

7.1

Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37

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

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

S. Szidat und C. Espic

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

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

Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, Freiburg im Breisgau

M. Heule

Paul Scherrer Institut, Villigen PSI

M. Saurer, A. Gessler

Eidgenössische Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft (WSL), Birmensdorf

Zusammenfassung

Die Messungen des Gehalts an Kohlenstoff-14 (^{14}C) im Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrlichtverbrennungsanlagen (KVA Bern), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2019 weitergeführt. Als Referenzwert diente hierbei der ^{14}C -Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C -Quellen und -Verdünnungen, an denen im Jahresverlauf je drei Messungen (im Mai, Juni und Oktober 2019) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2019 der $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert $2 \pm 3\text{‰}$.

Die 90 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -20‰ (W-72, Basel Brenntag) bis maximal $+102\text{‰}$ (Kernkraftwerk Leibstadt, Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lagen die Höchstwerte bei 11‰ (E-74, Wiesensteg) bzw. 1‰ (W-10A, Novartis St. Johann). Selbst die Maximalwerte entsprechen einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von nicht mehr als $1\text{ }\mu\text{Sv}$ ($1\text{ }\mu\text{Sv} = 10^{-6}\text{ Sievert}$) 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 wurden in der Regel an einem der beiden Radiocarbonlabore der Universität Bern durchgeführt: im ^{14}C -Labor der Klima- und Umweltphysik (KUP) des Physikalischen Instituts und/oder im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS, LARA (AMS: accelerator mass spectrometry) des Departements für Chemie und Biochemie. Ausnahmen sind erwähnt.

Referenzwert

Zwischen 1955 und 1966 wurden im Rahmen von Nuklear-waffentests 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 erreicht:

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

Auf lokaler Ebene lässt sich eine als «Suess»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen $^{14}\text{CO}_2$ nachweisen. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem ^{14}C -Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration.

Radiocarbon-Quellen (KKW und Basel) und Verdünnungen (KVA, Industrie, Autobahnen) können den ^{14}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:

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

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

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

Die Differenz

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

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

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

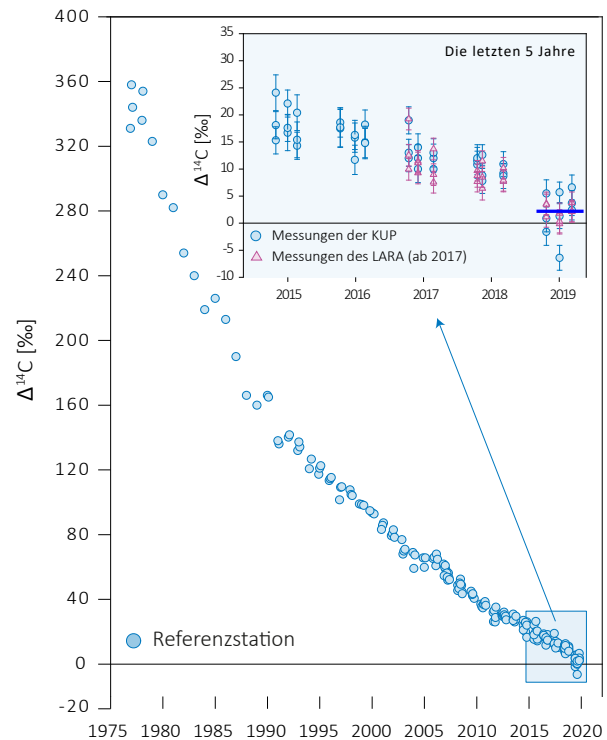
Es kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

- *Methode A:* ^{14}C -Bestimmung nur in der Blattkohle ¹
- *Methode B:* ^{14}C -Bestimmung im ganzen Blatt

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

Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber potenziell genauere Methode B wird vom Radiocarbon-Labor der KUP in der Regel nur für Proben von Standorten verwendet, die in den Vorjahren deutlich höhere Werte zeigten bzw. bei denen ein erhöhtes Interesse am Fortführen der bestehenden Zeitreihen besteht.

