

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: - (2020)

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: 22.01.2025

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

2020

Chapitre
Kapitel
7

Mesures de
nucléides spéciaux

Messung von
Spezialnukliden

Carbone-14, Krypton-85, Argon-37

Plutonium et Américium

Isotopes du plutonium et ^{236}U dans des
échantillons de glace du glacier du Gauli

Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37

Plutonium und Americium

Plutoniumisotopen und ^{236}U in Eisproben des
Gauligletschers

7.1

Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37

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

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

S. Szidat, 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

Zusammenfassung

Die Messungen des Gehalts an Kohlenstoff-14 (^{14}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 2020 weitergeführt. Als Referenzwert diente hierbei der ^{14}C -Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C -Quellen und Verdünnungen, an denen im Jahresverlauf je drei Messungen (im Mai, Juli und Oktober 2020) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2020 der $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert $-1 \pm 3\text{‰}$.

Die 84 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -24‰ (W-42, Basel Rosental Strassenseite) bis maximal $+99\text{‰}$ (Kernkraftwerk Leibstadt, Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lagen die Höchstwerte bei 5‰ (E-8A, Stücki-Steg) bzw. 1‰ (W-06, Voltaplatz). Selbst die Maximalwerte entsprechen einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von nicht mehr als $1\text{ }\mu\text{Sv}$ ($1\text{ }\mu\text{Sv} = 10^{-6}$ Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von ca. $4'000\text{ }\mu\text{Sv/a}$ fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr nicht ins Gewicht.

Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 (^{85}Kr) und Argon-37 (^{37}Ar) werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von ^{37}Ar sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

Kohlenstoff-14 (^{14}C)

Die ^{14}C -Messungen im Berichtsjahr wurden von den beiden Radiocarbonlaboren der Universität Bern durchgeführt: dem ^{14}C -Labor der Klima- und Umweltphysik (KUP) des Physikalischen Instituts und/oder dem Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS, LARA (AMS: accelerator mass spectrometry) des Departements für Chemie und Biochemie.

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}C -Gehalt von atmosphärischem CO_2 nahm seitdem durch Aufnahme von $^{14}\text{CO}_2$ durch die Ozeane und Verbrennung fossiler, d. h. ^{14}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 geringfügig unterschritten:

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

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 spiegelt in seinem ^{14}C -Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration wider.

Radiocarbon-Quellen (KKW und Basel) und -Verdünnungen (KVA, Industrie, Autobahnen) können den ^{14}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}C -Werte werden mit dem Radiocarbonstandard $^{14}\text{A}_0$ verglichen:

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

Tabelle 1:

Messwerte 2020 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen

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

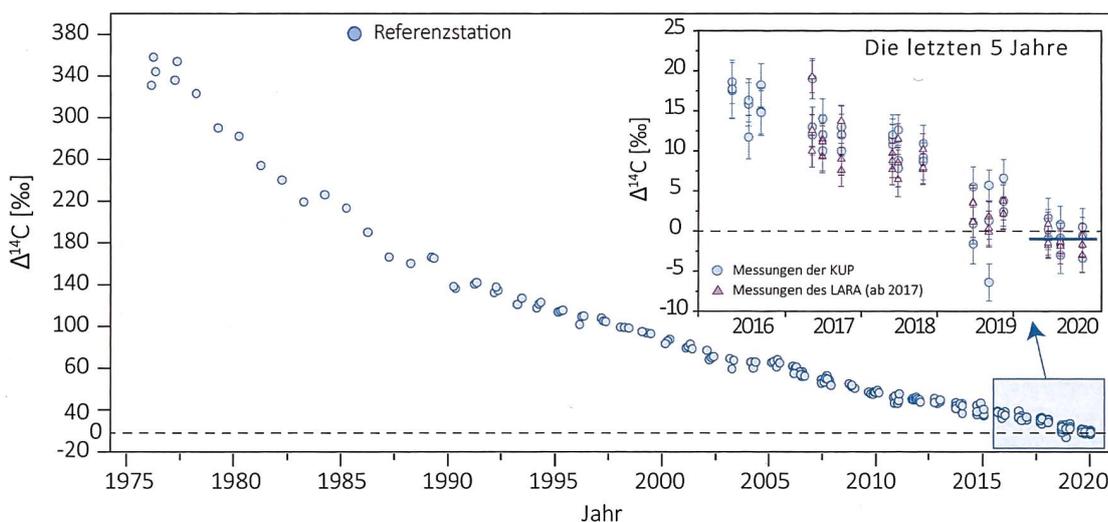
Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ^{14}C -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ^{14}C -Quellen oder -Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- bzw. Lindenblätter gesammelt. Ihr ^{14}C -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit $^{14}\text{A}_0$ verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2020 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juni, August und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2020}} = -1 \pm 3 \text{ [‰]} \quad (3)$$

Die Differenz

$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2020}} \quad (4)$$

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



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.

Aufbereitung von Laubproben für die ^{14}C -Messung

Es kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

- *Methode A:* ^{14}C -Bestimmung nur in der Blattohle¹
- *Methode B:* ^{14}C -Bestimmung im ganzen Blatt

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

Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber 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.

Der ^{14}C -Gehalt von Blättern der Referenzstationen ist im Jahr 2020 gegenüber dem Vorjahr erneut abgefallen. Mit $-1 \pm 3\text{‰}$ (gerundeter Mittelwert aller in Tabelle 1 dargestellten Messergebnisse) liegt der Referenzwert um 3‰ unter dem Wert von 2019.

^{14}C im Umfeld der Schweizer Kernkraftwerke

Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] wurden die Schweizer Kernkraftwerke im Jahr 2020 sicher betrieben, wobei die Anzahl der meldepflichtigen Vorkommnisse etwas unter dem Durchschnitt der Vorjahre lag.

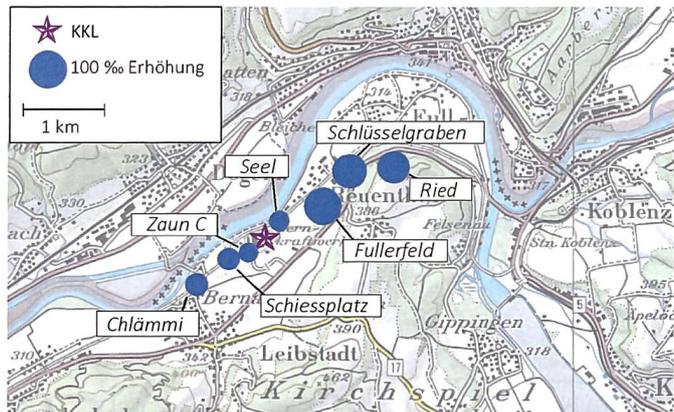
Das Kernkraftwerk Mühleberg, dessen Leistungsbetrieb am 20. Dezember 2019 eingestellt wurde, gilt seit dem 15. September 2020 als endgültig ausser Betrieb genommen. Rückbau und Stilllegung sollen im Jahr 2034 abgeschlossen sein. Die ^{14}C -Messungen im Umfeld des Kernkraftwerks werden aber auch während des Rückbaus noch einige Jahre fortgesetzt.

¹ Die Probe wird im Stickstoffstrom pyrolysiert. Dabei können sich gewisse Kohlenstoffverbindungen verflüchtigen, die somit für die Analyse ihres ^{14}C -Gehaltes verloren sind.

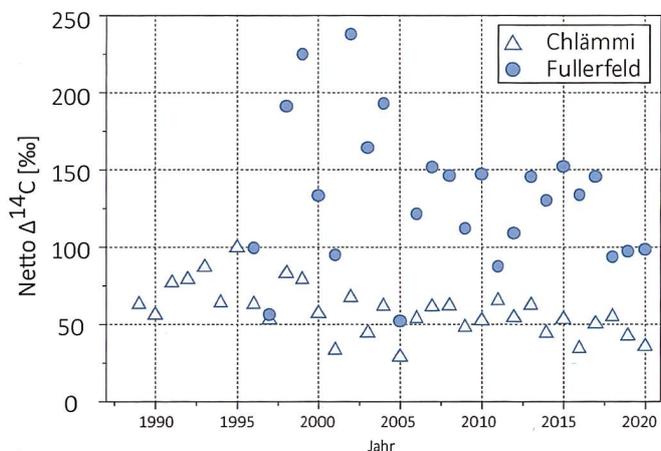
Die Laubprobenahmen im Umfeld der noch im Leistungsbetrieb befindlichen Kernkraftwerke erfolgten im Allgemeinen während oder nach der jeweiligen Jahresrevision, um auch mögliche ^{14}C -Abgaben während des Revisionsstillstands erfassen zu können. Die Messungen erfolgten im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern. Im Allgemeinen wurden ganze Blätter analysiert (Methode B).

Kernkraftwerk Leibstadt

Die Probenahme im Umkreis des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL) erfolgte am 04. August 2020 gegen Ende des vom 29. Juni bis 10. August 2020 terminierten Revisionsstillstands. Es wurden Blätter von Laubbäumen an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und auf ihren ^{14}C -Gehalt hin untersucht.



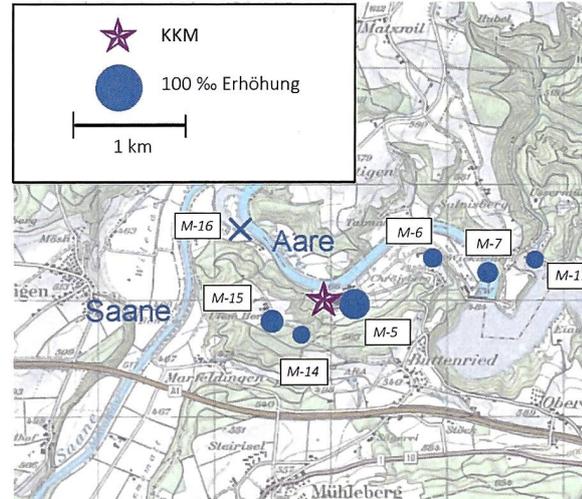
Figur 2: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2020. Revisionsabschaltung: 29.06.2020 bis 10.08.2020. Probenahme: 04.08.2020. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



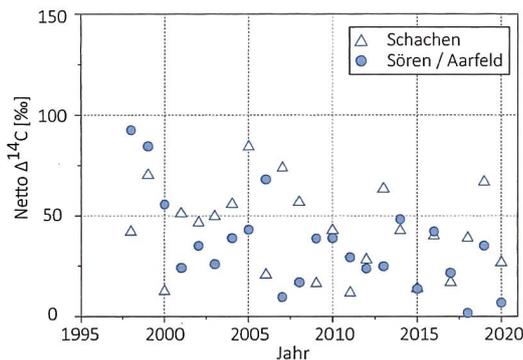
Figur 3: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chläämli seit 1989 beprobt (Standorte: siehe Figur 2). Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.



