

**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:** - (2021)

**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

Carbone-14, Krypton-85, Argon-37  
Plutonium et Américium

Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37  
Plutonium und Americium

2021

# 7.1

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

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

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

**S. Szidat**

Departement für Chemie, Biochemie und Pharmazie, 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 ( $^{14}\text{C}$ ) im Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrlichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2021 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 Juni, August und Oktober 2021) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2021 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert  $-4 \pm 3\text{‰}$ .

Die 83 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um  $-19\text{‰}$  (E-10, Basel Kronenplatz) bis maximal  $+61\text{‰}$  (Kernkraftwerk Leibstadt, Ried) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lag der Netto-Höchstwert bei  $0\text{‰}$  (E-6, Rosentalanlage), alle anderen Standorte in Basel wiesen Messwerte  $<0\text{‰}$  auf. 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.  $4'500 \mu\text{Sv/a}$  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 im Berichtsjahr wurden von den beiden Radiocarbonlaboren der Universität Bern durchgeführt: dem  $^{14}\text{C}$ -Labor der Klima- und Umweltphysik (KUP) des Physikalisches Instituts und/oder dem Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS, LARA (AMS: accelerator mass spectrometry) des Departements für Chemie, Biochemie und Pharmazie.

### 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  $^{14}\text{CO}_2$  durch die Ozeane und Verbrennung fossiler, d. h.  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe weltweit wieder ab. Mittlerweile hat dieser Gehalt den als Basis für die Radiocarbon-datierung 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  $^{14}\text{C}$ -Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration wider.

Radiocarbon-Quellen (KKW und Pharma) und -Verdünnungen (KVA, Industrie, Strassenverkehr) 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:

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

**Tabelle 1:**

Messwerte 2021 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen

Ort	Labor	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
		Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	KUP	-6	-1	-7	601'320 / 186'150	938	Rotbuchen im Wald
	LARA	-2	-4	-6			
Belpberg	KUP	-1	-1	-2	606'096 / 190'600	825	Rotbuchen auf Krete
	LARA	0	-3	-4			
Ballenbühl	KUP	-4	-3	-8	612'550 / 192'800	852	2 Linden, freistehend
	LARA	-2	-2	-10			

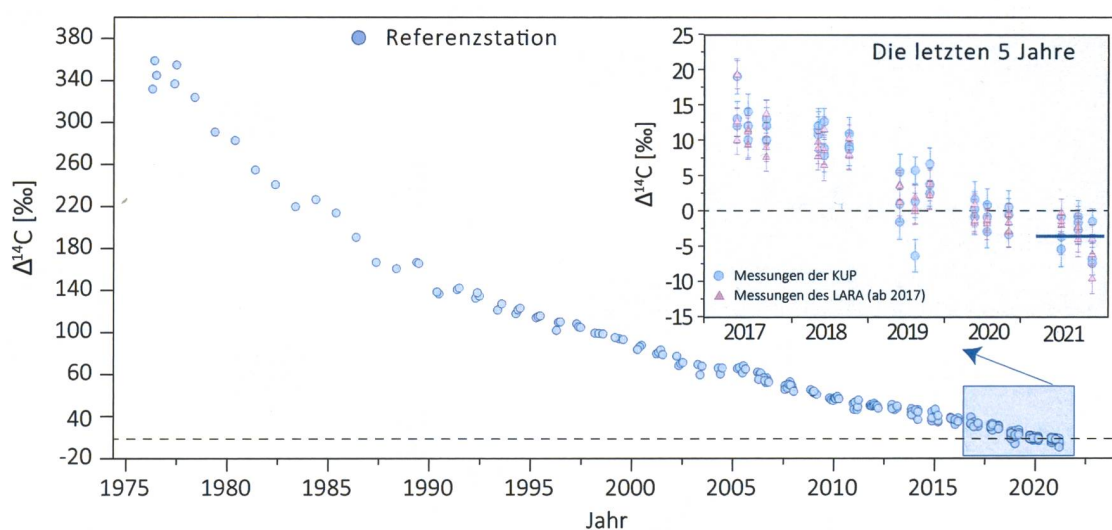
Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen oder Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- bzw. Lindenblätter gesammelt. Ihr  $^{14}\text{C}$ -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit  $^{14}\text{A}_0$  verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2021 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juni, August und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2021}} = -4 \pm 3 [\text{‰}] \quad (3)$$

Die Differenz

$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2021}} \quad (4)$$

weist auf  $^{14}\text{C}$ -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 (ab 2017): Messungen des LARA.

## 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 der Blattkohle (Methode A) im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt (Methode B) Unterschiede von weniger als 5%. An belasteten Standorten können die Unterschiede zwischen den Resultaten der nach den Methoden A und B aufbereiteten Proben jedoch grösser sein.

Im Radiocarbonlabor der KUP wird zur Aufbereitung von Laubproben seit 2021 ausschliesslich Methode A verwendet. Das LARA am Departement für Chemie, Biochemie und Pharmazie 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 2021 gegenüber dem Vorjahr erneut abgefallen. Mit  $-4 \pm 3\%$  (gerundeter Mittelwert aller in Tabelle 1 dargestellten Messergebnisse) liegt der Referenzwert um 3% unter dem Wert von 2020.

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

Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] wurden die Schweizer Kernkraftwerke im Jahr 2021 sicher betrieben. Insgesamt traten 25 meldepflichtige Vorkommnisse auf, was unter dem Durchschnitt der Vorjahre liegt.

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  $^{14}\text{C}$ -Messungen im Umfeld des Kernkraftwerks werden aber auch während des Rückbaus noch einige Jahre fortgesetzt.

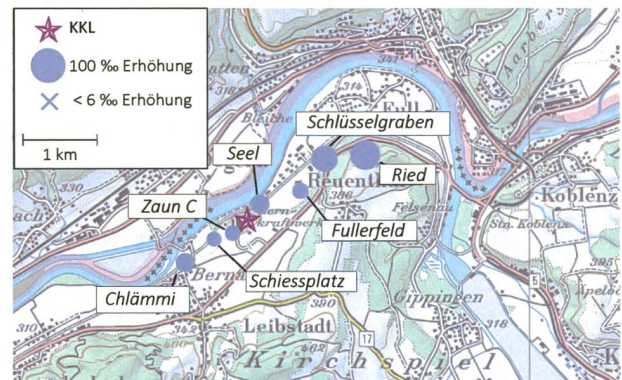
Die Laubprobenahmen im Umfeld der noch im Leistungsbetrieb befindlichen Kernkraftwerke erfolgten im Allgemeinen während oder nach der jeweiligen Jahresrevision, um auch mögliche  $^{14}\text{C}$ -Abgaben während des Revisionsstillstands erfassen zu können. Eine Ausnahme bildet das Kernkraftwerk Leibstadt (siehe folgenden Abschnitt). Die Messungen erfolgten im Labor zur Analyse

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

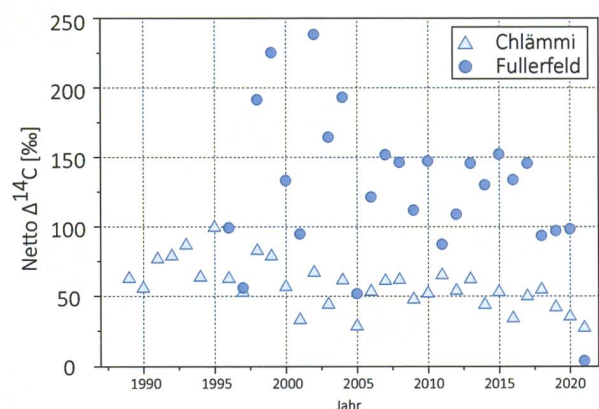
von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) am Departement für Chemie, Biochemie und Pharmazie der Universität Bern. Im Allgemeinen wurden ganze Blätter analysiert (Methode B).

