

**Zeitschrift:** Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz = Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse = Radioattività dell'ambiente e dosi d'irradiazione in Svizzera

**Herausgeber:** Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz

**Band:** - (2008)

**Rubrik:** Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

### **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. [Mehr erfahren](#)

### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. [En savoir plus](#)

### **Terms of use**

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. [Find out more](#)

**Download PDF:** 15.02.2026

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

# Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz

## Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse

### Ergebnisse 2008 Résultats 2008

## Kapitel 7

### Messung von Spezialnukliden

## Chapitre 7

### Mesures de nucléides spéciaux

<b>Kapitel 7.1 Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85</b>	<b>94</b>
Zusammenfassung	94
Kohlenstoff-14	94
Kernkraftwerk Leibstadt (KKL)	96
Kernkraftwerk Gösgen (KKG)	98
Kernkraftwerk Mühleberg	98
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau	99
Messungen in der Region Basel Stadt	100
Krypton-85 ( <sup>85</sup> Kr)	103
Argon-37 ( <sup>37</sup> Ar)	103
Tritium ( <sup>3</sup> H)	104
<b>Chapitre 7.2 Mesure de plutonium et d'américium dans l'environnement</b>	<b>107</b>
Résumé	107
Méthode de séparation chimique	107
Résultats et discussion	108
Conclusions	111
<b>Kapitel 7.3 Messung von künstlichen Radionukliden in Bodenprofilen</b>	<b>112</b>
Zusammenfassung	112
Einleitung	112
Probennahme und Aufarbeitung	112
Massenspektrometrische Bestimmung	112
Resultate	114
Schlussfolgerung	116

# Kapitel 7.1

## Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85,

**Th. Stocker, H. Bürki, R. Fischer, H. Loosli, M. Möll, R. Reber, R. Purtschert und U. Schotterer**  
Abt. Klima und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

**F. Cartier und J. Löhle**  
Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen, 5232 VILLIGEN-ENSI

**H. Sartorius, C. Schlosser und M. Konrad**  
Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

**J. Eikenberg, R. Siegwolf**  
Paul Scherrer Institut, 5232 VILLIGEN-PSI

### Zusammenfassung

Die Messungen des  $^{14}\text{C}$ -Gehalts an Knospen und Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Gösgen, Leibstadt, Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern und Lausanne), des Paul-Scherrer-Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2008 weitergeführt. Neu wurden im Berichtsjahr auch die Umgebungen der Kehrichtverbrennungsanlagen grenznaher Städte (Basel, Genf und Monthey VS) beprobt. Aus  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen und -Verdünnungen wurde ein Referenzwert von  $48 \pm 3\%$  bestimmt.

Die 68 auf  $\Delta^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um höchstens 253% von diesem Referenzwert. Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von 0 bis  $3 \times 10^{-6}$  Sievert ( $10^{-6}$  Sievert =  $1 \mu\text{Sv}$ ). Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von  $3000 \mu\text{Sv/a}$  fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen nicht ins Gewicht.

Die beiden Edelgas Radionuklide Krypton-85 und Argon-37 werden auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen in der Atmosphäre produziert. Anthropogenes Krypton-85 konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10,8 Jahren und den steigenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Demgegenüber ist die aktuelle Argon-37 Konzentration praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

### Kohlenstoff-14

Die  $^{14}\text{C}$ -Messungen wurden an der Uni Bern durchgeführt, Ausnahmen sind erwähnt.

#### Referenzwert

Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  nimmt weiter ab, liegt aber gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

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

Der noch vorhandene Anteil an durch Nuklearwaffentests vor allem zwischen 1955 und 1966 produziertem  $^{14}\text{CO}_2$  in der Atmosphäre wird durch die Verbrennung fossiler, d.h.  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe global noch nicht wettgemacht. Nur lokal manifestiert sich die als «Suess»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ .

Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt im wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration.

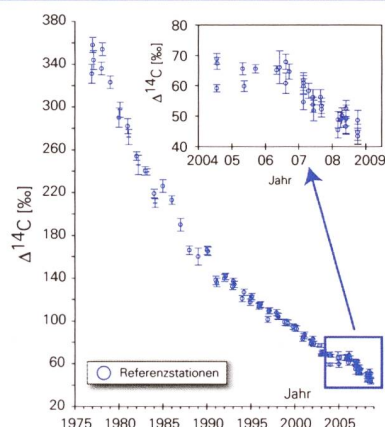
Radiocarbon-Quellen und -Verdünnungen (KKW, KVA, Industrie, Autobahnen) können den  $^{14}\text{C}$ -Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich also als  $^{14}\text{C}$ -Monitor. Die für diesen Bericht gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Werte werden mit dem Radiocarbonstandard  $^{14}\text{A}_0$  verglichen:

$$(2) \ \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} = ({}^{14}\text{A}_{\text{Probe}} / {}^{14}\text{A}_0 - 1) \times 1000 \text{ [‰]}$$

