

**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:** - (2019)

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

### **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:** 26.04.2025

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

# Chapitre / Kapitel 7

Mesures de nucléides spéciaux  
Messung von Spezialnukliden

2019

- Carbone 14, Krypton 85, Argon 37
- Plutonium et Américium
- Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37
- Plutonium und Americium

# 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 und C. Espic**

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), Birmensdorf

### 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 2019 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 2019) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2019 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert  $2 \pm 3\%$ .

Die 90 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um  $-20\%$  (W-72, Basel Brenntag) bis maximal  $+102\%$  (Kernkraftwerk Leibstadt, Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lagen die Höchstwerte bei  $11\%$  (E-74, Wiesensteg) bzw.  $1\%$  (W-10A, Novartis St. Johann). Selbst die Maximalwerte entsprechen 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). Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  nahm seitdem durch Aufnahme von  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe weltweit wieder ab. In diesem Jahr hat dieser Gehalt zum ersten Mal den als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950 erreicht:

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

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 Monitor von atmosphärischem  $^{14}\text{CO}_2$ .

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

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

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 2019 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juni, August und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2019}} = 2 \pm 3 [\text{‰}] \quad (3)$$

Die Differenz

$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2019}} \quad (4)$$

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

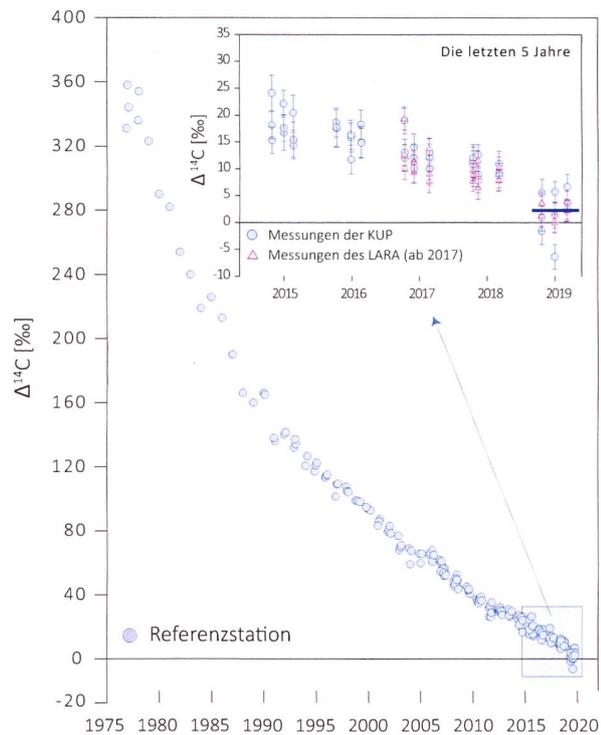
Es kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

- *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.

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.

<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 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.

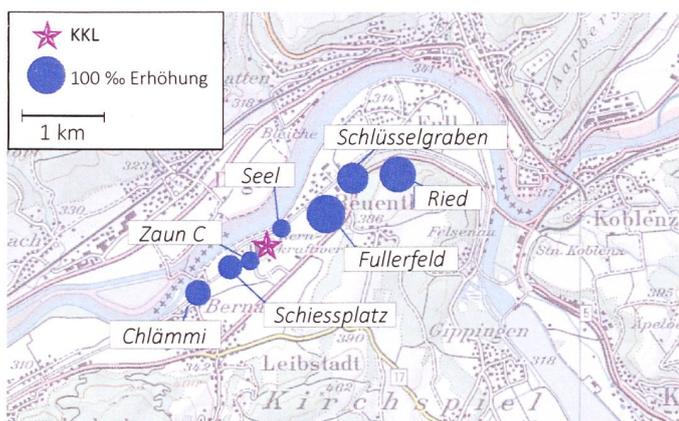
**Tabelle 1:**

Messwerte 2019 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen.

Ort	Labor	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
		Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	KUP	1	-6	4	601'320 / 186'150	938	Rotbuchen im Wald
	LARA	1	0	2			
Belpberg	KUP	6	1	2	606'096 / 190'600	825	Rotbuchen auf Krete
	LARA	4	0	4			
Ballenbühl	KUP	-2	6	7	612'550 / 192'800	852	2 Linden, freistehend
	LARA	3	2	2			

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.

Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Blättern der Referenzstationen ist im Jahr 2019 gegenüber dem Vorjahr erneut abgefallen. Mit  $2 \pm 3\text{‰}$  (gerundeter Mittelwert aller in Tabelle 1 dargestellten Messergebnisse) liegt der Referenzwert um 8‰ unter dem Wert von 2018.



**Figur 2:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2019. Revisionsabschaltung: 03.06.19 bis 03.07.19. Probenahme: 27.05.19 und 16.09.19. Dargestellt sind die jeweils höchsten Messwerte beider Messungen. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

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

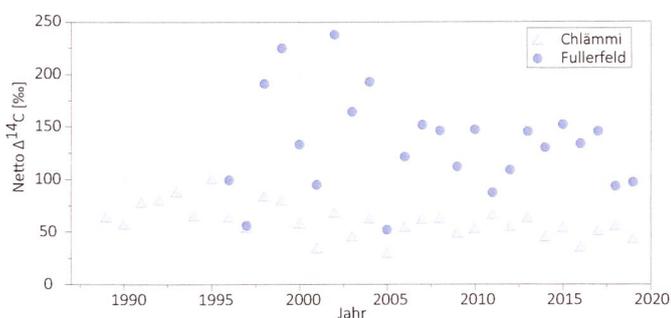
Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] wurden die Schweizer Kernkraftwerke im Jahr 2019 sicher betrieben. Am Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) kam es zu insgesamt drei automatischen Schnellabschaltungen, und zwar am 24. April, 12. Mai und 28. Dezember 2019. Die drei Vorkommnisse hatten laut ENSI eine geringe Bedeutung für die nukleare Sicherheit.

Darüber hinaus wurde am 20. Dezember 2019 mit dem Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) erstmals in der Schweiz ein Kernkraftwerk endgültig aus dem Leistungsbetrieb genommen. Rückbau und Stilllegung sollen im Jahr 2034 abgeschlossen sein. Die entsprechenden  $^{14}\text{C}$ -Messungen sollen auch während des Rückbaus noch einige Jahre fortgesetzt werden.

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. Eine Ausnahme bildet das KKM, da dort im Jahr 2019 wegen der anstehenden Stilllegung kein Revisionsstillstand stattgefunden hat.

Zusätzlich erfolgte eine Luftprobenahme beim Kernkraftwerk Gösgen zu Beginn der Revision zu einem Zeitpunkt, als der Überdruck des Reaktordruckgefässes abgelassen wurde. Mit diesen Luftproben sollte eine Abschätzung der punktuellen Maximalmissionen an  $^{14}\text{CO}_2$  wie auch  $^{14}\text{CH}_4$  ermittelt werden.

Mit Ausnahme der Messungen im Umfeld des Paul Scherrer Instituts und des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG), welche vom Paul Scherrer Institut



**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.

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).

### Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2019 wurden im Umkreis des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL) zwei separate Probenahmen durchgeführt: je eine vor und eine nach dem für den Zeitraum vom 03. Juni 2019 bis 03. Juli 2019 terminierten Revisionsstillstand. Es wurden Blätter von Laubbäumen an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und auf ihren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt hin untersucht. Dabei 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. Es konnte kein signifikanter Zusammenhang zwischen dem Zeitpunkt der Probenahme und dem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Blätter festgestellt werden.

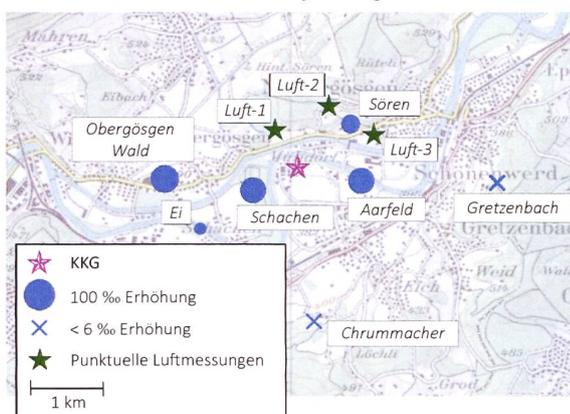
Figur 3 zeigt die gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämli seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2019 lag der höchste Messwert nordwestlich des KKL bei 102‰ (Standort Fullerfeld). In südwestlicher Richtung wurde 2019 am Standort Chlämli mit 45‰ der höchste Wert gemessen. Der grösste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ und stammt vom Standort Fullerfeld (2002).

### Kernkraftwerk Gösgen

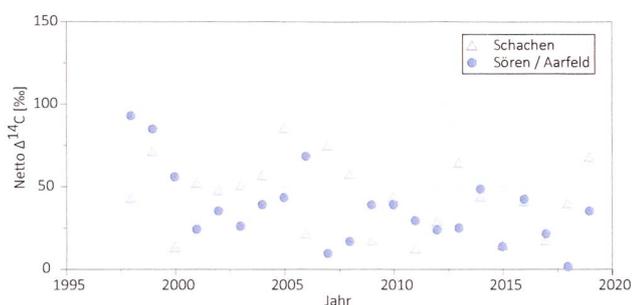
In Figur 4 sind die Resultate der am 25. Juni 2019 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Sämtliche Messwerte liegen nahe bei den langjährigen Mittelwerten bzw. darunter. Die höchsten  $^{14}\text{C}$ -Messwerte resultierten in diesem Jahr mit einer Erhöhung von ca. 80‰ am Standort Obergösgen Wald.

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

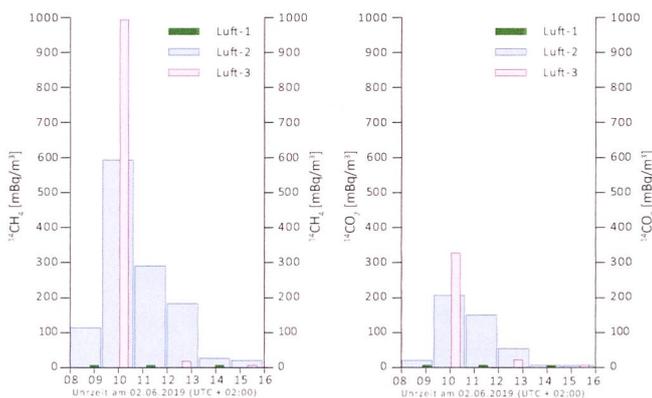
Zu Beginn der Revision von KKG wurden während 8 Stunden insgesamt 18 Luftproben von je ~100L an fünf Standorten in der Umgebung des Kraftwerks gesammelt, um punktuelle Maximalaktivitäten von radioaktivem Methan ( $^{14}\text{CH}_4$ ),  $^{14}\text{CO}_2$  und  $^{37}\text{Ar}$  zu ermitteln. Zu diesem Zeitpunkt wurde der Überdruck aus den Reaktordruckgefäss abgelassen und daher die grösste Emission radioaktiver Gase erwartet. Figur 6 zeigt den Verlauf der Messwerte für drei Standorte, die sich etwa 1 km vom Abluftkamin entfernt in Windrichtung befanden. Die weiteren Messungen, welche hier nicht gezeigt werden, erfolgten an einem Standort entgegen der Windrichtung zur Ermittlung der Hintergrundwerte der Aktivitätskonzentrationen und an einem Standort in etwa 5 km Entfernung windabwärts. Der Hauptstandort Luft-2 zeigt den zeitlichen Verlauf der Emissionen für  $^{14}\text{CH}_4$  und  $^{14}\text{CO}_2$ , während die Ergebnisse der anderen beiden Standorte Luft-1 und Luft-3 belegen, dass die bodennahe Entwicklung der Emissionen durch den Hauptstandort sehr gut repräsentiert wird.



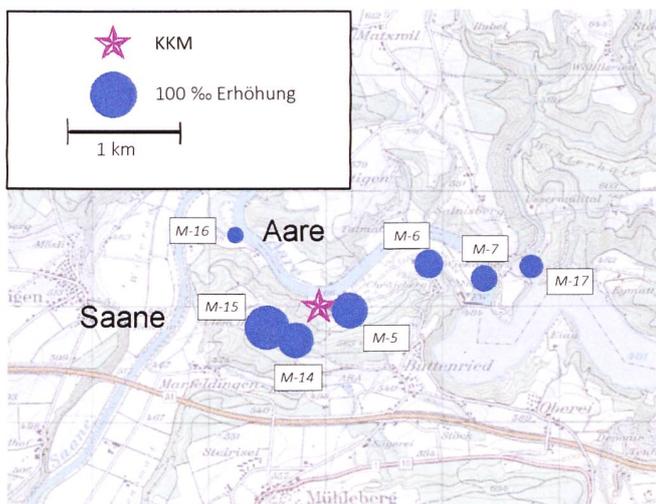
Figur 4: Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 01.06.2019 bis 22.06.2019. Probenahme: 25.06.2019. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen. Siehe Figur 6 für Angaben zu den punktuellen Luftmessungen, welche zu Beginn der Revision am 02.06.2019 durchgeführt wurden.



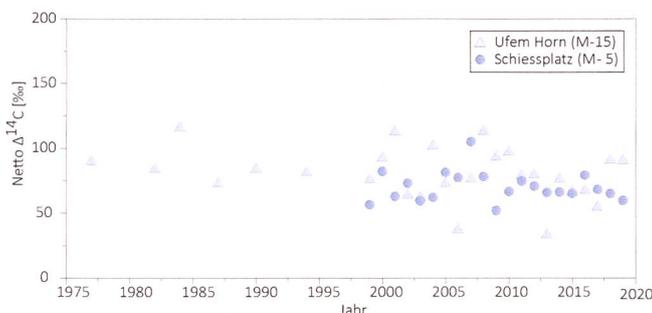
Figur 5: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (△) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4. Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA



**Figur 6:** Aktivitätskonzentrationen von  $^{14}\text{CH}_4$  (links) und  $^{14}\text{CO}_2$  (rechts) von Luftproben, welche am 02.06.2019 bei KKG an drei Standorten windabwärts des Abluftkamins gesammelt wurden (siehe Figur 4). Am Standort Luft-2 wurden 6 Proben über eine Zeit von je 75 Minuten, an den Standorten Luft-1 und Luft-3 je 3 Proben über eine Zeit von je 20 Minuten genommen. Alle Aktivitätskonzentrationen wurden um ihre Hintergrundwerte reduziert.