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



Figur 1: $\Delta^{14}\text{C}$ -Konzentrationen in Buchen- und Lindenblättern von den Referenzstationen. Die blaue Linie zeigt den bestimmten Referenzwert während der Vegetationszeit. Kreise: Messungen der KUP. Dreiecke in der Detailansicht (ab 2017): Messungen des LARA.

Tabelle 1:

Messwerte 2019 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen.

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

Das LARA am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern bereitet sowohl Holz- als auch Laubproben im Allgemeinen nach Methode B auf. Zur Ermittlung des Referenzwertes wurde von beiden Labors Methode A verwendet.

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



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

^{14}C im Umfeld der Schweizer Kernkraftwerke

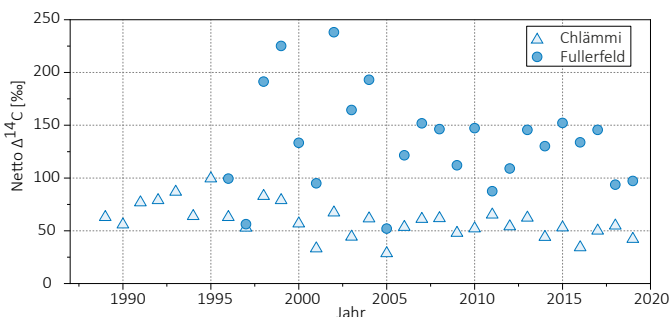
Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] wurden die Schweizer Kernkraftwerke im Jahr 2019 sicher betrieben. Am Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) kam es zu insgesamt drei automatischen Schnellabschaltungen, und zwar am 24. April, 12. Mai und 28. Dezember 2019. Die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

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

Die Laubprobenahmen im Umfeld der Kernkraftwerke erfolgten im Allgemeinen während oder nach der Jahresrevision der entsprechenden Kraftwerke, um auch mögliche ^{14}C -Abgaben während des Revisionsstillstands erfassen zu können. Eine Ausnahme bildet das KKM, da dort im Jahr 2019 wegen der anstehenden Stilllegung kein Revisionsstillstand stattgefunden hat.

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

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



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

durchgeführt wurden, erfolgten die Messungen jeweils im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern. Im Allgemeinen wurden ganze Blätter analysiert (Methode B).

Kernkraftwerk Leibstadt

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

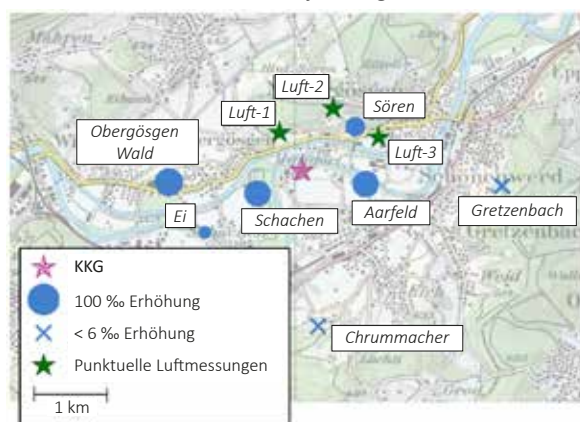
Figur 3 zeigt die gemessenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämli seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2019 lag der höchste Messwert nordwestlich des KKL bei 102‰ (Standort Fullerfeld).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

Kernkraftwerk Gösgen

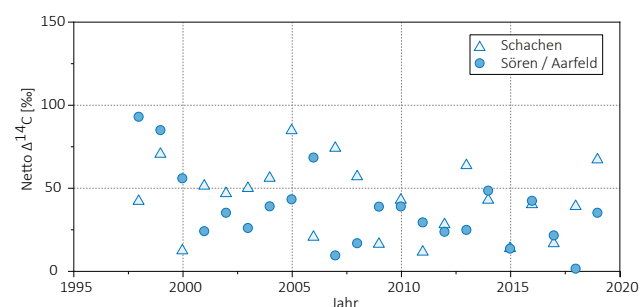
In Figur 4 sind die Resultate der am 25. Juni 2019 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Sämtliche Messwerte liegen nahe bei den langjährigen Mittelwerten bzw. darunter. Die höchsten ^{14}C -Messwerte resultierten in diesem Jahr mit einer Erhöhung von ca.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

In Figur 5 sind die z. T. seit Messbeginn ermittelten höchsten Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Werte >100‰ wurden in dieser Zeitspanne nie festgestellt. Höchstwerte resultierten in der Regel in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer in derselben Windrichtung.