### Kernkraftwerk Leibstadt

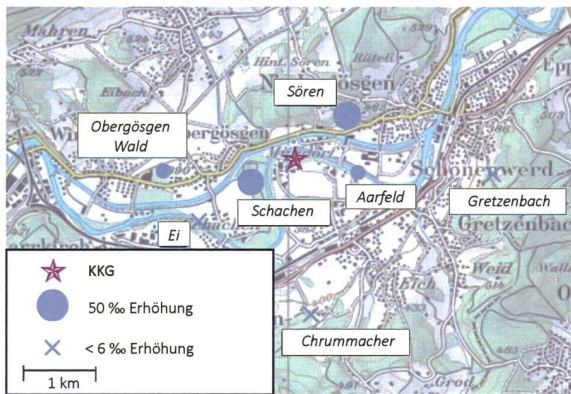
Im Umfeld des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL) wurden im Jahr 2021 zwei Probenahmen durchgeführt: die erste am 22. Juni 2021 vor der Jahresrevision, die ursprünglich vom 24. Mai bis 26. Oktober 2021 terminiert war und schliesslich bis Anfang Dezember 2021 dauerte, und eine zweite am 15. September 2021 während der Revision. Es wurden Blätter von Laubbäumen an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und auf ihren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt hin untersucht. Die Blätter der ersten Probenahme wurden von der KUP, die der zweiten vom LARA gemessen. Dabei wurden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste  $^{14}\text{C}$ -Konzentration er-



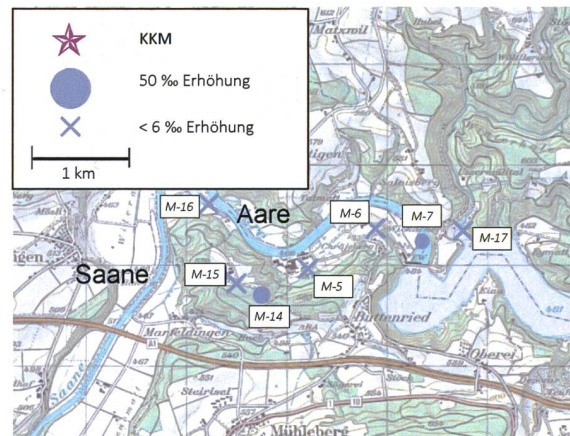
**Figur 2:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2021. Revisionsabschaltung: 24.06.2021 bis 05.12.2021. Probenahme: 22.06.2021 (KUP) bzw. 15.09.2021 (LARA). Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



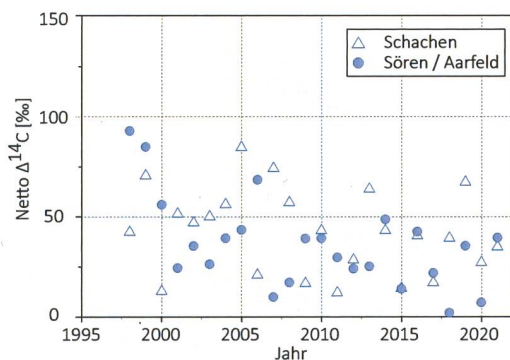
**Figur 3:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt (Standorte: siehe Figur 2). Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.



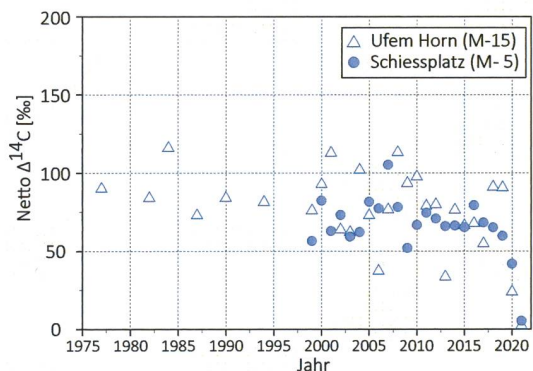
**Figur 4:**  
Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschluss: 22.05.2021 bis 24.06.2021. Probenahme: 05.07.2021. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**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



**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.

gab sich in knapp 2 km Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Ried (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Chlämmi die höchsten Werte auf.

In der folgenden Abbildung sind die Mittelwerte der Messergebnisse beider Probenahmen dargestellt. Die beiden Probenahmen führten in den meisten Fällen zu annähernd identischen Messwerten. Lediglich am Standort Fullerfeld wurde von der KUP an den vor der Revision gesammelten Blättern mit 38‰ ein signifikant höherer Wert ermittelt als der vom LARA ermittelte Wert, welcher bei 4‰ lag.

Figur 3 zeigt die gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämmi seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell

höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2021 lag der höchste Messwert nordöstlich des KKL bei 61‰ (Standort Ried), am Standort Fullerfeld wurde 2021 nur eine geringe Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen festgestellt, was darauf zurückzuführen ist, dass das KKL während des gesamten Sommers abgeschaltet war. In südwestlicher Richtung wurde 2021 am Standort Chlämmi mit 32‰ 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 05. Juli 2021 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste  $^{14}\text{C}$ -Messwert westlich vom KKG resultierte mit einer Erhöhung von

39‰ am Standort Schachen, in östlicher Richtung mit 34‰ am Standort Sören.

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

Die Beprobung des mittlerweile ausser Betrieb genommenen Kernkraftwerks Mühleberg (KKM) wurde auch im Jahr 2021 fortgesetzt. Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der beprobten Bäume nähert sich rasch dem Gehalt unbelasteter Standorte an: die Erhöhung gegenüber den Referenzstationen lag im Jahr 2021 nur noch im ein- bzw. tiefen zweistelligen Promille-Bereich.

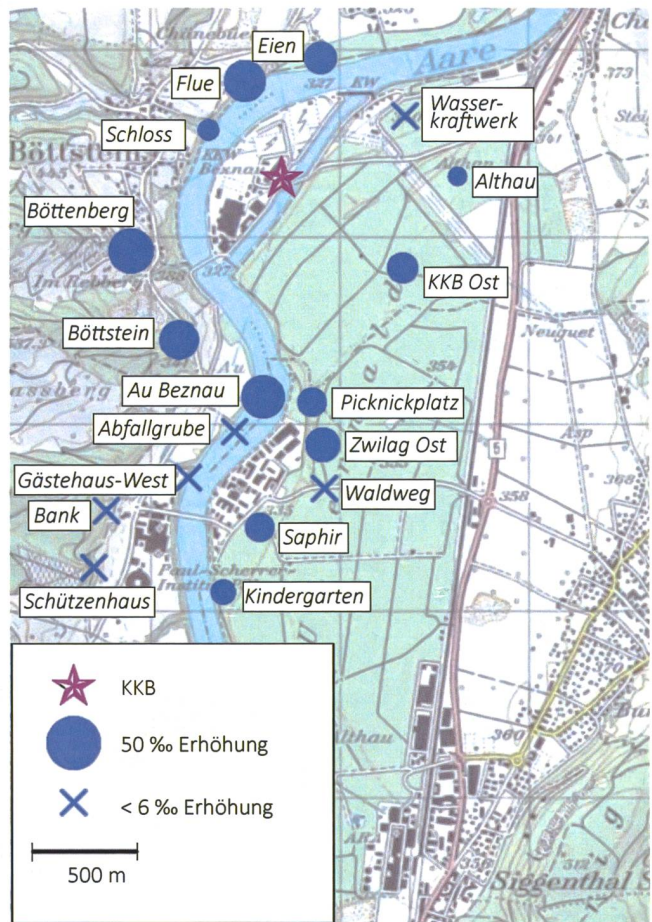
In Figur 6 sind die Ergebnisse der Probenahme dargestellt. Die grösste Erhöhung wurde mit 14‰ am Standort M-14 (Runtigenrain) gemessen. Sämtliche im Jahr 2021 gemessenen Proben liegen deutlich unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

In Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2021 liegen deutlich unter den Werten der Vorjahre.

