m}^3$	$^{238}\text{Pu}$ $\text{nBq/m}^3$	$^{241}\text{Am}$ $\text{nBq/m}^3$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{244}\text{Cm}$ $\text{nBq/m}^3$
Leibstadt	381'250	$1.12 \pm 0.56$	< 1.00	$0.37 \pm 0.17$	$0.34 \pm 0.23$	< 0.30
Mühleberg	359'580	$0.85 \pm 0.25$	< 0.40	$0.55 \pm 0.19$	$0.65 \pm 0.29$	< 0.50
Klingnau	5'307'404	$0.45 \pm 0.05$	$0.033 \pm 0.014$	$0.28 \pm 0.04$	$0.63 \pm 0.12$	$0.043 \pm 0.017$
Posieux	4'805'737	$1.72 \pm 0.13$	$0.046 \pm 0.002$	$0.81 \pm 0.10$	$0.47 \pm 0.07$	$0.093 \pm 0.005$
Liebefeld, semestre 1	3'725'803	$0.48 \pm 0.07$	< 0.06	$0.35 \pm 0.05$	$0.74 \pm 0.15$	$0.094 \pm 0.025$
Liebefeld, semestre 2	3'900'423	$1.10 \pm 0.11$	< 0.06	$0.60 \pm 0.09$	$0.55 \pm 0.10$	$0.091 \pm 0.004$
Cadenazzo, semestre 1	2'527'931	$3.02 \pm 0.28$	< 0.10	$1.32 \pm 0.13$	$0.44 \pm 0.06$	< 0.07
Cadenazzo, semestre 2	2'144'196	$3.59 \pm 0.50$	< 0.30	$1.56 \pm 0.14$	$0.44 \pm 0.07$	< 0.08
CERN, semestre 1	3'071'017	$1.06 \pm 0.11$	< 0.06	$0.49 \pm 0.07$	$0.46 \pm 0.08$	< 0.06
CERN, semestre 2	2'211'621	$1.24 \pm 0.13$	< 0.08	$0.58 \pm 0.10$	$0.47 \pm 0.10$	< 0.11
Güttingen, semestre 1	2'267'171	$1.07 \pm 0.16$	< 0.14	$0.51 \pm 0.07$	$0.47 \pm 0.10$	< 0.07
Güttingen, semestre 2	1'713'482	$1.09 \pm 0.16$	< 0.14	$0.42 \pm 0.08$	$0.38 \pm 0.09$	< 0.09
<b>moyenne</b>					<b><math>0.50 \pm 0.12</math></b> <b>(n=12)</b>	



Tableau 3:

Activités (mBq/m<sup>3</sup>) en plutonium et américium des eaux collectées en Suisse en 2017 (incertitudes à 95% / LD=0.1 mBq/m<sup>3</sup>).

Type	Lieu	Volume [l]	<sup>239+240</sup> Pu mBq/m <sup>3</sup>	<sup>238</sup> Pu mBq/m <sup>3</sup>	<sup>241</sup> Am mBq/m <sup>3</sup>	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu
Eau de pluie	Rhône, Chancy, 30.09.2016-29.09.2017	227	1.4 ± 0.4	< 0.7	0.73 ± 0.24	0.65 ± 0.28
	Aar (Hagneck), juillet	230	2.7 ± 0.7	< 0.9	1.2 ± 0.4	0.44 ± 0.17
	Aar (Klingnau), juin	80	3.7 ± 1.4	< 3	1.8 ± 0.7	0.49 ± 0.28
	Rhin (Pratteln), mars	120	5.5 ± 1.7	< 3	2.6 ± 0.7	0.47 ± 0.19
Eau souterraine	Aarberg, 17.08.2017	105	2.1 ± 0.9	< 2	1.2 ± 0.5	0.54 ± 0.31
	Döttingen, 17.08.2017	105	< 2	< 2	3.2 ± 0.9	< LD
	Pratteln, 17.08.2017	110	< 2	< 2	< 1.4	< LD
Eau de rivière (ref. 4)	Venoge Filtrée 0.45 µm C <sub>DGT</sub>		0.43 - 3.4 1.5			
	Noiraigue Filtrée 0.45 µm C <sub>DGT</sub>		0.39 - 3.4 1.3			

Tableau 4:

Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2017 en aval des centrales nucléaires suisses (incertitudes à 95%, LD= 1 mBq/kg).

