

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}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}C -Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}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 $-4 \pm 3\%$.

Die 83 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -19% (E-10, Basel Kronenplatz) bis maximal $+61\%$ (Kernkraftwerk Leibstadt, Ried) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lag der Netto-Höchstwert bei 0% (E-6, Rosentalanlage), alle anderen Standorte in Basel wiesen Messwerte $<0\%$ 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}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 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}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. 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 $^{14}\text{C}_2$ 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 Pharma) und -Verdünnungen (KVA, Industrie, Strassenverkehr) 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 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			

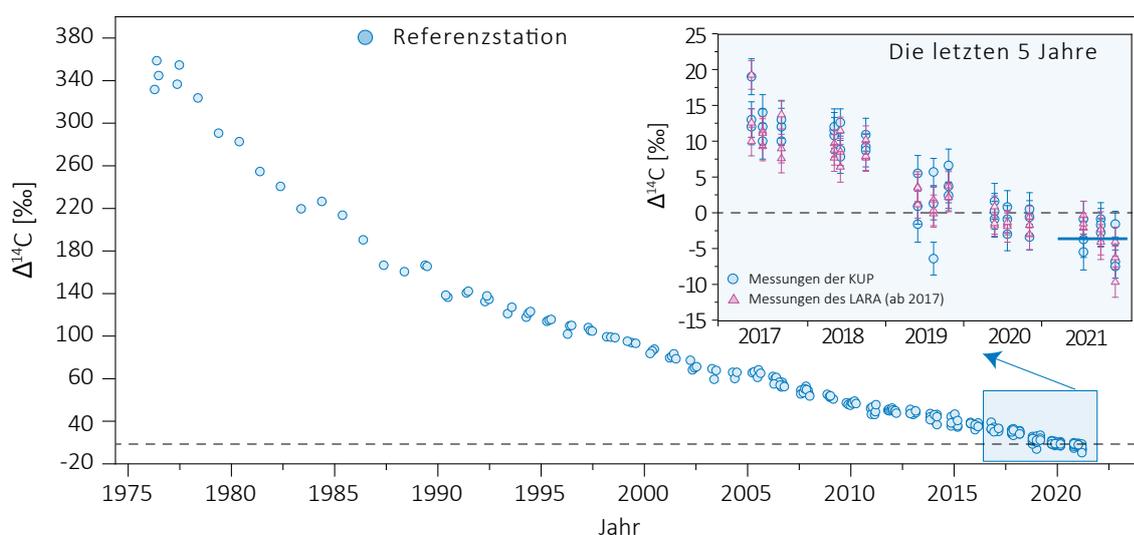
Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ^{14}C -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ^{14}C -Quellen oder Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- bzw. Lindenblätter gesammelt. Ihr ^{14}C -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit $^{14}\text{A}_0$ verglichen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

Es kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

- *Methode A:* ^{14}C -Bestimmung nur in der Blattkohle¹
- *Methode B:* ^{14}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}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}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}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}C -Abgaben während des Revisionsstillstands erfassen zu können. Eine Ausnahme bildet das Kernkraftwerk Leibstadt (siehe folgenden Abschnitt). Die Messungen erfolgten im Labor zur Analyse

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

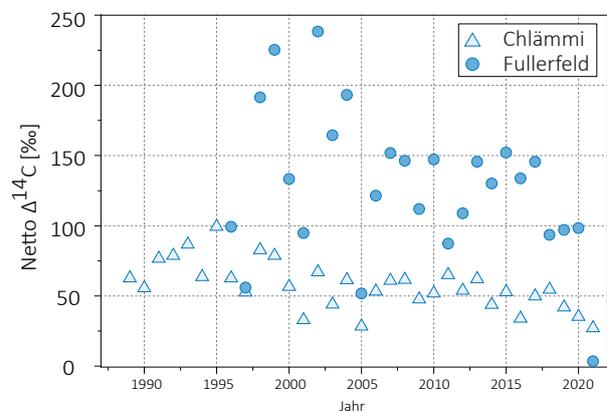
von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) am Departement für Chemie, Biochemie und Pharmazie der Universität Bern. Im Allgemeinen wurden ganze Blätter analysiert (Methode B).