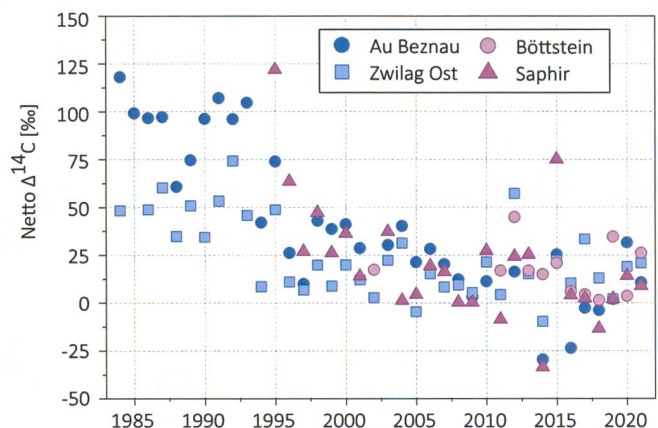
### Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau

Auch im Jahr 2021 wurden die zu diesen Standorten gehörenden  $^{14}\text{C}$ -Messungen im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) des Departements für Chemie, Biochemie und Pharmazie der Universität Bern durchgeführt, wobei die Probenahme durch die KUP mit Unterstützung des PSI erfolgte. Die Messwerte im Umfeld des PSI und ZWILAG lagen im Jahr 2021 etwas unter den Werten des Vorjahrs. Insbesondere wiesen mehrere Standorte in der Nähe des PSI keine signifikanten Erhöhungen gegenüber unbelasteten Standorten auf.

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 (ZWILAG) und des Kernkraftwerkes Beznau (KKB) im Jahr 2021. Revisionsabschaltung KKB I: 11.05.2021 bis 24.05.2021, KKB II: 06.08.2021 bis 12.09.2021. Probenahme: 15.09.2021. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 9: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (■▲) und westlich (●●) des PSI/ZWILAG sowie des Kernkraftwerkes Beznau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 8. Messungen bis 2016: KUP (Standort Böttstein) und PSI. Messungen 2017 bis 2019: LARA (Standort Böttstein) und PSI. Messungen ab 2020: LARA.

## Kehrlichtverbrennungsanlagen

### KVA Bern

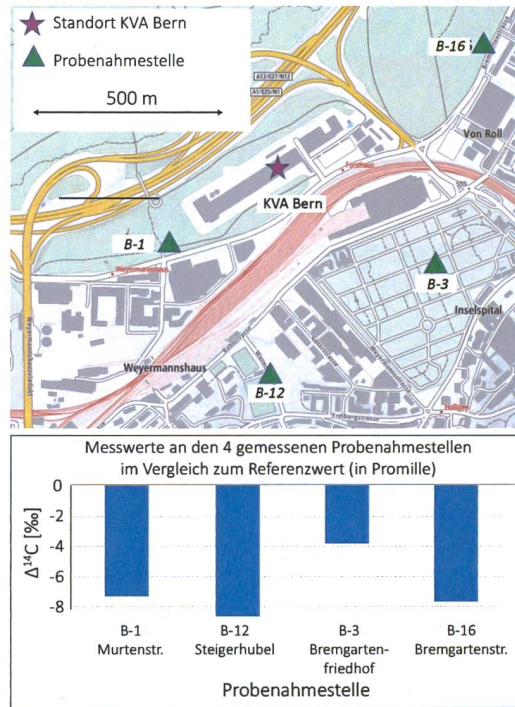
In Blättern von Bäumen, die am 26. August 2021 an vier Probenahmestellen im Umfeld der Kehrlichtverbrennungsanlage (KVA) Bern Forsthaus gesammelt wurden, konnte keine erhöhte  $^{14}\text{C}$  Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Werte lagen unter dem Referenzwert von 4‰. Im Gegensatz zu Blättern, die im Umfeld der Kernkraftwerke gesammelt wurden, findet im Stadtgebiet eine Verdünnung (oder Absenkung) der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration gegenüber den Referenzstationen statt. Dies ist eine Folge der Abgase von  $^{14}\text{C}$ -freien, fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen aufgenommen werden (siehe «Suess»-Effekt weiter oben). In Figur 10a sind oben die vier Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.

### KVA Lausanne

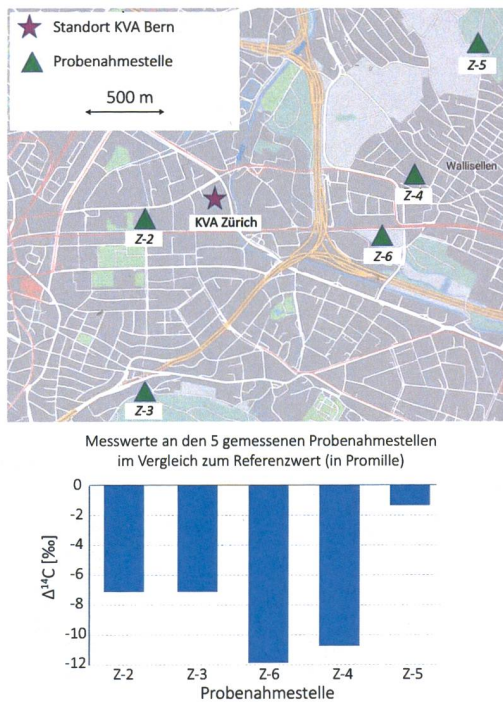
Am 15. September 2021 wurden fünf Probenahmestellen im Umfeld der KVA Lausanne beprobt. Es wurden keine Erhöhungen der  $^{14}\text{C}$  Konzentration festgestellt. An der Probenahmestelle Libellules (L-128) wurden 0‰ gemessen. Dies bedeutet, dass an diesem Ort eine allfällige Erhöhung der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration durch den Suess-Effekt exakt wieder aufgehoben wird. In Figur 10b sind oben die fünf Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.

### KVA Zürich Hagenholz

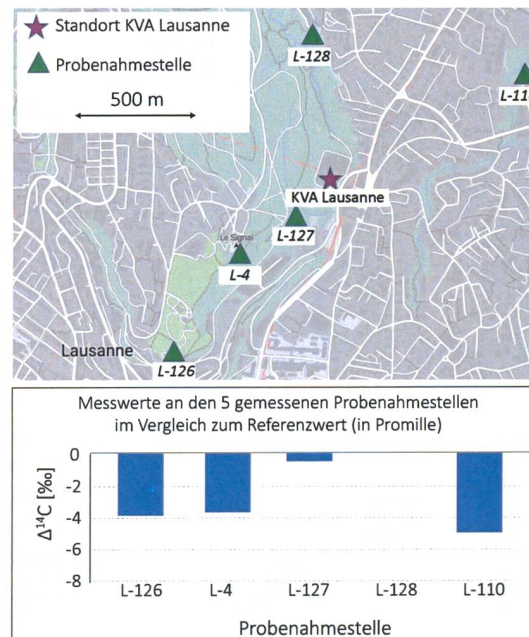
In Blättern von Bäumen, die am 05. September 2021 an fünf Probenahmestellen im Umfeld der KVA Zürich Hagenholz gesammelt wurden, konnte keine erhöhte  $^{14}\text{C}$  Konzentration festgestellt werden. In Figur 10c sind oben die fünf Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.