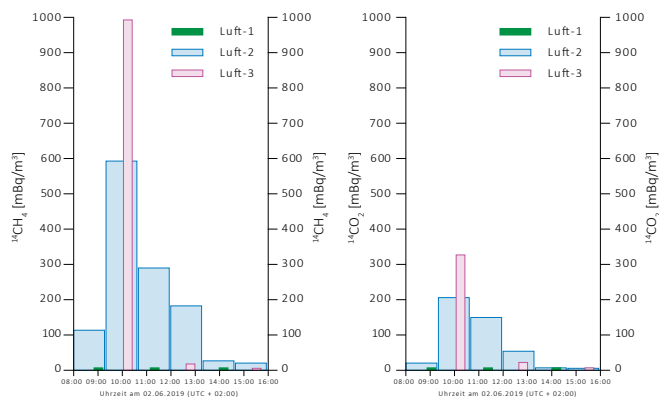
Zu Beginn der Revision von KKG wurden während 8 Stunden insgesamt 18 Luftproben von je ~100L an fünf Standorten in der Umgebung des Kraftwerks gesammelt, um punktuelle Maximalaktivitäten von radioaktivem Methan ($^{14}\text{CH}_4$), $^{14}\text{CO}_2$ und ^{37}Ar zu ermitteln. Zu diesem Zeitpunkt wurde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



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

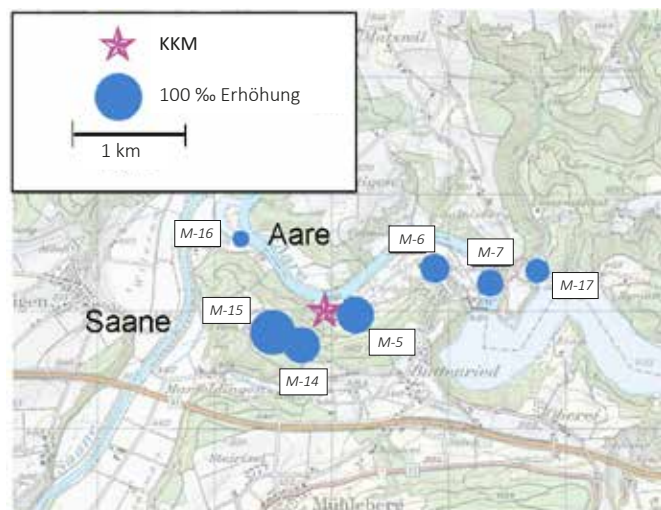


Figur 5: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4. Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA



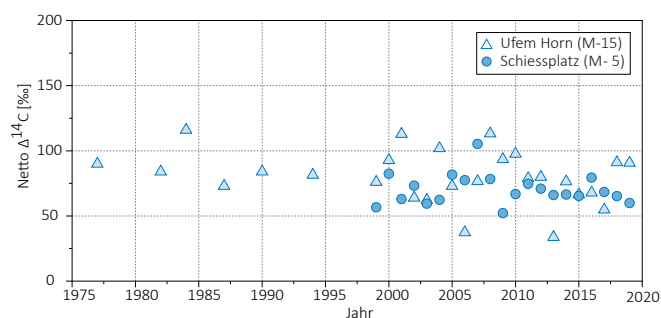
Figur 6:

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



Figur 7:

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



Figur 8:

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

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

Kernkraftwerk Mühleberg

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

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

Messreihe Liebefeld/Ufem Horn

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

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

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

Im Frühjahr 2018, noch vor dem Austreiben des Laubs, wurde der Baum samt Topf an den Standort Ufem Horn verfrachtet, wo er den Sommer über verblieb und während der Wachstumsphase das dortige CO_2 für seinen Stoffwechsel verwendete. Eine Beprobung des Baumes im Herbst 2018