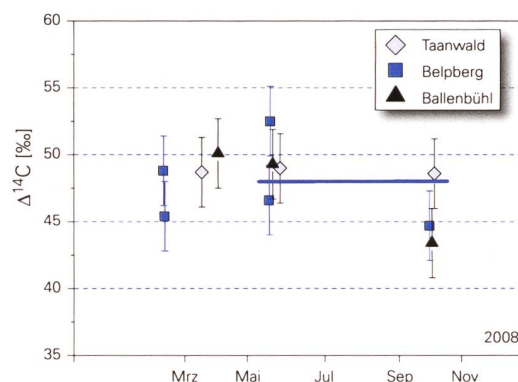


**Tabelle 1:** Messwerte 2008 und Koordinaten der Referenzstationen

Ort	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[ müM ]	Baumart / Standort
	März	Juni	Okt.			
Taanwald	48.7	49.0	48.6	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald
Belpberg I	48.8	52.5	44.7	606050 / 190800	825	Rotbuche auf Krote Ø 45cm
Belpberg II	45.4	46.6	-	606050 / 190800	825	Rotbuche auf Krote Ø 10cm
Ballenbühl	50.1	49.3	43.4	612550 / 192800	852	Linden freistehend


**Figur 1:**

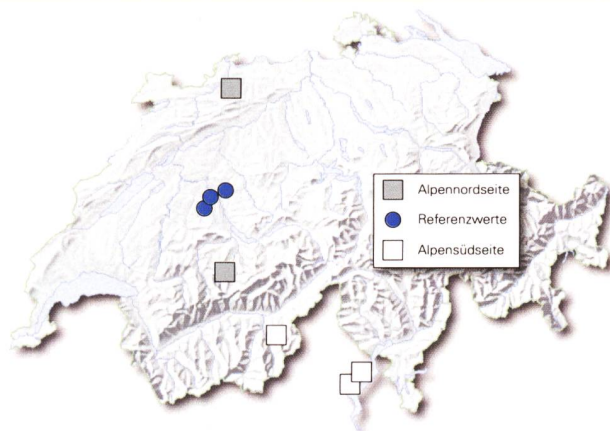
$\Delta^{14}\text{C}$ -Konzentrationen in Laubblättern von den Referenzstationen. Nach einem praktisch konstanten Level in den Jahren 2004 bis 2006 (siehe kleine Figur) setzte sich der 2007 beobachtete (und gemessene) Rückgang auch 2008 fort.


**Figur 2:**

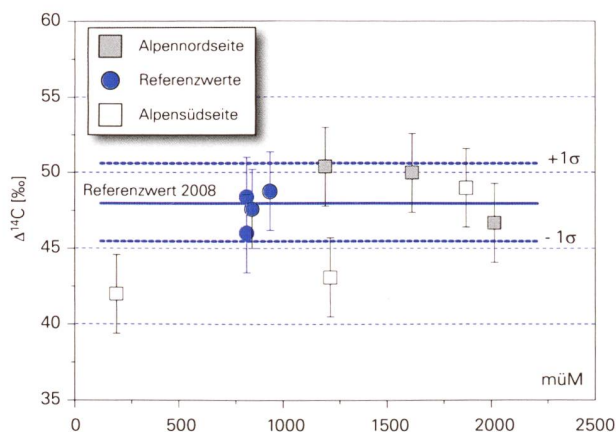
$\Delta^{14}\text{C}$ -Konzentrationen in Knospen (März) und Laubblättern von den Referenzstationen im Jahr 2008. Die horizontale Linie gibt den für 2008 bestimmten Referenzwert an. Für  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2008}}$  wird der gerundete arithmetische Mittelwert der Messungen an den Referenzstationen festgelegt:  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2008}} = 48 \pm 3$  [‰]

**Tabelle 2:** Koordinaten der Standorte des Höhenprofils

Ort	Koordinaten	[ müM ]	Baumart / Standort
Schwandfeldspitz	608140 / 149700	2015	Hainbuche Buschgruppe
Blächti / Margeli	606950 / 149070	1620	Laubbaum freistehend
Passwang	618410 / 246380	1204	Hainbuche auf Krote
Simplonpass	644297 / 119960	1880	Hainbuche Buschgruppe
oberhalb Cannero	691670 / 94905	1227	Rotbuche freistehend
Lago Maggiore	698280 / 98320	200	Trauerweide freistehend am Seeufer


**Figur 3:**

Lage der Referenzstationen und der Standorte der Sammelstellen für das Höhenprofil. (Die Signaturen von Schwandfeldspitz und Blächti decken sich in der Figur)


**Figur 4:**

$\Delta^{14}\text{C}$ -Werte des Höhenprofils



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- und Lindenblätter, bzw. -knospen gesammelt. Ihr  $^{14}\text{C}$ -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit  $^{14}\text{A}_0$  verglichen (Fig 1). Aus den resultierenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für das Jahr 2008 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis dienten die ausgewachsenen, im Juni und Oktober gepflückten Blätter (Figur 2). Die März-Knospen sind hierfür weniger geeignet, da deren Bildung schon im Vorjahr begann.