**Figur 7:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2019. Revisionsabschaltung: keine (endgültige) Abschaltung des Reaktors am 20.12.2019). Probenahme: 05.07.2019. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 8:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (△) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 7. Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.

Im Mittel wurden für Luft-2 über die 8-stündige Kampagne  $201 \text{ mBq/m}^3$   $^{14}\text{CH}_4$  und  $74 \text{ mBq/m}^3$   $^{14}\text{CO}_2$  beobachtet. Dies entspricht einem Aktivitätsverhältnis von 2.7 für die beiden  $^{14}\text{C}$ -haltigen Gase; etwa 73% der gasförmigen  $^{14}\text{C}$ -Emissionen erfolgten in Form von Methan, welches sich bevorzugt in Druckwasserreaktoren bildet aufgrund der chemisch reduzierenden Bedingungen dieses Reaktortyps. Die  $^{14}\text{CH}_4$ -Emissionen sind jedoch radiologisch nicht von Bedeutung, da Methan – anders als Kohlendioxid – nicht direkt über Photosynthese von Pflanzen und somit in die Nahrungskette aufgenommen wird. Die mittlere  $^{14}\text{CO}_2$ -Aktivitätskonzentration von  $74 \text{ mBq/m}^3$  entspricht einer Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Erhöhung von ca. 1'700‰. Diese sehr hohen punktuellen Maximalaktivitäten können aber nur marginal zur Gesamtdosis beigetragen haben. Dies ergibt sich aus der Tatsache, dass der Messwert der Blattproben für Sören, welche in unmittelbarer Nähe zu den Luftprobenahmestellen gegen Ende der Revisionsarbeiten gesammelt wurden, niedriger war als für Obergösgen Wald und Schachen, welche am Tag der Luftprobenahme entgegen der Windrichtung zum Abluftkamin lagen.

### Kernkraftwerk Mühleberg

Figur 7 zeigt die Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM). Die grösste Erhöhung wurde am Standort M-5 (Schiessplatz) mit 91‰ gemessen. Die 2019 gemessenen Proben liegen unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

In Figur 8 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2019 liegen in der Bandbreite des langjährigen Mittels.

### Messreihe Liebfeld/Ufem Horn

Erstmals wurde ein und derselbe Baum an zwei verschiedenen Standorten beprobt: zum einen an einem relativ unbelasteten Standort in einem stark begrünten Wohnquartier (Liebfeld-Gartenstadt, unweit des Bundesamtes für Gesundheit) und zum anderen am Standort Ufem Horn beim Kernkraftwerk Mühleberg. Hierbei wurde wie folgt vorgegangen:

Aus einer in einem grossen Topf gepflanzten Kastanienfrucht wuchs über mehrere Jahre hinweg ein Rosskastanienbaum (Aesculus) auf eine Höhe von ca. 2 Metern heran (Figur 9).

Eine Beprobung des Baumes im Herbst 2017 ergab einen Netto  $^{14}\text{C}$ -Wert von -4‰, d. h. eine geringe Verdünnung gegenüber dem damaligen Referenzwert von 12‰ (siehe «Suess-Effekt» weiter oben).

Im Frühjahr 2018, noch vor dem Austreiben des Laubs, wurde der Baum samt Topf an den Standort Ufem Horn verfrachtet, wo er den Sommer über verblieb und während der Wachstumsphase das dortige  $\text{CO}_2$  für seinen Stoffwechsel verwendete. Eine Beprobung des Baumes im Herbst 2018

ergab einen Netto  $^{14}\text{C}$ -Wert von 64%, d. h. es wurde ein unmittelbarer Anstieg auf fast denselben Wert beobachtet, wie ihn auch die bereits seit langem an diesem Standort wachsenden Buchen aufwiesen (siehe Figuren 7 und 8).

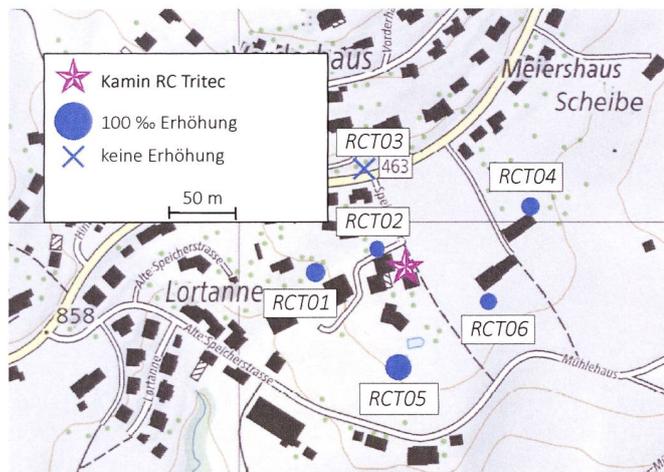
Das Jahr 2019 verbrachte der Baum wieder an seinem ursprünglichen Standort im Liebefeld. Die Messwerte kehrten wieder auf das ursprünglichen Netto  $^{14}\text{C}$ -Niveau zurück (-4%).

Im Hinblick auf die Stilllegung und den Rückbau des KKM sind daher im Jahr 2020 am Standort Ufem Horn signifikant tiefere Werte zu erwarten als während des Betriebs, da nach dem Einstellen des Leistungsbetriebs im KKM kein  $^{14}\text{C}$  mehr produziert wird. Diese Erwartung soll im Jahr 2020 anhand der regulären Messungen überprüft werden.

### RC Tritec AG

Die RC Tritec AG mit Sitz in Teufen AR ist ein schweizweit führender Anbieter von Beta-Quellen, einschliesslich  $^{14}\text{C}$ . Erstmals seit Ende der 1990er Jahre wurden von der KUP wieder Laubbäume im Umkreis des Unternehmens beprobt und auf ihren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt hin untersucht. In Figur 10 sind die Probenahmestellen auf und in der Nähe des Firmenareals dargestellt.

An fünf der sechs beprobten Standorte wurden geringfügig erhöhte Werte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen gemessen, wobei die Erhöhung zwischen 19 und 44% betrug. Am Standort RCT03, welcher sich an einer stark frequentierten Hauptstrasse befindet, wurde keine Erhöhung festgestellt. An diesem Standort gleicht der Suess-Effekt (zur Erläuterung siehe weiter oben) allfällige Erhöhungen des  $^{14}\text{C}$ -Gehalts mehr als aus.



Figur 10: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Unternehmens RC Tritec. Probenahme: 25.06.2019. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

erhöhten Werte festgestellt.