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



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



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

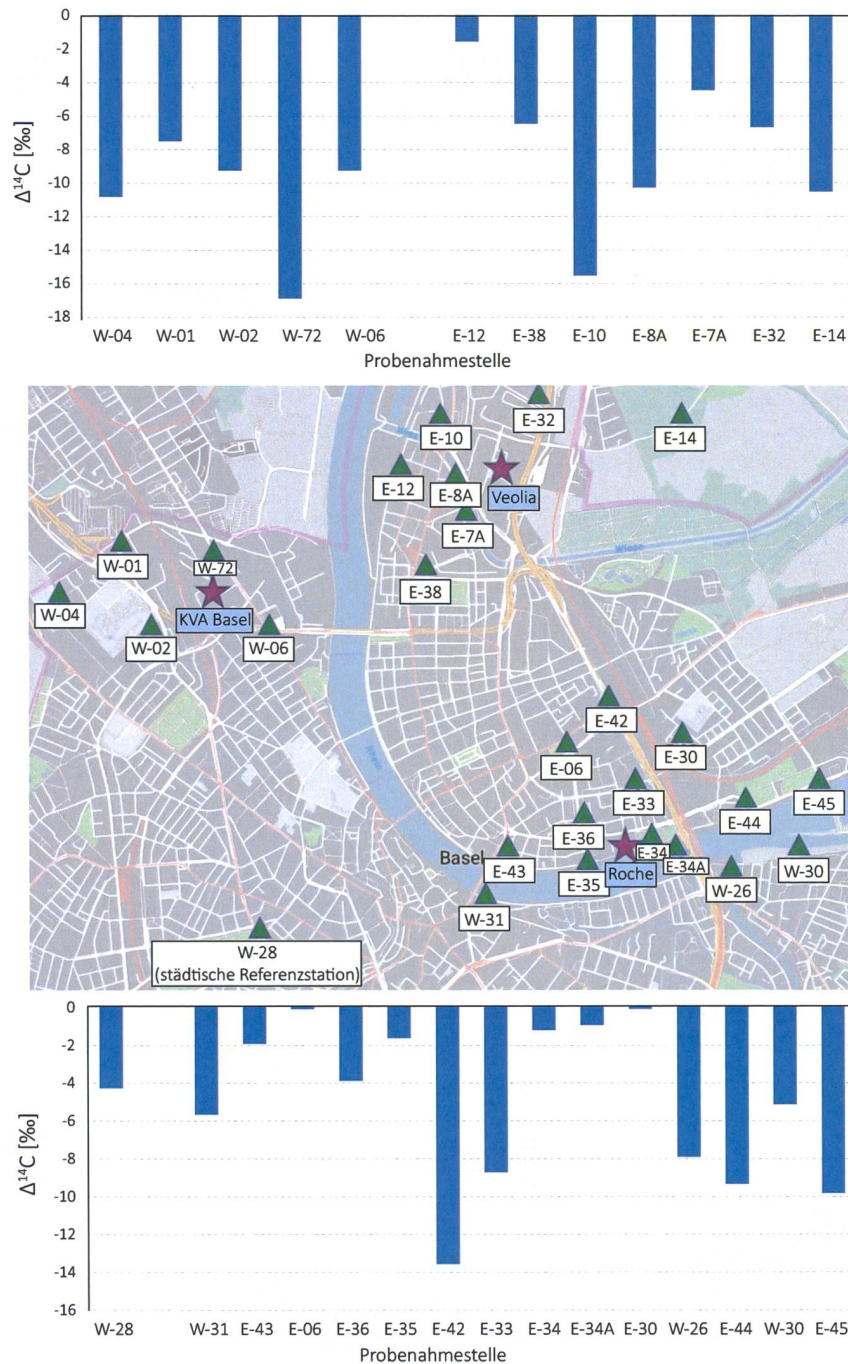


### Messungen in der Region Basel-Stadt

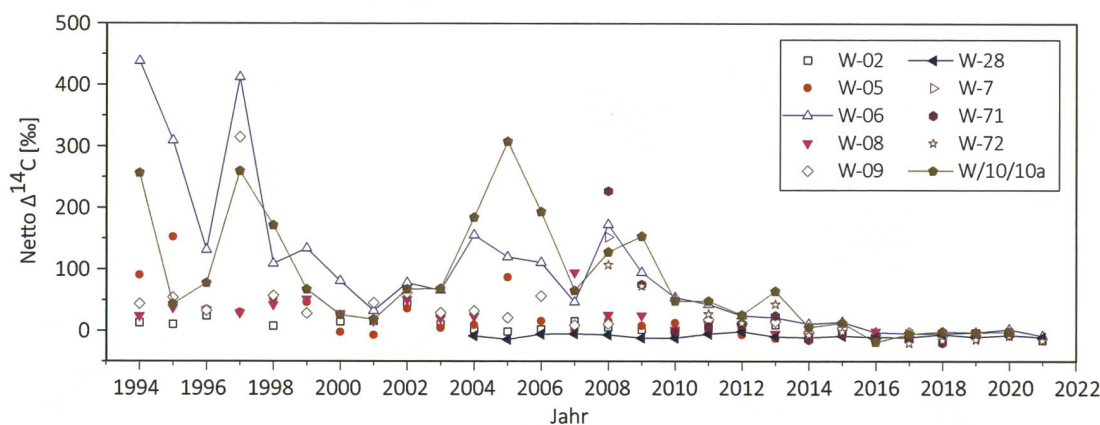
Im Jahr 2021 wurden in Basel zwei Laubprobenahmen durchgeführt. Bei der ersten Probenahme am 1. Juni wurden hauptsächlich die Standorte im Südosten des Stadtgebietes um das Areal der Firma F. Hoffmann-La Roche sowie die Standorte um das Areal der von der Firma Veolia betriebenen regionalen Sondermüllverwertungsanlage (RSMVA) beprobt. Die zweite, etwas umfangreichere Probenahme fand am 1. September statt und umfasste zusätzlich zu den Standorten der ersten Probenahme auch Standorte um die KVA Basel im Westen der Stadt. An prak-

tisch allen Standorten wurde aufgrund des weiter oben erwähnten Suess-Effekts eine Verdünnung der  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt, häufig um 10‰ oder mehr (Figur 11). Auch in der Nähe zur Grenze nach Frankreich nordwestlich der KVA Basel sowie im deutschen Grenzgebiet östlich des Veolia-Verbrennungssofens wurden keine Erhöhungen registriert.

