

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

**Herausgeber:** Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz

**Band:** - (2018)

**Rubrik:** Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

### **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. [Voir Informations légales.](#)

### **Terms of use**

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. [See Legal notice.](#)

**Download PDF:** 08.02.2025

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



2018



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, Bern

**S. Szidat**

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

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

Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, Freiburg im Breisgau

**M. Heule**

Paul Scherrer Institut, 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 (KVA Bern), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2018 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, Juni und Oktober 2018) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2018 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert  $10 \pm 3\%$ .

Die 96 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um  $-26\%$  (W-72, Basel Brenntag) bis maximal  $+94\%$  (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  $1 \mu\text{Sv}$  ( $1 \mu\text{Sv} = 10^{-6}$  Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von ca.  $4'000 \mu\text{Sv/a}$  fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr nicht ins Gewicht.

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. 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. 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  $^{14}\text{CO}_2$  in der Atmosphäre freigesetzt (so genannter Bomben-Peak). Zwar nimmt seitdem der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  durch Aufnahme von  $^{14}\text{CO}_2$  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 «Suess»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$  nachweisen. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration.

Radiocarbon-Quellen (KKW und Basel) und -Verdünnungen (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:

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

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- bzw. 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 2018 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Mai, Juni und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2018}} = 10 \pm 3 \text{ [‰]} \quad (3)$$

Die Differenz

$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2018}} \quad (4)$$

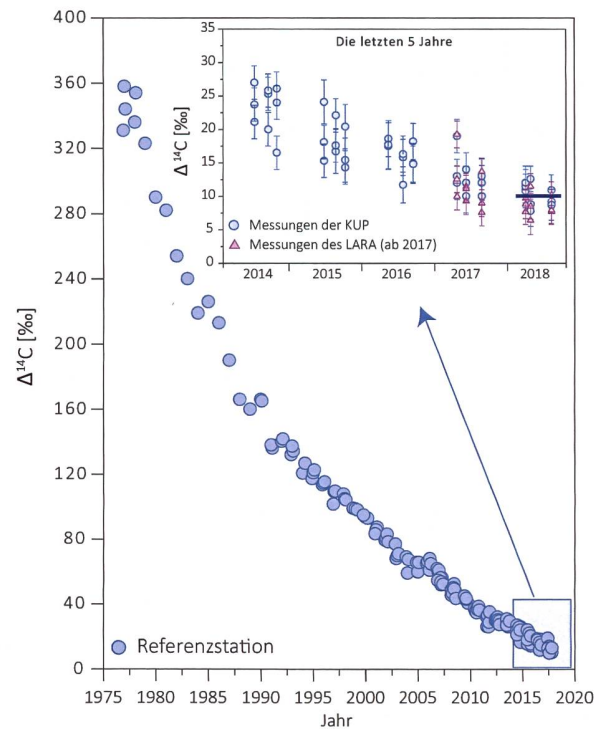
weist auf  $^{14}\text{C}$ -Quellen (Netto  $\Delta^{14}\text{C} > 0$ ) oder -Verdünnungen (Netto  $\Delta^{14}\text{C} < 0$ ) hin.

### 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 Blattkohle<sup>1</sup>
- *Methode B:*  $^{14}\text{C}$ -Bestimmung im ganzen Blatt

An den Referenzstationen ergaben Messungen an der Blattkohle (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.



**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.

<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.

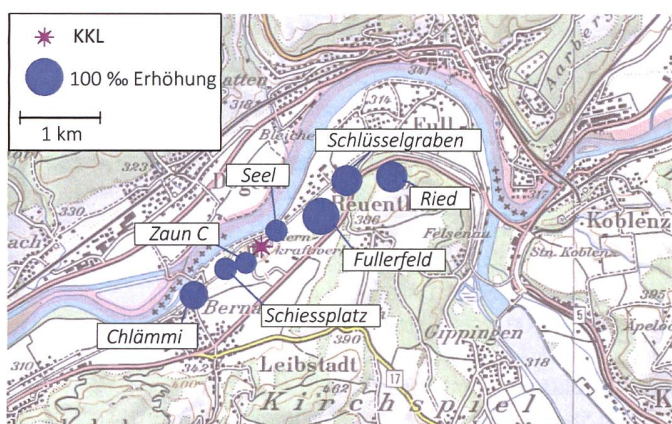
**Tabelle 1:**

Messwerte 2018 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen unter Verwendung von Methode A durch beide Labore

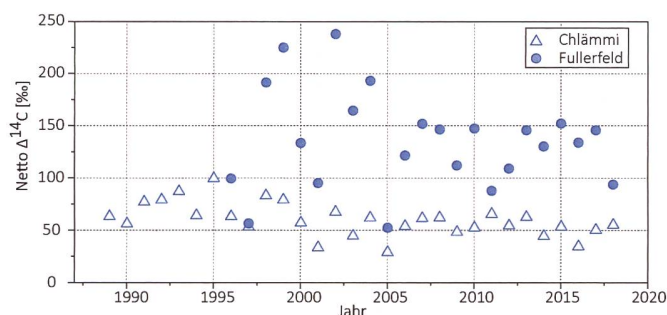
Ort	Labor	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
		Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	KUP	11	8	11	601'320 / 186'150	938	Rotbuchen im Wald
	LARA	8	9	8			
Belpberg	KUP	11	9	9	606'096 / 190'600	825	Rotbuchen auf Krete
	LARA	9	6	10			
Ballenbühl	KUP	12	12	9	612'550 / 192'800	852	2 Linden, freistehend
	LARA	10	12	8			

Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber potenziell genauere 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. Zur Ermittlung des Referenzwertes wurde von beiden Labors Methode A verwendet.



**Figur 2:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2018. Revisionsabschaltung: 17.09.2018 bis 13.10.2018. Probenahme: 17.10.2018. 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.

Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Blättern der Referenzstationen ist im Jahr 2018 gegenüber dem Vorjahr erneut abgefallen. Mit  $10 \pm 3\%$  (gerundeter Mittelwert aller in Tabelle 1 dargestellten Messergebnisse) liegt der Referenzwert um 2‰ unter dem Wert von 2017.

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

Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] wurden die Schweizer Kernkraftwerke im Jahr 2018 sicher betrieben. Es kam zu einer einzigen automatischen Schnellabschaltung, und zwar im Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) am 18. März 2018 aufgrund einer Frischdampfisolations im Rahmen eines monatlichen Pumpentests. Darüber hinaus wurde Beznau 1, das älteste KKW der Schweiz und eines der ältesten der Welt, im März 2018 nach einer dreijährigen Stillstandszeit und aufwändigen Untersuchungen am Reaktordruckbehälter wieder ans Netz genommen.

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 2018 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. 1000m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Fullerfeld (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Chlämmi die höchsten Werte auf.

Figur 3 zeigt die gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämmi seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2018 lag der höchste Messwert bei 94‰ (Fullerfeld). Der grösste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ (2002), ebenfalls am Standort Fullerfeld. In südwestlicher Richtung wurde 2018 am Standort Chlämmi mit 55‰ der höchste Wert gemessen.

### Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 4 sind die Resultate der am 27. Juni 2018 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 ca. 39‰ am Standort Schachen.

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 in der Regel in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer in derselben Windrichtung.