Kernkraftwerk Leibstadt

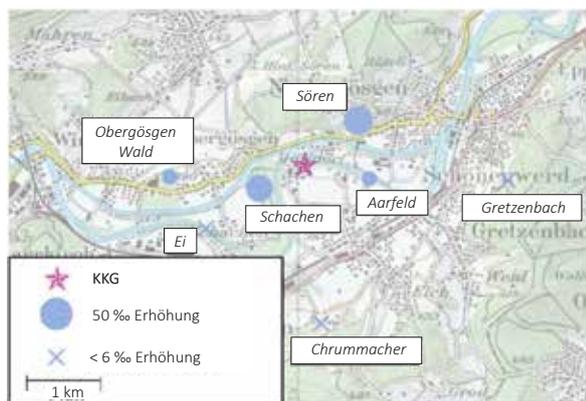
Im Umfeld des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL) wurden im Jahr 2021 zwei Probenahmen durchgeführt: die erste am 22. Juni 2021 vor der Jahresrevision, die ursprünglich vom 24. Mai bis 26. Oktober 2021 terminiert war und schliesslich bis Anfang Dezember 2021 dauerte, und eine zweite am 15. September 2021 während der Revision. Es wurden Blätter von Laubbäumen an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und auf ihren ^{14}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}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.



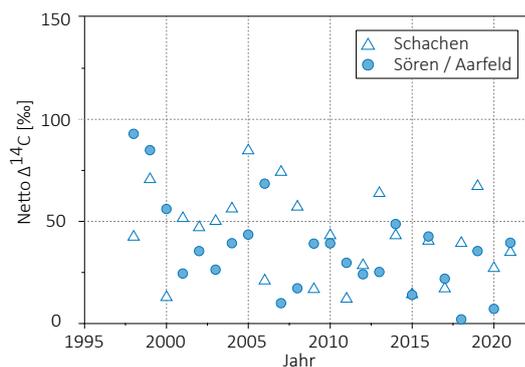
Figur 3: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt (Standorte: siehe Figur 2). Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.



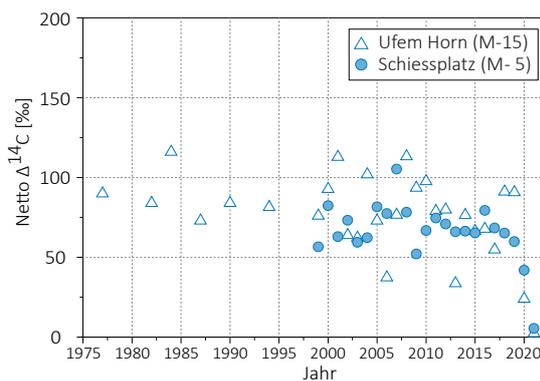
Figur 4: Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 22.05.2021 bis 24.06.2021. Probenahme: 05.07.2021. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



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 (Δ) 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 (Δ) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messgebinn. 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}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 $>100\text{‰}$ 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}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.

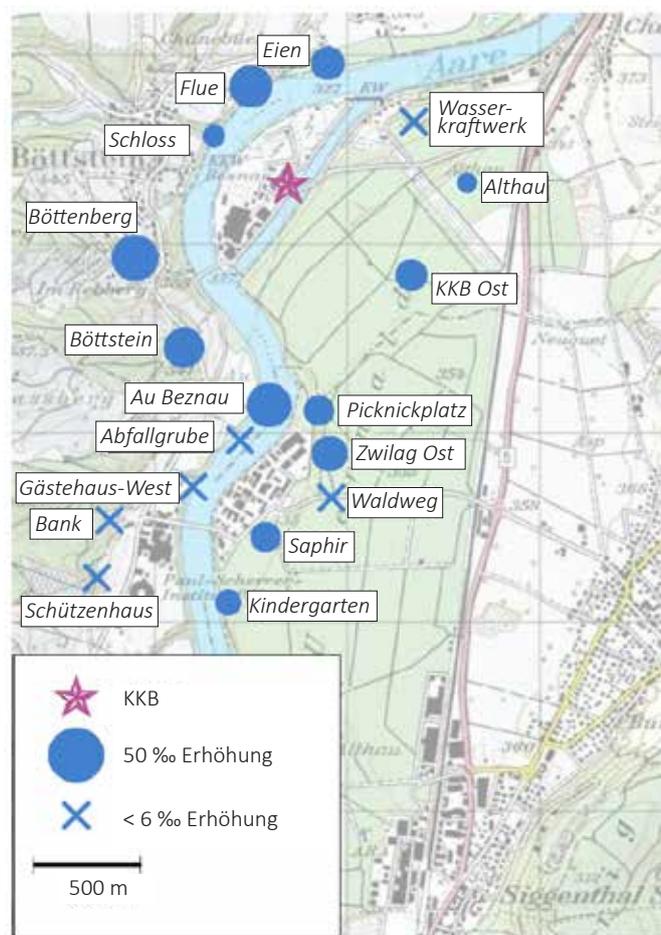
In Figur 6 sind die Ergebnisse der Probenahme dargestellt. Die grösste Erhöhung wurde mit 14‰ am Standort M-14 (Runtigenrain) gemessen. Sämtliche im Jahr 2021 gemessenen Proben liegen deutlich unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem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