Im oberen Teil von Figur 11 sind die Messergebnisse von den Probenahmestellen im Norden der Stadt Basel, im

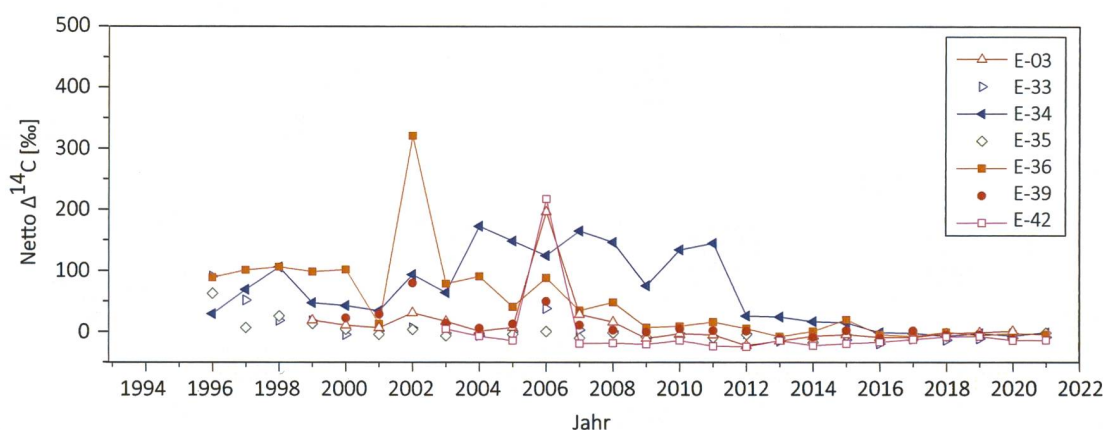


Figur 11: Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel. Die Balkendiagramme stellen die Reduzierung der Messwerte gegenüber den unbelasteten ländlichen Referenzstationen dar. An den Probenahmestellen E-06 und E-30 wurden 0‰ gemessen, d. h. eine allfällige Erhöhung der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration wird durch den Suess-Effekt exakt wieder aufgehoben.



Figur 12:

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 Messwerte 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.

unteren Teil diejenigen vom Süden der Stadt dargestellt, jeweils als Absenkung gegenüber den unbelasteten ländlichen Referenzstationen. Liegen von einem Standort mehrere Messwerte vor, so ist in Figur 11 der jeweils höhere Wert dargestellt.

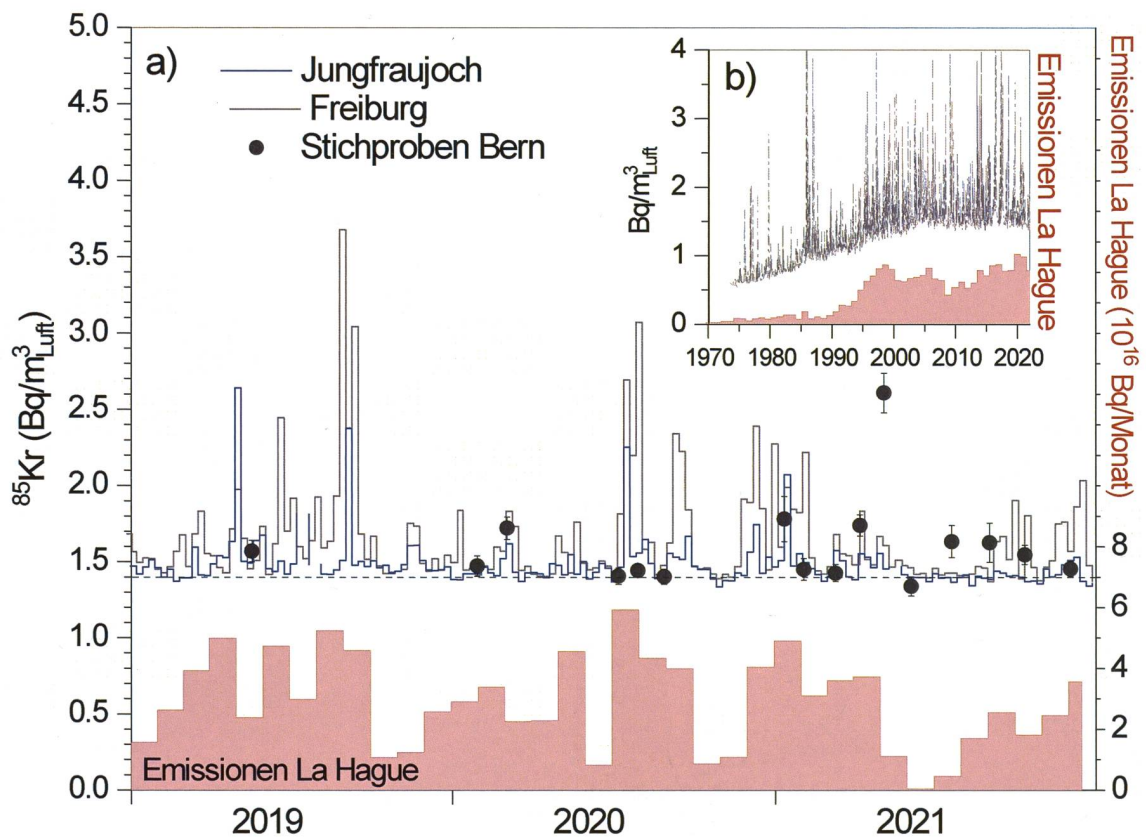
Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich in den letzten Jahren auf einem sehr niedrigen Niveau stabilisiert.

Der Rückgang der  $^{14}\text{C}$ -Werte gegenüber früheren Jahren ist darauf zurückzuführen, dass die Firma 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 (beispielsweise Standort W-10A auf dem Areal der Firma Novartis) bereits seit einigen Jahren nicht mehr erreicht, sodass diese Standorte seit 2021 nicht mehr beprobt werden. Auch die Standorte östlich des Rheins im Umfeld der

Firma F. Hoffmann-La Roche AG sind weit von ihren Netto-Höchstwerten entfernt: der im Jahr 2002 gemessene Höchstwert von 320‰ am Standort E-36 wurde in den letzten Jahren deutlich unterschritten.

## Edelgas-Radionuklide

Die beiden Edelgas-Radionuklide  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{37}\text{Ar}$  werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert.  $^{85}\text{Kr}$ , freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.74 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von  $^{85}\text{Kr}$  auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.



Figur 14 :

a) Atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$ -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  $^{85}\text{Kr}$ -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).

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

Das radioaktive Edelgasisotop  $^{85}\text{Kr}$  ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von  $10.74 \pm 0.02$  Jahren. Natürliches atmosphärisches Krypton-85 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  $\sim 0.2 \mu\text{Bq/m}^3_{\text{Luft}}$ . 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 14a). 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 14b).

In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von 1.4- 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].  $^{85}\text{Kr}$  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 Jahr 2021 zeigen die Wiederaufbereitungsaktivitäten und Emissionen von La Hague hohe Werte in den Wintermonaten und ein deutliches Minimum im Sommer, als die Emissionen um mehr als eine Grössenordnung abnehmen

(Fig. 14a). Dieses Muster spiegelt sich in den Messwerten von JFJ und Freiburg i. B. wider. Im Sommer 2021 konvergierten die Werte an beiden Stationen in Richtung der aktuellen Basisaktivitätskonzentration der nördlichen Hemisphäre von  $\sim 1.4 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$ . Die Daten deuten sogar auf einen leicht abnehmenden Trend der  $^{85}\text{Kr}$ -Basislinie hin, der bereits 2020 beobachtet wurde (Fig. 14b).

Der Anstieg der Emissionen Ende 2021 ist in Freiburg i.B. viel deutlicher zu erkennen als in JFJ, wo die Spitzenwerte deutlich gedämpft sind. Dies steht im Gegensatz zu der Situation im Spätsommer 2020, als beide Stationen ein ähnliches Muster aufwiesen. Unsere Beobachtung spiegelt die stabilere planetarische Grenzschicht im Winter wider, die den Schadstofftransport in höhere Lagen verhindert. Für die Zukunft und im Hinblick auf ein sich änderndes Klima bietet der Vergleich der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätskonzentrationen an beiden Stationen daher ein gewisses Potenzial zur Untersuchung von Veränderungen der Stabilität der atmosphärischen Luftsäule in den Schweizer Alpen.