Type	Lieu	MS [g]	<sup>239+240</sup> Pu mBq/kg MS	<sup>238</sup> Pu mBq/kg MS	<sup>241</sup> Am mBq/kg MS	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu
Plantes aquatiques	Aar (Hagneck), 12.10.17	64.4	54 ± 6	< 4	21 ± 4	0.39 ± 0.8
	Aar (Klingnau), 12.10.17	29.0	67 ± 9	< 7	24 ± 5	0.36 ± 0.08
	Rhin (Pratteln), 13.10.17	48.6	57 ± 8	< 6	32 ± 5	0.56 ± 0.12
Sédiments	Aar (Hagneck), août		41.3 ± 5.4	< 4	19.6 ± 3.2	0.48 ± 0.10
	Aar (Klingnau), mai		60.2 ± 6.4	< 4	32.0 ± 4.3	0.53 ± 0.09
	Rhin (Pratteln), mars		61.2 ± 7.0 71.5 ± 9.6	< 4 < 4	35.8 ± 6.8	0.50 ± 0.12
Poissons	Rhin (Dogern), 10.05.17	43.5	< 7	< 7	< 2	< LD
	Rhin (Leibstadt), 19.12.16	26.3	< 9	< 9	< 4	< LD
	Rhin (Leibstadt), 26.09.17	28.5	< 11	< 11	< 5	< LD
	Aar (Beznau), 02.08.17	48.7	< 10	< 10	5.4 ± 1.9	< LD
	Aar (Mühleberg), 16.08.17	44.3	< 10	< 10	< 3	< LD

Dans une étude récente des rivières du karst jurassien [3-4], nous avons montré que la concentration en plutonium mesurée par DGT, CDGT, était équivalente à la concentration en plutonium mesurée dans des échantillons filtrés à 0.45 µm dans la source minérale de la Venoge, indiquant que le plutonium était sous une forme libre ou très labile dans cet environnement. Ces mesures, réalisées par spectrométrie de masse par accélération (AMS) à l'ETHZ, ont donné des valeurs entre 0.43 et 3.4 mBq/m<sup>3</sup> dans les échantillons filtrés à 0.45 µm, pour une moyenne à 1.35 mBq/m<sup>3</sup> (n = 10). Ces activités dépendaient fortement du régime de la rivière. La concentration moyenne intégrée mesurée par DGT était de 1.5 mBq/m<sup>3</sup> (n = 8). C<sub>DGT</sub> représente donc une valeur moyenne plus réaliste que les valeurs mesurées ponctuellement, grâce à l'effet intégratif du prélèvement DGT (entre deux et trois semaines). Les mesures effectuées dans la fraction filtrée à 0.45 µm des eaux de la Noiraigue, qui contiennent jusqu'à 20 ppm de matière organique dissoute, donnent des résultats entre 0.39 et 3.4 mBq/m<sup>3</sup>, pour une moyenne à 2.1 mBq/m<sup>3</sup> (n = 4), soit des valeurs comparables à celles de la Venoge. Toutefois, les mesures DGT donnent une valeur moyenne C<sub>DGT</sub> de 1.3 mBq/l (n = 3), soit seulement 60% de la valeur moyenne des échantillons filtrés. Cette observation est à mettre en relation avec la présence de



matière organique, qui va former des complexes avec le Pu. Bien que labiles [3], ces complexes vont diffuser moins rapidement que les ions libres à travers le gel du système DGT, montrant ainsi une biodisponibilité moindre. D'une manière générale, les activités mesurées par AMS dans les eaux de la Venoge et de la Noiraigue sont très proches des activités mesurées par spectrométrie alpha dans ce travail (voir Tableau 3).