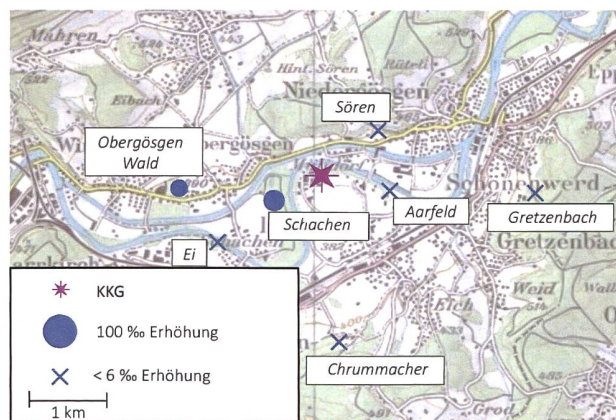
### Kernkraftwerk Mühleberg

Figur 6 zeigt die Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM). Die grösste Erhöhung wurde am Standort M-5 (Schiessplatz) mit 91‰ gemessen. Es wurden zwei Messreihen durchgeführt: eine erste Probenahme fand am 28. Juni 2018 und eine weitere am 19. September 2018 statt, d. h. einmal vor und einmal nach der jährlichen Revision des Reaktors. Es konnte kein signifikanter Zusammenhang zwischen dem Zeitpunkt der Probenahme und dem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Blätter festgestellt werden.

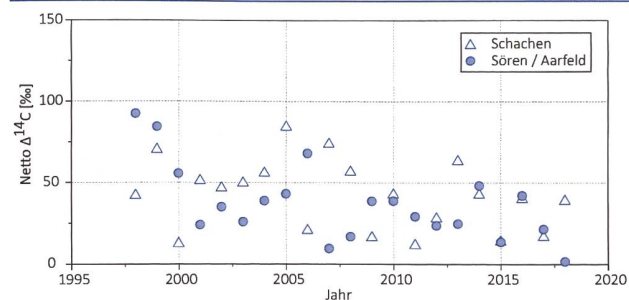
Die 2018 gemessenen Proben liegen unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

In Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2018 liegen in der Bandbreite des langjährigen Mittels.

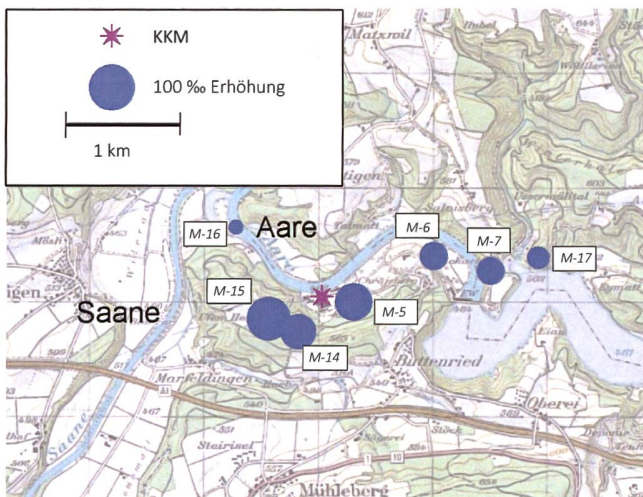
Zusätzlich zur regulären jährlichen Probenahme an den sieben in Figur 6 dargestellten Standorten wurde von der KUP am Physikalischen Institut der Universität Bern ein und derselbe Baum (Standort M-15, Ufem Horn) während der gesamten Vegetationsperiode einmal pro Monat beprobt, um die Einlagerung von  $^{14}\text{C}$  im Jahresgang zu verfolgen. 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 im Herbst, im Bereich zwischen 70‰ und 105‰ (Figur 8).



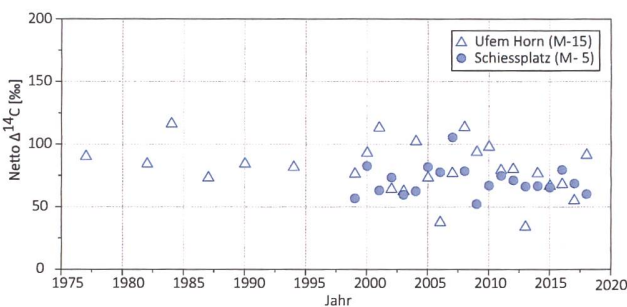
Figur 4: Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 02.06.2018 bis 24.06.2018. Probenahme: 27.06.2018. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



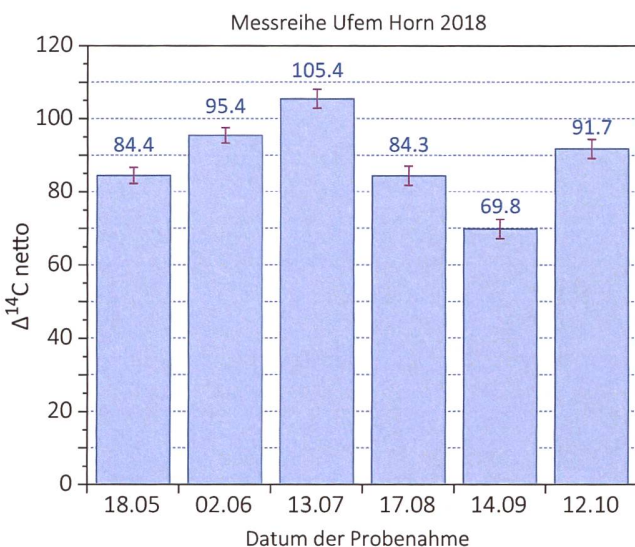
Figur 5: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4. Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA



**Figur 6:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2018. Revisionsabschaltung: 19.08.2018 bis 11.09.2018. Dargestellt sind die jeweils höchsten Werte aus beiden Messreihen. Probenahmen: 28.06.2018 und 19.09.2018. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**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.



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

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. Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt des Laubs ist bereits zu diesem Zeitpunkt um über 80% höher als bei Laub von unbelasteten Referenzstationen. Möglicherweise handelt es sich 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 Kernkraftwerks Mühleberg ab 2020 wichtige Rückschlüsse erlauben würde.

### 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: Messungen der Standorte Eien, Althau, KKB Ost, Böttstein, Flue, Schloss, Böttenberg erfolgten am LARA, die restlichen Messungen am PSI.