Stichproben von Berner Luft, die in wenigen Minuten gesammelt wurden, wurden zusätzlich am Physikalischen Institut der Universität Bern gemessen. Die Resultate bestätigen meist den Aktivitätsbereich und die zeitliche Abfolge, die in Freiburg oder auf dem Jungfrauoch beobachtet wurden. Auffallend ist der erhöhte Wert in Bern am 4. Mai 2021, der in dieser Magnitude weder in Freiburg noch auf dem JFJ sichtbar ist. Zu dieser Zeit herrschten relativ tiefe Temperaturen und eine vorherrschende Windrichtung aus Westen. Es ist davon auszugehen, dass dadurch  $^{85}\text{Kr}$  reiche Luftmassen von La Hague direkt nach Bern gelangten. Andere, lokale Quellen wie beispielsweise ein AKW können allerdings nicht ganz ausgeschlossen werden. Die durch den  $^{85}\text{Kr}$ -Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca.  $11 \text{ nSv/Jahr}$  ( $8 \cdot 10^{-9} \text{ Sv/Bq m}^{-3} \text{ Jahr}$  [5]) und ist damit gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa  $3.3 \text{ mSv}$  verursacht durch natürlich vorkommendes Radon.

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

$^{37}\text{Ar}$  wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion  $^{40}\text{Ar}(n,4n)^{37}\text{Ar}$  produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposphärischen Gleichgewichtsaktivität liegen bei ca.  $0.5\text{--}2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ , in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 7 Jahre am häufigsten gemessenen Werten. Die  $^{37}\text{Ar}$ -Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre ist damit 1'000 Mal kleiner als die von  $^{85}\text{Kr}$  und ist deshalb für die jährliche Strahlenbelastung nicht relevant.

### Referenzen

- [1] <https://www.ensi.ch/de/2022/01/18/bilanz-2021-sicherer-betrieb-der-schweizer-kernanlagen/>, besucht am 15. Februar 2022
- [2] Bollhöfer, A., Schlosser, C., Schmid, S., Konrad, M., Purtschert, R. and Kraiss, 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  $^{85}\text{Kr}$  measurements in the southern hemisphere to derive an input function for dating water and ice with implications for interhemispheric circulation and the global  $^{85}\text{Kr}$  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, A. Bonnin, 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. Lors de l'épisode de tempête de sable saharien du 06 et du 24 février 2021, les mesures de Pu et Am sur les filtres à air collectés durant le mois de février n'ont pas révélé de contamination autres que celles provenant des retombées des essais nucléaires des années soixante. 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 contenant 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, à l'exception de  $^{241}\text{Am}$  dans un prélèvement dans l'Aar à Däniken ( $2.0 \pm 0.8 \text{ mBq/kg ms}$ ). L'activité en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépasse pas  $4.7 \text{ mBq/m}^3$ , soit dans l'ensemble 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 2021 montre que l'activité de l'air (en  $\text{nBq/m}^3$ ) 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, malgré la tempête de sable saharien de février. En transformant l'activité des filtres à air de  $\text{mBq}/\mu\text{g}$  cendre en  $\text{Bq/kg}$  de masse sèche, on constate que l'activité ( $0.178 \text{ Bq/kg}$ ) est très proche de celle de sols mesurés en plaine en Suisse ( $0.108 - 0.259 \text{ Bq/kg}$ ), ce qui confirme l'origine de la contamination comme provenant de resuspension de particules à partir des sols.

### 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  $\text{mBq/kg}$  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  $\text{Am}^{3+}$ , se comporte plutôt comme un cation  $\text{Ln}^{3+}$  et est fortement hydrolysé aux valeurs environnementales de pH (6 - 8). Sur mandat de l'OFSP, l'IRA 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 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  $0.028 \pm 0.003$  et  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  de  $0.41 \pm 0.05$  pour l'année 2021. On verra au cours de ce travail 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 leurs 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. L'année 2021 a été marquée par un événement de forte tempête de sable du Sahara, observable jusqu'en Suisse en février. On focalisera donc l'analyse sur de possibles répercussions de l'entraînement de sable contaminé par les essais nucléaires français de Reggane (Algérie) dans nos mesures de filtres à air.

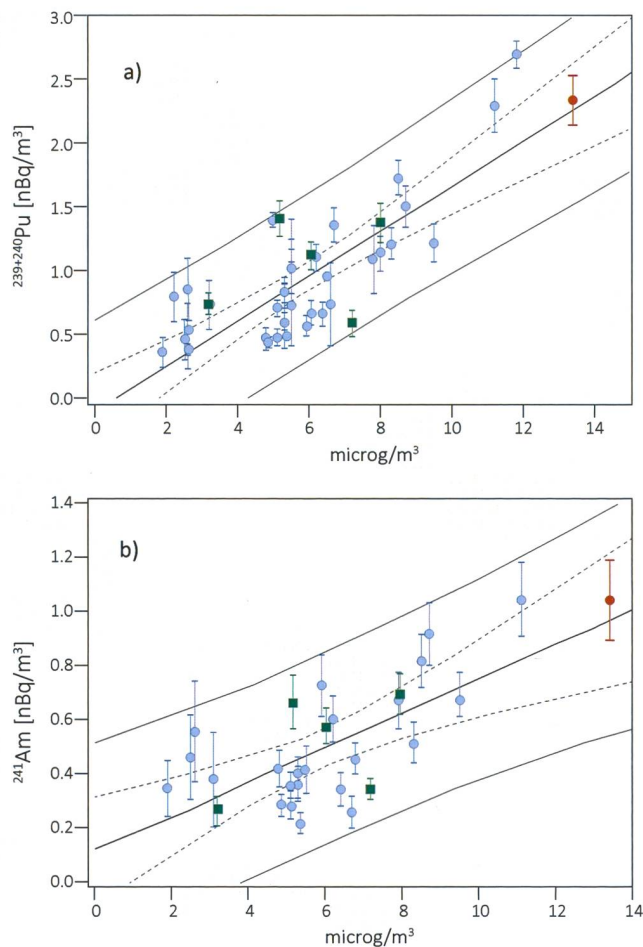
### Méthodes

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]