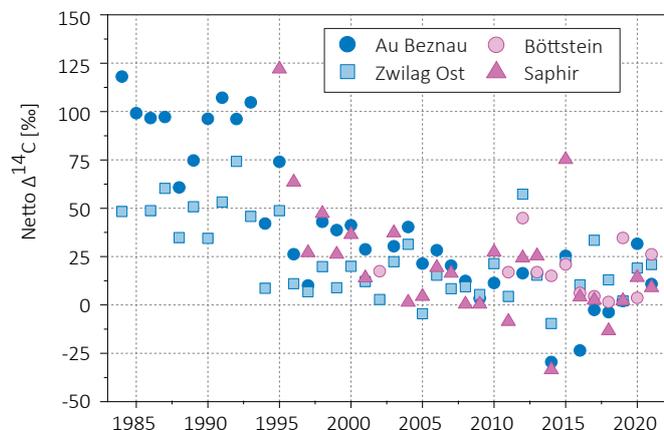
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau

Auch im Jahr 2021 wurden die zu diesen Standorten gehörenden ^{14}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.

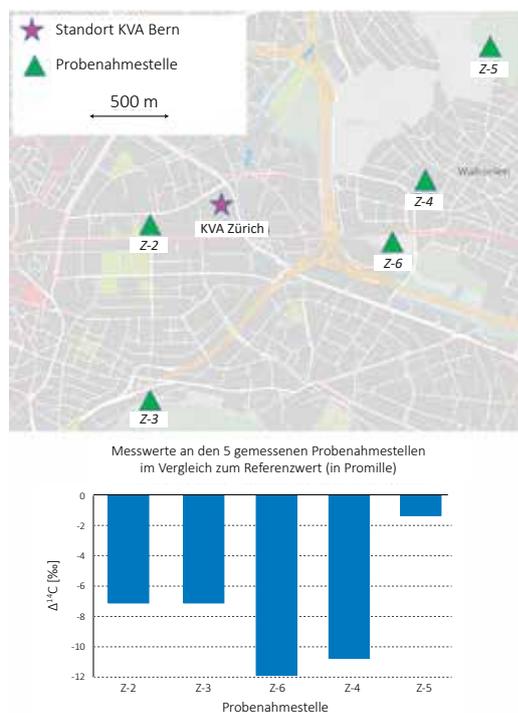
Kehrichtverbrennungsanlagen

KVA Bern

In Blättern von Bäumen, die am 26. August 2021 an vier Probenahmestellen im Umfeld der Kehrichtverbrennungsanlage (KVA) Bern Forsthaus gesammelt wurden, konnte keine erhöhte ^{14}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}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 10a sind oben die vier Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.

KVA Lausanne

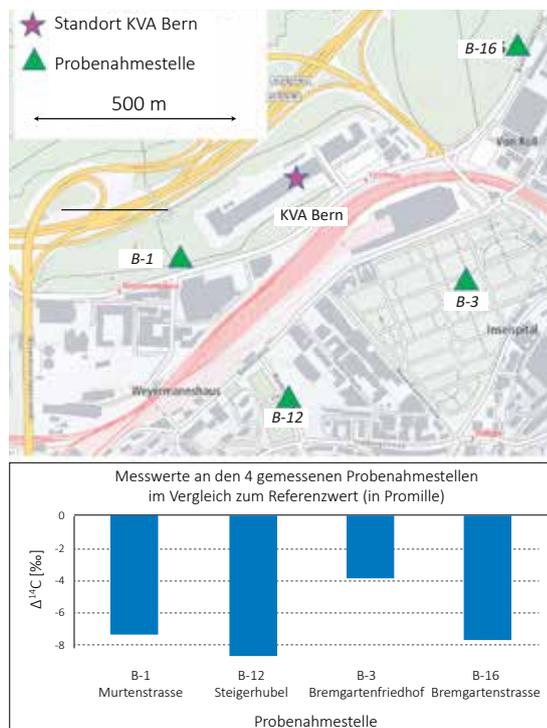
Am 15. September 2021 wurden fünf Probenahmestellen im Umfeld der KVA Lausanne beprobt. Es wurden keine Erhöhungen der ^{14}C Konzentration festgestellt. An der Probenahmestelle Libellules (L-128) wurden 0‰ gemessen. Dies bedeutet, dass an diesem Ort eine allfällige Erhöhung der ^{14}C -Konzentration 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.