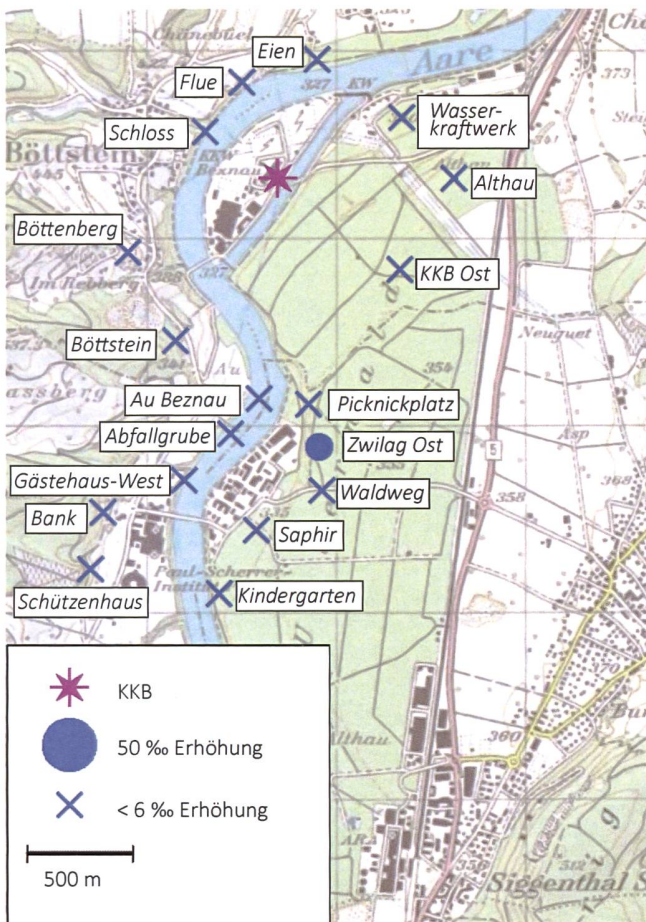
Im Kernkraftwerk Beznau (KKB) sind seit März 2018 wieder beide Reaktorblöcke im Betrieb, nachdem die Betreiberin Axpo nachgewiesen hatte, dass die im Stahl des Reaktor-druckbehälters von Block I gefundenen Einschlüsse keinen negativen Einfluss auf die Sicherheit haben und dieser Nachweis vom Eidgenössischen Sicherheitsinspektorat (ENSI) akzeptiert worden war. Dennoch wurden im Umfeld des KKB niedrigere Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte als in den drei Vorjahren festgestellt. Selbst am Ufer der Aare gegenüber dem KKB-Gelände wurde keine signifikante Erhöhung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte gemessen. Der höchste Messwert aus dem Umfeld des Paul Scherrer Instituts stammt vom Standort Zwilag Ost.

In Figur 10 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden. Alle hier dargestellten Messungen ausser dem Standort Böttstein (Symbol ●) erfolgten durch das PSI.

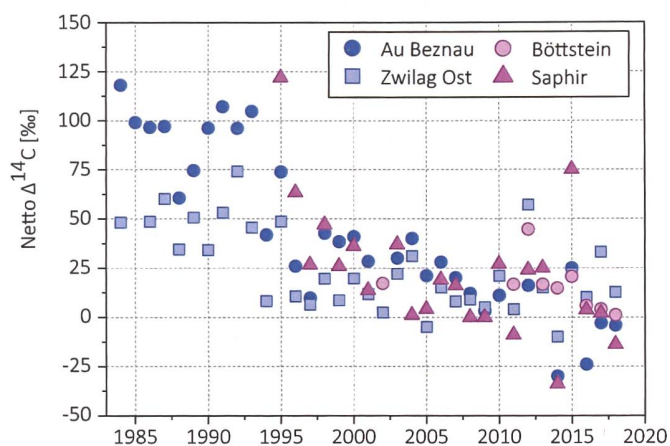
### Kehrichtverbrennungsanlagen

In Blättern von Bäumen, die im Umfeld der Kehrichtverbrennungsanlage (KVA) Bern Forsthaus gesammelt wurden, konnte keine erhöhte  $^{14}\text{C}$ -Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Messpunkte wiesen Werte auf, die unter dem Referenzwert von 10% lagen. Im Gegensatz zu Blättern, die im Umfeld der Kernkraftwerke gesammelt wurden, findet hier im Stadtgebiet eine Verdünnung (oder Absenkung) der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration gegenüber den Referenzstationen statt. Dies ist eine Folge der Abgase von  $^{14}\text{C}$ -freien, fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen aufgenommen werden (siehe «Suess»-Effekt weiter oben).

In Figur 11 sind die Messwerte als Kreise dargestellt. Die Grösse der Kreisfläche spiegelt die Verdünnung wider, d.



Figur 9:  
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 2018 (M. Heule, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Revisionsabschaltung KKB I: 01.01.2018 bis 01.03.2018, KKB II: 26.06.2018 bis 09.07.2018. Probenahme: 17.10.2018. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 10:  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (■▲) und westlich (●○) des PSI/ZWILAG sowie des Kernkraftwerkes Beznau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 10. Messungen bis 2016: KUP (Standort Böttstein) und PSI. Messungen ab 2017: LARA (Standort Böttstein) und PSI.

h. je grösser die Kreisfläche, desto grösser der Einfluss fossiler Brenn- und Treibstoffe auf den  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Baumblätter des jeweiligen Standorts. Die Verdünnung ist in der Nähe von stark befahrenen Strassen (Standorte B-1, B-12 und B-16) besonders deutlich. Dort ist die  $^{14}\text{C}$ -Konzentration wieder auf ähnliche Werte wie vor dem so genannten Bomben-Peak abgefallen. Im Zentrum des Berner Bremgartenfriedhofs (B-3), abseits der Hauptverkehrsachsen, ist die Absenkung schwächer ausgeprägt.

#### Messungen in der Region Basel-Stadt

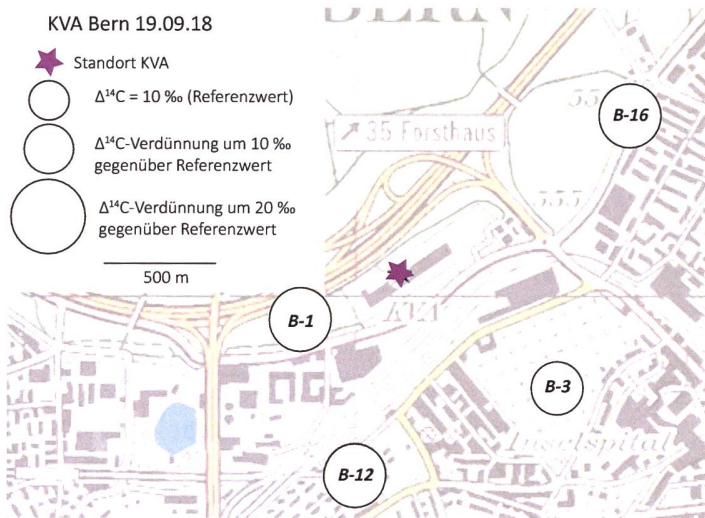
Auch im Jahr 2018 wurden drei Laubprobenahmen in Basel durchgeführt, wobei die Hauptprobenahme im August stattfand. Im Westen des Stadtgebiets befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten diejenigen um das Areal der Firma F. Hoffmann-La Roche, ganz im Norden diejenigen um das Areal der regionalen Sondermüllverbrennungsanlage (RSMVA). Die höchsten am 15.08.2018 gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betragen westlich des Rheins  $-2\text{‰}$  (Novartis Bau 27, Standort W 10A) und östlich  $+2\text{‰}$  (Dreirosenanlage, Standort E-06). Allfällige Erhöhungen der  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration werden also durch den «Suess»-Effekt 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 zahlreichen Standorten wurden aufgrund des «Suess»-Effekts Erniedrigungen um 6‰ oder mehr ermittelt (Figur 12, Symbol ▼).