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 2021 (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg MS	$^{238}\text{Pu}$ Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}$ Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Arenenberg	$0.174 \pm 0.010$	$0.0044 \pm 0.0013$	$0.072 \pm 0.006$	$0.411 \pm 0.043$	$0.025 \pm 0.008$
Beznau	$0.184 \pm 0.018$	$0.0056 \pm 0.0025$	$0.077 \pm 0.006$	$0.419 \pm 0.052$	$0.030 \pm 0.014$
	$0.174 \pm 0.014$	$0.0043 \pm 0.0018$	$0.069 \pm 0.006$	$0.392 \pm 0.048$	$0.024 \pm 0.011$
Cadenazzo	$0.120 \pm 0.009$	$0.0039 \pm 0.0014$	$0.052 \pm 0.005$	$0.437 \pm 0.051$	$0.033 \pm 0.012$
Däniken	$0.233 \pm 0.023$	$0.0068 \pm 0.0029$	$0.106 \pm 0.007$	$0.454 \pm 0.055$	$0.029 \pm 0.013$
	$0.259 \pm 0.017$	$0.0072 \pm 0.0020$	$0.115 \pm 0.012$	$0.444 \pm 0.053$	$0.028 \pm 0.008$
Güttingen	$0.155 \pm 0.009$	$0.0039 \pm 0.0012$	$0.058 \pm 0.005$	$0.375 \pm 0.041$	$0.025 \pm 0.008$
Leibstadt	$0.201 \pm 0.017$	< LD	$0.078 \pm 0.007$	$0.387 \pm 0.047$	-
	$0.197 \pm 0.014$	$0.0053 \pm 0.0018$	$0.079 \pm 0.010$	$0.404 \pm 0.059$	$0.027 \pm 0.009$
Meyrin	$0.108 \pm 0.011$	< LD	$0.039 \pm 0.006$	$0.362 \pm 0.063$	-
Mühleberg	$0.150 \pm 0.016$	< LD	$0.060 \pm 0.006$	$0.402 \pm 0.060$	-
	$0.150 \pm 0.012$	$0.0038 \pm 0.0017$	$0.051 \pm 0.007$	$0.342 \pm 0.052$	$0.026 \pm 0.011$
Posieux	$0.194 \pm 0.015$	$0.0042 \pm 0.0018$	$0.080 \pm 0.008$	$0.394 \pm 0.057$	$0.022 \pm 0.009$
	$0.204 \pm 0.022$	$0.0065 \pm 0.0031$	$0.068 \pm 0.010$	$0.352 \pm 0.047$	$0.032 \pm 0.016$
Stabio	$0.567 \pm 0.026$	$0.0179 \pm 0.0029$	$0.323 \pm 0.015$	$0.569 \pm 0.037$	$0.032 \pm 0.005$
Villigen-PSI	$0.142 \pm 0.015$	< LD	$0.049 \pm 0.006$	$0.347 \pm 0.054$	-
	$0.140 \pm 0.012$	$0.0038 \pm 0.0016$	$0.055 \pm 0.005$	$0.395 \pm 0.051$	$0.027 \pm 0.012$
Würenlingen	$0.160 \pm 0.010$	$0.0050 \pm 0.0015$	$0.073 \pm 0.006$	$0.460 \pm 0.049$	$0.032 \pm 0.010$
<b>moyenne</b>				<b><math>0.41 \pm 0.05</math></b> (n=18)	<b><math>0.028 \pm 0.003</math></b> (n=14)



**Figure 1 :**  
 Activité en **a)**  $^{239+240}\text{Pu}$  et **b)**  $^{241}\text{Am}$ , des filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>) en fonction de la quantité de cendres sur les filtres, exprimée en µg/m<sup>3</sup>, pour les années 2013-2021 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 Güttingen, de Klingnau, de Liebfeld et de Posieux durant les tempêtes de sable du Sahara, du 01.02.2021 au 24.02.2021. En vert, les valeurs obtenues en 2021.

## 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. 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 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 2021, ces rapports sont de  $0.028 \pm 0.003$  (n=14) pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et de  $0.41 \pm 0.05$  (n=18) 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 mesure, les valeurs indiquées pour  $^{239+240}\text{Pu}$  sont très reproductibles entre les aliquotes de mesure de 50 g chacun. On constate que l'activité en  $^{238}\text{Pu}$  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  $^{238}\text{Pu}$  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 le  $^{238}\text{Pu}$  pour des activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  d'environ 200 mBq/kg sol sec. Néanmoins, nous avons pu déterminer le  $^{238}\text{Pu}$  au-dessus de la limite de détection pour 14 échantillons de sol et le rapport moyen est 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.

Tableau 2:

Activités (nBq/m<sup>3</sup>) en plutonium et américium dans les filtres à air collectés sur différents sites en Suisse en 2021. Incertitudes à 95 %.

Lieu	Volume m <sup>3</sup>	<sup>239+240</sup> Pu nBq/m <sup>3</sup>	<sup>238</sup> Pu nBq/m <sup>3</sup>	<sup>241</sup> Am nBq/m <sup>3</sup>	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu
Klingnau	5'148'565	0.73 ± 0.09	< 0.06	0.26 ± 0.05	0.36 ± 0.09
Posieux	4'353'659	1.41 ± 0.14	< 0.07	0.66 ± 0.10	0.47 ± 0.12
Liebefeld, semestre 1	3'651'014	0.58 ± 0.10	< 0.10	0.34 ± 0.04	0.59 ± 0.15
Liebefeld, semestre 2	3'651'014	1.38 ± 0.15	< 0.08	0.69 ± 0.08	0.50 ± 0.13
Meyrin	4'016'003	1.12 ± 0.11	0.059 ± 0.023	0.57 ± 0.07	0.51 ± 0.13
Mélange février 2021, «tempête de sable du Sahara »	2'445'127	2.33 ± 0.21	0.08 ± 0.03	1.04 ± 0.14	0.45 ± 0.06
<b>moyenne</b>					<b>0.48 ± 0.07</b>

Tableau 3:

Activités (mBq/m<sup>3</sup>) en plutonium et américium des eaux collectées en Suisse durant l'année 2021. (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	154	< 2.3	< 2.3	< 2.8	-
	Aar (Hagneck), janvier - février	240	2.5 ± 0.5	< 0.5	< 1.0	-
	Aar (Hagneck), mars	185	< 1.8	< 1.8	< 1.8	-
	Aar (Hagneck), mai - juin	350	2.1 ± 0.4	< 0.4	< 0.6	-
	Aar (Klingnau), janvier	185	4.7 ± 1.1	< 1.4	< 1.3	-
	Rhin (Pratteln), janvier	175	3.9 ± 1.0	< 1.3	< 2.9	-
Eau souterraine	Aarberg, 18.10.2021	145	< 2.0	< 2.0	< 1.4	-
	Däniken, 17.11.2021	160	< 1.4	< 1.4	< 1.1	-
	Döttingen, 18.10.2021	165	< 1.3	< 1.3	< 1.1	-
	Pratteln, 18.10.2021	160	< 2.5	< 2.5	< 1.0	-
Eau de pluie	Posieux	1'367	n.m.	n.m.	0.66 ± 0.11	-
	Mühleberg	811	2.2 ± 0.6	< 1	0.86 ± 0.03	0.40 ± 0.17
	Leibstadt	1'526	1.27 ± 0.37	< 0.6	0.28 ± 0.08	0.22 ± 0.09

Tableau 4:

Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2021 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), 13.10.2021	44	28.9 ± 11.7	< 27	6.4 ± 2.3	0.22 ± 0.12
	Aar (Klingnau), 13.10.2021	22	31.9 ± 7.4	< 11	18.1 ± 7.1	0.57 ± 0.26
	Rhin (Pratteln), 13.10.2021	35	40.5 ± 7.5	< 8	31.4 ± 14.2	0.77 ± 0.38
	Aar (Däniken), 17.11.2021	23	56.6 ± 10.3	< 11	22.4 ± 9.4	0.40 ± 0.18
Sédiments	Aar (Hagneck), mai 2021	52	38.2 ± 4.4	< 3.1	n.m.	-
	Aar (Hagneck), mars- avril 21	25	68.5 ± 10.4	< 8.8	77.8 ± 9.2	1.13 ± 0.43
	Aar (Hagneck), février 2021	52	31.0 ± 4.1	< 3.3	n.m.	-
	Aar (Klingnau), janvier 2021	54	88.6 ± 7.40 85.3 ± 31.3	< 3.3 < 45.0	38.5 ± 5.4 34.9 ± 5.2	0.41 ± 0.16 0.43 ± 0.07
	Rhin (Pratteln), mai 2021	53	61.9 ± 5.7	2.1 ± 0.07	35.0 ± 6.0	0.56 ± 0.11
Poissons	Aar (Mühleberg), 10.02.2021	70	< 8	< 8	< 4.1	-
	Aar (Däniken), 03.09.2021	113	< 7.4	< 7.4	2.0 ± 0.8	-
	Aar (Bezau), 09.05.2021	98	n.m.	n.m.	< 3.6	-
	Rhin (Leibstadt), 03.11.2021	45	< 7.2	< 7.2	< 7.2	-