Figur 4: Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 06.06.2020 bis 24.06.2020. Probenahme: 24.06.2020. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



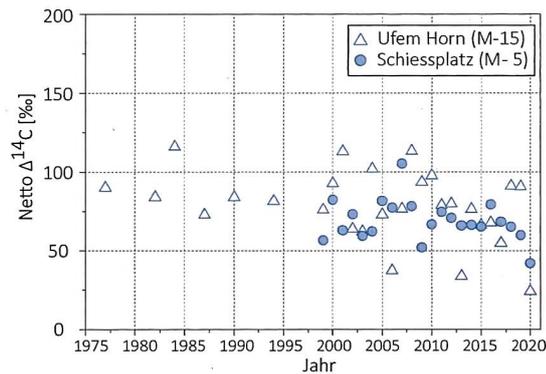
Figur 6: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2020. Probenahme: 14.05.2020. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



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

Dabei wurden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste ^{14}C -Konzentration ergab sich wiederum in ca. 1'000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Fullerfeld (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Chlämli die höchsten Werte auf.

Figur 3 zeigt die gemessenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämli seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2020 lag der höchste Messwert nordwestlich des KKL bei 99‰ (Standort Fullerfeld). In südwestlicher Richtung wurde 2020 am Standort Chlämli mit 37‰ der höchste Wert gemessen. Der grösste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ und stammt vom Standort Fullerfeld (2002).



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.

Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 4 sind die Resultate der am 24. Juni 2020 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen (KKG) dargestellt. Die Messwerte liegen deutlich unter den langjährigen Mittelwerten. Der höchste ^{14}C -Messwert resultierte in diesem Jahr mit einer Erhöhung von ca. 28‰ 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

Im Sommer 2020 wurden im Umfeld des mittlerweile ausser Betrieb genommenen Kernkraftwerks Mühleberg (KKM) zwei separate Probenahmen durchgeführt, um zu prüfen, wie sich die Ausserbetriebnahme des KKM auf den ^{14}C -Gehalt des Laubs im Verlauf des Sommers auswirken würde. Die erste Probenahme fand am 14. Mai 2020, die zweite am 10. September 2020 statt. Die zweite Probenahme führte an den meisten Standorten zu etwas niedrigeren Messwerten.

In Figur 6 sind die Ergebnisse der ersten Probenahme dargestellt. Die grösste Erhöhung wurde mit 43‰ am Standort M-5 (Schliessplatz) gemessen. Sämtliche im Jahr 2020 gemessenen Proben liegen deutlich 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 2020 liegen unter dem langjährigen Mittel.

Messreihe Ufem Horn

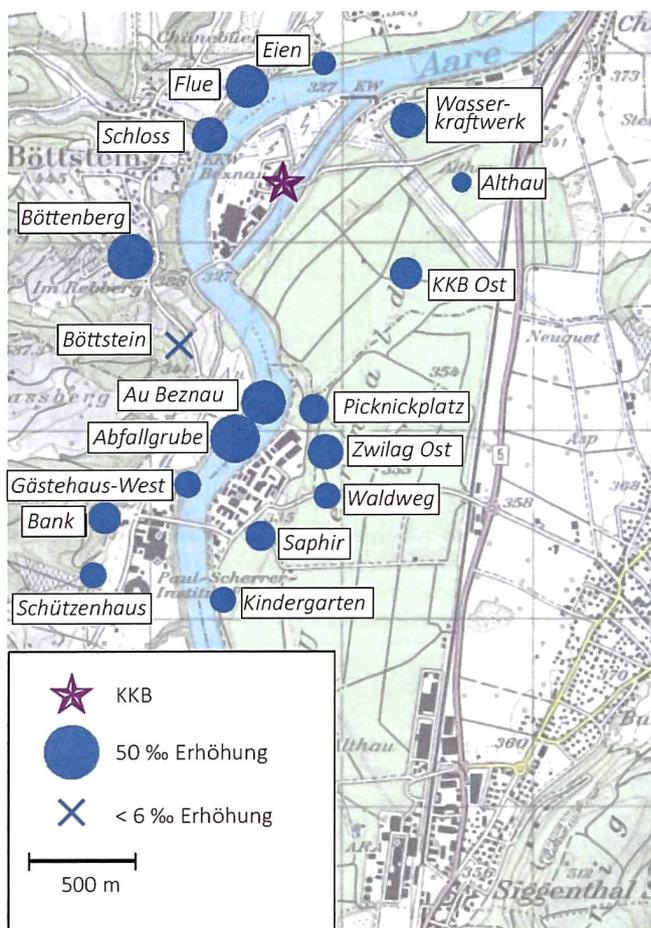
Zusätzlich zu den oben aufgeführten Messungen im Umkreis des KKM wurden von der KUP sechs Monatsproben vom Standort Ufem Horn gemessen, an dem in der Vergangenheit die höchsten Messwerte aufgetreten sind. Die erste Probenahme erfolgte am 15. Mai 2020, die letzte am 08. Oktober 2020. Sämtliche Messwerte lagen im Bereich zwischen 22‰ und 27‰ in guter Übereinstimmung mit den beiden Messungen des LARA (24‰ bzw. 26‰).

Der ^{14}C -Gehalt der beprobten Bäume scheint sich also nach der Einstellung des Leistungsbetriebs relativ rasch auf das Niveau von unbelasteten Standorten zuzubewegen.

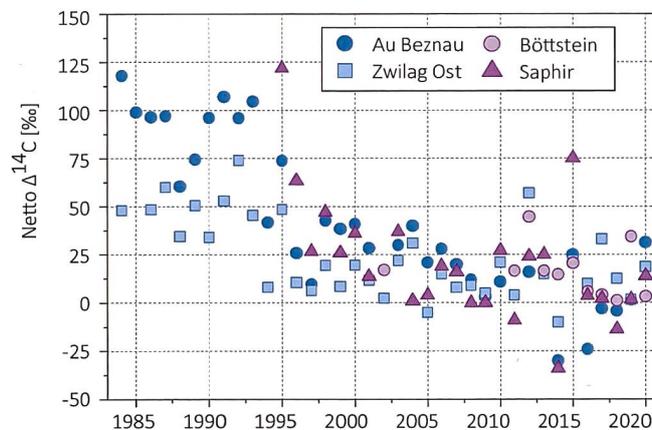
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau

Erstmals wurden die zu diesen Standorten gehörenden ^{14}C -Messungen vollumfänglich im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) des Departements für Chemie und Biochemie der Universität Bern durchgeführt. Die Messwerte im Umfeld des PSI und Zwiilag lagen im Jahr 2020 deutlich über den Werten aus den Vorjahren, welche vom PSI gemessen wurden.

In Figur 9 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden.



Figur 8: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWIILAG) und des Kernkraftwerkes Beznau (KKB) im Jahr 2020. Revisionsabschaltung KKB I: 17.04.2020 bis 23.05.2020, KKB II: 08.08.2020 bis 18.08.2020. Probenahme: 05.05.2020 (PSI und Zwiilag) bzw. 04.08.2020 (KKB). Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

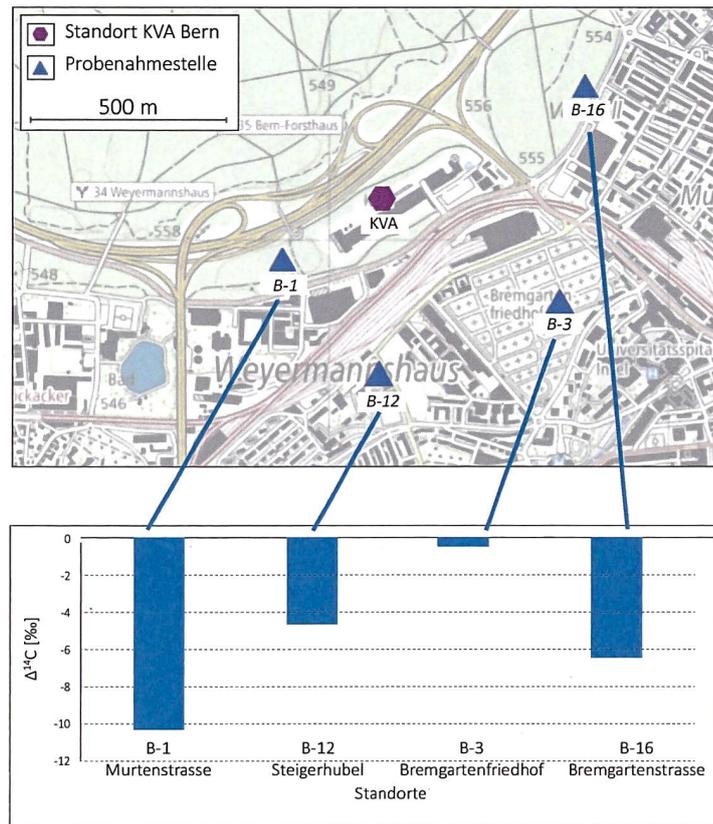


Figur 9: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (■▲) und westlich (●○) des PSI/ZWIILAG sowie des Kernkraftwerkes Beznau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 10. Messungen bis 2016: KUP (Standort Böttstein) und PSI. Messungen ab 2017: LARA (Standort Böttstein) und PSI.

Kehrichtverbrennungsanlagen

In Blättern von Bäumen, die am 27. August 2020 an vier Probenahmestellen im Umfeld der Kehrichtverbrennungsanlage (KVA) Bern Forsthaus gesammelt wurden, konnte keine erhöhte ^{14}C Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Messpunkte wiesen Werte auf, die unter dem Referenzwert von -1‰ lagen. Im Gegensatz zu Blättern, die im Umfeld der Kernkraftwerke gesammelt wurden, findet hier im Stadtgebiet eine Verdünnung (oder Absenkung) der ^{14}C -Konzentration gegenüber den Referenzstationen statt. Dies ist eine Folge der Abgase von ^{14}C -freien, fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen aufgenommen werden (siehe «Suess»-Effekt weiter oben).

In Figur 10 sind oben die vier Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte als Verdünnung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.



Figur 10:
Probenahmestellen und $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte bei der KVA Bern.