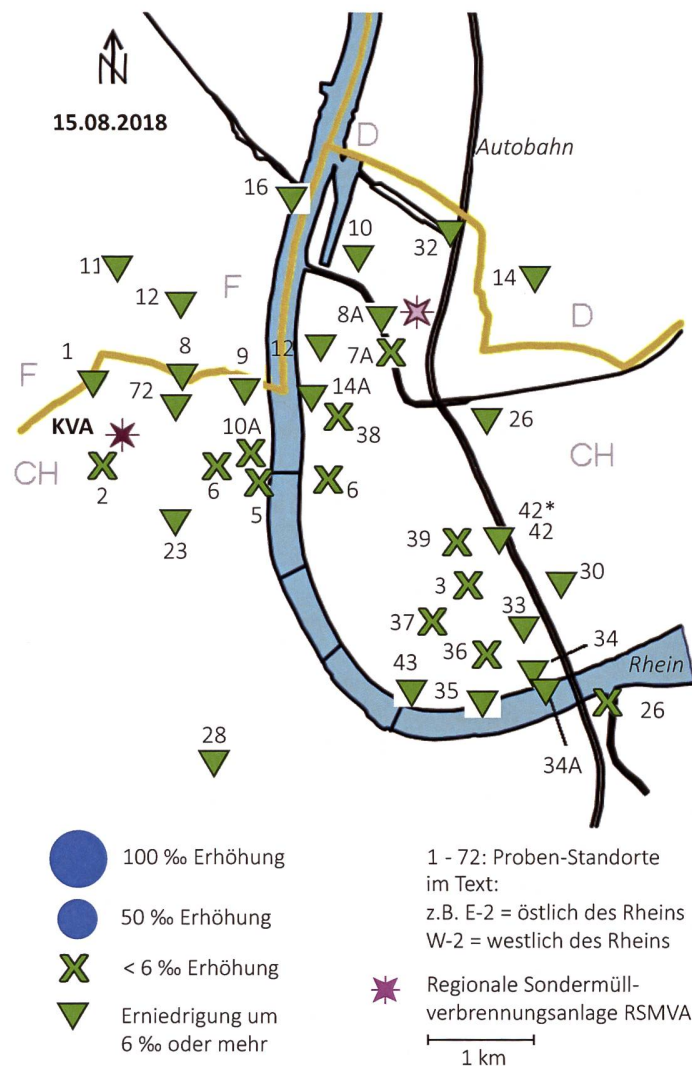
Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten ganzen Blättern Messungen durchgeführt (vgl. Seite 114). Die Vergleichswerte sind in Tabelle 2 dargestellt.

Die Figuren 13 und 14 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich auf einem sehr niedrigen Niveau stabilisiert. Der Rückgang der  $^{14}\text{C}$ -Werte gegenüber früheren Jahren ist darauf zurückzuführen, dass Novartis das benötigte  $^{14}\text{C}$  zunehmend von externen Zulieferern bezieht. 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.





Figur 11:  
 $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in der Umgebung der KVA Bern.



Figur 12:  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

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.

## Edelgas-Radionuklide

Die beiden Edelgas-Radionuklide  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{37}\text{Ar}$  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 ( $^{85}\text{Kr}$ )

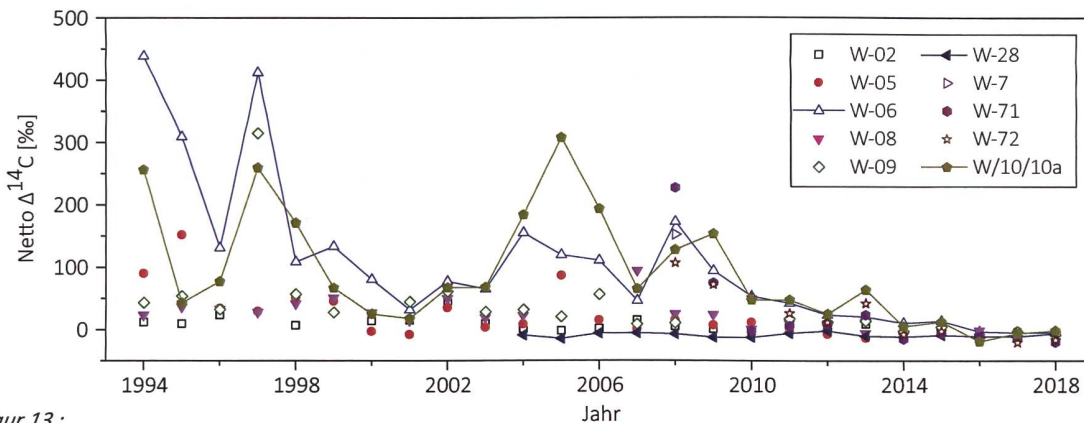
Das radioaktive Edelgasisotop  $^{85}\text{Kr}$  ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von  $10.76 \pm 0.02$  Jahren. Natürliches atmosphärisches  $^{85}\text{Kr}$  hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch  $^{84}\text{Kr}$  in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Inventar von etwa  $9 \cdot 10^{11}$  Bq oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von ungefähr  $0.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  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 15). 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 15, kleines Bild).

In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von  $1.4 - 1.5 \text{ Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$  in Mitteleuropa zu beobachten.  $^{85}\text{Kr}$  wird an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfrauoch gesammelt und im Edelgaslabor des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg im Breisgau analysiert werden [2] (Fig. 15). 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

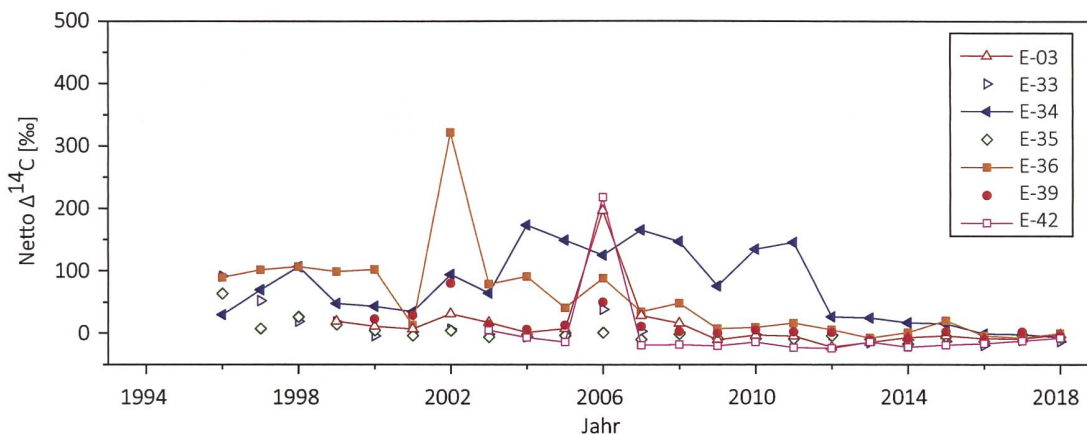
Tabelle 2:

Im Jahre 2018 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 bis 2017) 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	
	2018 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2017 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2018 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2017 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]
E-03	- 2	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	-12	169 (1996)	-	-
E-34	-10	106 (1998)	- 7	173 (2004)
E-42	- 17	4 (2003)	-	-
E-42*	- 8	218 (2006)	-	-
W-06	- 6	438 (1994)	- 5	172 (2008)
W-10A	- 2	259 (1997)	- 9	308 (2005)
W-28	- 7	- 6 (2007)	- 16	- 13 (2013)
W-71	- 23	227 (2008)	- 10	75 (2009)
W-72	- 17	107 (2008)	- 23	115 (2010)



