

Mesures de  
nucléides spéciaux

7

Messung von  
Spezialnukliden

# 7.1

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

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

Abt. Klima- und Umweltp Physik, 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), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2023 weitergeführt. Als Referenzwert diente hierbei der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen und -Verdünnungen, an denen im Jahresverlauf je drei Messungen (im Mai, August und Oktober 2023) durchgeführt wurden. Aus diesen Messungen resultierte für 2023 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert  $-10 \pm 3\text{‰}$ .

Die 83 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um  $-20\text{‰}$  (Basel Stadt, Standort W-42 beim Badischen Bahnhof) bis maximal  $+273\text{‰}$  (Paul Scherrer Institut, Standort Picknickplatz) von diesem Referenzwert. Im Raum Basel lag der Netto-Höchstwert bei  $4\text{‰}$  (Standort W-04). Zum Vergleich: Ein zusätzlicher  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von 100 Promille in Lebensmitteln führt zu einer zusätzlichen Jahresdosis von  $1\text{ }\mu\text{Sv}$ . Da der gemessene Anstieg sehr lokal begrenzt ist, sind die zusätzlichen Dosen durch die Aufnahme lokaler Lebensmittel für die umliegende Bevölkerung minimal.

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 Umweltp Physik (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 Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950 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 2023 und Koordinaten der Referenzstationen für Laubmessungen

Ort	Labor	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
		Mai	Aug.	Okt.			
Taanwald	KUP	-12	-12	-12	601'320 / 186'150	938	Rotbuchen im Wald
	LARA	-7	-11	-10			
Belpberg	KUP	-10	-10	-13	606'096 / 190'600	825	Rotbuchen auf Krete
	LARA	-7	-8	-7			
Ballenbühl	KUP	-8	-14	-14	612'550 / 192'800	852	2 Linden, freistehend
	LARA	-7	-10	-8			

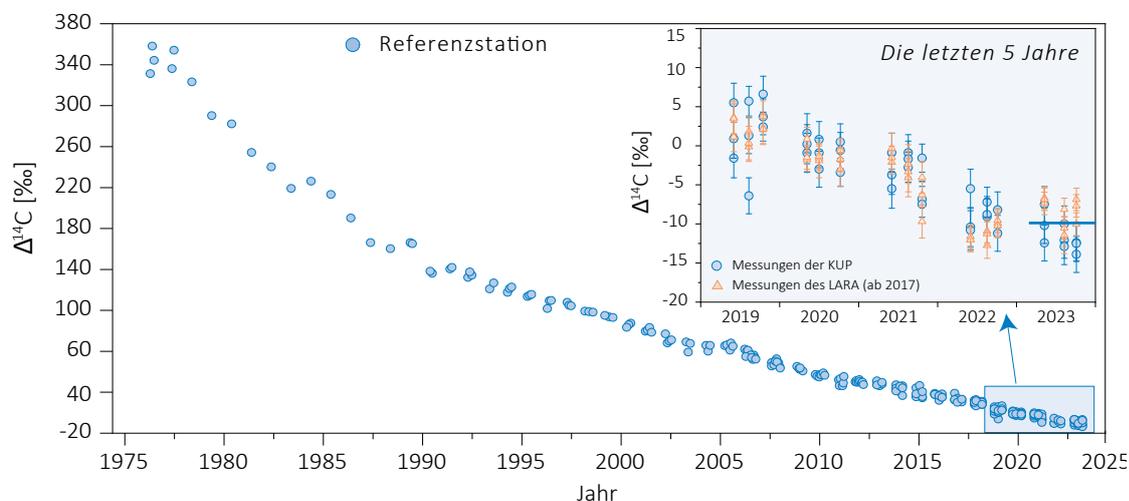
Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen oder Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- bzw. Lindenblätter gesammelt. Ihr  $^{14}\text{C}$ -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit  $^{14}\text{A}_0$  verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2023 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Mai, August und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2023}} = -10 \pm 3 \text{ [‰]} \quad (3)$$

Die Differenz

$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2023}} \quad (4)$$

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 in der Detailansicht: 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 2023 gegenüber dem Vorjahr stabil geblieben. Mit  $-10 \pm 3\%$  (gerundeter Mittelwert aller in Tabelle 1 dargestellten Messergebnisse) liegt der Referenzwert auf demselben Niveau wie 2022.

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

Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] wurden die Schweizer Kernkraftwerke im Jahr 2023 sicher betrieben. Insgesamt traten 24 meldepflichtige Vorkommnisse auf, was im Schwankungsbereich 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 2024 abgeschlossen sein. Die  $^{14}\text{C}$ -Messungen im Umfeld des Kernkraftwerks werden aber auch während des Rückbaus noch einige Jahre fortgesetzt.

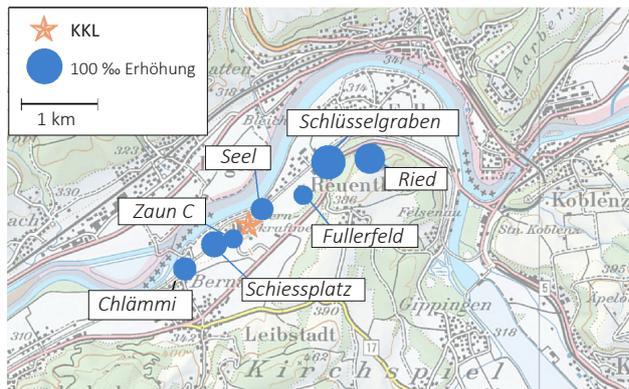
Die Laubprobenahmen im Umfeld der noch im Leistungsbetrieb befindlichen Kernkraftwerke erfolgten im Allgemeinen während oder nach der jeweiligen Jahresrevision, um auch mögliche  $^{14}\text{C}$ -Abgaben während des Revisionsstillstands erfassen zu können. Eine Ausnahme bildet das Kernkraftwerk Leibstadt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

<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.

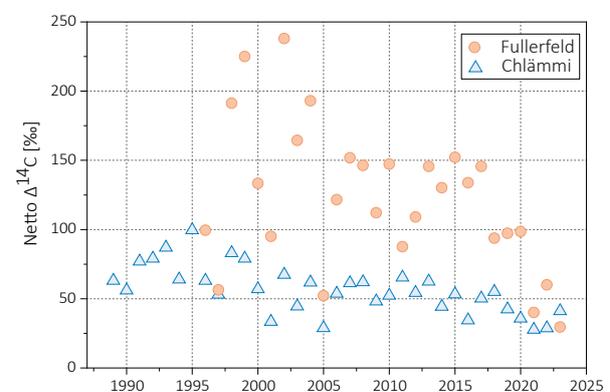
Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) am Departement für Chemie, Biochemie und Pharmazie der Universität Bern. Im Allgemeinen wurden ganze Blätter analysiert (Methode B).

### Kernkraftwerk Leibstadt

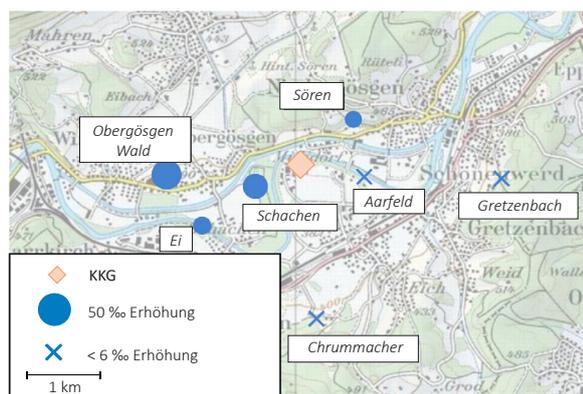
Im Umfeld des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL) wurden im Jahr 2023 zwei Probenahmen durchgeführt: die erste am 26. April vor der Jahresrevision, die vom 1. bis 31. Mai 2023 terminiert war, und eine zweite am 14. September nach Abschluss der Revision. Es wurden Blätter von Laubbäumen an verschiedenen Standorten 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 ergab sich in ca. 1.5 km Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Schlüsselgraben (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Schiessplatz die höchsten Werte auf.