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 quatre stations de prélèvement à haut volume sont présentés dans le Tableau 2. Nous avons aussi inclus dans ce rapport l'analyse de filtres à air collectés sur les stations de Cadenazzo, du CERN, de Güttingen, de Klingnau, de Liebfeld et de Posieux durant les tempêtes de sable du Sahara, du 01.02.2021 au 24.02.2021. 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 m<sup>3</sup>, 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, région dans laquelle 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 µg/m<sup>3</sup> (Suisse : 1.9 - 11.8 µg/m<sup>3</sup>). L'activité en <sup>239+240</sup>Pu était de 2.34 ± 0.20 nBq/m<sup>3</sup> et celle en <sup>241</sup>Am de 1.04 ± 0.15 nBq/m<sup>3</sup>. Ces activités s'intègrent parfaitement parmi celles mesurées habituellement en Suisse, comme démontré dans la Figure 1. De plus, les rapports isotopiques <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu de 0.035 ± 0.015 et <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu de 0.45 ± 0.08 sont très représentatifs des retombées des essais nucléaires des années soixante, comme discuté ci-dessus.

La Figure 1 représente l'activité en nBq/m<sup>3</sup> des filtres à air de différentes stations de prélèvement d'air en Suisse de 2013 à 2021, 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. 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. En 2021, tous les points du plan de surveillance (carrés bleus, Figure 1 a et b) se trouvaient dans l'intervalle de confiance du modèle, ce qui indique qu'il n'y a pas eu de contamination atmosphérique autre que la resuspension de particules de sols. En divisant les activités exprimées en nBq/m<sup>3</sup> par la quantité de cendres résiduelle des filtres à air (µg/m<sup>3</sup>) et en prenant un rapport de calcination moyen des sols en Suisse de 0.95, on obtient une estimation de l'activité des particules de sol resuspendus. Celle-ci est en

moyenne de 0.178 ± 0.067 Bq/kg ms en <sup>239+240</sup>Pu pour les 5 sites étudiés et confirme que les activités mesurées en 2021 proviennent bien uniquement de la resuspension de particules de sol, car figurant bien dans l'intervalle des mesures de <sup>239+240</sup>Pu sur le plateau Suisse en 2021 (moyenne = 0.195 ± 0.100 Bq/kg ms, n=18). Ces données confirment également que la tempête de sable saharien de février 2021 n'a pas contribué à un apport significatif de radioactivité dans l'air en Suisse.

Comme les années précédentes, le site de Posieux montre une activité en Pu légèrement plus élevée (1.41 nBq/m<sup>3</sup>) que les autres stations, toutefois très proche de la mesure du deuxième semestre pour le site de Liebfeld (1.38 nBq/m<sup>3</sup>). C'est aussi pour ces deux sites que la quantité de cendres après calcination des filtres à air est la plus élevée (5.2 et 7.9 µg/m<sup>3</sup>). D'une manière générale, et en accord avec les années précédentes, les activités n'ont pas dépassé 1.41 nBq/m<sup>3</sup> pour <sup>239+240</sup>Pu et 0.69 nBq/m<sup>3</sup> pour <sup>241</sup>Am. Le rapport <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu était de 0.48 ± 0.07, soit une valeur très proche de celui déterminé en 2021 pour les sols, ce qui confirme encore une fois que l'origine de la contamination de filtres à air par ces deux radioéléments provient de la resuspension de particules de sol uniquement.

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 2020. L'activité du <sup>238</sup>Pu est restée inférieure à la limite de détection dans tous les cas. Lorsqu'elle est quantifiable, l'activité en <sup>241</sup>Am est toujours plus basse que celle en <sup>239+240</sup>Pu, ce qui confirme que l'origine de la contamination est due aux retombées des essais nucléaires des années soixante.

Dans les eaux souterraines, 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.

La plupart des résultats de mesure d'échantillons d'eau de surface ou souterraine se trouvent en dessous des limites de détection et montrent qu'il est nécessaire de prélever au moins 200L d'eau pour être en mesure de déterminer les activités en <sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am avec une sensibilité suffisante pour des mesures par spectrométrie alpha. En 2021, les volumes prélevés étaient en moyenne de 50- 100L inférieurs aux volumes prélevés en 2020, ce qui s'est traduit par des activités mesurées le plus souvent en dessous des limites de détection. En joignant les prélèvements de deux mois en mai et juin sur le site de Hagneck, nous avons obtenus 350L d'eau de surface, permettant une mesure en dessus de la limite de détection, ce qui confirme de manière rassurante que seuls des prélèvements de grands volumes permettent une quantification de l'activité en <sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am. La mesure des eaux de pluie représente une mesure indirecte de la contamina-

tion de l'air, les précipitations ayant pour effet d'entraîner les particules en suspension dans l'air vers le sol. Les eaux de pluie présentaient des activités en Pu et Am similaires à celles des eaux de surface, en moyenne inférieure à 2.5 mBq/m<sup>3</sup> pour Pu et inférieure à 1 mBq/m<sup>3</sup> pour Am.

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 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 (22-44 g de masse sèche) sont un obstacle à la quantification systématique de Pu et Am si le rendement de séparation chimique n'atteint pas 65%. Comme pour les sédiments, les activités en Pu et Am des plantes aquatiques sont restées proches de celles des années précédentes. Le rapport <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu proche de 0.5 confirme qu'il n'y a pas eu d'apport significatif d'un des deux radioéléments aux plantes aquatiques autrement que par un dépôt foliaire de particules de sédiments contenant Pu et Am dans des rapports isotopiques proches de ceux des sols.

Dans les poissons, aucune activité quantifiable au-dessus de la limite de détection n'a été mesurée à l'exception de <sup>241</sup>Am dans un poisson de l'Aar à Däniken (2.0 ± 0.8 mBq/kg) dont la masse sèche disponible pour l'analyse était supérieure (113g) aux autres prélèvements. Ce fait est en soit positif, car il signifie un environnement sain du point de vue de la radioactivité artificielle résiduelle. Pour tous les échantillons aquatiques, <sup>238</sup>Pu 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 (< 0.567 Bq/kg) de Pu et (< 0.323 Bq/kg) 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 1.41 nBq/m<sup>3</sup> en <sup>239+240</sup>Pu et 0.69 nBq/m<sup>3</sup> en <sup>241</sup>Am. Les deux tempêtes de sable sahariennes du mois de février 2021 n'ont pas apporté de contribution significative à la contamination de l'air par Pu et Am et les valeurs mesurées sur un échantillon formé des filtres collectés dans les stations de Cadenazzo, du CERN, de Güttingen, de Klingnau, de Liebefeld et de Posieux sont comparables à ce qui est mesuré habituellement en Suisse. La masse de cendre est un bon estimateur de la quan-

tité 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 4.7 mBq/m<sup>3</sup>. Les mesures confirment qu'il est nécessaire de collecter plus de 200L d'eau pour fournir des résultats en dessus de la limite de détection de la mesure par spectrométrie alpha.

Les mesures dans les sédiments en aval des centrales nucléaires n'ont pas montré de marquage propre aux rejets des centrales nucléaires; 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 d'une valeur très faible de <sup>241</sup>Am (2.0 ± 0.8 mBq/kg ms). 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.