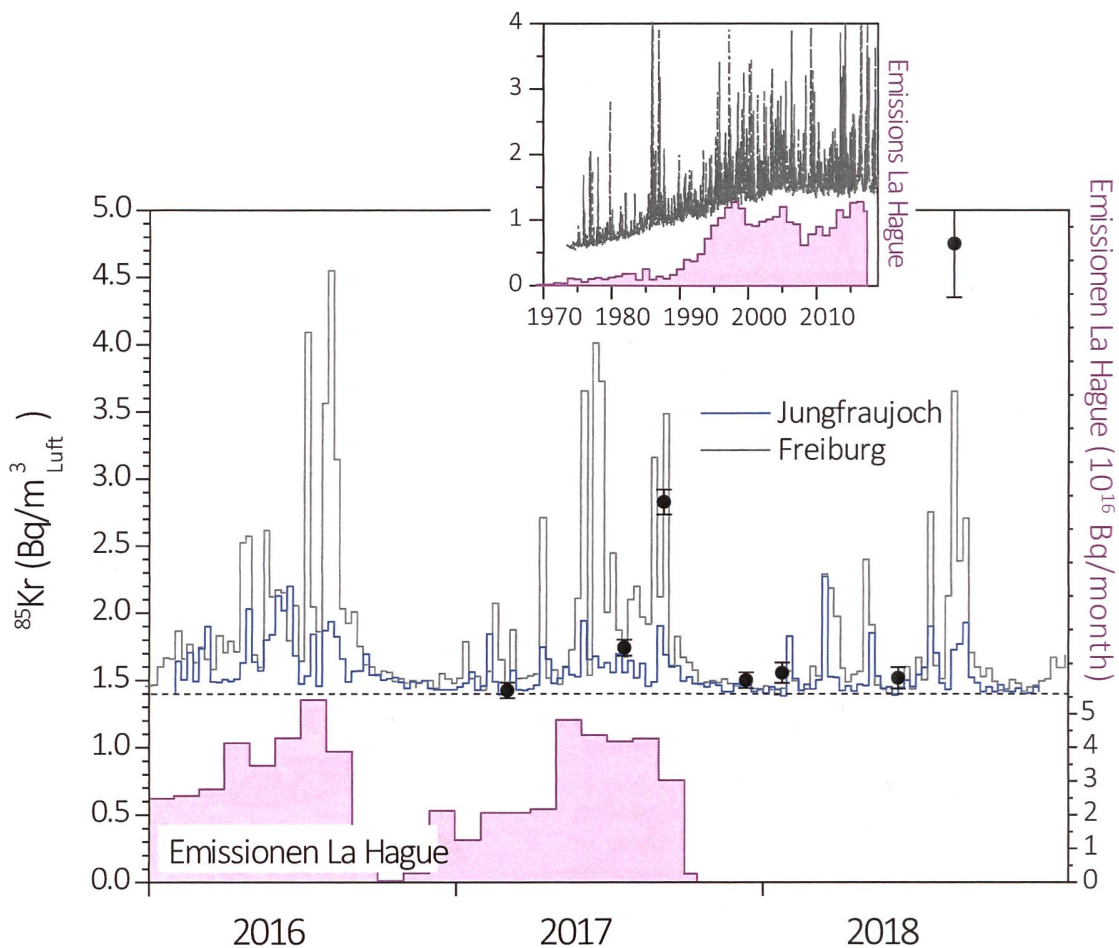
Figur 13 :  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Am Standort W-28 wird die von  $^{14}\text{C}$  unbelastete Stadtluft gemessen. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.



Figur 14 :  
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.

einem Faktor 3 übersteigen, stimmen bei beiden Stationen überein mit Zeiten erhöhter Emissionsraten von La Hague [3]. Wegen der erhöhten Lage der Station Jungfrauoch wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf. In der Berichtsperiode 2018 wurde eine maximale Aktivitätskonzentration von  $3.7 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$  in Freiburg gemessen. Der höchste Wert auf dem Jungfrauoch lag bei  $2.3 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$ . Im Herbst konvergierten die Messwerte jeweils wieder gegen den Basiswert, was auf eine verringerte Aufarbeitungsaktivität hindeutet. Die durch den  $^{85}\text{Kr}$ -Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca.  $11 \text{ nSv/Jahr}$  ( $8 \cdot 10^{-9} \text{ Sv/Bq m}^{-3} \text{ Jahr}$  [4]) und ist damit gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa  $1.1 \text{ mSv}$  verursacht durch natürlich vorkommendes Radon.

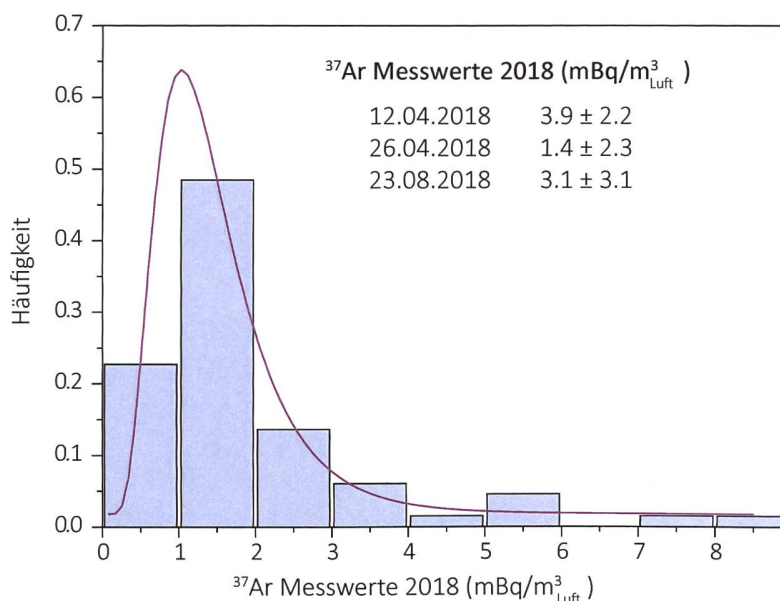
Stichproben, genommen in wenigen Minuten und gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern bestätigen den Aktivitätsbereich und die zeitliche Abfolge der in Freiburg oder auf dem Jungfrauoch beobachtet wird. Die Aktivitätswolke, die Anfang Oktober in Freiburg und auf dem Joch nachgewiesen wurde, ist auch in der Messung in Bern sichtbar. Da die Luftproben in Bern in kurzer Zeit genommen werden, ist die Verdünnung mit weniger belasteter Luft geringer, was in diesem Fall zu einem Maximalwert von  $4.8 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$  führte. Der Basiswert von  $1.4 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$  stimmt für die Stationen Freiburg, Jungfrauoch und Bern überein.



**Figur 15:**  
 Atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$  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  $^{85}\text{Kr}$ -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  $10^{16} \text{ Bq}$ ) [3]. 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. Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Die drei im Jahr 2018 gemessenen Werte sind konsistent mit der langjährigen statistischen Verteilung (Figur 16). Im Vergleich zu  $^{85}\text{Kr}$  sind die Aktivitätskonzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  nochmals um einen Faktor 1000 geringer und führen deshalb zu keiner zusätzlichen Strahlenbelastung.