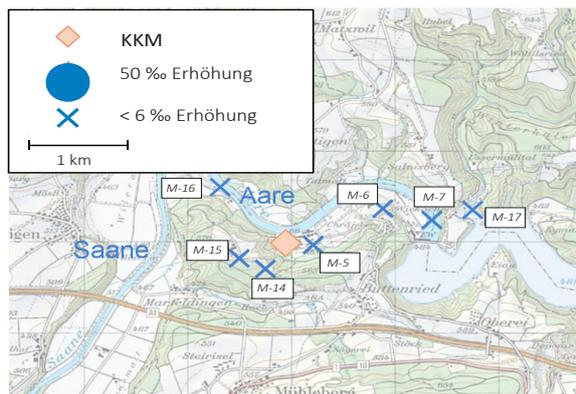
**Figur 2:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2023. Revisionsabschaltung: 01.05.2023 bis 31.05.2023. Probenahme: 14.09.2023. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



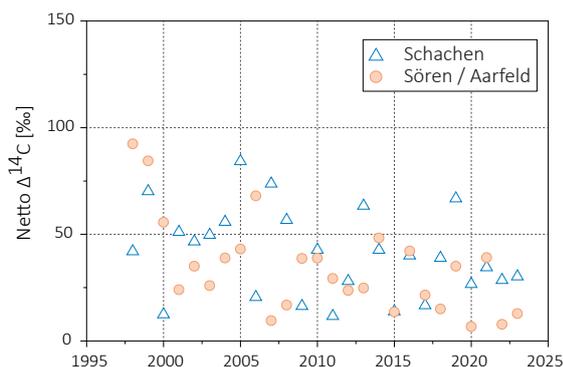
**Figur 3:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt (Standorte: siehe Figur 2). Messungen bis 2016: KUP. Messungen ab 2017: LARA.



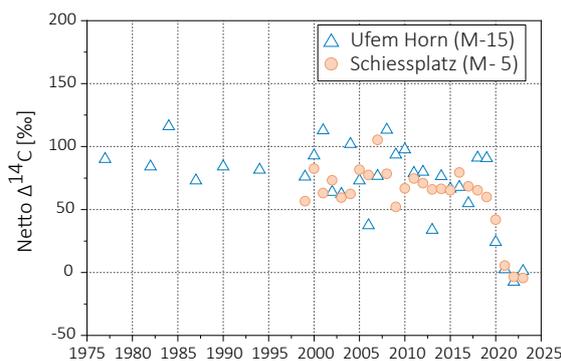
**Figur 4:** Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 27.05.2023 bis 27.06.2023. Probenahme: 26.06.2023. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 6:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2023. Probenahme: 07.09.2023. Mit Ausnahme des Standorts Ufem Horn wurde an keinem Standort eine Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen festgestellt.



**Figur 5:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4.



**Figur 7:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 6. Messungen bis 2016: KUP; Messungen ab 2017: LARA.

In der folgenden Abbildung sind die Messergebnisse der zweiten Probenahme dargestellt. Die Differenz der Ergebnisse der beiden Probenahmen betrug im Allgemeinen nur wenige Promille, nur am Standort Fullerfeld lagen die Messergebnisse der ersten Probenahme deutlich über den Werten der zweiten Probenahme.

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. 2023 wurden die Höchstwerte jedoch an zwei anderen Stellen gemessen: der höchste Messwert nordöstlich des KKL betrug 91‰ (Standort Schlüsselgraben), in südwestlicher Richtung wurde 2023 am Standort Schiessplatz mit 54‰ 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 26. Juni 2023 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwert westlich vom KKG resultierte mit einer Erhöhung von 43‰ am Standort Obergösgen Wald, in östlicher Richtung mit 13‰ 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 2023 fortgesetzt. Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt aller beprobten Standorte lag im Jahr 2023 wie bereits im Vorjahr unter dem der Referenzstationen. Lediglich der Standort Ufem Horn (M-5) wies eine sehr geringe Erhöhung um 0.1% auf. Der abrupte Abfall der Messwerte nach der Stilllegung des KKM zeigt deutlich die Zuverlässigkeit der Überwachungsmethode basierend auf dem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Blättern in der zu überwachenden Umgebung.

In Figur 6 sind die Ergebnisse der Probenahme dargestellt. Sämtliche Messwerte mit Ausnahme des Standorts Ufem Horn liegen im negativen Bereich, d. h. es wurden praktisch keine Erhöhungen des  $^{14}\text{C}$ -Gehalts gemessen.

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

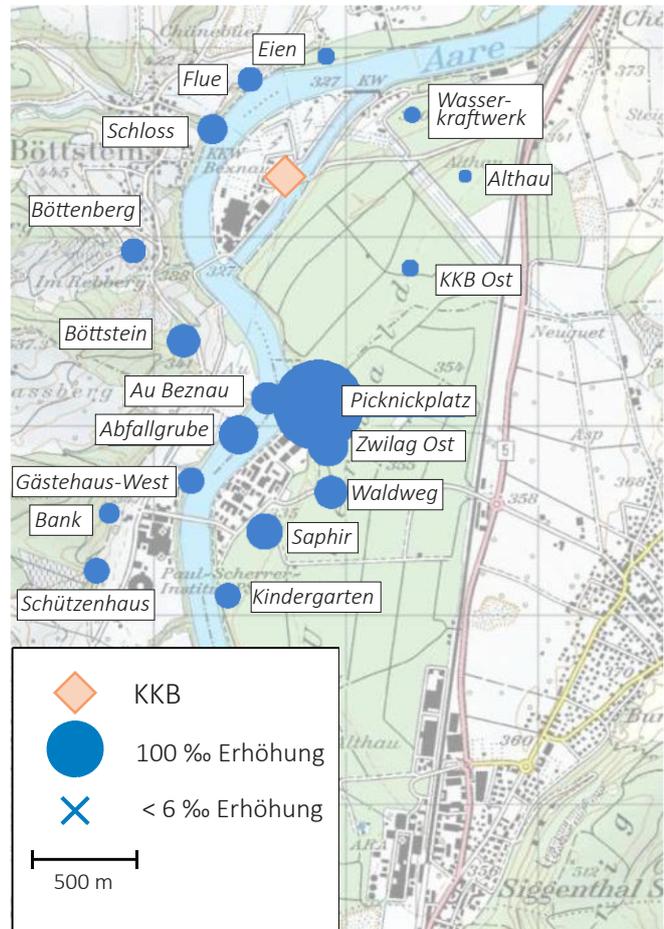
Auch im Jahr 2023 wurden die zu diesen Standorten gehörenden  $^{14}\text{C}$ -Messungen im Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) des Departements für Chemie, Biochemie und Pharmazie der Universität Bern durchgeführt, wobei die Probenahme durch die KUP mit Unterstützung des PSI erfolgte. Die Messwerte im Umfeld des PSI und ZWILAG lagen im Jahr 2023 tendenziell über den Werten des Vorjahrs: sämtliche beprobten Standorte wiesen Erhöhungen von mehr als 6‰ gegenüber den unbelasteten Referenzstandorten auf. Die weitaus grösste Erhöhung (273‰) wurde am Standort Picknickplatz gemessen.

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

## Kehrichtverbrennungsanlagen

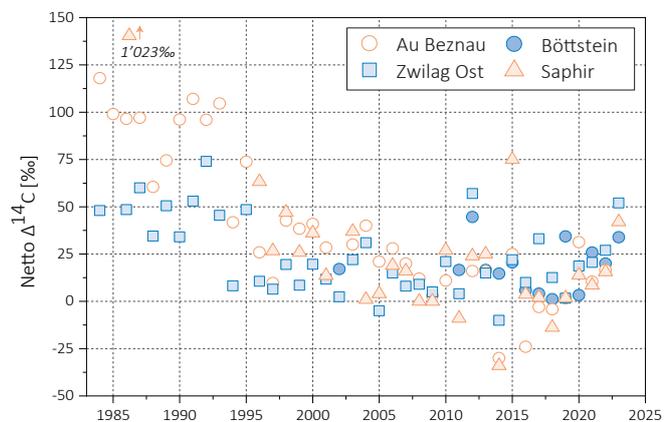
### KVA Bern

In Blättern von Bäumen, die am 07. September 2023 an vier Probenahmestellen im Umfeld der Kehrichtverbrennungsanlage (KVA) Bern Forsthaus gesammelt wurden, konnte keine erhöhte  $^{14}\text{C}$  Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Werte lagen unter dem Referenzwert von 10‰, zwei Stationen lagen bei 15‰. 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 Treibstoff-



Figur 8:

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerks Bezau (KKB) im Jahr 2023. Revisionsabschaltung KKB I: 16.05.2023 bis 29.05.2023, KKB II: 04.08.2023 bis 12.09.2023. Probenahme: 14.09.2023. 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 Bezau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 8. Messungen bis 2016: KUP (Standort Böttstein und PSI). Messungen 2017 bis 2019: LARA (Standort Böttstein und PSI). Im Jahr 2023 wurde der höchste Wert jedoch nicht an einem dieser Standorte, sondern mit 273‰ am Standort Picknickplatz gemessen. Messungen ab 2020: LARA.

fen, 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

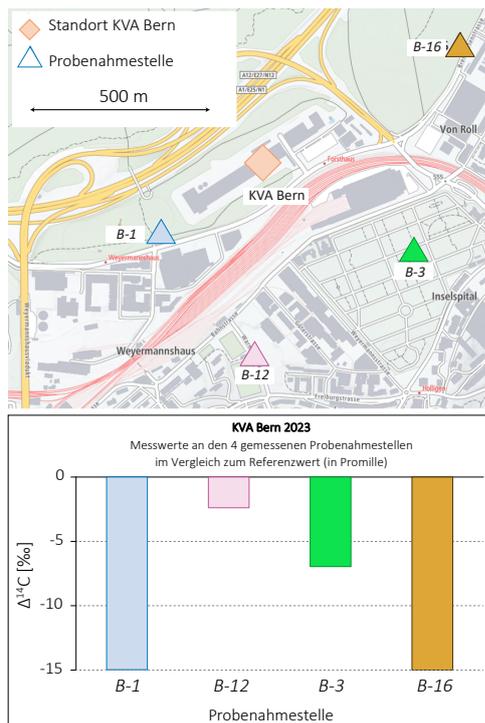
Am 24. August 2023 wurden fünf Probenahmestellen im Umfeld der KVA Lausanne beprobt. Es wurden keine Erhöhungen der  $^{14}\text{C}$  Konzentration festgestellt. Sämtliche Werte lagen unter dem Referenzwert.

In Figur 10b sind oben die fünf Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.

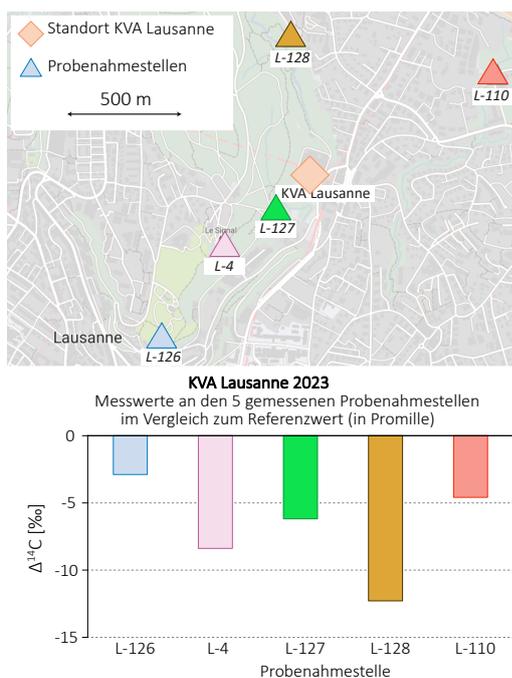
### KVA Zürich Hagenholz

In Blättern von Bäumen, die am 26. Juni 2023 an fünf Probenahmestellen im Umfeld der KVA Zürich Hagenholz gesammelt wurden, konnte keine erhöhte  $^{14}\text{C}$  Konzentration festgestellt werden.

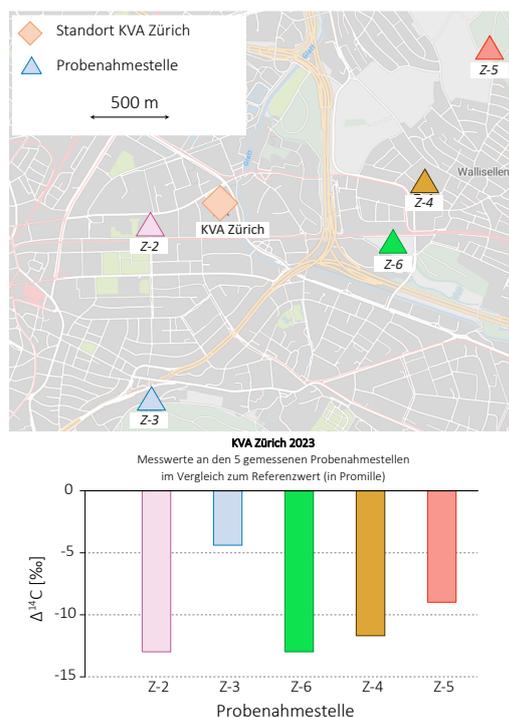
In Figur 10c sind oben die fünf Probenahmestellen und darunter die entsprechenden Messwerte im Vergleich zu den unbelasteten Referenzstationen dargestellt.



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



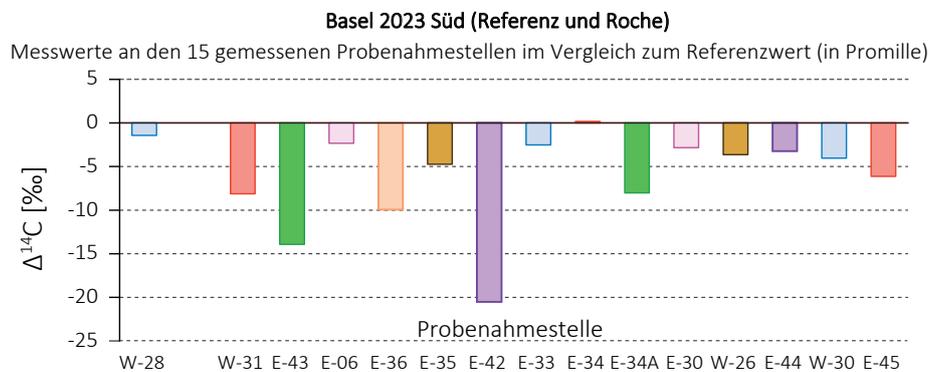
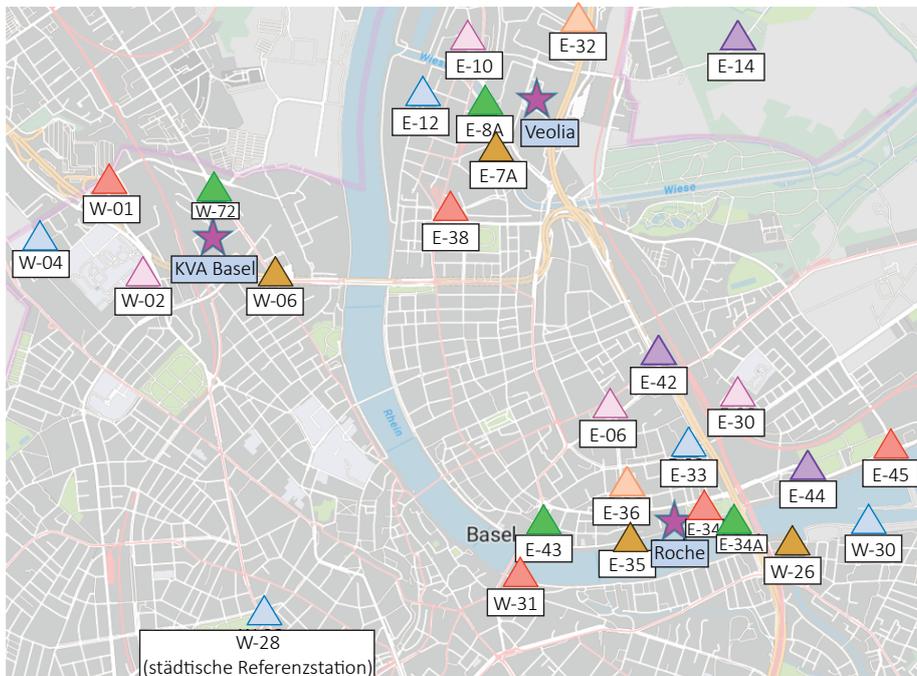
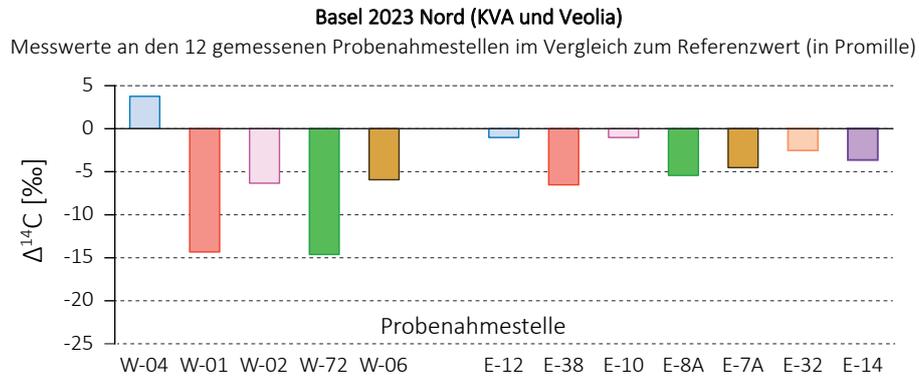
Figur 10b :  
Probenahmestellen und  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte bei der KVA Lausanne. Messungen: KUP.