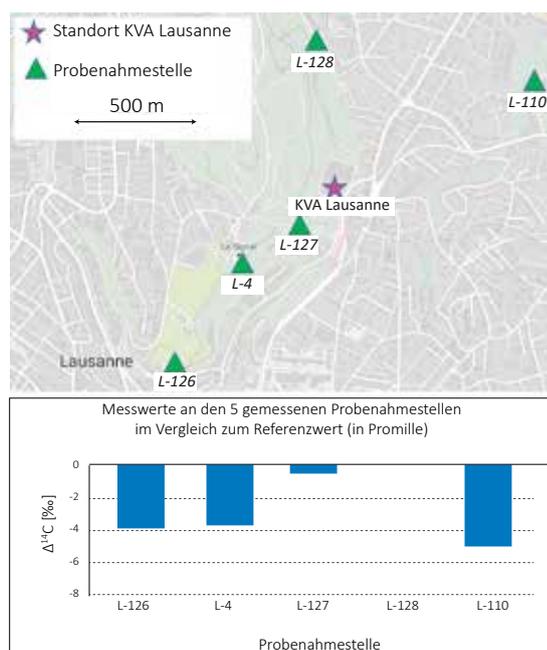
Figur 10c: Probenahmestellen und $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte bei der KVA Zürich. Messungen: KUP.

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}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.



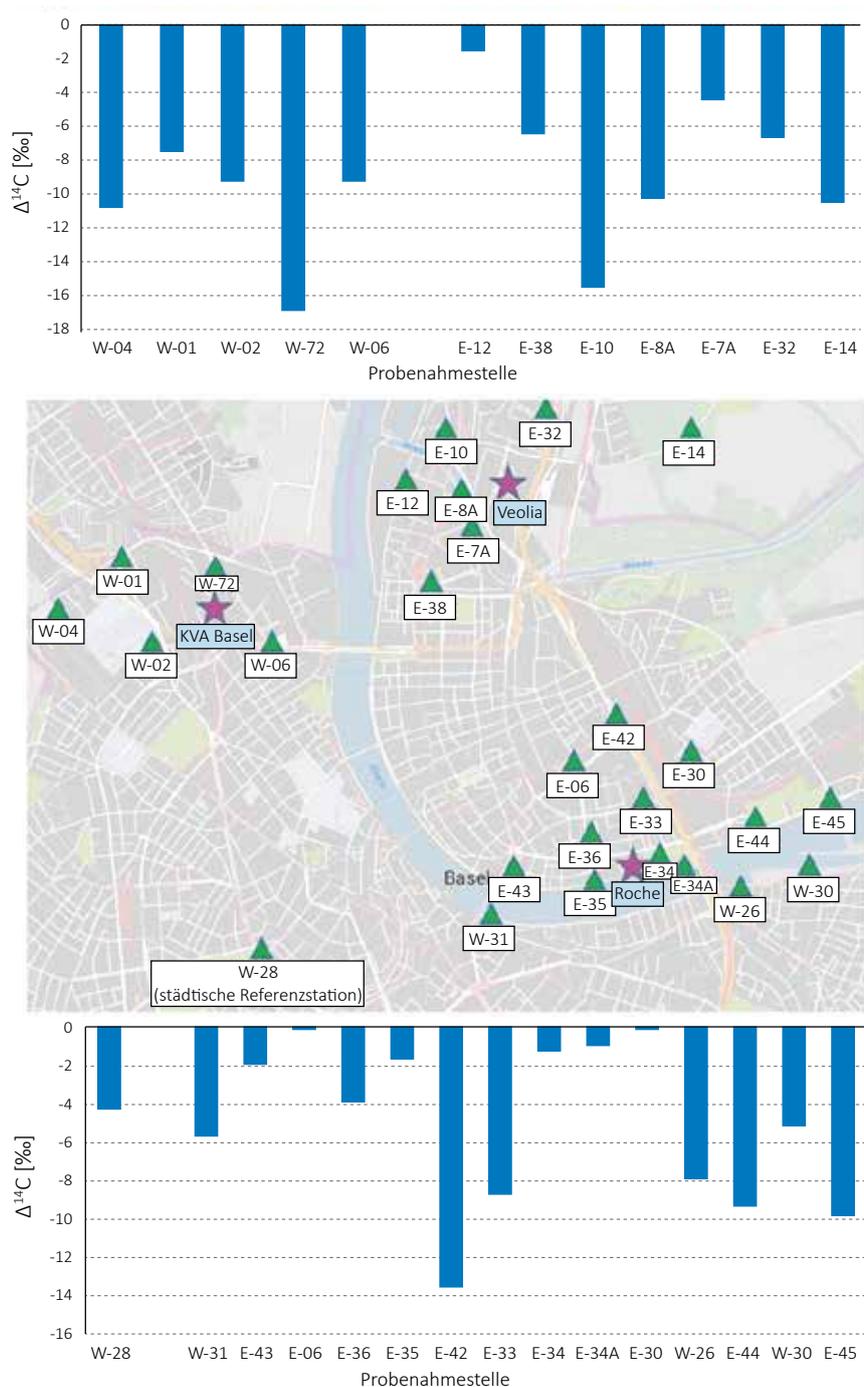
Figur 10b: Probenahmestellen und $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte bei der KVA Lausanne. Messungen: KUP.