Messungen in der Region Basel-Stadt

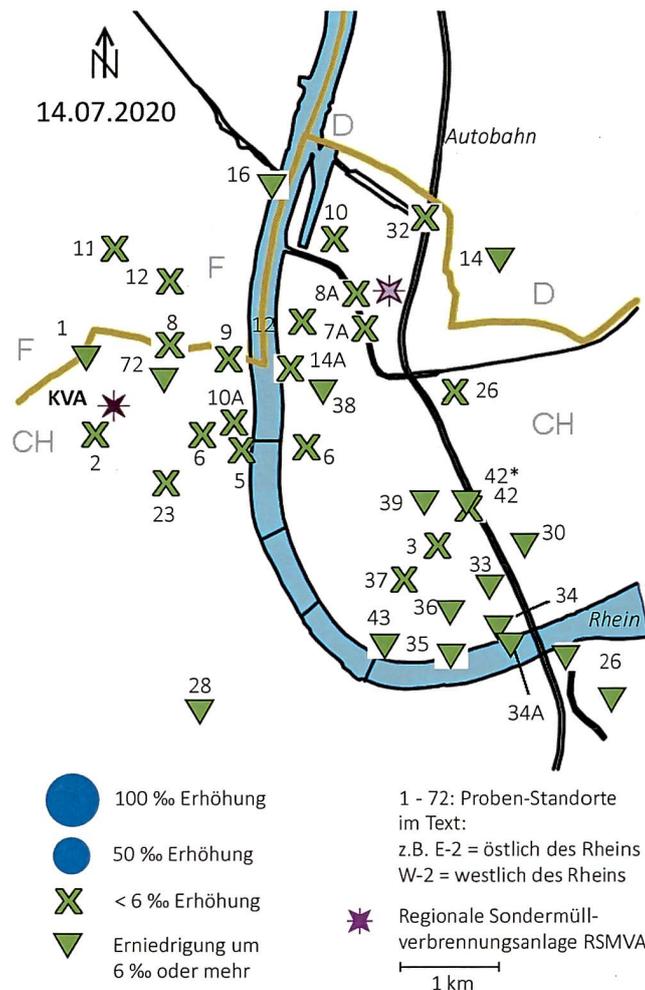
Auch im Jahr 2020 wurden drei Laubprobenahmen in Basel durchgeführt, wobei die Hauptprobenahme im Juli stattfand. Im Westen des Stadtgebiets befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten diejenigen um das Areal der Firma F. Hoffmann-La Roche, ganz im Norden diejenigen um das Areal der von der Firma Veolia betriebenen regionalen Sondermüllverwertungsanlage (RSMVA). Die höchsten am 14.07.2020 gemessenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betragen westlich des Rheins 1‰ (Voltaplatz, Standort W-06) und östlich 5‰ (Stücki-Steg, Standort E-7A). An praktisch allen anderen Standorten wurde aufgrund des weiter oben erwähnten «Suess»-Effekts eine Verdünnung der ^{14}C -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt, häufig um 6‰ oder mehr (Figur 11, Symbol ▼).

Auch im französischen und deutschen Grenzgebiet nördlich des Novartis-Werks St. Johann bzw. östlich des RSMVA-Verbrennungsofens wurden keine Erhöhungen registriert.

An einigen Standorten wurden Messungen sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten ganzen Blättern durchgeführt. Die Vergleichswerte sind in Tabelle 2 dargestellt.

Die Figuren 12 und 13 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}C -Werte gegenüber früheren Jahren ist darauf zurückzuführen, dass Novartis das benötigte ^{14}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.

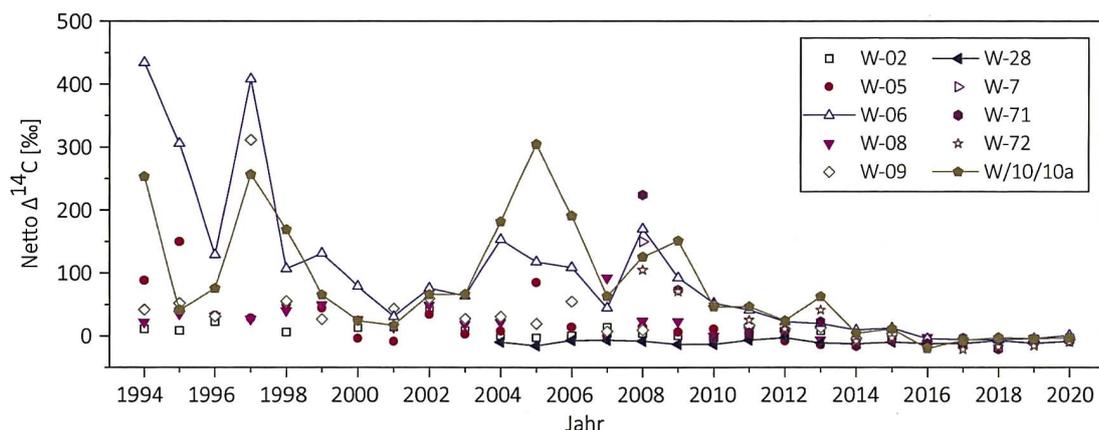


Figur 11:
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

Tabelle 2:

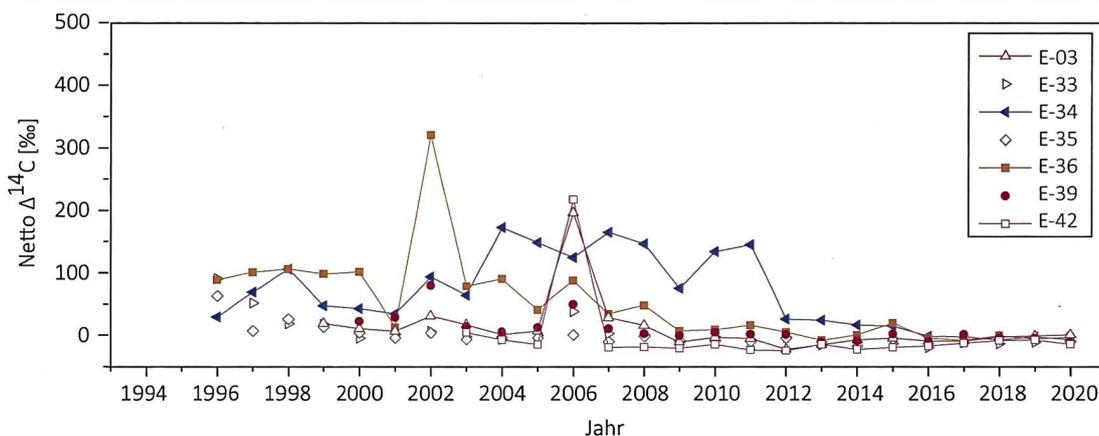
Im Jahre 2020 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 bis 2019) in Basel östlich (E-nn) und westlich (W-nn) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von ^{14}C -Quellen weitgehend unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	2020 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2019 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2020 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2019 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]
E-03	2	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	-2	169 (1996)	-	-
E-34	-6	106 (1998)	-4	173 (2004)
E-42	-24	4 (2003)	-	-
E-42*	-12	218 (2006)	-	-
W-06	4	438 (1994)	4	172 (2008)
W-10A	-2	259 (1997)	0	308 (2005)
W-28	-6	-6 (2007)	-8	-8 (2020)
W-71	-8	227 (2008)	-3	75 (2009)
W-72	-13	107 (2008)	-5	115 (2010)



Figur 12:

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



Figur 13:

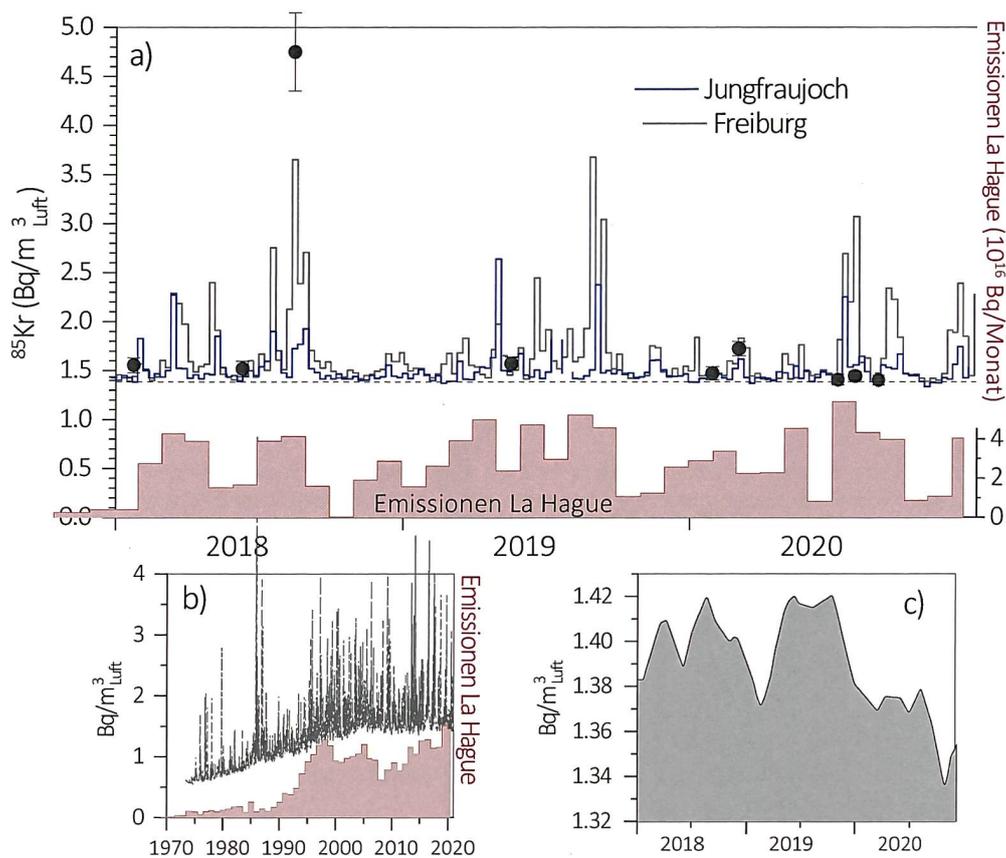
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.

Edelgas-Radionuklide

Die beiden Edelgas-Radionuklide ^{85}Kr und ^{37}Ar werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}Kr , freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.74 Jahren und den langen Zeiten zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von ^{37}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}Kr)

Das radioaktive Edelgasisotop ^{85}Kr ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von 10.74 ± 0.02 Jahren. Natürliches atmosphärisches ^{85}Kr hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch ^{84}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}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}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 14). Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6.2% ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von



Figur 14:

a) Atmosphärische ^{85}Kr -Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3'500 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 Jungfraujoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg i. Br. durchgeführt [2].

b) Langzeitmessreihe der ^{85}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) [4].

c) Basisaktivitätskonzentration berechnet als 2 Monatsmittel der wöchentlich minimalen ^{85}Kr -Werte.

den globalen Freisetzungsraten von ^{85}Kr übertroffen, was zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 14, kleines Bild).