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

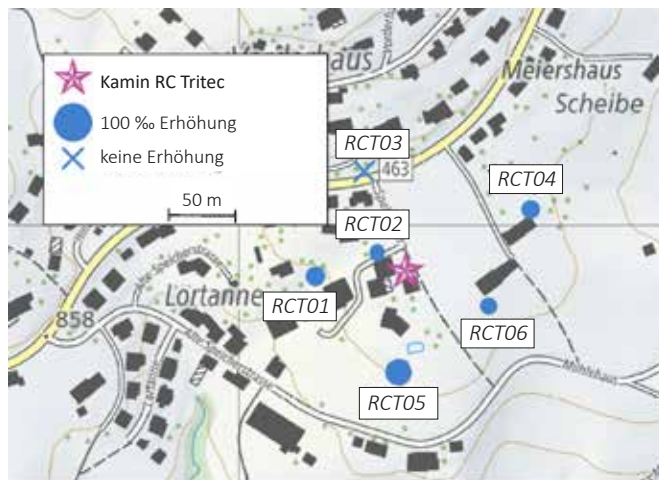
Das Jahr 2019 verbrachte der Baum wieder an seinem ursprünglichen Standort im Liebefeld. Die Messwerte kehrten wieder auf das ursprünglichen Netto ^{14}C -Niveau zurück (-4%).

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

RC Tritec AG

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

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



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

erhöhten Werte festgestellt.

In Figur 12 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden. Alle hier dargestellten Messungen ausser dem Standort Böttstein (Symbol $\odot$) erfolgten durch das PSI.

Kehrichtverbrennungsanlagen

In Blättern von Bäumen, die am 12. August 2019 an vier Probenahmestellen im Umfeld der Kehrichtverbrennungsanlage (KVA) Bern Forsthaus gesammelt wurden, konnte keine erhöhte ^{14}C -Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Messpunkte wiesen Werte auf, die unter dem Referenzwert von 2% lagen. Im Gegensatz zu Blättern, die im Umfeld der Kernkraftwerke gesammelt wurden, findet hier im Stadtgebiet eine

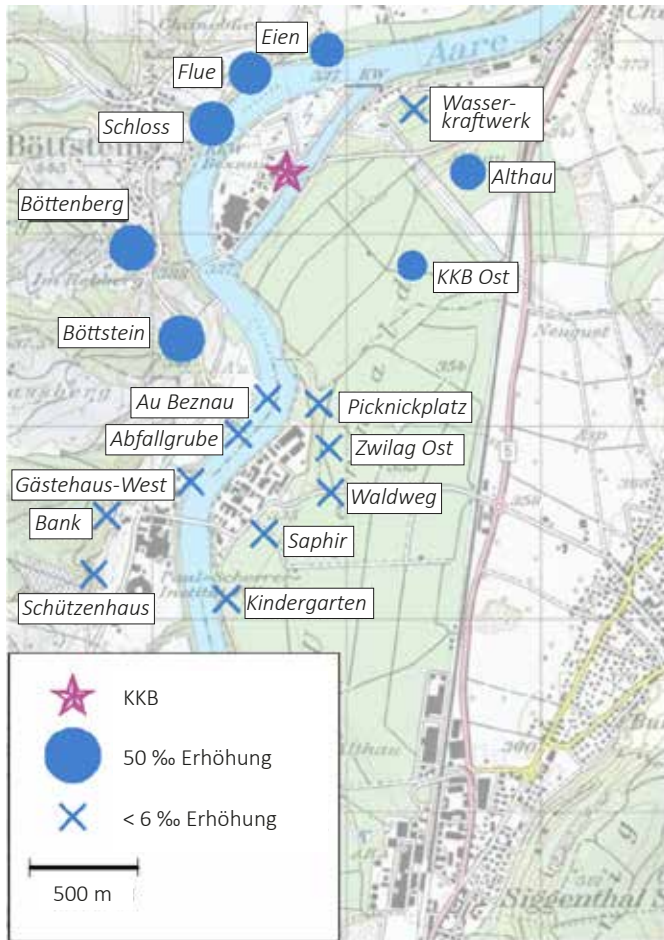


Figur 9:
Rosskastanie als mobile Messstation 2017 bis 2019.