Les rivières étudiées dans ce travail sont toutes fortement carbonatées et on peut s'attendre à trouver Pu sous forme de complexes carbonatés, ou alors associés à la matière organique dans des complexes relativement labiles, comme dans les deux rivières étudiées ci-dessus. Dans ce cas de figure, le mécanisme d'absorption de Pu par les plantes aquatiques consiste en un dépôt de carbonate de Ca enrichi en Pu [4]. On constate en effet que les activités en Pu des plantes aquatiques, très similaires à celles mesurées l'année précédente, sont supérieures à celles des poissons. En ce qui concerne ces derniers, un seul échantillon a produit une activité en Américium mesurable, toutes restées inférieures à la limite de détection (Tableau 4). Le rapport moyen  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  pour les sédiments et les plantes aquatiques est de  $0.47 \pm 0.08$  (n=6). Bien que les chimies du plutonium et de l'américium en solution ne soient pas similaires et puissent produire une séparation de ces deux éléments, ce rapport proche de celui observé dans les sols indique que la contamination tire son origine des essais nucléaires des années soixante.

## Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible ( $< 0.75$  Bq/kg) de Pu et Am dans les sols de Suisse. Cette activité est bien fixée dans le sol et résulte des retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante. En conséquence, les activités en Pu et Am des filtres à air n'ont jamais dépassé  $1.7$  nBq/m<sup>3</sup>, mis à part pour le site de Cadenazzo, au Tessin, où la déposition moyenne d'activité due aux essais nucléaires est supérieure à la moyenne suisse. Le rapport isotopique moyen  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  des filtres à air est identique à celui des sols, dans les limites des incertitudes de mesures, ce qui confirme que l'origine de la contamination est liée aux essais nucléaires des années soixante et à la resuspension de particules de sol. En 2017, nous avons mis en évidence pour la première fois la présence de  $^{244}\text{Cm}$  dans certains filtres à air; pour cela toutefois, il est nécessaire de pomper au moins  $3.5$  millions de m<sup>3</sup> d'air. Ces activités, ainsi que celles de Pu et Am, sont toutefois négligeables en termes de santé publique.

Les activités des eaux de surface et les eaux souterraines sont similaires aux années précédentes et n'ont pas dépassé  $5.5$  mBq/m<sup>3</sup>. Pour ces mesures également, le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  indique les essais nucléaires des années soixante comme origine de la contamination.

Les mesures dans les sédiments en aval des centrales nucléaires n'ont pas montré de marquage propre aux rejets des centrales; l'activité provient également des retombées des essais nucléaires. Les plantes aquatiques montrent une activité en Pu compatible avec la présence de dépôt carbonaté enrichi en Pu sur la surface des feuilles et/ou avec le dépôt de particules de sédiments sur la surface des feuilles. Ces activités sont très similaires à celles déterminées durant cette dernière décennie sur ces mêmes échantillons.

Enfin, la technique DGT appliquée au plutonium dans une étude distincte de celle-ci apporte des avantages certains dans la mesure intégrée de l'activité lors du prélèvement, réalisé sur deux ou trois semaines, ainsi que des informations cruciales sur la spéciation du plutonium, notamment de son interaction avec la matière organique dissoute.

Dans l'ensemble, toutes ces mesures montrent qu'il est nécessaire actuellement de prélever des masses ou des volumes importants d'échantillons pour être en mesure de déterminer le plutonium et l'américium au-dessus des limites de détection de la spectrométrie alpha. Ce point est rassurant et montre que l'environnement en Suisse est relativement sain en ce qui concerne la dissémination de ces deux radioéléments fortement radiotoxiques.

## Remerciements

Nous remercions l'OFSP, les laboratoires cantonaux et l'EAWAG pour le prélèvement des échantillons.



### Références

- [1] Cusnir et al. A DGT Technique for Plutonium Bioavailability Measurements. *Environ. Sci. Technol.* 2014, 48, 10829–10834.
- [2] Cusnir et al. Speciation and Bioavailability Measurements of Environmental Plutonium Using Diffusion in Thin Films. *JoVE-J. Visual. Exp.* 2015, e-53188.
- [3] Cusnir et al. Probing the kinetic parameters of Pu-NOM interactions in freshwaters using the DGT technique. *Environ. Sci. Technol.* 2017, 103, 5103-5110.
- [4] Cusnir et al. Evidence of plutonium bioavailability in pristine freshwaters of a karst system of the Swiss Jura Mountains. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 2017, 206, 30-37.
- [5] Luisier et al. A new method for the determination of plutonium and americium using high pressure microwave digestion and alpha-spectrometry or ICP-SMS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 2009, 281,425-432.