**Figur 16:**

Atmosphärische  $^{37}\text{Ar}$ -Aktivitätskonzentrationen gemessen an 70 Luftproben, die über die letzten 8 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/2019/01/10/rueckblick-auf-2018-kernanlagen-sind-im-letzten-jahr-sicher-betrieben-words>, besucht am 15. Februar 2019
- [2] Bollhöfer et al 2018. Five decades of Krypton-85 activity concentration measured in air over Central Europe and relevance for groundwater dating (eingereicht Journal of Environmental Radioactivity)
- [3] <http://www.aveva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-aveva-la-hague-plant.htm> (bis Oktober 2017)
- [4] 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, L. Pfefferlé, F. Barraud, F. Bochud**  
Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, 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, mais représentatives de la remise en suspension de particules de sol par le vent. 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, à l'exception d'un seul échantillon de grande masse, positif à  $^{241}\text{Am}$  (0.72 mBq/kg ms). Les activités en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépassent pas 3.5 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). Nous proposons que cette technique soit utilisée dans le cadre de la surveillance des milieux aquatiques lors des opérations de démantèlement d'installations nucléaires.

### 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, Fukushima) 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 l'inhalation ou à travers 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 challenge. L'OFSP mesure depuis plus de vingt ans ces deux radioéléments dans différents compartiments de l'environnement à proximité des centrales nucléaires suisse et dans certains sites de référence. L'image principale que l'on peut tirer de ces mesures est que la présence de Pu et Am dans ces échantillons est essentiellement due aux retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante avec, parfois, la présence d'ultra-traces de Pu et d'Am (parfois aussi  $^{244}\text{Cm}$ ) dont l'origine peut être attribuée aux rejets des centrales nucléaires ou à des

événements particuliers, comme l'éruption du volcan Eyjafjallajökull en 2010, qui a entraîné du Pu encore présent dans la stratosphère dû aux essais nucléaires jusque dans les couches basses de l'atmosphère [1]. L'intégration des dépôts de Pu et Am dans le sol, dont l'origine sont les essais nucléaires, donne des rapports isotopiques de  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  de 0.027 et  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  de 0.40, recalculés pour l'année 2018. On verra au cours de ce rapport que ces indicateurs de contamination sont parfaitement respectés pour les sols, avec quelques variations liées aux larges incertitudes et au fractionnement des éléments pour certains types d'échantillons (eaux, plantes aquatiques, poissons, etc.).

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 [2-5] et concluons qu'il s'agit d'une technique d'avenir pour l'échantillonnage passif des actinides dans les milieux aquatiques, notamment aux abords des centrales nucléaires en exploitation ou en cours de démantèlement.

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 desquelles elles puisent l'eau de refroidissement des réacteurs. 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.

### 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, 6].

## Résultats et discussion

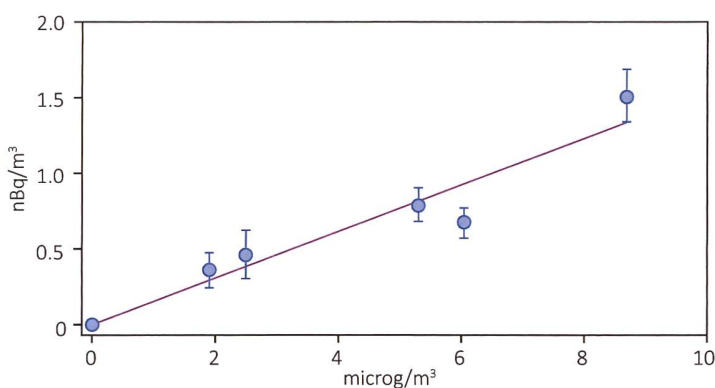
Le tableau 1 présente les résultats obtenus dans la mesure des sols échantillonnés sur l'ensemble du territoire suisse, avec une focalisation sur les sites aux environs des centrales nucléaires suisses. En vue du démantèlement de la centrale nucléaire de Mühleberg, sept sites spécifiques autour de la centrale ont été échantillonnés et analysés indépendamment. Les activités sont très proches de celles obtenues les années précédentes et ne montrent pas de marquage autre que par les retombées des essais nucléaires des années soixante. 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 0.027 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et de 0.40 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. Ces mesures confirment que toutes les activités des sols mesurées ont pour origine les retombées des essais nucléaires des années soixante. On constate également que les activités mesurées sont très basses et que parfois, le  $^{238}\text{Pu}$  ne peut être quantifié au-dessus de la limite de détection. En effet,  $^{238}\text{Pu}$  est présent avec une activité équivalente à 1/30 de celle de  $^{239+240}\text{Pu}$ , ce qui est très faible et seul un rendement de séparation chimique lors de l'analyse supérieur à 75% permet de le quantifier sur une aliquote de 50 g de cendres de sol.

S'il n'y a pas d'émissions de radioactivité dans l'atmosphère, comme par exemple lors de situations accidentelles, l'activité en Pu et Am des filtres à air reflète la remise en suspension de particules de sol par érosion par le vent. Au cours des 20 dernières années, toutes les mesures de l'OFSP concernant les filtres à air ont montré uniquement ce phénomène, à l'exception du site du Weissfluhjoch, où nous avons constaté une contamination du site et des installations de pompage/filtration par le  $^{241}\text{Am}$ . Cette contamination provenait de l'incinération de déchets boisés de la station météo du Weissfluhjoch contenant des détecteurs d'incendie à l'américium [7].

**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 2018 (incertitudes à 95%).

Lieu	<sup>239+240</sup> Pu Bq/kg MS	<sup>238</sup> Pu Bq/kg MS	<sup>241</sup> Am Bq/kg MS	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu	<sup>238</sup> Pu/ <sup>239+240</sup> Pu
Beznau	0.167 ± 0.015	<0.004	0.065 ± 0.005	0.39 ± 0.05	< LD
Cadenazzo	0.066 ± 0.006	0.0022 ± 0.0009	0.039 ± 0.006	0.57 ± 0.11	0.033 ± 0.014
CERN (Meyrin)	0.111 ± 0.008	0.0032 ± 0.0009	0.049 ± 0.002	0.44 ± 0.04	0.028 ± 0.002
Gösgen (Däniken)	0.224 ± 0.015	0.0050 ± 0.0017	0.109 ± 0.015	0.49 ± 0.07	0.023 ± 0.008
Güttingen	0.185 ± 0.017	0.0049 ± 0.0019	0.074 ± 0.008	0.40 ± 0.06	0.026 ± 0.011
Leibstadt	0.201 ± 0.016	0.0047 ± 0.0015	0.083 ± 0.010	0.41 ± 0.06	0.023 ± 0.002
Mühleberg, Rewag	0.165 ± 0.013	0.0040 ± 0.0013	0.060 ± 0.005	0.36 ± 0.04	0.024 ± 0.008
Mühleberg, Salvisberg	0.149 ± 0.013	0.0054 ± 0.0015	0.067 ± 0.010	0.45 ± 0.08	0.036 ± 0.010
Mühleberg, Ufem Horn	0.179 ± 0.020	< 0.0050	0.078 ± 0.012	0.44 ± 0.08	< LD
Mühleberg, Niederruntigen	0.027 ± 0.007	< 0.0040	0.014 ± 0.001	0.52 ± 0.14	< LD
Mühleberg, Oberruntigen	0.262 ± 0.017	0.0050 ± 0.0003	0.101 ± 0.008	0.39 ± 0.04	0.019 ± 0.002
Mühleberg, Fuchsried	0.129 ± 0.011	< 0.0040	0.042 ± 0.009	0.33 ± 0.08	< LD
Mühleberg, KKW	0.145 ± 0.012	< 0.0043	0.040 ± 0.009	0.28 ± 0.07	< LD
Posieux	0.206 ± 0.019	0.0054 ± 0.0003	0.078 ± 0.012	0.38 ± 0.07	0.026 ± 0.003
Villigen (PSI)	0.133 ± 0.013	0.0044 ± 0.0019	0.052 ± 0.008	0.39 ± 0.07	0.033 ± 0.015
Würenlingen (ZWILAG)	0.171 ± 0.012	0.0041 ± 0.0016	0.065 ± 0.007	0.38 ± 0.04	0.024 ± 0.010
Caslano	0.104 ± 0.007	0.0035 ± 0.0012	0.050 ± 0.006	0.48 ± 0.06	0.034 ± 0.012
Stabio	0.536 ± 0.027	0.0153 ± 0.0006	0.300 ± 0.020	0.56 ± 0.05	0.029 ± 0.002
moyenne				<b>0.42 ± 0.07</b> (n=18)	<b>0.027 ± 0.005</b> (n=13)