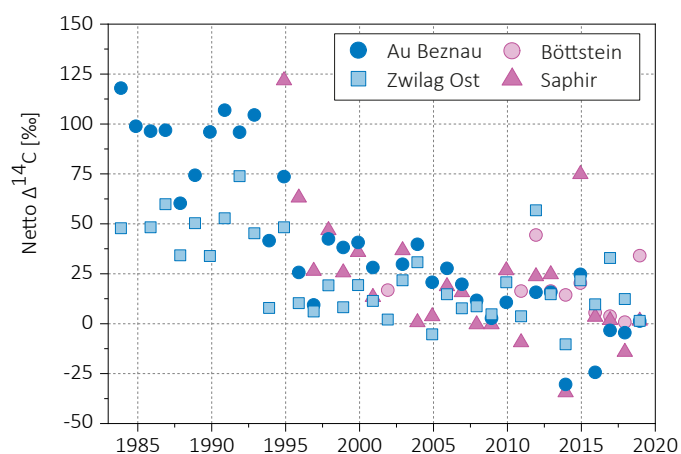
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau

Die zu diesen Standorten gehörenden ^{14}C -Messungen in den Blattproben wurden am Paul Scherrer Institut (PSI) bzw. im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) des Departements für Chemie und Biochemie der Universität Bern durchgeführt: Messungen der Standorte Eien, Althau, KKB Ost, Böttstein, Flue, Schloss, Böttstein erfolgten am LARA, die restlichen Messungen am PSI.

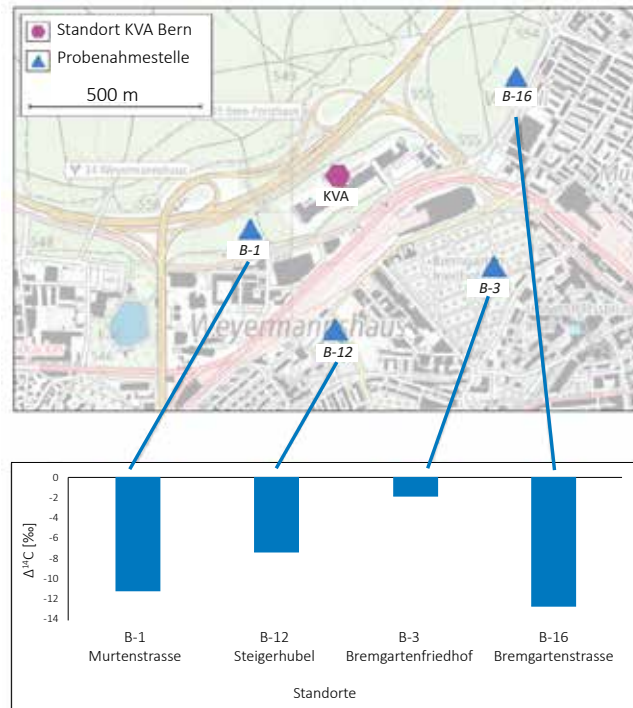
Im Kernkraftwerk Beznau (KKB) sind seit März 2018 wieder beide Reaktorblöcke im Betrieb. Im Jahr 2019 wurden höhere Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte gemessen als im Vorjahr. Im Umfeld des PSI und Zwiilag wurden keine



Figur 11:
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerkes Beznau (KKB) im Jahr 2019 (M. Heule, PSI, in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Revisionsabschaltung KKB I: 03.05.2019 bis 09.06.2019, KKB II: 16.08.2019 bis 20.09.2019. Probenahme: 16.09.2019. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