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

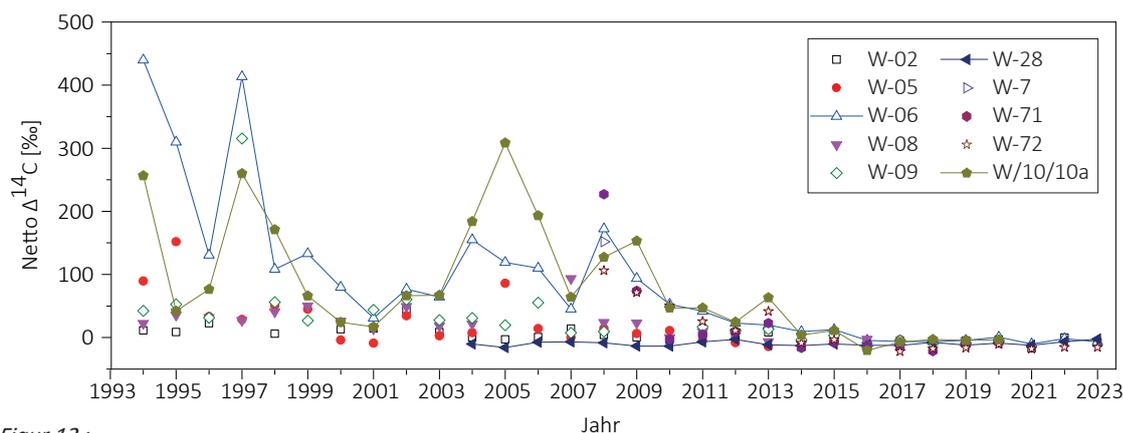
## Messungen in der Region Basel-Stadt

Im Jahr 2023 wurden in Basel zwei Laubprobenahmen durchgeführt. Im Rahmen der ersten Probenahme am 8. 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

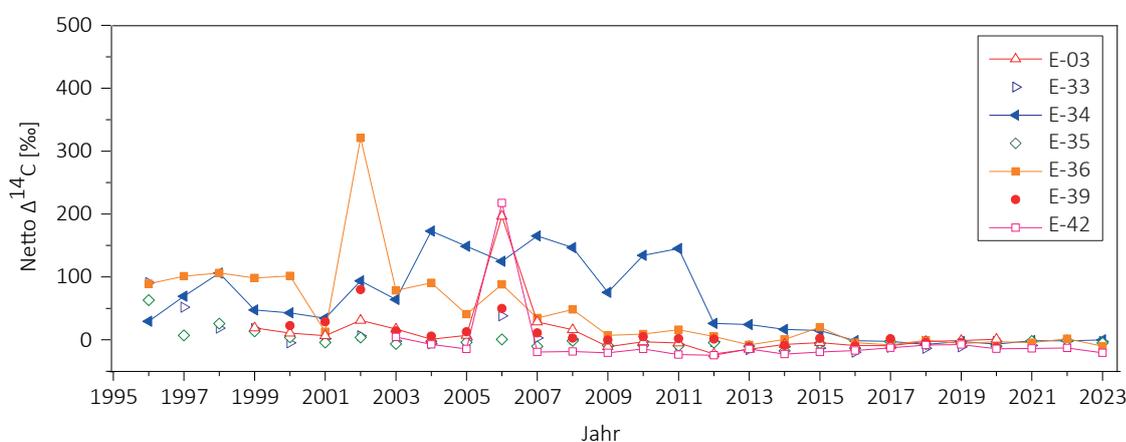


Figur 11 :

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel. Die Balkendiagramme stellen die Erhöhung bzw. Reduzierung der Messwerte gegenüber den unbelasteten ländlichen Referenzstationen dar.



**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.

Firma Veolia betriebenen regionalen Sondermüllverwertungsanlage (RSMVA) beprobt. Die zweite, etwas umfangreichere Probenahme fand am 23. August statt und umfasste zusätzlich zu den Standorten der ersten Probenahme auch Standorte um die KVA Basel im Westen der Stadt.

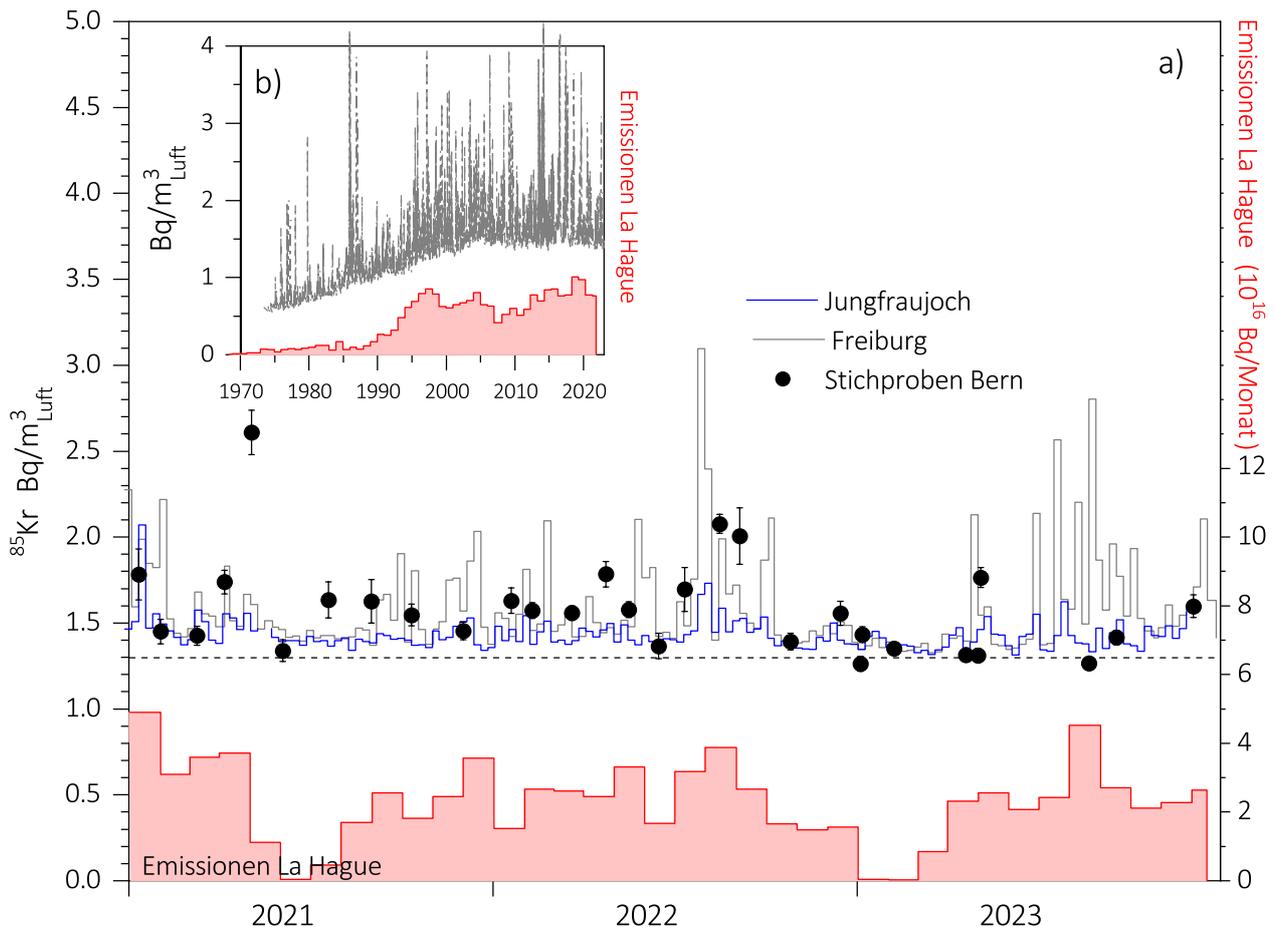
An praktisch allen Standorten wurde aufgrund des weiter oben erwähnten Suess-Effekts eine Verdünnung der  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt, häufig um 10% oder mehr (Figur 11). Auch im Umkreis der KVA Basel sowie im deutschen Grenzgebiet östlich des Veolia-Verbrennungsofens wurden keine bzw. nur geringe Erhöhungen registriert. Der höchste Wert stammt vom Standort W-04 Rehab auf dem Areal der Universitären Psychiatrischen Kliniken in der Nähe der Grenze nach Frankreich, wo es anscheinend zu keinerlei Absenkung der  $^{14}\text{C}$  Konzentration aufgrund des Suess-Effekts gekommen ist.