In Figur 12 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 am 12. August 2019 an vier Probenahmestellen 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 2% lagen. Im Gegensatz zu Blättern, die im Umfeld der Kernkraftwerke gesammelt wurden, findet hier im Stadtgebiet eine

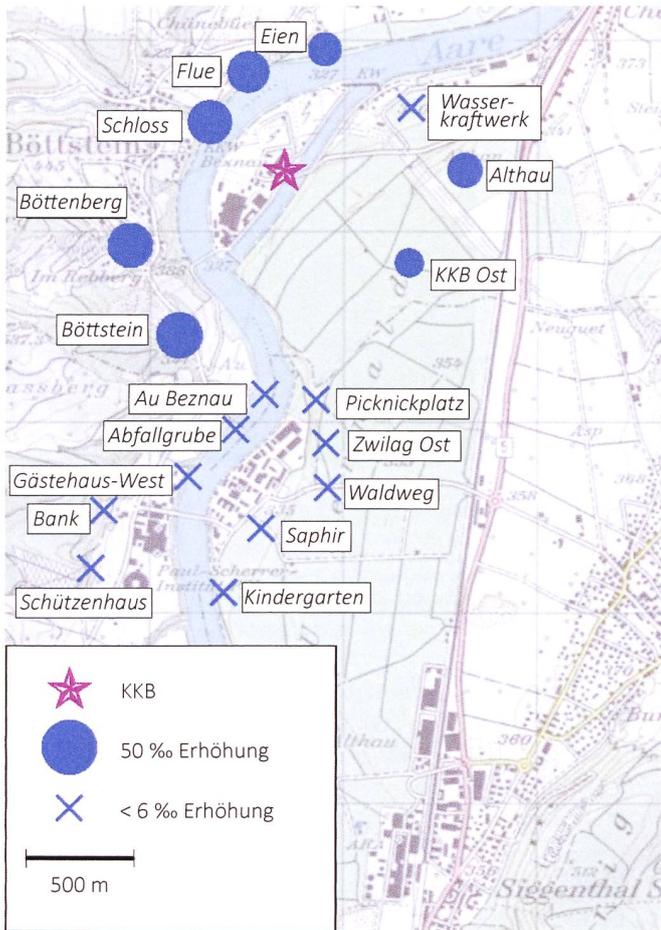


Figur 9: Roskastanie als mobile Messstation 2017 bis 2019.

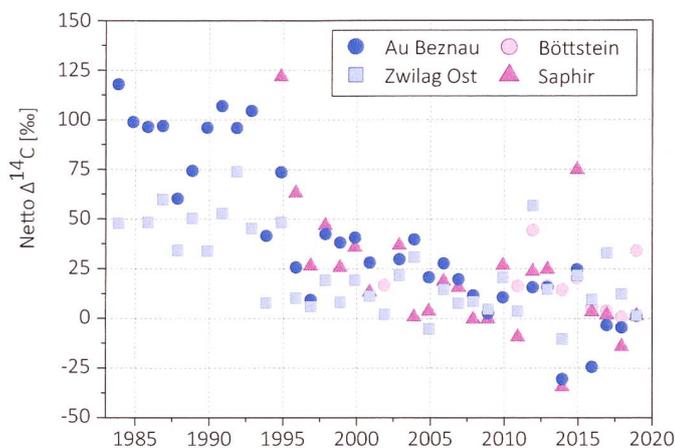
### Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau

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.

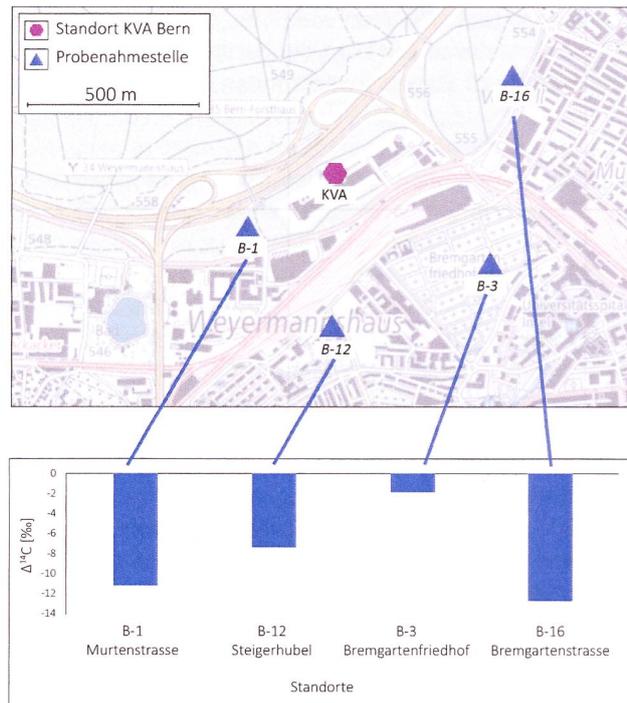
Im Kernkraftwerk Beznau (KKB) sind seit März 2018 wieder beide Reaktorblöcke im Betrieb. Im Jahr 2019 wurden höhere Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte gemessen als im Vorjahr. Im Umfeld des PSI und Zwiilag wurden keine



**Figur 11:**  
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 2019 (M. Heule, PSI, in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Revisionsabschaltung KKB I: 03.05.2019 bis 09.06.2019, KKB II: 16.08.2019 bis 20.09.2019. Probenahme: 16.09.2019. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 12:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (■▲) und westlich (●○) des PSI - ZWILAG sowie des Kernkraftwerkes Beznau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 11. Messungen bis 2016: KUP (Standort Böttstein) und PSI. Messungen ab 2017: LARA (Standort Böttstein) und PSI.



**Figur 13:**  
Probenahmestellen und  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte bei der KVA Bern.

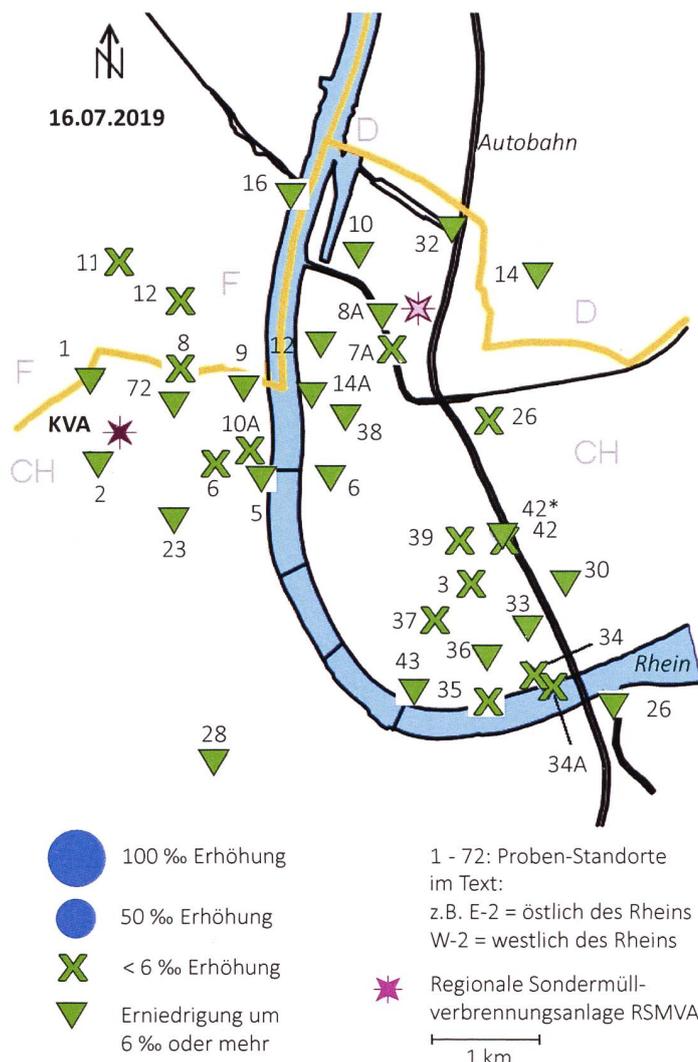
Verdünnung (oder Absenkung) der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration gegenüber den Referenzstationen statt. Dies ist eine Folge der Abgase von  $^{14}\text{C}$ -freien, fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen aufgenommen werden (siehe «Suess»-Effekt weiter oben).