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



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

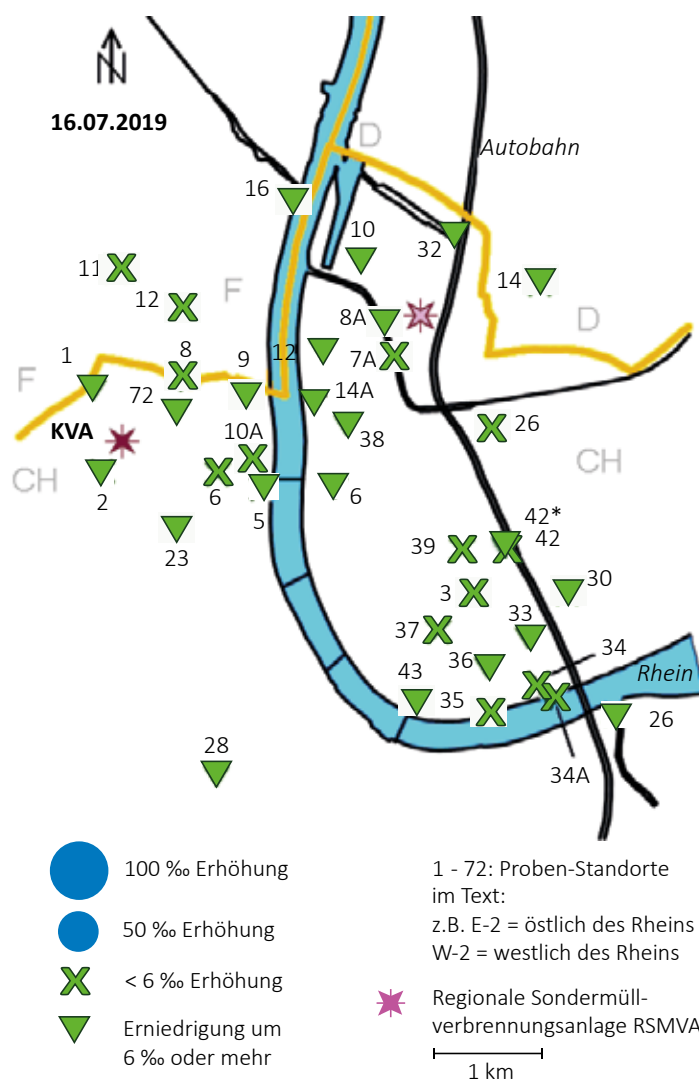
Verdünnung (oder Absenkung) der ^{14}C -Konzentration gegenüber den Referenzstationen statt. Dies ist eine Folge der Abgase von ^{14}C -freien, fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen aufgenommen werden (siehe «Suess»-Effekt weiter oben).

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

Messungen in der Region Basel-Stadt

Auch im Jahr 2019 wurden drei Laubprobenahmen in Basel durchgeführt, wobei die Hauptprobenahme im Juli stattfand. Im Westen des Stadtgebiets befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten diejenigen um das Areal der Firma F. Hoffmann-La Roche, ganz im Norden diejenigen um das Areal der regionalen Sondermüllverbrennungsanlage (RSMVA). Die höchsten am 16.07.2019 gemessenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betrugen westlich des Rheins 1‰ (Novartis Bau 27, Standort W-10A) und östlich -2‰ (Solitude, Standort E-34). Allfällige Erhöhungen der $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration werden also durch den «Suess»-Effekt an den meisten Standorten mehr als kompensiert, sodass praktisch überall eine Verdünnung der $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt wurde.

Auch im französischen und deutschen Grenzgebiet nördlich des Novartis-Werks St. Johann bzw. östlich der RSMVA wurden keine Erhöhungen registriert. An zahlreichen Standorten wurden aufgrund des «Suess»-Effekts Erniedrigungen um 6‰ oder mehr ermittelt (Figur 14, Symbol ▼).