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

Basel, im unteren Teil diejenigen vom Süden der Stadt dargestellt, jeweils als Erhöhung bzw. 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, so dass diese Standorte seit 2021 nicht mehr beprobt



Figur 14 :

**a)** Atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfrauoch (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 Jungfrauoch 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  $10^{16} \text{ Bq}$ ) [3].

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 Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ ) und Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ ) 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 50 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. Keines der beiden Isotope verursacht eine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

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

Das radioaktive Edelgasisotop  $^{85}\text{Kr}$  ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von  $10.74 \pm 0.02$  Jahren. Natürliches atmosphärisches  $^{85}\text{Kr}$  hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch  $^{84}\text{Kr}$  in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Inventar von etwa  $9 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$  oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von  $\sim 0.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  Luft. Im Gegensatz dazu stammt das derzeitige  $^{85}\text{Kr}$  in der Atmosphäre hauptsächlich aus der Wiederaufar-

beitung 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 Aktivitätskonzentration von  $1.4 - 1.5 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$  in Mitteleuropa zu beobachten [2].

In der Schweiz wird  $^{85}\text{Kr}$  an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfrauoch (JFJ) gesammelt und im Edelgaslabor des BfS in Freiburg analysiert werden [2] (Fig. 14). Zusätzlich werden Stichproben von Berner Luft auf dem Dach des Physikalischen Institutes genommen und vor Ort im Tiefenlabor der Universität Bern analysiert. In Figur 14 sind zum Vergleich auch die entsprechenden Werte von Freiburg im Breisgau (D) dargestellt. Die Basiswerte sind für alle Stationen (JFJ, Bern und Freiburg) identisch. Während Zeitperioden erhöhter Emissionsraten in La Hague [3] kommt es zu gehäuften Aktivitätsspitzen, die den Basiswert insbesondere in Freiburg deutlich übersteigen. Wegen der erhöhten Lage der Station JFJ wird diese Station weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf. Der kurze Sammelzeitraum für die Stichproben in Bern sowie die etwas grössere Entfernung zur Quelle in La Hague führen zu Abweichungen zwischen den Stationen Bern und Freiburg, wobei das Aktivitätsniveau jedoch ähnlich ist.

Im Januar und Februar 2023 sanken die Wiederaufbereitungsaktivitäten und damit die Emissionen aus La Hague um zwei Grössenordnungen (Figur 14a). Folglich gab es eine 15%ige Reduzierung der jährlichen Gesamtemissionen im Vergleich zu den beiden vorangegangenen Jahren (Figur 14b). Diese Reduzierung ist deutlich an den gemessenen  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitätskonzentrationen in Freiburg i.Br. und JFJ erkennbar, wo das Fehlen von Spitzen und eine Annäherung der Werte an beiden Stationen an eine Basisaktivitätskonzentration von etwa  $1.3 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$  beobachtet werden kann (gestrichelte Linie in Figur 14). Es ist bemerkenswert, dass dieser Basiswert niedriger ist als in den letzten Jahren, als ein Wert von  $1.4 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$  gemessen wurde. Die generelle Stabilisierung oder sogar Abnahme des Basiswerts ist auch im Langzeitverlauf von Freiburg i. Br. ersichtlich und stellt möglicherweise einen Rückgang der globalen Wiederaufbereitungsaktivitäten dar. Auch die Messwerte in Bern weisen auf geringere Basiswerte im Jahr 2023 hin. Im Frühling und Sommer 2023 nahmen die Emissionen in La Hague wieder zu, begleitet

von einer Zunahme der Häufigkeit und Amplitude der Aktivitätsspitzen, die an den beiden Überwachungsstationen gemessen wurden. Unsere Daten unterstreichen, dass die Beobachtungen am JFJ hauptsächlich mit Emissionen aus La Hague verbunden sind und in viel geringerem Maße von anderen potenziellen Quellen wie nahegelegenen Kernkraftwerken stammen. Die durch den  $^{85}\text{Kr}$  Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca.  $11 \text{ nSv/Jahr}$  ( $8 \cdot 10^{-9} \text{ Sv/Bq/m}^3 \text{ Jahr}$  [4]) und ist damit vernachlässigbar gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa  $1.1 \text{ mSv}$  verursacht durch natürlich vorkommendes Radon und dessen Folgeprodukte.

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

$^{37}\text{Ar}$  wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion  $^{40}\text{Ar}(n,4n)^{37}\text{Ar}$  produziert. Eine Stichprobenmessung an Bern-Luft vom 04.07.2023 ergab einen Wert  $< 2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ , was konsistent mit dem erwarteten natürlichen Bereich von  $0.5 - 2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$  für die Troposphäre ist. Die  $^{37}\text{Ar}$ -Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre ist damit 1'000 Mal kleiner als die von  $^{85}\text{Kr}$  und deshalb für die jährliche Strahlenbelastung nicht relevant.

### Referenzen

- [1] <https://www.ensi.ch/de/2024/01/25/bilanz-2023-sicherheitsanforderungen-an-den-betrieb-der-kernanlagen-eingehalten/>, besucht am 15. März 2024



- [2] Bollhöfer, A., Schlosser, C., Schmid, S., Konrad, M., Purtschert, R. and Kraus, R. (2019) Half a century of Krypton-85 activity concentration measured in air over Central Europe: Trends and relevance for dating young groundwater. *Journal of Environmental Radioactivity* 205-206, 7-16
- [3] Data provided by Orano, La Hague
- [4] ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.). Table C.1., p. 61

# 7.2

## Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

**P. Froidevaux, F. Barraud, C. Pilloud, P.-A. Pittet, R. Cusnir, M. Straub**  
Institut de radiophysique (IRA), 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 et d'eau de surface. Les résultats sont compatibles avec une contamination provenant essentiellement des retombées des essais nucléaires des années soixante. Ce dépôt est bien fixé dans le sol, comme en attestent les mesures des filtres à air, qui montrent des activités très faibles, mais représentatives de la remise en suspension de particules de sol par le vent. Les poissons n'ont pas présenté d'activité en Pu mesurable au-dessus de la limite de détection de la méthode, mais l'américium est parfois mesurable, avec une activité proche de 1 mBq/kg. Dans les sols, l'activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  est située entre 110 mBq/kg et 600 mBq/kg alors que l'activité en  $^{241}\text{Am}$  est présente dans un rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  de  $0.44 \pm 0.05$ . L'activité en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépasse pas 2.0 mBq/m<sup>3</sup>, soit dans l'ensemble des valeurs très proches de celles mesurées les années précédentes. Sous mandat de l'OFSP, l'IRA analyse Pu et Am dans l'environnement en Suisse depuis 25 ans. L'analyse détaillée des données en Pu dans les sols de 1997 à 2023 montre un contraste entre les sols de plaine (proximité des centrales nucléaires du plateau suisse) et les sols de montagne; la période biologique du Pu dans les sols de montagne est estimée à 10 ans alors qu'elle est d'environ 20 ans pour les sites de plaine.