In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von $1.4\text{-}1.5 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$ in Mitteleuropa zu beobachten [2]. In der Südhemisphäre liegt die Basisaktivität wegen praktisch fehlender Emittenten um ca. 15% tiefer [3]. ^{85}Kr wird an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfraujoch (JFJ) gesammelt und im Edelgaslabor des BfS in Freiburg analysiert werden [2] (Fig. 14). Zum Vergleich sind auch die entsprechenden Werte von Freiburg im Breisgau (D) 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 [4]. Wegen der erhöhten Lage der Station JFJ wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf.

Im 1. Halbjahr 2020 wurden wenige und kleine Aktivitätsspitzen gemessen, was auf die reduzierten Emissionen von La Hague zurückzuführen ist. Aktivitätsspitzen und Emissionen nahmen Anfangs der zweiten Jahreshälfte wieder zu. Die Basisaktivitätskonzentration ging im 2020 geringfügig zurück (Fig. 14c), möglicherweise als Folge der globalen COVID-Pandemie. Stichproben von Bernluft, die in wenigen Minuten gesammelt wurden, wurden am Physikalischen Institut der Universität Bern gemessen. Die Resultate bestätigen den Aktivitätsbereich und die zeitliche Abfolge, die in Freiburg oder auf dem Jungfraujoch beobachtet wurden. Die durch den ^{85}Kr -Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca. 11 nSv/Jahr ($8 \cdot 10^{-9} \text{ Sv/Bq m}^{-3} \text{ Jahr}$) [5] und ist damit gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa 3.3 mSv verursacht durch natürlich vorkommendes Radon.

Argon-37 (^{37}Ar)

^{37}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. $0.5\text{--}2\text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 7 Jahre am häufigsten gemessenen Werten. Die ^{37}Ar -Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre ist damit 1'000 mal kleiner als die von ^{85}Kr und ist deshalb für die jährliche Strahlenbelastung nicht relevant.

Referenzen

- [1] <https://www.ensi.ch/de/2021/01/25/bilanz-2020-pandemie-hatte-keinen-einfluss-auf-die-sicherheit-der-kernanlagen/>, besucht am 15. März 2021
- [2] Bollhöfer, A., Schlosser, C., Schmid, S., Konrad, M., Purtschert, R. and Kraus, 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] Kersting, A., Schlosser, C., Bollhöfer, A., Suckow, A. (2020) Evaluating 5 decades of atmospheric ^{85}Kr measurements in the southern hemisphere to derive an input function for dating water and ice with implications for interhemispheric circulation and the global ^{85}Kr emission inventory. *Journal of Environmental Radioactivity* 225, 106451. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106451>
- [4] Data provided by Orano, La Hague
- [5] 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, F. Barraud, C. Pilloud, P.-A. Pittet, L. Pfefferlé, M. Straub
Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, Lausanne

Résumé

Nous avons mesuré le plutonium (Pu) et l'américium (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 n'ont pas présenté d'activité en Pu et Am mesurable au-dessus de la limite de détection de la méthode. L'activité en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépasse pas 4.5 mBq/m^3 , soit des valeurs très proches de celles mesurées les années précédentes. L'analyse détaillée des données en Pu et Am disponibles pour les filtres à air entre 2013 et 2020 montre que l'activité de l'air (en nBq/m^3) est proportionnelle à la masse de particules de sol présentes sur les filtres (en $\mu\text{g/m}^3$), 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. Dans un programme de surveillance nationale de la radioactivité, on recherche ces radioéléments dans différents compartiments de l'environnement, car la mesure de Pu et Am, qui sont des émetteurs de particules alpha, est très sensible (par ex : quelques mBq/kg dans le sol). On possède ainsi un bon indicateur de contamination possible de l'environnement par l'industrie nucléaire.

Le plutonium possède une chimie d'oxydoréduction complexe et existe sous des formes physico-chimiques variées dans l'environnement. En conséquence, déterminer son comportement géochimique (dont sa mobilité) et sa biodisponibilité représente un véritable défi. L'américium, existant uniquement sous forme de cation Am^{3+} , se comporte plutôt comme un cation Ln^{3+} et est fortement hydrolysé aux valeurs environnementales de pH (6-8). L'IRA, sur mandat de 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}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 0.42, recalculés pour l'année 2020. 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 particulière-

ment 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 de mesures obtenus dans les sols échantillonnés sur l'ensemble du territoire suisse, avec une focalisation sur les sites aux environs des centrales nucléaires suisses. Les activités sont très proches de celles obtenues les années précédentes, qui sont en diminution constante ces vingt dernières années, et ne montrent pas de marquage autre que par

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 2020 (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg MS	^{238}Pu Bq/kg MS	^{241}Am Bq/kg MS	$^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$
Arenenberg	0.148 ± 0.015 0.131 ± 0.016	0.0049 ± 0.0023 < LD	0.061 ± 0.006 0.063 ± 0.006 0.060 ± 0.009	0.429 ± 0.059 0.459 ± 0.090	0.033 ± 0.016
Bezau	0.152 ± 0.010	0.0044 ± 0.0015	0.070 ± 0.007	0.462 ± 0.054	0.029 ± 0.010
Cadenazzo	0.110 ± 0.010 0.111 ± 0.013 0.115 ± 0.016	< LD < LD < LD	0.048 ± 0.005 0.054 ± 0.007 0.048 ± 0.006 0.047 ± 0.006	0.420 ± 0.036 0.487 ± 0.087 0.435 ± 0.081	
Caslano	0.093 ± 0.010 0.090 ± 0.012 0.097 ± 0.012 0.105 ± 0.016	< LD < LD < LD < LD	0.050 ± 0.005 0.047 ± 0.006 0.042 ± 0.006 0.037 ± 0.006	0.535 ± 0.078 0.539 ± 0.097 0.430 ± 0.083 0.358 ± 0.080	
Däniken	0.206 ± 0.016	0.0041 ± 0.0018	0.088 ± 0.007	0.427 ± 0.048	0.020 ± 0.010
Güttingen	0.152 ± 0.013 0.161 ± 0.020 0.153 ± 0.017	0.0046 ± 0.0019 < LD < LD	0.070 ± 0.006 0.067 ± 0.007 0.074 ± 0.009	0.458 ± 0.057 0.416 ± 0.066 0.484 ± 0.081	0.030 ± 0.010
Leibstadt	0.199 ± 0.024 0.203 ± 0.018 0.193 ± 0.038	< LD 0.0053 ± 0.0006 < LD	0.080 ± 0.008 0.089 ± 0.011	0.394 ± 0.053 0.461 ± 0.107	0.026 ± 0.005
Meyrin	0.145 ± 0.017	< LD	0.046 ± 0.005	0.317 ± 0.052	
Mühleberg	0.164 ± 0.011	0.0040 ± 0.0015	0.086 ± 0.007	0.524 ± 0.054	0.024 ± 0.009
Posieux	0.193 ± 0.013	0.0049 ± 0.0017	0.087 ± 0.008	0.450 ± 0.051	0.025 ± 0.009
Stabio	0.596 ± 0.032 0.632 ± 0.052 0.598 ± 0.033	0.017 ± 0.003 0.019 ± 0.005 0.021 ± 0.004	0.281 ± 0.020 0.268 ± 0.018 0.232 ± 0.018	0.472 ± 0.042 0.425 ± 0.045 0.388 ± 0.037	0.029 ± 0.006 0.030 ± 0.008 0.035 ± 0.007
Villigen-PSI	0.171 ± 0.013	0.0043 ± 0.0018	0.078 ± 0.007	0.454 ± 0.053	0.025 ± 0.010
Würenlingen	0.163 ± 0.013	0.0058 ± 0.0019	0.073 ± 0.007	0.451 ± 0.053	0.036 ± 0.012
moyenne				0.44 ± 0.04 (n=24)	0.028 ± 0.005 (n=12)

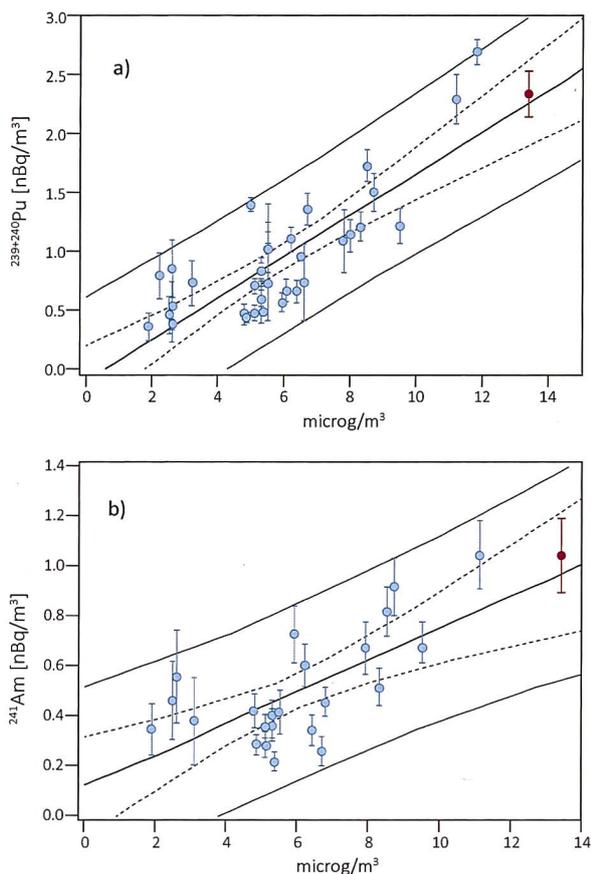


Figure 1 :
 Activité en a) $^{239+240}\text{Pu}$ et b) ^{241}Am , des filtres à air (nBq/m³) en fonction de la quantité de cendres sur les filtres, exprimée en $\mu\text{g}/\text{m}^3$, pour les années 2013-2020 et différentes stations de prélèvement du plateau suisse. En rouge, la valeur d'activité déterminée sur le mélange des filtres à air de Cadenazzo, du CERN, de Göttingen, de Klingnau, de Liebefeld et de Posieux durant les tempêtes de sable du Sahara, du 01.02.2021 au 24.02.2021 (voir encadré ci-contre).

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. Pour l'année 2020, ces rapports sont de 0.028 ± 0.005 pour $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et de 0.44 ± 0.04 pour $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$. Par comparaison, 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.

Nous avons répété certaines analyses 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 pour $^{239+240}\text{Pu}$ sont très reproductibles entre les aliquotes de mesures de 50 g chacun. On constate que l'activité en ^{238}Pu est très difficile à quantifier lorsque l'activité en $^{239+240}\text{Pu}$ est proche ou inférieure à 100 mBq/kg, ce qui correspond à

une activité en ^{238}Pu de seulement 2.8 mBq/kg de sol sec. De plus, il est nécessaire que tout le processus de séparation chimique, qui est complexe et comporte au moins 6 étapes sensibles, se déroule avec un rendement total supérieur à 65% pour être en mesure de quantifier ^{238}Pu pour des activités en $^{239+240}\text{Pu}$ d'environ 200 mBq/kg sol sec. Néanmoins, nous avons pu déterminer ^{238}Pu au-dessus de la limite de détection pour 12 échantillons de sol et le rapport moyen $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est de 0.028 ± 0.005 , 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}Pu dans les sols comme objectif, nonobstant la difficulté de la mesure.