In Figur 13 sind oben die vier Probenahmestellen und unten die entsprechenden Messwerte als Verdünnung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.

### Messungen in der Region Basel-Stadt

Auch im Jahr 2019 wurden drei Laubprobenahmen in Basel durchgeführt, wobei die Hauptprobenahme im Juli 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 16.07.2019 gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betragen westlich des Rheins 1‰ (Novartis Bau 27, Standort W-10A) und östlich -2‰ (Solitude, Standort E-34). Allfällige Erhöhungen der  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration werden also durch den «Suess»-Effekt an den meisten Standorten mehr als kompensiert, sodass praktisch überall 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 14, Symbol ▼).

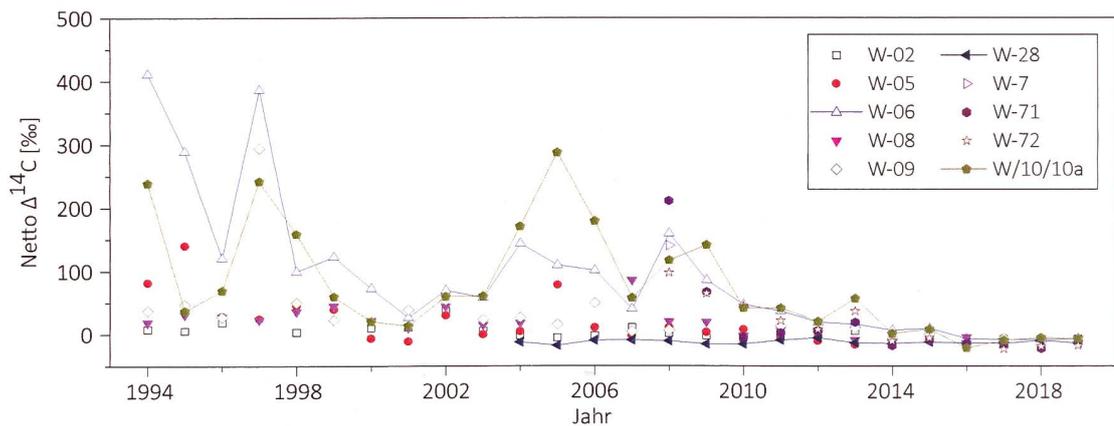


Figur 14 : Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

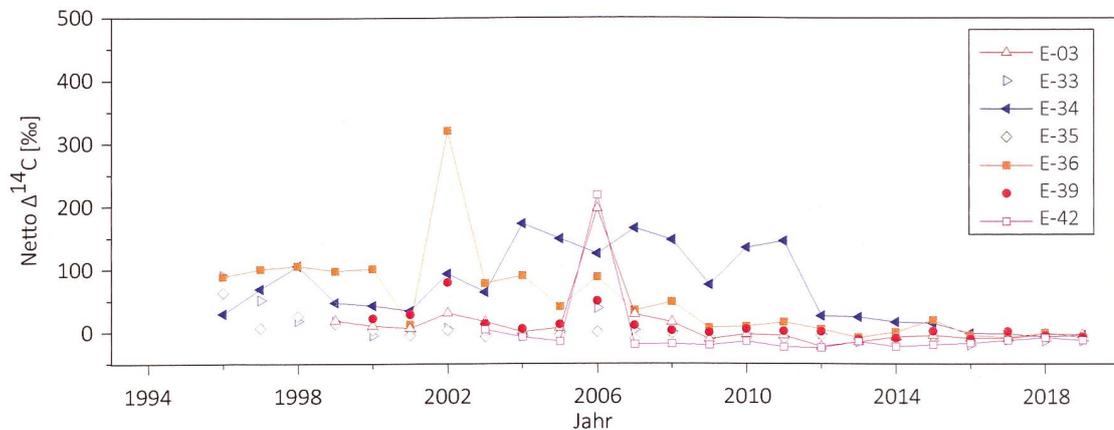
Table 2:

Im Jahre 2019 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 bis 2018) 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	
	2019 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2018 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2019 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2018 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]
E-03	-3	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	-5	169 (1996)	-	-
E-34	-2	106 (1998)	- 2	173 (2004)
E-42	-10	4 (2003)	-	-
E-42*	-8	218 (2006)	-	-
W-06	-2	438 (1994)	- 1	172 (2008)
W-10A	-6	259 (1997)	1	308 (2005)
W-28	-11	- 6 (2007)	- 11	- 13 (2013)
W-71	-5	227 (2008)	- 6	75 (2009)
W-72	-14	107 (2008)	- 12	115 (2010)



Figur 15:  
 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 16:  
 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.

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

Die Figuren 15 und 16 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich in den letzten Jahren 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. 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

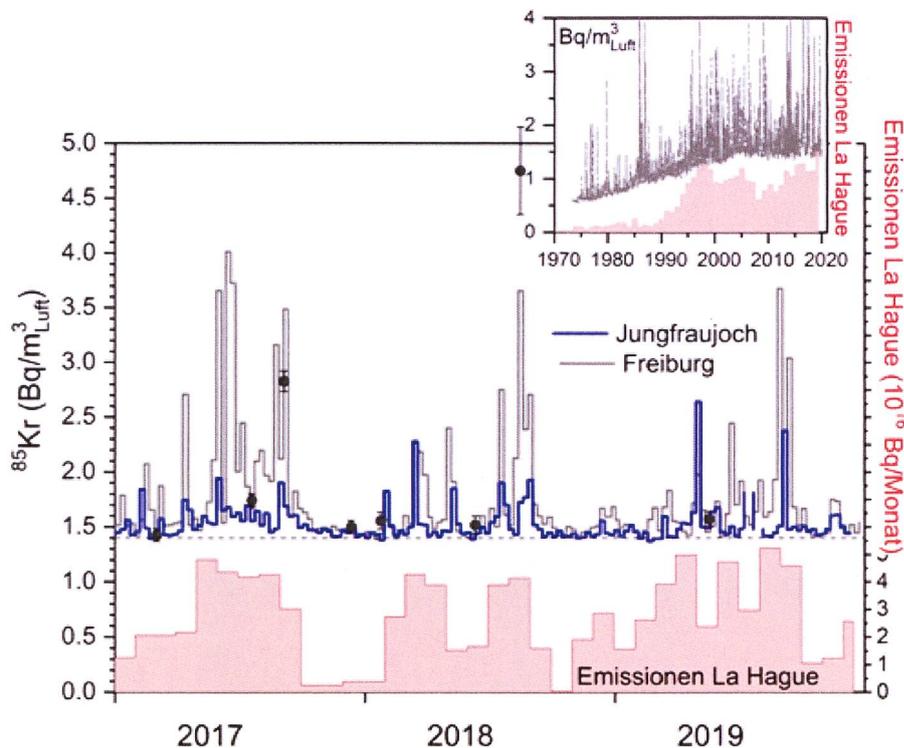
Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 und Argon-37 werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert.  $^{85}\text{Kr}$ , freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10,76 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitäts-

Konzentration 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  $\sim 0.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$ . 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 17). 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 17, kleines Bild).