### Introduction

Le plutonium et l'américium sont des éléments radioactifs de la série des actinides. Tous les actinides sont toxiques et leurs isotopes les plus abondants émettent une particule alpha mutagène  $\alpha$  ( $^2_4\text{He}$ ). Ces radioéléments persistent dans l'environnement en raison de leur longue demi-vie, représentant une préoccupation particulière lorsqu'ils contaminent le sol et l'eau. Actuellement, on observe, au niveau mondial et local, une contamination persistante des sols, des sédiments et des eaux à la suite de rejets dans l'environnement dus aux retombées des essais d'armes nucléaires des années soixante, de ruptures de confinement du réacteur à la suite d'accidents (Tchernobyl, Fukushima), et de rejets, autorisés ou non autorisés, de l'industrie nucléaire. Il est essentiel pour bien interpréter les données de surveillance de bien comprendre le comportement de Pu et Am dans les sols et les eaux naturelles.

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 est très sensible (par ex: quelques mBq/kg dans le sol). Les rapports isotopiques qui signent la présence de la déposition atmosphérique des retombées des essais nucléaires des années soixante sont bien connus: environ 0.03 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et environ 0.44 actuellement pour  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ . On notera que le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  est évolutif car  $^{241}\text{Am}$  est issu de la désintégration de  $^{240}\text{Pu}$ , également présent comme contaminant; au début de nos mesures, ce rapport était proche de 0.38. La comparaison des rapports isotopiques mesurés dans l'environnement avec ces rapports de référence pour les essais nucléaires fournit un bon indicateur de contamination potentielle de l'environnement par l'industrie nucléaire. En Suisse, ces mesures, coordonnées par l'OFSP, se réalisent depuis 25 ans.

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 de rivière ainsi que par 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 radioactifs liquides. Pour commémorer les 25 ans de ces mesures, nous avons focalisé notre analyse sur l'évolution de la contamination des sols de 1998 à 2023, pour certains sites à proximité des centrales nucléaires, pour lesquels nous avons une série complète de mesures, et deux sites de montagne.

### 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 [1]. De légères modifications ont été testées pour améliorer la méthode. Il en résulte que certains échantillons du plan ont été mesurés à plusieurs reprises afin de tester la reproductibilité des résultats, c'est pourquoi certains sites présentent jusqu'à quatre résultats d'analyses. On constate aussi qu'il est nécessaire d'obtenir des rendements de séparation chimique supérieurs à 65% afin de pouvoir quantifier le  $^{238}\text{Pu}$ , présent en très faible quantité dans nos sols ( $0.03 \times ^{239+240}\text{Pu}$ ).

## 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 2023, ces rapports sont de  $0.028 \pm 0.004$  ( $n=13$ ) pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et de  $0.44 \pm 0.05$  ( $n=23$ ) pour  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  et correspondent parfaitement à ce qui est attendu pour une contamination ne provenant que des retombées radioactives des essais nucléaires des années soixante. 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.

Afin d'avoir une vision plus large des résultats obtenus depuis 1997, date du début des mesures de Pu et Am à l'IRA, nous avons reporté les activités obtenues pour 4 sites de plaine (centrales nucléaires) et deux sites de montagne pour lesquels nous avons des séries plus ou moins complètes d'analyses, ces sites de prélèvement étant toujours présents sur le plan annuel de prélèvement. Les résultats sont présentés dans la figure 1.

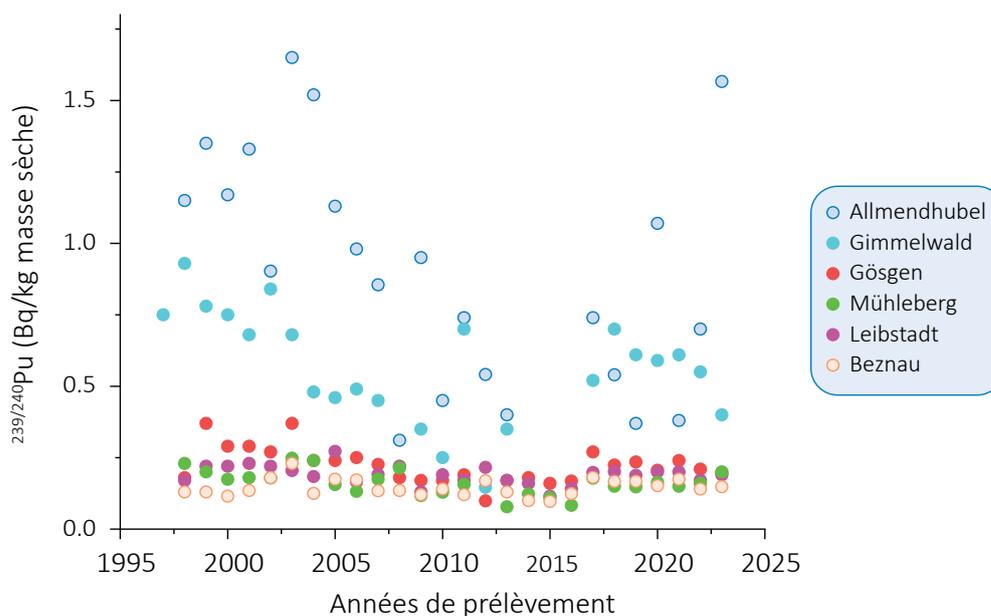


Figure 1 : Activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  (Bq/kg MS) des sols (0-5 cm) prélevés entre 1997 et 2023 à Mühleberg, Beznau, Gösgen, Leibstadt, Gimmelwald et Allmendhubel.

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 2023 (incertitudes à 95%).

Lieu	<sup>239+240</sup> Pu Bq/kg MS	<sup>238</sup> Pu Bq/kg MS	<sup>241</sup> Am Bq/kg MS	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu	<sup>238</sup> Pu/ <sup>239+240</sup> Pu
Arenenberg	0.110 ± 0.023 0.125 ± 0.010	0.0031 ± 0.0013	0.044 ± 0.005 0.052 ± 0.007	0.40 ± 0.09 0.41 ± 0.07	0.025 ± 0.011
Bezau	0.138 ± 0.012 0.159 ± 0.012	0.0041 ± 0.0018 0.0042 ± 0.0016	0.064 ± 0.006 0.076 ± 0.006 0.063 ± 0.006	0.46 ± 0.06 0.48 ± 0.05	0.029 ± 0.013 0.026 ± 0.011
Cadenazzo	0.113 ± 0.018 0.130 ± 0.013	0.0049 ± 0.0022	0.057 ± 0.006 0.061 ± 0.009	0.50 ± 0.09 0.47 ± 0.09	0.038 ± 0.018
Däniken (Gösgen)	0.185 ± 0.023 0.208 ± 0.014	0.0049 ± 0.0017	0.079 ± 0.006 0.095 ± 0.007	0.43 ± 0.06 0.46 ± 0.05	0.024 ± 0.009
Güttingen	0.173 ± 0.030 0.168 ± 0.013	0.0038 ± 0.0016	0.082 ± 0.006 0.081 ± 0.010	0.47 ± 0.09 0.48 ± 0.07	0.023 ± 0.010
Leibstadt	0.185 ± 0.020 0.195 ± 0.018	0.0065 ± 0.0026	0.076 ± 0.008 0.083 ± 0.009	0.41 ± 0.17 0.43 ± 0.06	0.034 ± 0.018
Meyrin	0.117 ± 0.014 0.106 ± 0.015		0.064 ± 0.007 0.047 ± 0.005	0.55 ± 0.09 0.44 ± 0.08	
Mühleberg	0.211 ± 0.059 0.190 ± 0.013	0.0044 ± 0.0016	0.061 ± 0.006 0.083 ± 0.006 0.072 ± 0.006	0.29 ± 0.09 0.44 ± 0.04	0.023 ± 0.009
Posieux	0.199 ± 0.053 0.195 ± 0.015	0.0052 ± 0.0020	0.078 ± 0.007 0.083 ± 0.006 0.072 ± 0.006	0.39 ± 0.11 0.42 ± 0.04	0.027 ± 0.010
Stabio	0.549 ± 0.034 0.597 ± 0.033	0.0164 ± 0.0036 0.0182 ± 0.0035	0.262 ± 0.014 0.288 ± 0.022	0.48 ± 0.04 0.48 ± 0.05	0.030 ± 0.006 0.030 ± 0.007
Villigen-PSI	0.131 ± 0.026 0.148 ± 0.009	0.0045 ± 0.0014	0.065 ± 0.006 0.061 ± 0.005	0.49 ± 0.11	0.030 ± 0.010
Würenlingen- ZWILAag	0.148 ± 0.026 0.171 ± 0.011	0.051 ± 0.0016	0.073 ± 0.007 0.079 ± 0.006 0.078 ± 0.006	0.49 ± 0.10 0.46 ± 0.05	0.030 ± 0.009
			<b>moyenne</b>	<b>0.44 ± 0.05 (n=23)</b>	<b>0.028 ± 0.004 (n=13)</b>

On constate que les sols de plaine présentent des activités très inférieures aux deux sites de montagne, confirmant ce qui a été précédemment relevé pour le <sup>90</sup>Sr dans d'autres études réalisées à l'IRA, soit que la déposition atmosphérique des essais nucléaires est plus importante en montagne qu'en plaine. Les activités sont aussi plus variables et il n'est pas évident de percevoir une tendance continue, même si l'activité a significativement décru dans les sites de montagne. Un agrandissement focalisé sur les sites de plaine montre également cette tendance (figure 2).