Incursions de sables du Sahara de février 2021¹⁾

L'analyse des filtres à air collectés sur les stations de Cadenazzo, du CERN, de Göttingen, de Klingnau, de Liebefeld et de Posieux durant les tempêtes de sable du Sahara, du 01.02.2021 au 24.02.2021 a confirmé que celles-ci n'ont pas contribué à un apport significatif de radioactivité dans l'air en Suisse. L'analyse de Pu et Am s'est portée sur un mélange de 24 filtres HV, collectés sur une semaine chacun, soit un volume de 2'445'127 m³, afin d'obtenir une sensibilité de mesure suffisante pour pouvoir quantifier ces deux radioéléments indicatifs de fission/activation nucléaire.

En effet, la zone de tempête saharienne englobait la région algérienne de Reggane, où la France a effectué quatre essais nucléaires atmosphériques et 13 essais nucléaires souterrains au début des années soixante. Cette zone est donc susceptible d'être contaminée par les retombées de ces tirs. Les résultats montrent que la quantité de particules de sable collectées sur les filtres était légèrement supérieure à ce qui est habituellement mesuré en Suisse, soit 13.4 mg/m³ (Suisse: 1.9 - 11.8 mg/m³). L'activité en $^{239+240}\text{Pu}$ était de 2.34 ± 0.20 nBq/m³ et celle en ^{241}Am de 1.04 ± 0.15 nBq/m³. Ces activités s'intègrent parfaitement parmi celles mesurées habituellement en Suisse, comme démontré dans la Figure 1. De plus, les rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0.035 ± 0.015 et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0.45 ± 0.08 sont très représentatifs des retombées des essais nucléaires des années soixante, comme discuté ci-dessus.

¹⁾ Bien que ne se rapportant pas à l'année 2020, les résultats des mesures des filtres aérosols de février 2021 ont été inclus dans ce rapport. Les résultats détaillés figureront également dans le rapport 2021.

Tableau 2:

Activités (nBq/m³) en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans des filtres à air de grands volumes collectés en 2020 sur différents sites en Suisse. Incertitudes à 95 %.

Lieu	Volume m ³	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu nBq/m ³	²³⁸ Pu nBq/m ³	²⁴¹ Am nBq/m ³
Klingnau	5'516'539	0.57 ± 0.17	< 0.3	n.m ^{a)}
Posieux	4'551'283	1.09 ± 0.27	< 0.3	n.m
Liebefeld, semestre 1	3'724'306	0.74 ± 0.32	< 0.7	n.m
Liebefeld, semestre 2	3'724'306	0.72 ± 0.31	< 0.6	n.m

a) non mesuré au cause d'un problème technique lors de la séparation chimique.

S'il n'y a pas d'émission accidentelle de radioactivité dans l'atmosphère, l'activité en Pu et Am des filtres à air reflète la remise en suspension de particules de sol par abrasion par le vent. Les résultats pour trois stations de prélèvement à haut volume sont présentés dans le tableau 2.

La Figure 1 représente l'activité en nBq/m³ des filtres à air de différentes stations de prélèvement en Suisse de 2013 à 2020, 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/m³) contenue sur le filtre. 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.

Comme les années précédentes, le site de Posieux montre une activité en Pu légèrement plus élevée (1.09 nBq/m³) que les autres stations. C'est aussi pour ce site que la quantité de cendres après calcination des filtres à air est la plus élevée (7.8 µg/m³). Contrairement aux années précédentes, le site de Liebefeld présente une activité en Pu similaire pour les deux semestres, malgré une quantité de particules de 5.5 µg/m³ au premier semestre, contre 6.6 µg/m³ lors du second semestre. Les activités sont par contre comparables à celles des années précédentes (0.6-1.3 nBq/m³).

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 2019. L'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu des eaux de surface n'a pas dépassé 4.5 mBq/m³ dans le Rhin à la station de Pratteln, qui, comme les années précédentes, présente l'activité en Pu la plus élevée parmi les stations analysées. L'activité du ²³⁸Pu est restée inférieure à la limite de détection dans tous

Tableau 3:

Activités en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am (mBq/m³) des eaux collectées en Suisse durant l'année 2020. (Incertitudes à 95%).

Type	Lieu	Volume [l]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mBq/m ³	²³⁸ Pu mBq/m ³	²⁴¹ Am mBq/m ³	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Eau de rivière	Rhône, Chancy	221	1.6 ± 0.7	< 1.4	0.7 ± 0.3	0.43 ± 0.25
	Aar (Hagneck), avril - mai	250	1.4 ± 0.4	< 0.8	< 1.6	
	Aar (Klingnau), mai et juillet	285	2.7 ± 0.5	0.5 ± 0.2	2.2 ± 0.5	0.82 ± 0.25
	Rhin (Pratteln), janvier - février	290	4.5 ± 1.0	< 1.3	2.4 ± 0.5	0.54 ± 0.16
Eau souterraine	Aarberg, 08.07.2020	160	< 1.5	< 1.5	< 1.8	
	Döttingen, 08.07.2020	165	< 1.0	< 1.0	< 1.3	
	Pratteln, 08.07.2020	160	< 1.1	< 1.1	< 1.7	
Eau de pluie	Posieux	1'051	0.82 ± 0.20	< 0.3	0.39 ± 0.09	0.47 ± 0.16
	Mühleberg	1'205	0.59 ± 0.18	< 0.3	0.42 ± 0.09	0.71 ± 0.26
	Leibstadt	1'080	0.48 ± 0.17	< 0.3	0.30 ± 0.08	0.62 ± 0.27

Tableau 4:

Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2020 en aval des centrales nucléaires suisses (Incertitudes à 95%).

Type	Lieu	MS [g]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mBq/kg MS	²³⁸ Pu mBq/kg MS	²⁴¹ Am mBq/kg MS	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Plantes aquatiques	Aar (Hagneck), 02.11.2020	14	33 ± 10	< 20	< 30	
	Aar (Klingnau), 13.11.2020	22	45 ± 11	< 15	31 ± 9	0.69 ± 0.26
	Rhin (Pratteln), 13.11.2020	14.5	28 ± 9	< 19	< 30	-
	Aar (Däniken), 02.11.2020	11.2	49 ± 14	< 25	36 ± 12	0.74 ± 0.33
Sédiments	Aar (Hagneck), juin 2020	52	43.4 ± 9.3	< 11	26.5 ± 4.9	0.61 ± 0.17
	Aar (Klingnau), juin 2020	52	51.2 ± 10.4	< 11	19.4 ± 3.5	0.38 ± 0.10
	Rhin (Pratteln), juillet 2020	54	81.1 ± 10.7	< 7	31.8 ± 5.5	0.39 ± 0.08
Poissons	Aar (Däniken), 26.06.2020	45	< 82	< 82	n.m.	
	Rhin (Dogern), 22.10.2020	200	< 1	< 1	< 14	
	Aar (Beznau), 28.06.2020	107	< 15	< 15	n.m.	
	Rhin (Leibstadt), 26.06.2020	54	< 6	< 6	< 3	

les cas. Lorsqu'elle est quantifiable, l'activité en ²⁴¹Am est toujours plus basse que celle en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ce qui confirme que l'origine de la contamination vient de la contamination provoquée par les retombées des essais nucléaires des années soixante.

Dans les eaux souterraines, l'activité en Pu et en Am est restée inférieure à 1.8 mBq/m³. L'augmentation du volume collecté, qui est passé d'environ 100L à 160L pour les trois stations a permis d'abaisser la limite de détection mais n'a pas permis de quantifier l'activité.

D'une manière générale, les résultats montrent qu'il est nécessaire de prélever au moins 200L d'eau pour être en mesure de déterminer les activités en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am avec une sensibilité suffisante pour des mesures par spectrométrie alpha. Les eaux de pluie ont présenté des activités quantifiables en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et en ²⁴¹Am, avec un rapport d'activité proche, dans les incertitudes de mesures, de ce qui est attendu pour les retombées des essais nucléaires des années soixante (env. 0.60 ± 0.25). L'activité en ²³⁸Pu est restée inférieure à la limite de détection proche de 0.2-0.3 mBq/m³.

Les résultats des mesures effectuées sur différents échantillons de l'environnement aquatique collectés en aval des centrales nucléaires sont présentés dans le Tableau 4. ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am sont mesurables au-dessus des limites de détection dans les sédiments (phase suspendue) de rivière, dans un rapport d'activité proche de celui des sols (voir Tableau 1). Les faibles quantités de plantes aquatiques prélevées (14-22 g de masse sèche (MS)) est un obstacle à la quantification systématique de Pu et Am si le rendement de séparation chimique n'atteint pas 65%, ce qui n'est pas toujours le cas dans nos mesures. Comme pour les sédiments, les activités en Pu et Am des plantes aquatiques sont restées proches de celles des années précédentes.

Dans les poissons, aucune activité quantifiable au-dessus de la limite de détection n'a été mesurée. Dans un cas, le faible rendement de séparation chimique a abouti à une limite de détection élevée de 82 mBq/kg de masse sèche. Dans la station de Dogern, l'augmentation de la masse de l'échantillon à 200g MS a réduit la limite de détection à 1 mBq/kg mais n'a toujours pas permis la quantification, ce qui est en soit réjouissant, car cela signifie un environnement sain du point de vue de la radioactivité artificielle résiduelle. Pour tous les échantillons aquatiques, ²³⁸Pu est resté en dessous des limites de détection.

Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible (<0.650 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 1.1 nBq/m³. 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 4.5 mBq/m³. Pour ces mesures également, le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu 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 dessous 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. 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 radiotoxiques. 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.