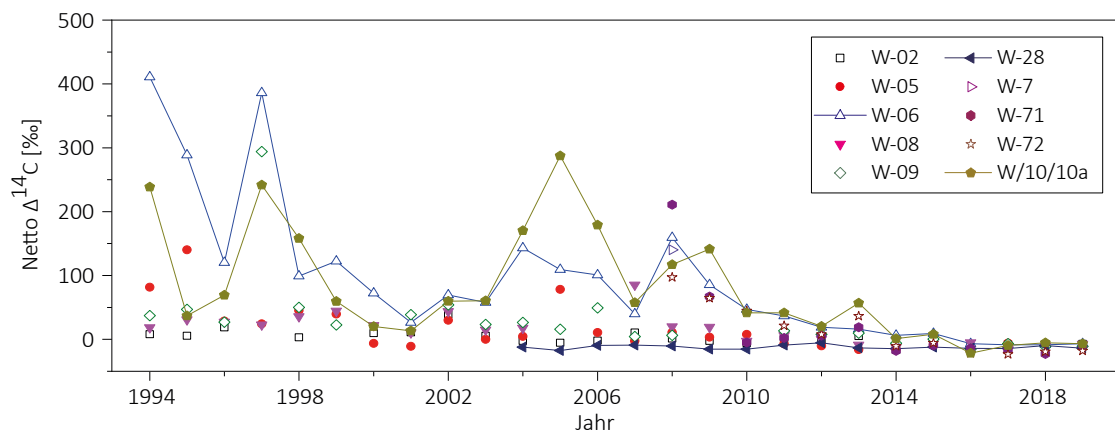


Figur 14:
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

Tabelle 2:

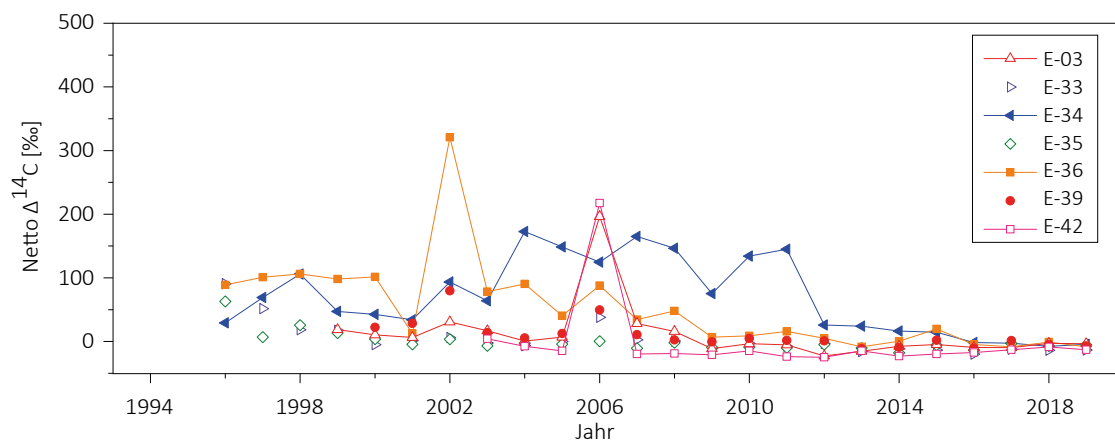
Im Jahre 2019 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 bis 2018) am Standort Basel östlich (E-nn) und westlich (W-nn) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von ^{14}C -Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt		
	2019 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2018 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2019 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2018 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	
E-03	-3	197 (2006)	-	23	(2007)
E-26	-5	169 (1996)	-	-	
E-34	-2	106 (1998)	- 2	173	(2004)
E-42	-10	4 (2003)	-	-	
E-42*	-8	218 (2006)	-	-	
W-06	-2	438 (1994)	- 1	172	(2008)
W-10A	-6	259 (1997)	1	308	(2005)
W-28	-11	- 6 (2007)	- 11	- 13	(2013)
W-71	-5	227 (2008)	- 6	75	(2009)
W-72	-14	107 (2008)	- 12	115	(2010)



Figur 15:

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



Figur 16:

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

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

Die Figuren 15 und 16 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich in den letzten Jahren auf einem sehr niedrigen Niveau stabilisiert.

Der Rückgang der ^{14}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.