In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von  $1.4\text{-}1.5 \text{ Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$  in Mitteleuropa zu beobachten.  $^{85}\text{Kr}$  wird an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfrauoch (JFJ) gesammelt und im Edelgaslabor des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg im Breisgau analysiert werden [2] (Figur 17). 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 [3]. Wegen der erhöhten Lage der Station JFJ wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf.



Figur 17:

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. [2]. 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  $10^{16}$  Bq) [3].

In der Berichtsperiode 2019 wurde eine maximale Aktivitätskonzentration von 3.7 Bq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub> in Freiburg gemessen. Der Ende April gemessene höchste Wert auf dem Jungfrauoch lag bei 2.6 Bq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub> und überstieg damit den zur selben Zeit beobachteten Wert in Freiburg. Diese seltene Situation tritt nach schneller Erwärmung nach Inversionslagen ein. Dabei können bodennahe Luftschichten, die mit <sup>85</sup>Kr von La Hague angereichert sind, vertikal bis in grössere Höhen transportiert werden. Tatsächlich wurde die Aktivitätsspitze auf dem Jungfrauoch nach einer Periode mit erhöhten Emissionen in La Hague beobachtet. Im Herbst konvergierten die Messwerte jeweils wieder gegen den Basiswert, was auf eine verringerte Aufarbeitungsaktivität hindeutet. Die durch den <sup>85</sup>Kr-Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca. 11 nSv/Jahr ( $8 \cdot 10^{-9}$  Sv/Bq m<sup>-3</sup> Jahr [4]) und ist damit gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa 3.2 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 Beobachtungen in Freiburg und auf dem Jungfrauoch.

### Argon-37 (<sup>37</sup>Ar)

<sup>37</sup>Ar wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion <sup>40</sup>Ar(n,4n)<sup>37</sup>Ar produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposphärischen Gleichgewichtsaktivität liegen bei ca. 0.5 - 2 mBq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub>, in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 7 Jahre am häufigsten gemessenen Werten.

Während Revisionsarbeiten des Kernkraftwerkes Gösgen im Juni 2019 konnten in Abwindrichtung und einer Distanz von ca. 1'000 m vom Fortluftkamin <sup>37</sup>Ar-Konzentrationen von bis zu 100 mBq/m<sup>3</sup><sub>Luft</sub> beobachtet werden (Tabelle 3). Im Vergleich zu <sup>85</sup>Kr sind die Aktivitätskonzentrationen von <sup>37</sup>Ar nochmals um den Faktor 10 geringer als die Basisaktivität von <sup>85</sup>Kr und führen deshalb zu keiner zusätzlichen Strahlenbelastung.

*Tabelle 3:  
Am 2.6.2019 in Abwindrichtung vom Kernkraftwerk Gösgen  
gemessene <sup>37</sup>Ar-Aktivitäten.*

<sup>37</sup> Ar (mBq/m <sup>3</sup> <sub>Luft</sub> )		
28.2 ± 4.5	92.9 ± 10	42.6 ± 6

### Referenzen

- [1] <https://www.ensi.ch/de/2020/01/22/bilanz-2019-sicherer-betrieb-der-schweizer-kernanlagen-ge-waehrleistet>, besucht am 15. Februar 2020
- [2] Bollhöfer, A., Schlosser, C., Schmid, S., Konrad, M., Purtschert, R. and Krais, R. (2019) Half a century of Krypton-85 activity concentration measured in air over Central Europe: Trends and relevance for dating young groundwater. *Journal of Environmental Radioactivity* 205-206, 7-16
- [3] Data provided by Orano La Hague
- [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 particules de sédiments enrichis en Pu et Am 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 de deux échantillons, l'un positif au Pu (5.1 mBq/kg ms) et l'autre positif à  $^{241}\text{Am}$  (1.4 mBq/kg ms). Les activités en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépassent pas 7.0 mBq/m<sup>3</sup>, soit des valeurs très proches de celles mesurées les années précédentes. L'analyse détaillée des données en Pu disponibles pour les filtres à air entre 2013 et 2019 montre que l'activité de l'air (en nBq/m<sup>3</sup>) est proportionnelle à la masse de particules de sol présentes sur les filtres (en µg/m<sup>3</sup>), ce qui confirme que l'activité dans l'air provient uniquement de la resuspension de particules de sol, et qu'il n'y a pas eu de contamination aérienne supplémentaire durant cette période.

### 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 suisses 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'ultratraces 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, provenant des essais nucléaires encore présent dans la stratosphère, jusque dans les couches basses de l'atmosphère [1]. L'intégration des dépôts de Pu et Am, dus aux essais nucléaires, dans le sol 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 2019. 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, poissons, etc.).

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 des effluents liquides radioactifs. 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 [2].

## 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 0.029 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et de 0.46 pour  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  si on attribue la contamination aux retombées radioactives des essais nucléaires. Le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  évolue avec le temps car  $^{241}\text{Am}$  est issue de la désintégration de  $^{241}\text{Pu}$  (émetteur bêta non mesuré dans cette étude, de période 14.4 ans) et, selon les équations de Bateman, atteindra son maximum pour les retombées des essais nucléaires des années soixante, vers 2035. 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.

Cette année, nous avons fait un effort particulier pour quantifier  $^{238}\text{Pu}$  dans chaque échantillon de sol, et répété les analyses un certain nombre de fois afin d'évaluer la reproductibilité des mesures pour ce type d'échantillon. Les résultats montrent que, dans la limite des incertitudes de mesures, les valeurs indiquées sont très reproductibles entre les aliquotes de mesures de 50 g chacun. On constate toutefois que les activités de  $^{238}\text{Pu}$ , dont les valeurs sont très basses et proches de 5 mBq/kg ms de sol, sont entachées d'une incertitude voisine de 50%. Celle-ci se reporte sur le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ , qui devient très incertain. Néanmoins, la moyenne des rapports  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  pour 25 mesures avec  $^{238}\text{Pu}$  quantifiable au-dessus de la limite de détection est de 0.029, soit très proche de ce qui est attendu pour une contamination provenant uniquement des essais nucléaires des années soixante. Malgré une forte incertitude, ce rapport reste donc un excellent indicateur et nous maintiendrons la mesure de  $^{238}\text{Pu}$  dans les sols comme objectif, nonobstant la difficulté de la mesure.

S'il n'y a pas d'émission de radioactivité dans l'atmosphère, 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 abrasion par le vent.

La Figure 1 représente l'activité en nBq/m<sup>3</sup> des filtres à air de différents sites de 2013 à 2019, 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 remises en suspension et collectées par les filtres. On constate que l'activité mesurée sur les filtres à air est directement proportionnelle à la quantité de cendres (exprimée en µg/m<sup>3</sup>) contenue sur le filtre.