7.3

Bestimmung von Plutoniumisotopen und ^{236}U in Eisproben des Gauligletschers

R. Gosteli, J. Corcho, S. Rölli, F. Hauenstein, M. Astner, H. Sahli

Labor Spiez, Bundesamt für Bevölkerungsschutz, Spiez

L. Gnägi

ABC Abw Lab 1, Kompetenzzentrum ABC-KAMIR, Spiez

Departement für Chemie, Biochemie und Pharmazie, Bern

G. Juvet

Geographisches Institut, Universität Zürich

Einleitung

Der Gauligletscher im Berner Oberland ist ca. 6 km lang und ca. 1 km breit und bedeckt mit seinen Seitengletschern eine Fläche von knapp 11 km². Bekannt wurde der Gletscher vor allem durch den Flugzeugabsturz vom 18. Nov. 1946 einer amerikanischen Douglas C-53 Dakota mit 8 Passagieren und 4 Besatzungsmitgliedern an Bord. Das Flugzeug setzte unfreiwillig auf einer Höhe von 3'350 m auf dem Gauligrat auf. Sämtliche 12 Passagiere der Unglücksmaschine konnten schliesslich nach 6 Tagen durch die Schweizer Luftwaffe gerettet werden. Das Wrack der C-53 wurde kurz nach der Rettung eingeschneit und ins Eis eingebettet. Das Wrack wurde durch den Eisfluss nach unten transportiert. Zwischen 2012 und 2018 gelangten immer wieder Trümmerteile an die Oberfläche in der Ablationszone des Gletschers auf einer Höhe von ca. 2'500 m (Figur 1). Gemäss ersten Modellrechnungen des Gletscherflusses sollte das ganze Wrack dann erst in den Jahren 2027 bis 2035 ein Kilometer weiter oben zum Vorschein kommen¹.

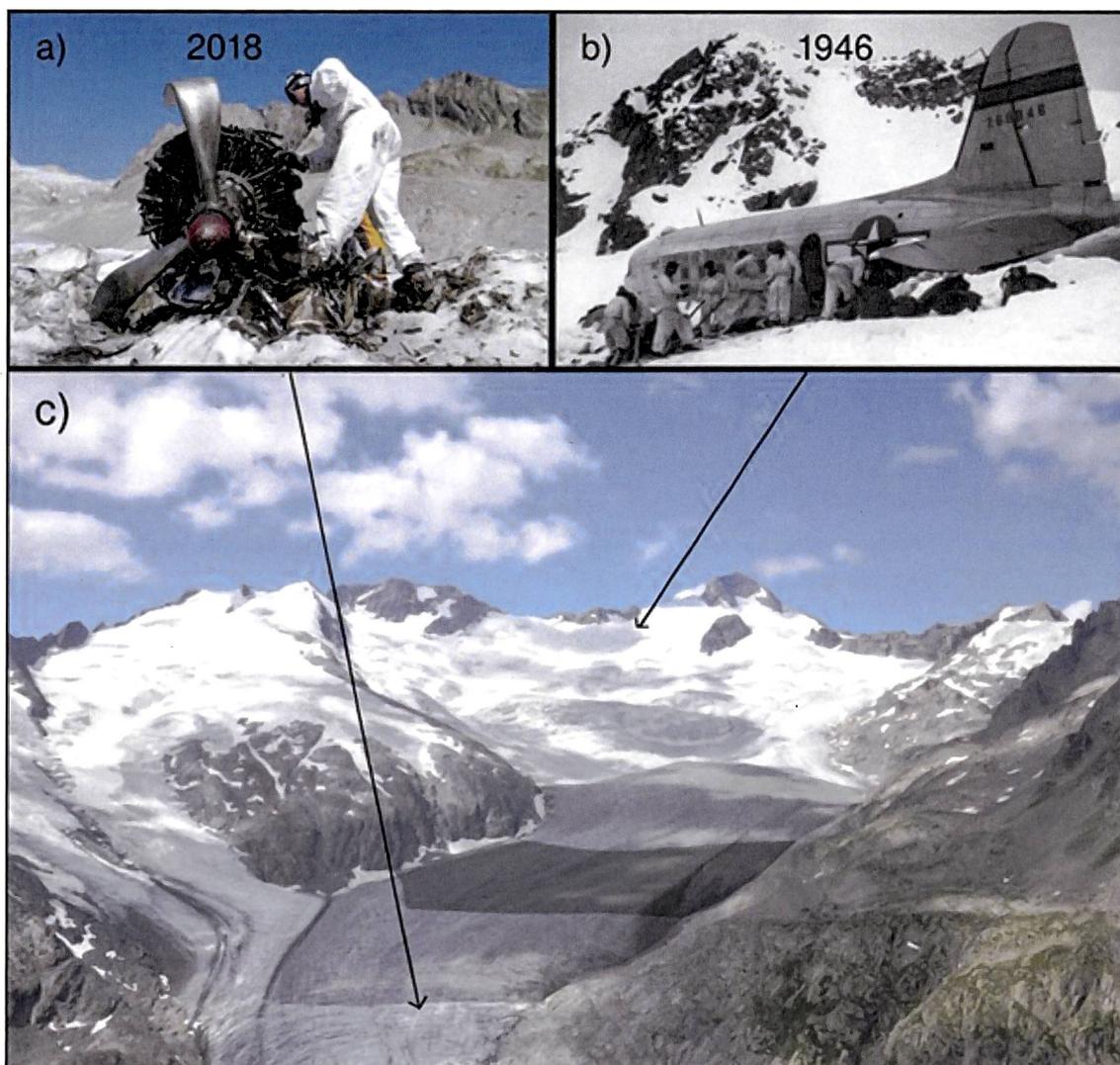
Durch die überirdischen Nuklearwaffentests der 50iger und 60iger Jahre gelangten grosse Mengen an künstlichen Radionukliden in die Atmosphäre. Durch Niederschläge gelangten die Radionuklide in chronologischer Reihenfolge in das Gletschereis. Die erste Periode endete mit einer maximalen Radionuklidkonzentration für 1958 und die

1 (L. Compagno, 2019)

zweite für 1963. Dieses Konzentrationsmuster wurde als Zeitmarker zur Datierung von Oberflächeneis benutzt. Es wurden alle 25 - 50 m eine Probe von ca. 1 kg Oberflächeneis in der Ablationszone über eine Distanz von ca. 2 km genommen. In diesem Bereich wurden gemäss einem ersten Gletscherflussmodell die Radionuklide des Global Fallout der 60iger Jahre vermutet. Plutonium und Uran wurden aufkonzentriert und massenspektrometrisch bestimmt. Anhand der Resultate konnte dann die Modellrechnung des Gletscherflusses angepasst werden.

Probennahme

Im Rahmen des WK 2019 des Abw Lab 1 wurden mehr als 200 Oberflächenproben entlang 5 Linien in der Ablationszone des Gauligletschers genommen. Mit einem Eisflussmodell wurden die Zonen berechnet wo Gletschereis aus den 50iger und 60iger Jahren vermutet wurde. Gemäss diesen Berechnungen wurde im Bereich der Isochronen von 1954-1967 Proben in einem Abstand von 25m entnommen. Weiter oben und weiter unten wurden Proben im Abstand von 50 m entnommen (Figur 1). Die obersten 30 cm vom Schmelzeis wurden zuerst weggekratzt. Danach wurde trockenes Eis ausgebohrt und das zerhackte Eis in 2 L Plastikgefässen gesammelt (Figur 2). Das Eis wurde geschmolzen, so dass man pro Probe ca. 1.2 kg Wasser erhielt.



Figur 1:
A) Motor und Propeller der Dakota an der Eisoberfläche 2018. B) Dakota während der Rettungsaktion. C) Probenahmezonen 2019: Proben wurden im Abstand von 25 m (dunkel schattiert) und 50 m (hell schattiert) entnommen (Figur von G. Jouvet, 2020).

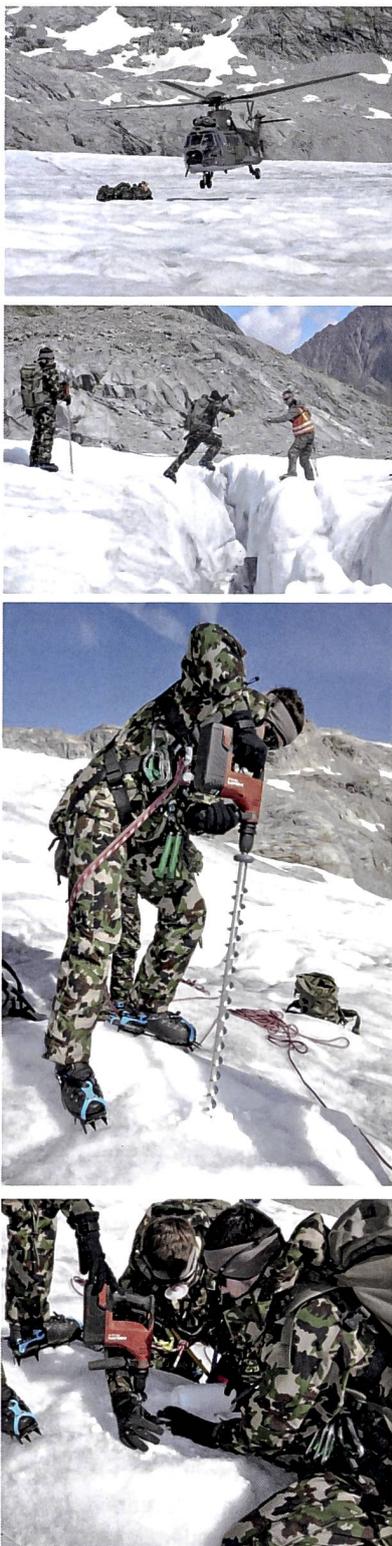
Probenvorbereitung

Die Proben wurden mit Salpetersäure angesäuert (pH 1). 50 ml-Aliquote wurden für Tritium- und quantitative Uranbestimmungen entnommen. Die Tritium Aliquote wurden destilliert und mit Flüssigzintillation gemessen. Zum Rest der Proben wurde 60 mg Fe und 300 fg ^{242}Pu als Tracer zugegeben. Pu und U wurden mit einer Eisenhydroxid Kofällung bei pH 6 gefällt. Die Fällung wurde in 4.5 M HNO_3 gelöst und anschliessend Pu und U mit einer TEVA resp. UTEVA Säule nacheinander abgetrennt. Pu und U wurden jeweils mit 20 ml verdünnter Salpetersäure eluiert². Die radiochemischen Ausbeuten lagen nahe bei 100%. Pu und U wurden somit 50 mal aufkonzentriert.

² (S. Röllin, 2020)

Messung mittels ICP-MS

Quantitative ^{238}U Bestimmungen der geschmolzenen Eisproben wurden mit dem Element 2 ICP-MS mit externer Kalibration gemacht. Die Plutonium- und Uranisotopenmessungen wurden mit dem Neptune Multikollektor ICP-MS durchgeführt. Um die Sensitivität zu verstärken, wurden die Proben mit einem Aridus II Desolvator vernebelt. Sämtliche Plutonium Isotope wurden mit SEM Detektoren (Sekundär Elektronen Multiplier) gemessen. Bei den Uranisotopenmessungen wurde ^{234}U und ^{236}U ebenfalls mit SEM Detektoren und ^{235}U und ^{238}U mit Faraday Detektoren gemessen. Die Sensitivität der SEM Detektoren lag bei 150 cps (counts per second) per 1 fg/ml ($1 \text{ fg} = 1.10^{-15} \text{ g}$) ^{242}Pu bei einem Untergrundsignal von ca. 4 cps. Die höchsten ^{239}Pu Signale waren ca. 9'000 cps, was unter Berücksichtigung eines



Figur 2:
 Probennahme mit dem ABC Abw Lab 1, CH-Flugwaffe und Kompetenzzentrum Gebirgsdienst der Armee auf dem Gauligletscher. Pro Probe wurden ca. 2L von trockenem und zerhacktem Eis in Plastikgefässen gesammelt. Die obersten 30 cm Schmelzeis wurde vorher entfernt (Figur von G. Juvet, 2020).