Edelgas-Radionuklide

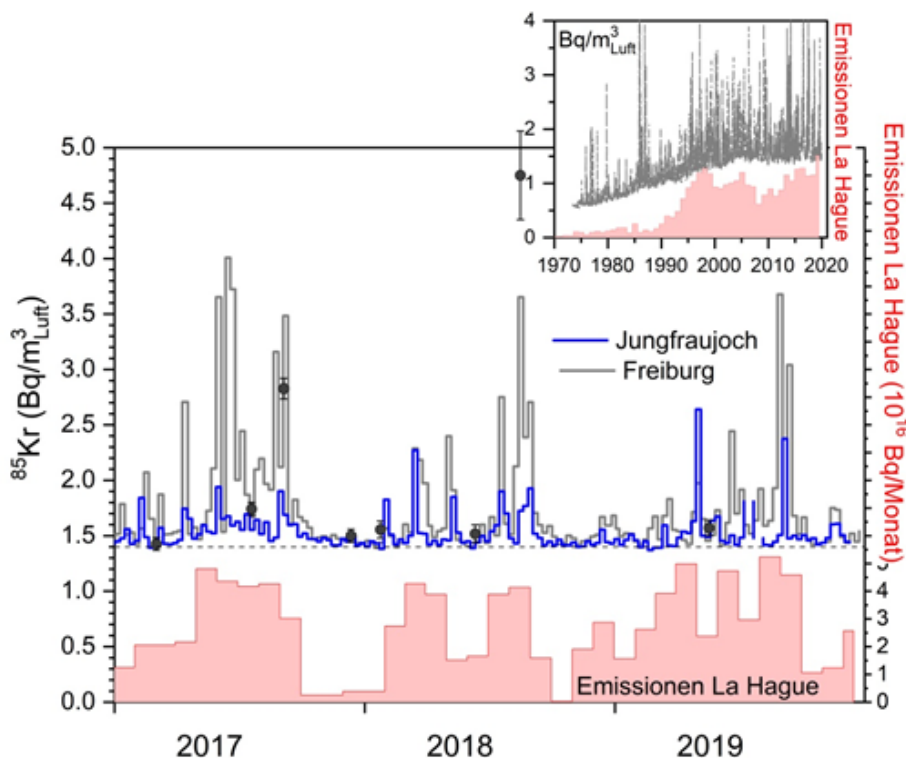
Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 und Argon-37 werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}Kr , freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10,76 Jahren und den lange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

konzentration 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 10.76 ± 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 17). 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 17, kleines Bild).

In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von $1.4\text{--}1.5 \text{ Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$ in Mitteleuropa zu beobachten. ^{85}Kr wird an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfraujoch (JFJ) gesammelt und im Edelgaslabor des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg im Breisgau analysiert werden [2] (Figur 17). Zum Vergleich sind auch die entsprechenden Werte von Freiburg im Breisgau dargestellt. Die Zeitperioden von gehäuften Aktivitätsspitzen, die den Basiswert bei der Station Freiburg um bis zu einem Faktor 3 übersteigen, stimmen bei beiden Stationen überein mit Zeiten erhöhter Emissionsraten von La Hague [3]. Wegen der erhöhten Lage der Station JFJ wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf.



Figur 17:

Atmosphärische ^{85}Kr Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3500 m. ü. M.), Freiburg i. Br. (276 m. ü. M.) sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Uni Bern) über die letzten drei Jahre. Die Messungen der Proben von den beiden Stationen in Freiburg i. Br. und vom Jungfraujoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg i. Br. durchgeführt. [2]. Kleines Bild: 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) [3].

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

Stichproben, genommen in wenigen Minuten und gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern, bestätigen den Aktivitätsbereich und die zeitliche Abfolge der Beobachtungen in Freiburg und auf dem Jungfrauoch.

Argon-37 (^{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.

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

Tabelle 3:

Am 2.6.2019 in Abwindrichtung vom Kernkraftwerk Gösgen gemessene ^{37}Ar -Aktivitäten.

$^{37}\text{Ar} \text{ (mBq/m}^3_{\text{Luft}})$		
28.2 ± 4.5	92.9 ± 10	42.6 ± 6

Referenzen

- [1] <https://www.ensi.ch/de/2020/01/22/bilanz-2019-sicherer-betrieb-der-schweizer-kernanlagen-gewahrleistet>, besucht am 15. Februar 2020
- [2] Bollhöfer, A., Schlosser, C., Schmid, S., Konrad, M., Purtschert, R. and Krais, R. (2019) Half a century of Krypton-85 activity concentration measured in air over Central Europe: Trends and relevance for dating young groundwater. *Journal of Environmental Radioactivity* 205-206, 7-16
- [3] Data provided by Orano La Hague
- [4] ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41 (Suppl.). Table C.1., p. 61

Chapitre / Kapitel 7

Mesures de nucléides spéciaux Messung von Spezialnukliden

2019

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