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-

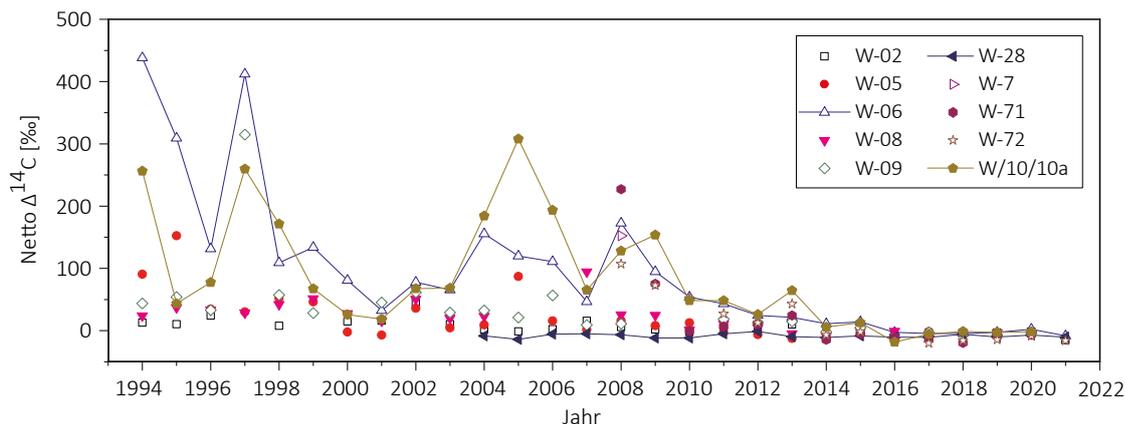
tisch allen Standorten wurde aufgrund des weiter oben erwähnten Suess-Effekts eine Verdünnung der $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt, häufig um 10‰ oder mehr (Figur 11). Auch in der Nähe zur Grenze nach Frankreich nordwestlich der KVA Basel sowie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

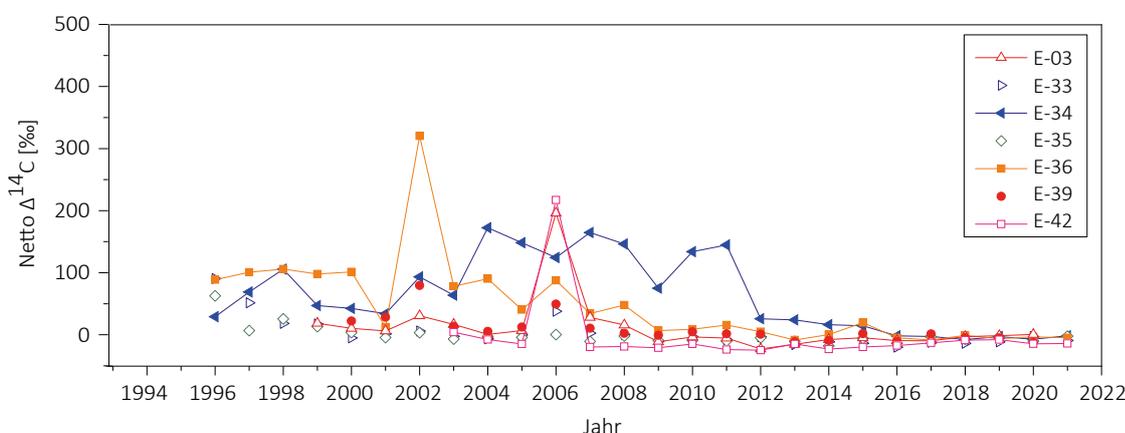


Figur 11 :

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}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}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.