La Figure 1 représente l'activité en nBq/m<sup>3</sup> des filtres à air de différents sites en fonction de la quantité de cendres, normalisée au volume, obtenue lors de la calcination des filtres collectés sur l'année en cours (environ 52 filtres). Cette grandeur est une bonne approximation de la quantité de particules de sol remis en suspension et collectée par les filtres. On constate que l'activité mesurée sur les filtres à air est directement proportionnelle ( $r^2 = 0.92$ ) à la quantité de cendres (exprimée en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) contenue sur le filtre. Ce résultat



**Figure 1 :**  
 Activité en <sup>239+240</sup>Pu des filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>) en fonction de la quantité de cendres sur les filtres à air exprimée en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

confirme que, sur le plateau suisse où la déposition de radioactivité suite aux essais nucléaires est relativement homogène, l'activité des filtres à air peut être estimée à partir de la quantité de cendres.

L'activité en <sup>241</sup>Am est également quantifiable sur les filtres à air (Tableau 2). Le rapport isotopique <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu moyen de  $0.59 \pm 0.21$  nBq/m<sup>3</sup>, proche de la valeur 0.40 malgré une incertitude voisine de 50%, confirme que ce radioélément provient également de la remise en suspension de particules de sol.

Comme en 2017, le site de Posieux montre l'activité en Pu la plus élevée (1.51 nBq/m<sup>3</sup>). C'est aussi pour ce site que la quantité de cendres après calcination des filtres à air est la plus élevée (8.7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). De

manière similaire aux années précédentes, le site de Liebfeld présente une activité en Pu plus élevée lors du deuxième semestre, car le prélèvement est effectué principalement durant la saison sèche. La quantité de particules remises en suspension est de 6.8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , contre seulement 5.3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  pour la saison humide. L'activité la plus faible est observée pour le site de Mühleberg (0.36 nBq/m<sup>3</sup>) avec une quantité de particules de sol remises en suspension également la plus faible (1.9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Nous n'avons pas pu mettre en évidence la présence de <sup>238</sup>Pu, car cette mesure nécessiterait la collection de plus de 5'000'000 de m<sup>3</sup> d'air.

Tableau 2:

Activités (nBq/m<sup>3</sup>) en Pu et Am des filtres à air de grands volumes collectés en 2018 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 m <sup>3</sup>	<sup>239+240</sup> Pu nBq/m <sup>3</sup>	<sup>238</sup> Pu nBq/m <sup>3</sup>	<sup>241</sup> Am nBq/m <sup>3</sup>	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu
Leibstadt	553'678	0.46 ± 0.16	< 0.30	< 0.25	< LD
Mühleberg	583'903	0.36 ± 0.12	< 0.30	0.34 ± 0.10	0.96 ± 0.43
Klingnau	4'900'485	0.79 ± 0.11	< 0.08	0.36 ± 0.06	0.46 ± 0.09
Posieux	4'123'244	1.51 ± 0.17	< 0.10	0.91 ± 0.11	0.60 ± 0.10
Liebefeld, semestre 1	3'444'067	0.48 ± 0.06	< 0.05	0.21 ± 0.04	0.45 ± 0.10
Liebefeld, semestre 2	3'244'707	0.88 ± 0.10	< 0.07	0.45 ± 0.06	0.51 ± 0.09
moyenne					0.59 ± 0.21 (n=5)

Les activités des eaux de surface (eaux de rivière) et eaux souterraines sont présentées dans le tableau 3. Les valeurs d'activité sont très proches de celles mesurées en 2017. L'activité en <sup>239+240</sup>Pu des eaux de surface n'a pas dépassé 3.5 mBq/m<sup>3</sup> (Aar). Elle est restée inférieure à 4 mBq/m<sup>3</sup> pour les eaux souterraines. Toutefois, pour les eaux souterraines, seuls 105L ont été collectés, ce qui ne suffit en général pas à mesurer le Pu au-dessus de la limite de détection avec une méthode radiométrique comme la spectrométrie alpha (utilisée dans ce travail). L'activité du <sup>238</sup>Pu est restée inférieure à la limite de détection dans tous les cas. Lorsque <sup>241</sup>Am a été mesuré au-dessus de la limite de détection, le rapport <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu est resté proche de 0.40, 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 un fractionnement des éléments.

D'une manière générale, les résultats montrent qu'il est nécessaire de prélever au moins 200L d'eau de surface ou souterraine pour être en mesure de déterminer les activités en <sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am avec une sensibilité suffisante pour des mesures par spectrométrie alpha. Nous recommandons ainsi qu'un volume d'au moins 200L soit collecté par site en 2019.

Dans le Tableau 3, nous comparons également les valeurs obtenues dans ce travail par spectrométrie alpha avec les valeurs obtenues dans une étude spécifique de deux rivières de l'arc jurassien [5]. Lors de ce travail, l'échantillonnage était effectué par pompage de 50L d'eau de rivière filtrée à 0.45 µm et par DGT. Les mesures de <sup>239</sup>Pu et <sup>240</sup>Pu ont été réalisées par spectrométrie de masse par accélération à l'ETHZ, une méthode beaucoup plus sensible que la spectrométrie alpha pour ces radioéléments. On constate que l'échantillonnage par pompage résulte en des activités situées dans un intervalle de valeurs comprises entre 0.39 et 3.9 mBq/m<sup>3</sup> pour les deux rivières, alors que l'échantillonnage par DGT produit des résultats entre 1.3 et 1.5 mBq/m<sup>3</sup> pour les deux sites, soit des valeurs intermédiaires. La technique DGT est une technique d'échantillonnage qui moyenne l'activité sur la période d'exposition du système DGT dans l'eau (2-3 semaines dans ce travail). Nous pensons que l'échantillonnage passif d'espèces bio-disponibles est une méthode plus représentative pour estimer le risque que représentent les actinides présents dans les systèmes aquatiques. En moyennant l'activité sur une longue période, il permet également d'intégrer des pics d'activité qui pourraient passer inaperçus, lorsqu'ils se produisent en dehors des périodes de pompage. En conséquence, cette technique pourrait être particulièrement utile et efficace pour la surveillance des milieux aquatiques lors du démantèlement d'installations nucléaires.