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 2019 (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
Gösgen (Däniken)	0.235 ± 0.021 0.235 ± 0.015	0.0067 ± 0.0030 0.0053 ± 0.0018	0.099 ± 0.018 0.109 ± 0.007	0.422 ± 0.085 0.463 ± 0.043	0.029 ± 0.012 0.022 ± 0.007
Arenenberg	0.121 ± 0.022 0.127 ± 0.014 0.122 ± 0.011	0.0049 ± 0.0019	0.061 ± 0.008 0.053 ± 0.006	0.502 ± 0.111 0.418 ± 0.068	0.040 ± 0.016
Bezau	0.167 ± 0.016	0.0048 ± 0.0025	0.079 ± 0.007	0.474 ± 0.063	0.029 ± 0.015
Cadenazzo	0.098 ± 0.015 0.132 ± 0.024 0.127 ± 0.018 0.118 ± 0.010	0.0030 ± 0.0013	0.078 ± 0.011 0.052 ± 0.006	0.795 ± 0.166 0.393 ± 0.087	0.026 ± 0.011
CERN (Meyrin)	0.110 ± 0.009 0.112 ± 0.010	0.0037 ± 0.0015	0.043 ± 0.008 0.049 ± 0.006	0.387 ± 0.078 0.440 ± 0.063	0.033 ± 0.014
Güttingen	0.154 ± 0.022 0.175 ± 0.019 0.166 ± 0.015	0.0058 ± 0.0028 0.0056 ± 0.0022	0.087 ± 0.009 0.075 ± 0.008	0.567 ± 0.100 0.431 ± 0.066	0.033 ± 0.017 0.034 ± 0.014
Leibstadt	0.188 ± 0.017	0.0057 ± 0.0030	0.0074 ± 0.008	0.396 ± 0.054	0.030 ± 0.013
Mühleberg, Rewag	0.146 ± 0.016 0.182 ± 0.013	0.0057 ± 0.0030	0.084 ± 0.014 0.077 ± 0.006	0.573 ± 0.115 0.421 ± 0.050	0.031 ± 0.011
Mühleberg, Salvisberg	0.155 ± 0.015 0.158 ± 0.015 0.163 ± 0.011	0.0046 ± 0.0020 0.0053 ± 0.0030 0.0039 ± 0.0020	0.064 ± 0.010 0.075 ± 0.006 0.077 ± 0.008	0.413 ± 0.075 0.470 ± 0.060 0.470 ± 0.058	0.030 ± 0.014 0.033 ± 0.015 0.024 ± 0.002
Mühleberg, Ufem Horn	0.143 ± 0.015 0.164 ± 0.012	0.0032 ± 0.0014	0.067 ± 0.011 0.073 ± 0.061	0.469 ± 0.090 0.444 ± 0.049	0.020 ± 0.009
Mühleberg, Niederruntigen	0.053 ± 0.009 0.063 ± 0.008 0.070 ± 0.008	0.0024 ± 0.0014	0.042 ± 0.011 0.028 ± 0.003 0.030 ± 0.006	0.801 ± 0.249 0.443 ± 0.077 0.434 ± 0.091	0.039 ± 0.024
Mühleberg, Oberruntigen	0.226 ± 0.022 0.244 ± 0.016	0.0065 ± 0.0026 0.0060 ± 0.0006	0.097 ± 0.007 0.119 ± 0.010	0.433 ± 0.054 0.488 ± 0.054	0.029 ± 0.012 0.025 ± 0.002
Mühleberg, Clôture	0.157 ± 0.022 0.182 ± 0.013	0.0046 ± 0.0002	0.070 ± 0.006 0.093 ± 0.009	0.447 ± 0.073 0.510 ± 0.062	0.025 ± 0.002
Mühleberg, Fuchsenried	0.116 ± 0.013	0.0032 ± 0.0019	0.051 ± 0.006	0.439 ± 0.071	0.028 ± 0.017
Posieux	0.180 ± 0.018 0.210 ± 0.013	0.0051 ± 0.0030 0.0046 ± 0.0016	0.088 ± 0.020 0.087 ± 0.006	0.491 ± 0.124 0.412 ± 0.039	0.029 ± 0.014 0.022 ± 0.008
Villigen (PSI)	0.135 ± 0.015	0.0052 ± 0.0030	0.055 ± 0.005	0.407 ± 0.060	0.039 ± 0.021
Würenlingen (ZWILAG)	0.128 ± 0.031 0.169 ± 0.015 0.172 ± 0.014	0.0050 ± 0.0022 0.0054 ± 0.0021	0.080 ± 0.009 0.073 ± 0.006	0.623 ± 0.147 0.429 ± 0.053	0.030 ± 0.013 0.031 ± 0.013
Caslano	0.116 ± 0.017 0.117 ± 0.019 0.121 ± 0.013 0.122 ± 0.010	0.0040 ± 0.0005	0.066 ± 0.008 0.049 ± 0.006	0.568 ± 0.063 0.417 ± 0.083	0.033 ± 0.003
Stabio	0.386 ± 0.052 0.430 ± 0.032 0.433 ± 0.028	0.0115 ± 0.0035 0.0136 ± 0.0006	0.200 ± 0.015 0.198 ± 0.012	0.517 ± 0.080 0.461 ± 0.045	0.027 ± 0.009 0.032 ± 0.003
<b>moyenne</b>				<b>0.46 ± 0.06</b> (n=36)	<b>0.029 ± 0.005</b> (n=25)

Les deux courbes cernant les points de mesure indiquent l'intervalle de confiance à 95%, dans lequel les mesures devraient se trouver. Si un point devait figurer significativement hors de ces limites, il y aurait matière à investiguer de manière plus approfondie la présence d'une éventuelle contamination de l'air ne provenant pas de la resuspension de particules de sol. Les données de la Figure 1 confirment 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 et du volume d'air prélevé.

L'activité en  $^{241}\text{Am}$  est également quantifiable sur les filtres à air (Tableau 2). Le rapport isotopique  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  moyen de  $0.45 \pm 0.06$  nBq/m<sup>3</sup>, proche de la valeur 0.46 obtenue cette année sur les sols de Suisse, confirme que ce radioélément provient également de la remise en suspension de particules de sol. Dans deux échantillons de filtres à air (Klingnau et Liebefeld, semestre II),  $^{238}\text{Pu}$  était également quantifiable, avec un rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  de 0.040 et 0.036, soit proche de la valeur attendue de 0.029 pour les sols, confirmant la resuspension de particules de sol comme source de l'activité des filtres à air.

En 2019, l'OFSP a abandonné les collecteurs de bas débit, autrefois présents sur les sites de Mühleberg et de Leibstadt. Comme les années précédentes, le site de Posieux montre l'activité en Pu la plus élevée (1.21 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 µg/m<sup>3</sup>). De manière similaire aux années précédentes, le site de Liebefeld 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 6.7 µg/m<sup>3</sup>, contre seulement 5.9 µg/m<sup>3</sup> pour la saison humide.

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 2018. L'activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  des eaux de surface n'a pas dépassé 7.0 mBq/m<sup>3</sup> (Rhin, Pratteln). L'activité du  $^{238}\text{Pu}$  est restée inférieure à la limite de détection dans tous les cas.