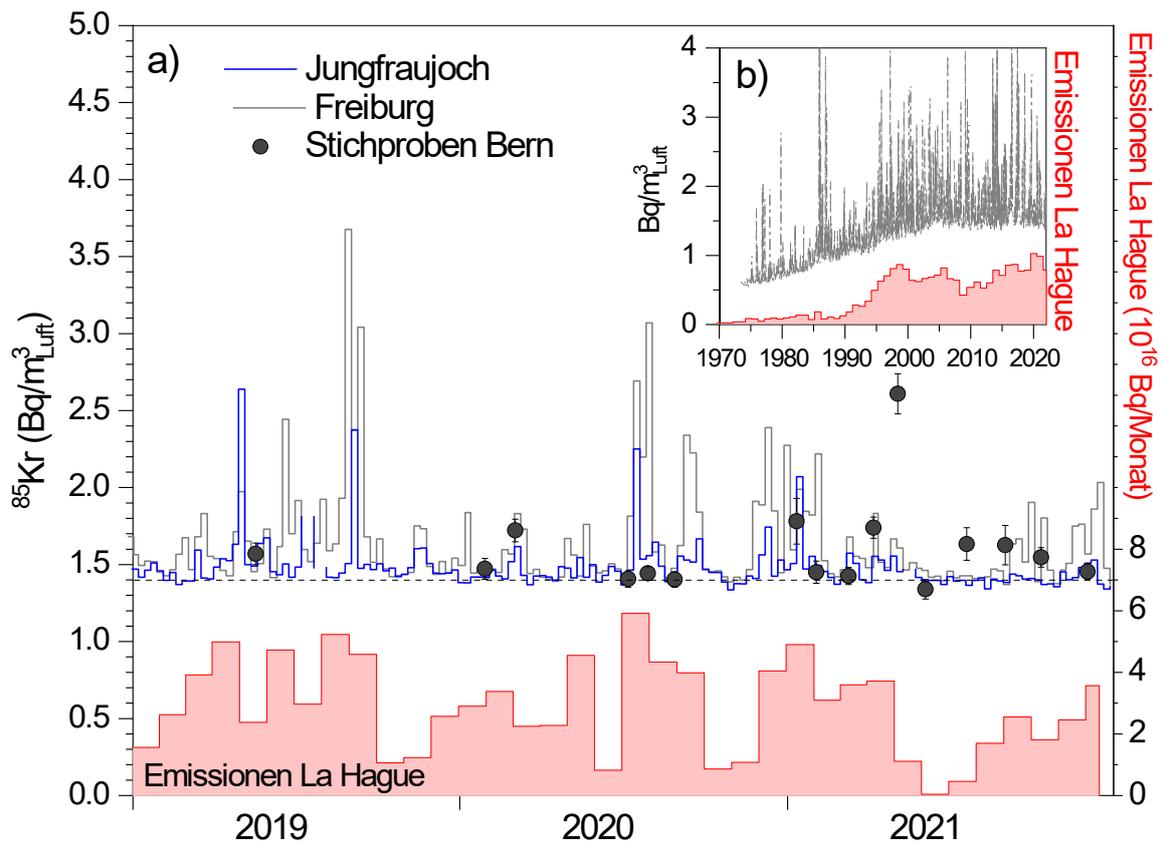
Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich in den letzten Jahren auf einem sehr niedrigen Niveau stabilisiert.

Der Rückgang der ^{14}C -Werte gegenüber früheren Jahren ist darauf zurückzuführen, dass die Firma 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 (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}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 lange Zeit 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.



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).

Krypton-85 (^{85}Kr)

Das radioaktive Edelgasisotop ^{85}Kr ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von 10.74 ± 0.02 Jahren. Natürliches atmosphärisches Krypton-85 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 $9 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$ oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von $\sim 0.2 \mu\text{Bq/m}^3_{\text{Luft}}$. 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 14a). Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6.2% ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von ^{85}Kr übertroffen, was zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 14b).

In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von $1.4\text{--}1.5 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$ 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 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}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}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 Jungfraujoch 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}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}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. $0.5 - 2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$, 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/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}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