Aufkonzentrierungsfaktors von 50 einer ^{239}Pu Konzentration von $1'100 \text{ fg/kg}$ (2.5 mBq/kg) bezogen auf Gletschereis entspricht. Die Nachweisgrenzen lagen ca. $1'000$ mal tiefer, d.h. bei ca. $1 \mu\text{Bq/kg}$ ^{239}Pu . Die Nachweisgrenze von ^{236}U ist vor allem limitiert durch das Tailing des ^{238}U Signals. Die natürliche Urankonzentrationen der Eisproben lag bei ca. 30 ng/kg ^{238}U im Gletschereis. Die höchsten $^{236}\text{U} / ^{238}\text{U}$ Isotopenverhältnisse lagen bei 10^{-5} , d.h. ca. $1'000$ mal grösser als das Urantailing. Die höchsten ^{236}U Aktivitäten lagen bei $1.5 \mu\text{Bq/kg}$ bezogen auf Gletschereis.

Resultate

Figur 3 und Figur 4 zeigen die ^{239}Pu und ^{236}U Aktivitäten entlang der 5 Linien und als topographische Übersicht. Die Aktivitäten beider Nuklide zeigen ein ähnliches Muster. Die höchste gemessene ^{239}Pu Konzentration lag bei 2.5 Bq/kg . Dies ist ca. drei mal kleiner als die maximale ^{239}Pu Konzentration in Eisbohrkernen vom Colle Gnifetti³. Die kleinsten ^{239}Pu Konzentrationen lagen knapp über der Nachweisgrenze bei $1.4 \mu\text{Bq/kg}$ was 600 ag/kg ($1 \text{ ag} = 1.10^{-18} \text{ g}$) entspricht. Diese Konzentrationen liegen im Konzentrationsbereich wie sie für frischen Schnee auf der Zugspitze ($75 - 2'823 \text{ ag/kg}$)⁴ oder in Wasser vom Val Piora im Tessin ($5 \mu\text{Bq/kg}$) gemessen wurden⁵. Figur 5 zeigt die Aktivitäten von ^{239}Pu , ^{236}U , ^3H entlang der Linie 3. Alle drei Nuklide zeigen eine maximale Konzentration für die Probe 246. Die maximale ^3H Aktivität betrug 44 TU . Unter der Annahme dass das Eis von 1963 stammt, erhält man für den Zeitpunkt der Schneedeponition $1'020 \text{ TU}$. Dies wäre ca. 3 bis 5 mal kleiner als die für mittlere Breitengrade im Jahr 1963 erwartete ^3H Aktivität.

3 (J. Gabrieli, 2011)

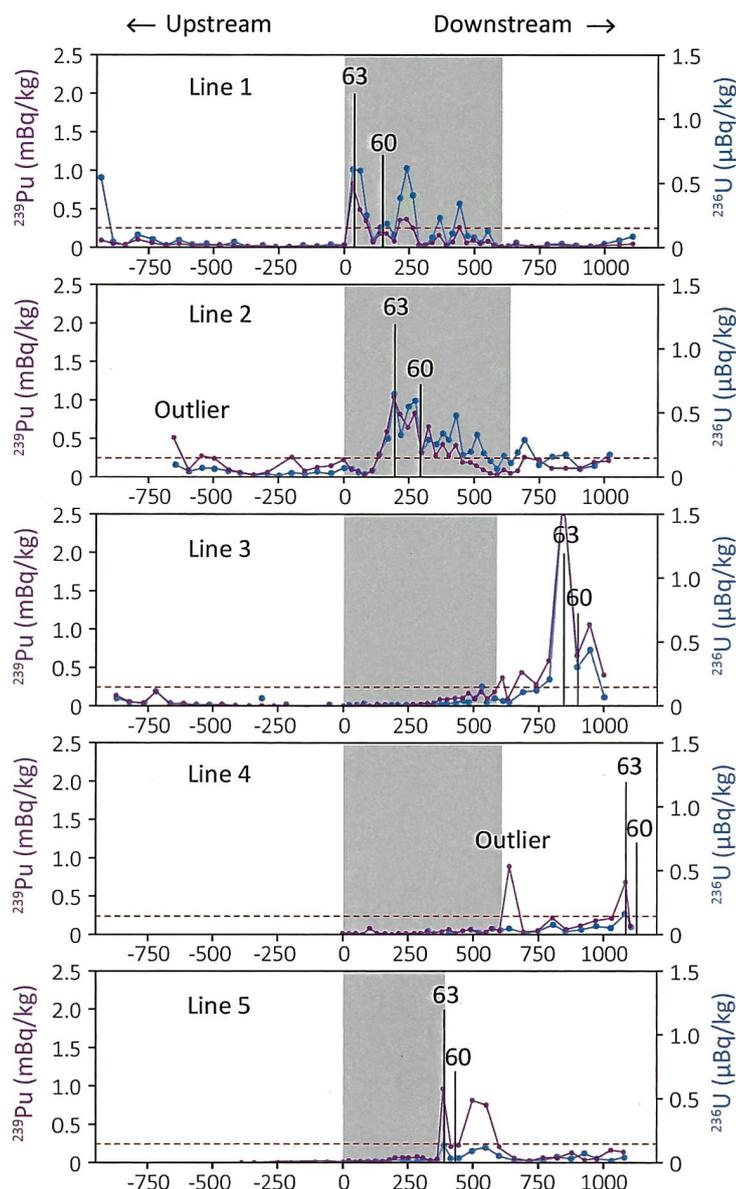
4 (K. Gückel, 2017)

5 (F. Luisser, 2009)

Tabelle 1 zeigt die Aktivitäten von ^{239}Pu , ^{236}U , ^3H und die Isotopenverhältnisse von $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{236}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ für die Proben entlang Linie 3. Die $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Isotopenverhältnisse lagen im Bereich von $0.14 (\pm 0.01)$ und $0.259 (\pm 0.005)$, mit einem Durchschnittswert von $0.178 (\pm 0.03)$. Dieser durchschnittliche Wert entspricht $0.176 (\pm 0.004)$, dem Isotopenverhältnis von Global Fallout von den Nuklearwaffentests⁶. Die $^{236}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ Isotopenverhältnisse streuten im Bereich von $0.14 - 0.81$, mit einem Durchschnittswert von $0.40 (\pm 0.19)$. Dieser Bereich ist ähnlich den Werten die für den Austfonna Gletscher in Svalbard ($0.18 - 1.4$)⁷ und für den Eastern Tien Shan Gletscher in Zentralasien (0.27 ± 0.09)⁸ gefunden wurde.

Im Gegensatz zu den Tiefenverteilungen anhand von Borkernen ist die Probennahme hier nicht kontinuierlich, d.h. je nach Abstand der Isochoren kann es sein, dass die maximale Konzentration «verpasst» wird. Der Grund für die im Vergleich zu anderen Gletschern kleineren Maximalkonzentrationen könnte auch eine teilweise Auswaschung von Radionuklieden sein, da es sich beim Gauligletscher um einen temperierten Gletscher handelt. Das Muster der Aktivitäten hängt stark von der Lage der Isochoren ab. Das kann auch die Ursache der stark streuenden $^{236}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ Isotopenverhältnisse sein, da Uran sich möglicherweise ein bisschen anders als Plutonium verhält. Um den Einfluss von Querkontaminationen zu minimieren, wurden für die Modellrechnungen nur die ^{239}Pu Konzentrationen $>0.25 \text{ mBq/kg}$ verwendet. Aufgrund der Anzahl der Atomwaffentests erwartet man für die ^{239}Pu Aktivität ein Maximum im Jahr 1963 und ein weniger gut erkennbares Maximum für das Jahr 1958. Es wurde darum neben dem Peak von 1963 das Minimum zwischen den Peaks dem Jahr 1960 zugeordnet. Aus Figur 3 ist zu erkennen, dass die Fließgeschwindigkeit besonders in der Mitte

6 (P.W. Krey, 1976)
 7 (C.C. Wendel, 2013)
 8 (C. Wang, 2017)



Figur 3:

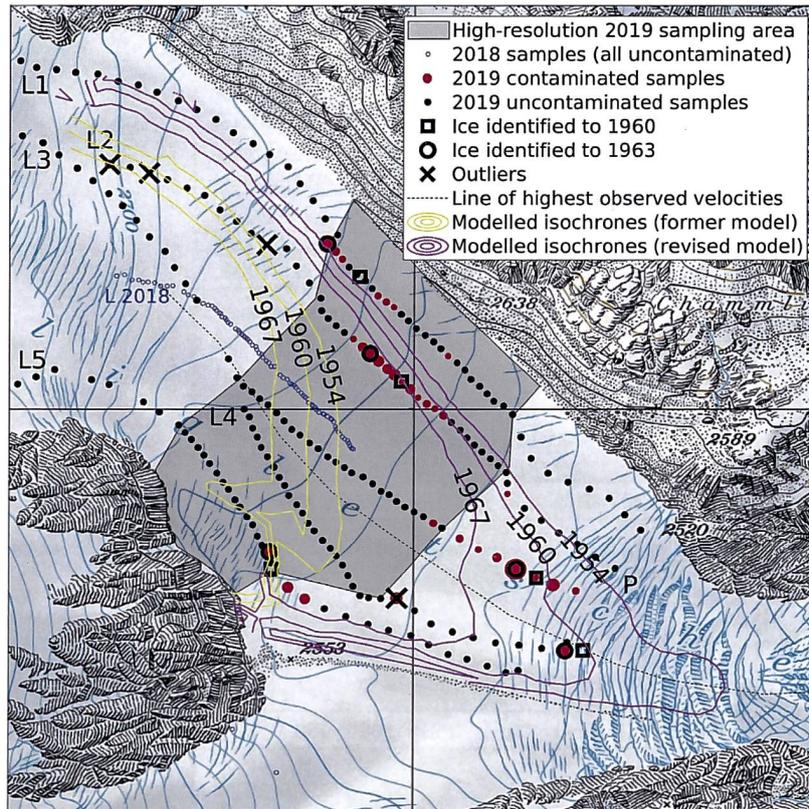
^{239}Pu und ^{236}U Aktivitäten entlang der 5 Linien. Der Nullpunkt der x-Achse wurde auf einer Höhe von 2'640 m.ü.M. gesetzt. Die Aktivitäten sind als Distanz der Messpunkte vom Nullpunkt in Meter aufgetragen. Grau schattiert entspricht der Zone wo Proben alle 25 m entnommen wurden. Vertikal markiert sind die Positionen markiert wo Eis von 1960 und 1963 identifiziert wurde. Die gestrichelte Linie entspricht 0.25 mBq/kg ^{239}Pu (Figur von G. Jouvet, 2020).

des Gletschers viel höher als erwartet ist und die Aktivitätsmaxima darum ausserhalb der Probennahmezone mit 25 m Abstand liegen. Anhand der Zeitmarker wurde das Gletscherflussmodell angepasst. Gemäss der angepassten Modellrechnung wird erwartet, dass der Rumpf der C-53 Dakota bereits in den nächsten Jahren unterhalb der Stelle wo 2018 Trümmerteile gefunden wurde zum Vorschein kommen wird⁹.