Les résultats des mesures effectuées sur différents échantillons de l'environnement collectés en aval des centrales nucléaires sont présentés dans le Tableau 4. Le <sup>239+240</sup>Pu et l'<sup>241</sup>Am sont mesurables au-dessus des limites de détection dans les plantes aquatiques et les sédiments (phase suspendue) de rivière. Les valeurs d'activité obtenues sont très proches de celles mesurées en 2017 pour ces deux types d'échantillons. Les rapports isotopiques <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu observés sont proches de 0.40, indiquant dans ce cas également une contribution très majoritaire des retombées des essais nucléaires des années soixante. Pour tous les échantillons, <sup>238</sup>Pu est resté en-dessous des limites de détection.



**Tableau 3:**  
**Activités (mBq/m<sup>3</sup>) en plutonium et américium des eaux collectées en Suisse en 2018**  
*(incertitudes à 95%).*

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 rivière	Rhône, Chancy, 26.09.2017-28.09.2018	248	1.0 ± 0.3	< 0.7	< 0.7	< LD
	Aar (Hagneck), janvier	220	2.2 ± 0.5	< 0.7	< 9.0	< LD
	Aar (Klingnau), mars	220	3.5 ± 0.8	< 1.0	1.6 ± 0.4	0.47 ± 0.16
	Rhin (Pratteln), mai- juin	205	2.4 ± 0.6	< 0.8	1.8 ± 0.1	0.76 ± 0.20
Eau souterraine	Aarberg, 20.06.2018	105	< 1.3	< 1.3	< 1.4	< LD
	Döttingen, 20.06.2018	105	< 1.4	< 1.4	< 1.3	< LD
	Pratteln, 20.06.2018	105	< 8.3	< 8.3	< 1.5	< LD
Eau de rivière	Venoge (réf. 5) Filtrée 0.45 µm C <sub>DGT</sub>	50	0.43 - 3.4 1.5			
	Noiraigue (réf. 5) Filtrée 0.45 µm C <sub>DGT</sub>	50	0.39 - 3.4 1.3			
Eau de pluie	Posieux	1'048	< 8.0 <sup>1)</sup>	< 8.0 <sup>1)</sup>	< 1.3	< LD
	Mühleberg	850	< 8.0 <sup>1)</sup>	< 8.0 <sup>1)</sup>	< 1.6	< LD
	Leibstadt	1'044	< 0.5	< 0.5	0.25 ± 0.07	< LD

<sup>1)</sup> Nous avons eu un problème de calcination imparfaite des résines et obtenu un rendement de séparation chimique bas.

**Tableau 4:**  
**Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2018 en aval des centrales nucléaires suisses (incertitudes à 95%).**

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), 17.10.2018	80.4	42 ± 5.0	< 3	17 ± 0.7	0.41 ± 0.05
	Aar (Klingnau), 17.10.2018	106	31 ± 3.0	< 1.4	13 ± 2.0	0.41 ± 0.07
	Rhin (Pratteln), 17.10.2018	51	102 ± 10	< 5	36 ± 2.0	0.35 ± 0.04
Sédiments	Aar (Hagneck), janvier		31.5 ± 3.9	< 3	12.2 ± 3.0	0.39 ± 0.10
	Aar (Klingnau), juin		45.9 ± 5.2	< 3	23.6 ± 4.0	0.51 ± 0.10
	Rhin (Pratteln), mai		70.3 ± 6.5	< 3	45.8 ± 5.6	0.65 ± 0.10
Poissons	Aar (Gösigen), 05.10.2017	33.4	< 10	< 10	< 5	< LD
	Rhin (Leibstadt), 16.07.2018	212	< 2	< 2	0.73 ± 0.02	< LD
	Aar (Mühleberg), 23.06.2018	61.5	< 40	< 40	< 20	< LD
	Aar (Gösigen), 28.11.2018	32.9	< 56	< 56	< 76	< LD
	Aar (Beznau), 14.08.2018	48.4	n.a	n.a	< 26	< LD
	Rhin (Leibstadt), 05.12.2018	33.0	n.a	n.a	< 69	< LD

Dans les poissons, seules des traces de <sup>241</sup>Am ont été mesurées dans un échantillon dont la masse sèche était presque 10 fois supérieure à ce que l'on reçoit au laboratoire habituellement. La valeur mesurée n'était que de 0.73 mBq/kg de masse sèche. L'activité en <sup>239+240</sup>Pu est resté en-dessous de la limite de détection. Ceci indique qu'il est absolument nécessaire d'obtenir un échantillon le plus grand possible pour être en mesure de quantifier les actinides tels que Pu et Am dans ce type d'échantillon.

## Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible (< 0.536 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, issues de la remise en suspension de particules de sol, n'ont pas dépassé 1.5 nBq/m<sup>3</sup>. Le rapport isotopique moyen <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>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 remise en suspension de particules de sol. Ce fait est encore confirmé par la normalisation de l'activité des filtres à air par rapport à la masse de cendre obtenue après calcination des filtres. La masse de cendre est un bon estimateur de la quantité de particules de sol remise en suspension dans l'environnement du collecteur d'air. Plus cette quantité est élevée, plus l'activité en Pu et Am des filtres à air est élevée, ce qui confirme que l'on observe bien un phénomène de remise en suspension du sol par le vent.

Les activités des eaux de surface et des eaux souterraines sont similaires aux années précédentes et n'ont pas dépassé 3.5 mBq/m<sup>3</sup>. Pour ces mesures également, le rapport <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu indique les essais nucléaires des années soixante comme origine de la contamination. Les mesures confirment également qu'il est nécessaire de collecter plus de 200L d'eau pour fournir des résultats en-dessus de la limite de détection de la mesure par spectrométrie alpha. De ce point de vue, un échantillonnage par système passif (DGT) suivi d'une mesure par spectrométrie de masse par accélération serait une solution plus représentative pour évaluer l'exposition à ces radioéléments. Dans le cas de la surveillance de l'environnement aquatique lors de démantèlement d'installations nucléaires, l'échantillonnage par DGT aurait l'avantage d'intégrer également les pics d'activité qui pourraient passer inaperçus lors d'un échantillonnage ponctuel par pompage.

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. Les activités dans les poissons sont restées en-dessous des limites de détection à l'exception de <sup>241</sup>Am dans un échantillon pour lequel nous avons reçu une quantité environ 10 fois supérieure à l'habitude. Pour ces échantillons également, il est nécessaire d'augmenter la quantité collectée si l'on désire quantifier les activités en Pu et Am.

Dans l'ensemble, toutes ces mesures montrent qu'il est nécessaire 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 actuellement sain en ce qui concerne la dissémination de ces deux radioéléments fortement radio-toxiques. Une augmentation significative de ces radioéléments dans l'environnement, liée aux activités de l'industrie nucléaire, devrait être ainsi facilement détectée.

### Remerciements

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

### Références

- [1] Corcho Alvarado et al. Nature Communications, 2014, 5, article n° 3030.
- [2] Cusnir et al. A DGT Technique for Plutonium Bioavailability Measurements. Environ. Sci. Technol. 2014, 48, 10829–10834.
- [3] Cusnir et al. Speciation and Bioavailability Measurements of Environmental Plutonium Using Diffusion in Thin Films. JoVE-J. Visual. Exp. 2015, e-53188.
- [4] Cusnir et al. Probing the kinetic parameters of Pu-NOM interactions in freshwaters using the DGT technique. Environ. Sci. Technol. 2016, 103, 5103-5110.
- [5] 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.
- [6] 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.
- [7] Corcho Alvarado et al. (2008) Chapitre 7.2: Mesure de plutonium et d'américium dans l'environnement. Rapport «Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse», OFSP, 2009.