Dans les eaux souterraines, l'activité en Pu est restée inférieure à 3 mBq/m<sup>3</sup>. Toutefois, pour les eaux souterraines, seuls 105 litres 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). De manière assez surprenante,  $^{241}\text{Am}$  a pu être quantifié dans l'eau souterraine collectée à Pratteln, et avec une activité environ deux fois supérieure à celle des eaux de surface. Toutefois, les eaux souterraines sont prélevées ponctuellement, et l'activité mesurée n'est pas moyennée sur une période donnée.

D'une manière générale, les résultats montrent 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 pour des mesures par spectrométrie alpha. Nous recommandons ainsi qu'un volume d'au moins 200 litres soit collecté par site en 2020.

Tableau 2:

Activités (nBq/m<sup>3</sup>) en  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  des filtres à air de grands volumes collectés en 2019 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>	$^{239+240}\text{Pu}$ nBq/m <sup>3</sup>	$^{238}\text{Pu}$ nBq/m <sup>3</sup>	$^{241}\text{Am}$ nBq/m <sup>3</sup>	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
Klingnau	5'681'997	0.71 ± 0.07	0.029 ± 0.012	0.28 ± 0.05	0.40 ± 0.08
Posieux	4'820'667	1.21 ± 0.13	< 0.07	0.51 ± 0.07	0.42 ± 0.08
Liebefeld, semestre 1	3'791'161	0.57 ± 0.08	< 0.06	0.25 ± 0.06	0.44 ± 0.12
Liebefeld, semestre 2	3'999'703	1.36 ± 0.13	0.049 ± 0.023	0.72 ± 0.11	0.53 ± 0.10
<b>moyenne</b>					<b>0.45 ± 0.06</b>

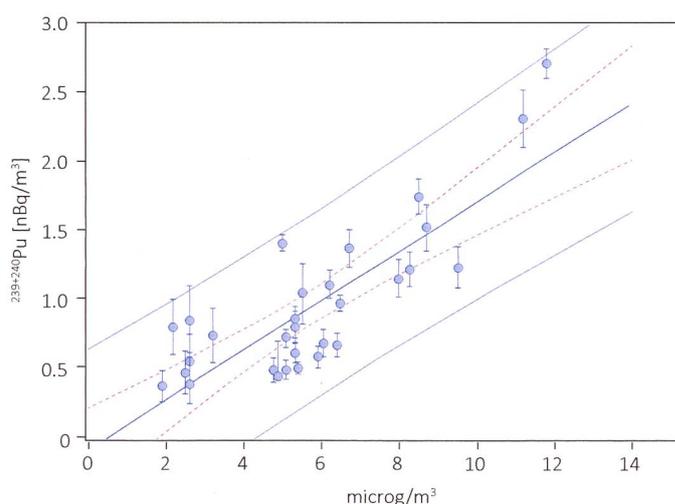


Figure 1 : Activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  des filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>) en fonction de la quantité de cendres sur les filtres à air exprimée en µg/m<sup>3</sup>, pour les années 2014-2019 et différents sites du plateau suisse.

Tableau 3:

Activités (mBq/m<sup>3</sup>) en <sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am des eaux collectées en Suisse durant l'année 2019. (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	240	1.6 ± 0.8	< LD	1.6 ± 0.5	1.00 ± 0.61
	Aar (Hagneck), janvier	205	6.6 ± 1.4	< LD	2.1 ± 0.8	0.32 ± 0.14
	Aar (Klingnau), mai-juin	360	1.7 ± 0.9	< LD	1.5 ± 0.7	0.89 ± 0.61
	Rhin (Pratteln), mars	205	7.0 ± 1.4	< LD	1.2 ± 0.5	0.18 ± 0.08
Eau souterraine	Aarberg, 06.11.2019	105	< 2	< 2	< 2	< LD
	Döttingen, 06.11.2019	110	< 1.5	< 1.5	< 1.3	< LD
	Pratteln, 06.11.2019	105	< 3	< 3	3.6 ± 1.2	< LD
Eau de pluie	Posieux	749	2.1 ± 0.5	< LD	n.m. <sup>a)</sup>	
	Mühleberg	802	1.5 ± 0.5	< LD	n.m. <sup>a)</sup>	
	Leibstadt	749	0.6 ± 0.3	< LD	n.m. <sup>a)</sup>	

<sup>a)</sup> problème lors de l'électrodéposition des sources alpha

Tableau 4:

Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2019 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), 06.11.2019	14	45 ± 9	< LD	11 ± 4	0.24 ± 0.10
	Aar (Klingnau), 06.11.2019	31	60 ± 9	< LD	21 ± 4	0.36 ± 0.09
	Rhin (Pratteln), 06.11.2019	20	46 ± 9	< LD	19 ± 4	0.39 ± 0.12
Sédiments	Aar (Hagneck), janvier	50	19.7 ± 3.3	< LD	9.3 ± 2.8	0.47 ± 0.16
	Aar (Klingnau), juin	50	63.8 ± 8.8	< LD	28.9 ± 7.0	0.45 ± 0.13
	Rhin (Pratteln), mai	50	29.2 ± 4.9	< LD	n.m.	
			38.0 ± 8.7	< LD	14.4 ± 4.5	0.38 ± 0.14
			50.3 ± 8.7	< LD	11.5 ± 3.4	0.22 ± 0.07
Poissons	Aar (Däniken), 14.08.2019	13	< LD			
	Rhin (Dogern), 17.07.2019	130	< LD	< LD	< LD	< LD
	Aar (Mühleberg), 19.05.2019	75	5.1 ± 1.5	< LD	< LD	< LD
	Aar (Bezau), 05.08.2019	115	< LD	< LD	1.4 ± 0.6	< LD
	Rhin (Leibstadt), 16.07.2019	100	< LD	< LD	< LD	< LD

Les résultats des mesures effectuées sur différents échantillons de l'environnement aquatique collectés en aval des centrales nucléaires sont présentés dans le Tableau 4. <sup>239+240</sup>Pu et <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 2018 pour ces deux types d'échantillons. Les rapports isotopiques <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu observés sont proches de 0.40 (0.38, n=7), 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.

Dans les poissons, seules des traces de <sup>241</sup>Am (Bezau) et de <sup>239+240</sup>Pu (Mühleberg) ont été mesurées. Il est essentiel d'augmenter la masse collectée si l'on désire pouvoir quantifier ces radioéléments dans tous les échantillons de poissons car, malgré des rendements chimiques supérieures à 80 % dans l'analyse de Am, seule une activité a pu être quantifiée.

## Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible ( $< 0.433 \text{ Bq/kg}$ ) 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 pas dépassé  $1.36 \text{ nBq/m}^3$ . 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 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  $7.0 \text{ mBq/m}^3$ . 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 confirment également qu'il est nécessaire de collecter plus de 200 litres d'eau pour fournir des résultats en dessus de la limite de détection de la mesure par spectrométrie alpha.

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 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 traces de  $^{241}\text{Am}$  et Pu dans deux échantillons. Pour ces échantillons également, il est nécessaire d'augmenter la quantité échantillonnée 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 et l'EAWAG pour le prélèvement des échantillons.

## Références

- [1] Corcho Alvarado et al. Nature Communications, 2014, 5, article n° 3030.
- [2] 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.