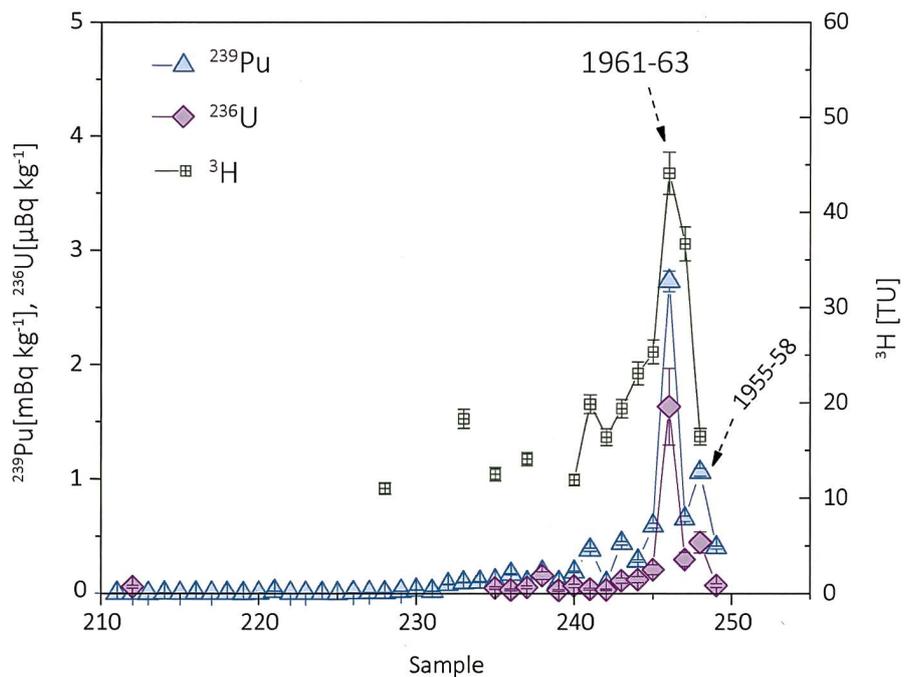
Sämtliche 200 Eisproben wurden vom ABC Abw Lab 1 während dem drei wöchigen WK aufgearbei-

⁹ (G. Jouvet, 2020)

tet und das Plutonium gemessen. Die relativ kleinen Probenmengen von ca. 1 kg pro Probe erleichterten die Probennahme, den Transport sowie das Handling im Labor. Trotzdem lagen die Konzentrationen von ^{239}Pu und ^{236}U für praktisch alle Proben über der Nachweisgrenzen. Um noch tiefere Nachweisgrenzen zu erhalten wurde die Aufkonzentrierungsmethode auch für Wasservolumen bis zu 20 kg erfolgreich getestet. Durch den grösseren Aufkonzentrierungsfaktor konnten so die Nachweisgrenzen nochmals um einen Faktor 20 gesenkt werden.



Figur 4: Topographische Karte des Gauligletschers mit einem Rasterabstand von 1 km. Die 5 Linien der Probennahme 2019 (L1 – L5) sind als schwarze Punkte eingetragen. Zusätzlich sind die Punkte der Probennahme 2018 blau eingetragen. Für Aktivitäten > 0.25 mBq/kg sind die Punkte rot markiert, wobei die Grösse der Punkte der Aktivität entspricht. Grau markiert ist die Zone wo Proben alle 25 m entnommen wurden. P bezeichnet die Stelle wo 2018 Trümmerteile gefunden wurde. Gelb eingezeichnet sind die Isochonen des ursprünglichen Modells und pink die aufgrund der ^{239}Pu Messungen angepassten Modells eingetragen (Figur von G. Jouvét, 2020).



Figur 5: ^{239}Pu , ^{236}U und ^3H Aktivitäten der Proben entlang der Linie 3 (Figur von S. Röllin, 2020).

Tabelle 1:

²³⁹Pu, ²³⁶U, ³H Aktivitäten und ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu, ²³⁶U/²³⁹Pu Isotopenverhältnisse der Proben von Linie 3. Es wird die erweiterte Unsicherheit (k=2) rapportiert. Die ³H Aktivitäten sind auf das Referenzdatum vom 27.08.2019 korrigiert (Tabelle von S. Röllin, 2020).

Sample	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	²³⁶ U	²³⁶ U/ ²³⁹ Pu	³ H
	μBq kg ⁻¹	atom ratio	μBq kg ⁻¹	atom ratio	TU
230	31 ± 1	0.14 ± 0.01	0.010 ± 0.003	0.30 ± 0.09	< 9.8
231	21 ± 1	0.19 ± 0.03	0.016 ± 0.005	0.70 ± 0.22	< 9.8
232	81 ± 3	0.21 ± 0.01	0.013 ± 0.004	0.15 ± 0.05	< 9.8
233	97 ± 3	0.184 ± 0.009	0.04 ± 0.01	0.38 ± 0.11	18.3 ± 1.0
234	101 ± 4	0.175 ± 0.007	0.017 ± 0.005	0.16 ± 0.05	< 9.8
235	113 ± 4	0.169 ± 0.009	0.06 ± 0.02	0.51 ± 0.15	12.5 ± 0.7
236	170 ± 6	0.259 ± 0.005	0.03 ± 0.01	0.19 ± 0.06	< 9.8
237	98 ± 4	0.18 ± 0.01	0.07 ± 0.02	0.67 ± 0.20	14.1 ± 0.7
238	187 ± 7	-	0.16 ± 0.05	0.81 ± 0.25	< 9.8
239	99 ± 4	0.178 ± 0.006	0.04 ± 0.01	0.38 ± 0.11	< 9.8
240	190 ± 6	0.209 ± 0.007	0.07 ± 0.02	0.36 ± 0.11	11.9 ± 0.6
241	382 ± 14	0.152 ± 0.006	0.05 ± 0.02	0.14 ± 0.04	19.8 ± 1.0
242	90 ± 4	0.177 ± 0.005	0.04 ± 0.01	0.44 ± 0.13	16.4 ± 0.9
243	440 ± 15	0.169 ± 0.005	0.15 ± 0.05	0.32 ± 0.10	19.4 ± 1.0
244	285 ± 10	-	0.13 ± 0.04	0.43 ± 0.13	23.1 ± 1.2
245	592 ± 21	0.180 ± 0.003	0.26 ± 0.08	0.43 ± 0.13	25.3 ± 1.2
246	2'730 ± 90	0.179 ± 0.003	1.7 ± 0.5	0.59 ± 0.18	44.1 ± 2.2
247	653 ± 24	0.184 ± 0.004	0.4 ± 0.1	0.55 ± 0.17	36.7 ± 1.8
248	1'060 ± 36	0.156 ± 0.002	0.5 ± 0.1	0.44 ± 0.13	16.5 ± 0.9
249	404 ± 14	0.168 ± 0.004	0.10 ± 0.03	0.23 ± 0.07	< 9.8

Literaturverzeichnis

C. Wang, S. Hou, H. Pang, Y. Liu, H.W. Gäggeler, M. Christl, H.A. Synal. 2017. ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu and ²³⁶U records of an ice core from the eastern Tien Shan (Central Asia). *Journal of Glaciology*. 63, 2017, Bde. 929-935.

C.C. Wendel, D.H. Oughton, O.C. Lind, L. Skipperud, L.K. Fifield, E. Isaksson, S.G. Tims, B. Salbu. 2013. Chronology of Pu isotopes and ²³⁶U in an Arctic ice core. *Science of the Total Environment*. 2013, Bde. 734-741.

F. Luisier, J.A. Corcho Alvarado, P. Steinmann, M. Krachler, P. Froidevaux. 2009. A new method for the determination of plutonium and americium using high pressure microwave digestion and alpha-spectrometry or ICP-SMS. *J Radionanal Nucl Chem*. 281, 2009, <https://doi.org/10.1007/s10967-009-0004-z>.

G. Juvet, S. Röllin, H. Sahli, J. Corcho, L. Gnägi, L. Compagno, D. Sidler, M. Schwikowski, A. Bauder, M. Funk. 2020. Mapping the age of ice of Gauglletscher combining surface radionuclide contamination and ice flow modeling. *The Cryosphere*. 2020, S. 4233-4251.

J. Gabrieli, G. Cozzi, P. Vallelonga, M. Schwikowski, M. Sigl, J. Eickenberg, L. Wacker, C. Boutron, H. Gäggeler, P. Cescon, C. Barbante. 2011. Contamination of Alpine snow and ice at Colle Gnifetti, Swiss/Italian Alps, from nuclear weapons tests. *Atmospheric Environment*. 2011, Bd. 45.

K. Gückel, T. Shinonaga, M. Christl, J. Tschiersch. 2017. Scavenged ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, and ²⁴¹Am from snowfalls in the atmosphere settling on Mt. Zugspitze in 2014, 2015 and 2016. *Scientific Reports*. 2017, Bd. 7.

L. Compagno, G. Juvet, A. Bauder, M. Funk, G.J. Church, S. Leinss, M.P. Lüthi. 2019. Modelling the re-appearance of a crashed airplane on Gauglletscher, Switzerland. *Front. Earth Sci*. 7, 2019, Bd. 170.

P.W. Krey, E. P. Hardy, C. Pachucki, F. Rourke, J. Coluzza, W.B. Benson. 1976. Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil. *International Atomic Energy Agency (IAEA)*. 1976.

S. Röllin, H. Sahli, L. Gnägi, J.A. Corcho Alvarado. 2020. Determination of Plutonium and Uranium Radionuclides in Glacier Ice Samples by MC-ICP-MS. *CHIMIA*. 74, 2020, Bd. 12.