Tout comme dans la figure 1, on observe toutefois un décrochage (vers le haut) des valeurs à partir de 2017, qui semble indiquer un changement dans la localisation des lieux de prélèvement. En effet, sur le plateau suisse, il est difficile de prélever systématiquement au même endroit durant 25 ans, notamment à cause de l'urbanisation galopante. Pour les sites de montagne, le prélèvement a été interrompu plusieurs années, avant de reprendre et on peut conclure que l'emplacement des sites originaux a été perdu. Toutefois, lorsque l'on moyenne l'activité des

quatre sites de plaine, on observe de manière significative une décroissance de l'activité en fonction des années de prélèvement (figure 3). A partir de la pente calculée à la figure 3, on détermine une période biologique (disparition de Pu dans les 5 premiers centimètres de sol) de 19 ± 5 ans. Le même exercice réalisé sur les deux sites de montagne produit une période de 10 ans pour Allmendhubel et de 9 ans pour Gimmelwald. En absence de détail sur la nature des sols, des horizons de sol, et de la profondeur totale de la couche de sol, il est difficile de fournir une explication exacte de ces différences de périodes biologiques entre la plaine et la montagne. On peut toutefois rappeler que l'abrasion des sols par le vent (resuspension), ainsi que la vitesse accrue d'érosion des sols de montagne par rapport aux sols de plaine vont participer à cet effet.

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.

Tableau 2:

Activités (nBq/m<sup>3</sup>) en <sup>239+240</sup>Pu dans les filtres à air collectés sur différents sites en Suisse en 2023. 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	5'466'395	0.87 ± 0.10	0.091 ± 0.028	0.42 ± 0.04	0.48 ± 0.07
Posieux	5'238'703	1.48 ± 0.13	0.099 ± 0.027	0.65 ± 0.06	0.44 ± 0.05
Liebefeld, semestre 1	3'765'665	0.84 ± 0.11	< 0.07	0.45 ± 0.05	0.53 ± 0.09
Liebefeld, semestre 2	3'765'665	1.41 ± 0.11	0.047 ± 0.019	0.67 ± 0.06	0.47 ± 0.06
Meyrin	4'937'019	1.42 ± 0.15	< 0.08	0.64 ± 0.06	0.45 ± 0.06
<b>Moyenne</b>					<b>R= 0.47 ± 0.04</b>

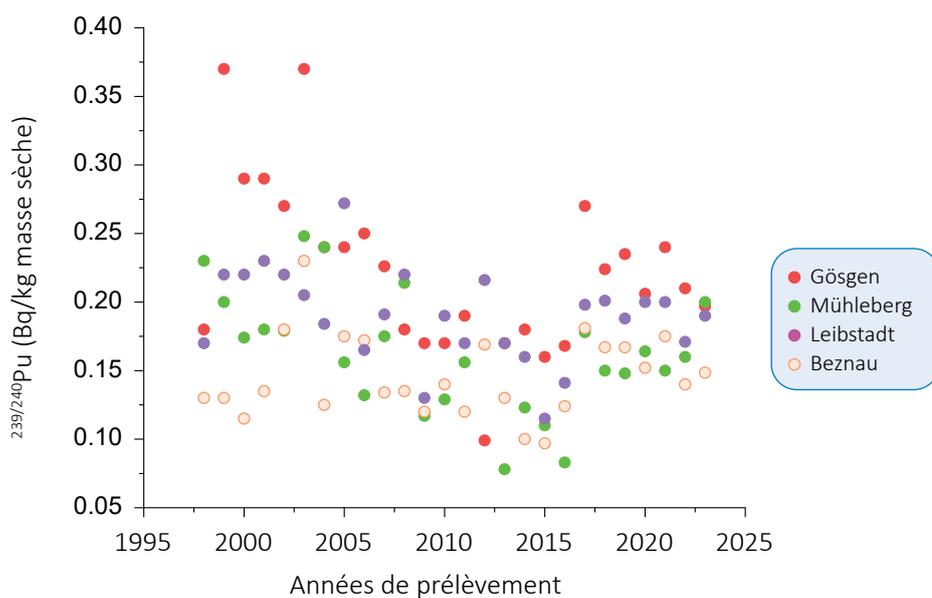


Figure 2 :

Activité en <sup>239+240</sup>Pu (Bq/kg MS) des sols (0-5 cm) prélevés entre 1998 et 2023 à Mühleberg, Beznau, Gösgen, Leibstadt.

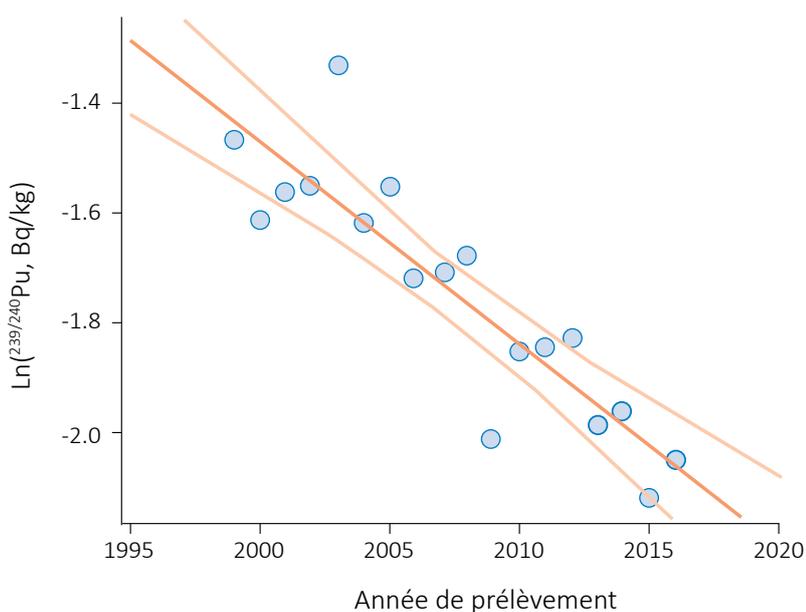
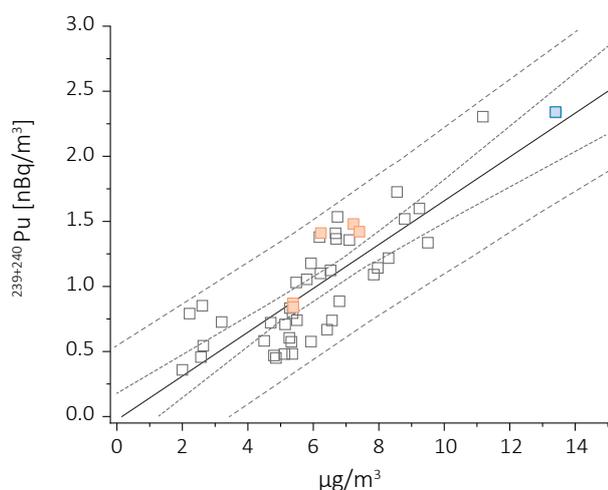


Figure 3 :

Evolution de l'activité moyenne annuelle en <sup>239+240</sup>Pu (Bq/kg MS) pour les quatre sites de plaine entre 1999 et 2016.



**Figure 4 :**  
 Activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  ( $\text{nBq}/\text{m}^3$ ) des filtres à air 2023 (carrés orange) en fonction de la masse de particules de sol récoltée après calcination des filtres. En bleu : tempête du Sahara de 2021.

Les résultats montrent que l'activité maximale mesurée ne dépasse pas  $1.5 \text{ nBq}/\text{m}^3$ , un résultat similaire aux années précédentes. La figure 4 présente les résultats d'activité en Pu en fonction de la masse de particules obtenues après calcination des filtres. Cette masse de particules représente en fait la masse de particules de sol ressuspendu par abrasion éolienne. On constate une forte corrélation entre la masse de particules présentes dans l'air et l'activité en Pu mesurée. Les activités des filtres à air de 2023 s'intègrent parfaitement dans les mesures des années précédentes.

Les activités des eaux de surface (eaux de rivière) et eaux de pluie sont présentées dans le tableau 3. Lorsque les activités sont quantifiables, les incertitudes atteignent souvent 30 - 50%, car les activités ne dépassent pas  $2 \text{ mBq}/\text{m}^3$ , ce qui est réjouissant. Pu et Am sont quantifiés dans les eaux de pluie; toutefois il s'agit de l'entraînement de particules en suspension dans l'air dans les

**Tableau 3:**  
 Activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  ( $\text{mBq}/\text{m}^3$ ) des eaux collectées en Suisse durant l'année 2023. (Incertitudes à 95%).

Type	Lieu	Volume [L]	$^{239+240}\text{Pu}$ $\text{mBq}/\text{m}^3$	$^{238}\text{Pu}$ $\text{mBq}/\text{m}^3$	$^{241}\text{Am}$ $\text{mBq}/\text{m}^3$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
Eau de rivière	Rhône, Chancy	181	$1.83 \pm 0.54$	< 0.8	$1.11 \pm 0.37$	$0.61 \pm 0.27$
	Aar (Hagneck)	360	$0.73 \pm 0.23$	$0.33 \pm 0.15$	< 0.4	$0.47 \pm 0.24$
	Aar (Klingnau)	295	$0.92 \pm 0.33$	< 0.7	$1.01 \pm 0.32$	$1.10 \pm 0.52$
	Rhin (Pratteln)	370	$1.91 \pm 0.39$	< 0.4	$0.51 \pm 0.17$	$0.27 \pm 0.11$
Eau de pluie	Posieux	1'057	$0.89 \pm 0.15$	< 0.14	$0.38 \pm 0.08$	$0.42 \pm 0.12$
	Mühleberg	870	$1.17 \pm 0.20$	< 0.18	$0.72 \pm 0.13$	$0.61 \pm 0.15$
	Leibstadt	1'429	$0.66 \pm 0.12$	< 0.11	$0.44 \pm 0.08$	$0.66 \pm 0.16$

collecteurs par les précipitations (lessivage de l'air) et les volumes collectés sur l'année sont nettement supérieurs ( $\sim 850 - 1'400 \text{ L}$ ) à ceux des prélèvements ponctuels ( $\sim 150 - 350 \text{ L}$ ). Si le rapport isotopique  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  dévie légèrement en faveur de Am par rapport au sol, il ne dépasse pas 1 et, compte tenu des incertitudes sur ce rapport approchant 50%, on peut conclure qu'il n'y a pas de fractionnement significatif des deux radioéléments. Ainsi, bien que l'eau prélevée soit filtrée à  $0.45 \mu\text{m}$  (exception: Chancy), les activités mesurées sont probablement dues à la charge en particules de sol lessivé. Il est en effet peu probable que l'on passe par une phase dans laquelle le Pu et/ou Am seraient véritablement en solution et non adsorbés sur des particules ou des colloïdes. Toutefois, seule la détermination des activités par le système DGT (diffusion in thin film) serait en mesure de donner des indications précises à ce sujet [2-4].

A l'exception des eaux de pluie qui sont collectées sur l'année en cours, tous les autres prélèvements sont effectués de manière ponctuelle ou sur un mois et peuvent donc potentiellement manquer un rejet. Nous proposons donc d'utiliser dans le cadre de la surveillance de routine un système de collecte qui moyenne l'activité sur un temps long afin d'éviter ce problème. De ce point de vue, la technique DGT représente clairement une avancée dans ce domaine [3].

Les résultats des mesures effectuées sur différents échantillons de l'environnement aquatique collectés en aval des centrales nucléaires sont présentés dans le tableau 4.  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  sont mesurables au-dessus des limites de détection dans les sédiments (phase suspendue) de rivière, dans un rapport d'activité  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  proche de celui des sols (voir tableau 1).

Les poissons n'ont pas présenté d'activité en Pu mesurable au-dessus de la limite de détection de la méthode, mais l'américium est parfois mesurable, avec une activité proche de  $1 \text{ mBq}/\text{kg}$ . Pour tous les échantillons aquatiques,  $^{238}\text{Pu}$  est également resté en dessous des limites de détection.

Tableau 4:

Activités (mBq/kg Matière Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2023 en aval des centrales nucléaires suisses (Incertitudes à 95%).

Type	Lieu	MS analysée [g.ms]	<sup>239+240</sup> Pu mBq/kg MS	<sup>241</sup> Am mBq/kg MS	<sup>241</sup> Am/ <sup>239+240</sup> Pu
Sédiments	Aar (Hagneck)	51	26.5 ± 4.2	10.5 ± 2.0	0.39 ± 0.10
	Aar (Klingnau)	52	40.1 ± 4.7	21.4 ± 3.2	0.53 ± 0.10
	Rhin (Pratteln)	52	46.5 ± 5.4	16.1 ± 3.0	0.35 ± 0.07
Poissons	Aar (Mühleberg)	136	< 1.4	< 0.8	-
	Aar (Däniken)	73	< 6.8	< 1.6	-
	Aar (Beznau)	37	< 5.9	< 3.6	-
	Rhin (Leibstadt)	124	< 4.3	1.3 ± 0.5	-
	Rhin (Leibstadt)	128	< 4.8	1.5 ± 0.5	-
	Rhin (Dogern)	148	< 4.0	1.2 ± 0.5	-

## Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible de Pu et Am dans les sols de Suisse. Sur le plateau suisse, ces activités ne dépassent pas 210 mBq/kg MS pour le Pu et 95 mBq/kg masse sèche (MS) pour l'Am. Le site du Tessin (Stabio) présente des activités plus élevées, jusqu'à 550 mBq/kg MS en Pu et 290 mBq/kg MS en Am.

Ces radioéléments sont bien fixés dans le sol et leur présence 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 1.5 nBq/m<sup>3</sup> en <sup>239+240</sup>Pu et 0.7 nBq/m<sup>3</sup> en <sup>241</sup>Am. L'analyse des activités mesurées depuis 2014 sur certains sites du plateau suisse montre que l'activité dans les filtres à air est corrélée à la masse de particules présente sur les filtres. Les activités des eaux de surface sont similaires aux années précédentes et n'ont pas dépassé 2.0 mBq/m<sup>3</sup> en <sup>239+240</sup>Pu. 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 activités dans les poissons sont restées en dessous des limites de détection, à l'exception de <sup>241</sup>Am qui a été quantifié dans trois échantillons à une activité proche de 1 - 1.5 mBq/kg MS.

Dans l'ensemble, tous ces résultats 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. L'analyse détaillée de certains sites pour lesquels nous possédons des mesures en Pu et Am depuis 25 ans a permis de déterminer la période biologique du Pu dans les 5 premiers centimètres de sol; les résultats montrent une différence significative de celle-ci puisque les sites de montagne ont une période biologique deux fois plus courte que les sites de plaine (10 ans versus 20 ans). L'érosion accélérée des sols de montagne par rapport aux sols de plaine en est probablement la raison la plus importante.

D'une manière générale, nos résultats montrent une situation saine de l'environnement en Suisse 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. Pour la mesure dans les milieux aquatiques, nous préconisons l'utilisation de la technique DGT, qui permet une intégration de l'activité présente dans le milieu dans le temps long, évitant ainsi de rater d'éventuels pics de contamination issus de relâchements ponctuels.

## Remerciements

Nous remercions l'OFSP et l'EAWAG pour le prélèvement des échantillons.

## Références

- [1] Luisier et al. J. Radioanal. Nucl. Chem. 2009, 281,425–432.
- [2] Chaplin et al. Water Research, 2022, 221, 118838.
- [3] Chaplin et al. ACS EST Water, 2022, 2, 1688-1696.
- [4] Chaplin et al. Analytical Chemistry, 2021, 93, 11937-11945.