$$(3) \quad \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2008}} = 48 \pm 3 \text{ ‰}$$

Die Differenz

$$(4) \quad \text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2008}}$$

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

### Höhenprofil

Neu wurden im Sommer 2008 sechs Standorte in der Schweiz ausgewählt, die, was die Entfernung zu  $^{14}\text{C}$ -Quellen oder -Verdünnungen betrifft, gleiche Bedingungen wie die Referenzstationen erfüllen, aber auf unterschiedlichen Höhen über Meer gelegen sind. Die Wahl fiel auf je drei Punkte nördlich, bzw. südlich des Alpenkamms (Figur 3 und Tabelle 2).

Die Resultate der Standorte nördlich der Alpen unterscheiden sich nicht vom Referenzwert  $48 \pm 3\text{‰}$  und eine Abhängigkeit der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte von der Höhe über Meer ist nicht auszumachen (Figur 4). Der Frage, ob die im Vergleich zum Referenzwert geringeren Ergebnisse auf der Alpensüdseite bei Cannero und am Lago Maggiore generell auf vom «Suess»-Effekt beeinflusste Luftmassen über der Po-Ebene zurückzuführen sind, müsste näher nachgegangen werden.

### Aufbereitung von Laubproben für die $^{14}\text{C}$ -Messung

Zur Bestimmung des Verhältnisses  $^{14}\text{C}/\text{C}$  einer Probe muss im Prinzip der gesamte in ihr enthaltene Kohlenstoff zu  $\text{CO}_2$  oxydiert werden.

Beim sogenannten intensiven Verfahren ist dies der Fall. Die Laubproben, werden bei Raumtemperatur getrocknet, zerkleinert und im reinen Sauerstoffstrom unter Abschluss von der Atmosphäre verbrannt. Das gesamte bei der Verbrennung entstehende  $\text{CO}_2$  wird aufgefangen, gereinigt und für die Messung des  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes aufgearbeitet. Da die Verbrennung vollständig ist, entspricht die Messung am  $\text{CO}_2$  dem  $^{14}\text{C}/\text{C}$ -Verhältnis des im und am Blatt akkumulierten Kohlenstoffs.

Der Aufwand für die Reinigung der Verbrennungsgase von Laub zur Gewinnung von  $\text{CO}_2$  ist etwa doppelt so gross

wie derjenige bei Materialien wie Holz oder Holzkohle.

In Anbetracht der knapp bemessenen Zeit zwischen Ernte der Blattprobe (Hochsommer/ Herbst) und Publikation der Messergebnisse wird deshalb bei einer wesentlichen Anzahl von Laubproben das Standardverfahren zur Gewinnung von  $\text{CO}_2$  angewendet:

Die getrockneten Blätter werden vor der eigentlichen Verbrennung im Stickstoffstrom auf  $600^\circ\text{C}$  erhitzt und verkohlt. Die bei diesem Prozess entstehenden flüchtigen Gase werden nicht aufgefangen, und es besteht also die Möglichkeit, dass Kohlenstoff verloren geht. Anschliessend wird die zurückgebliebene Blattkohle mit im Vergleich zum intensiven Verfahren geringem Aufwand zu  $\text{CO}_2$  verbrannt.

Bei Laub, dessen Stoffwechsel nicht durch  $^{14}\text{C}$ -Quellen oder -Verdünnungen beeinflusst ist, spielt es keine Rolle ob die Messung an der Blattkohle (Standard-Verfahren) oder am ganzen Blatt (Intensiv-Verfahren) durchgeführt wird. Vergleichsmessungen z.B. aus den Jahren 2003 und 2006 bestätigen dies. An der Referenzstation ergaben Messungen an der Blattkohle im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt geringere Unterschiede als 4‰. Diese können vernachlässigt werden.

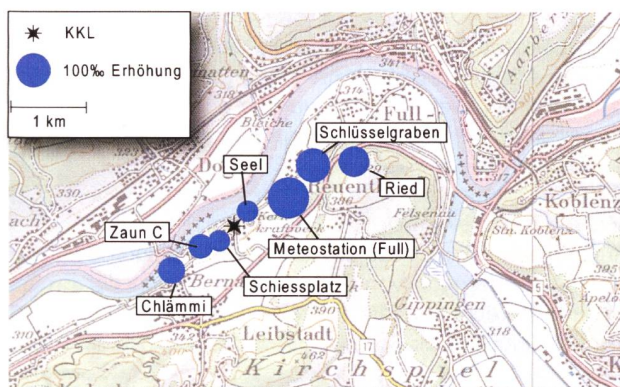
Bei Blättern aber, die nur kurzzeitig einer an  $^{14}\text{CO}_2$  angereicherten oder verdünnten Atmosphäre ausgesetzt waren, können Messungen am gleichen Ausgangsmaterial je nach gewähltem Verfahren durchaus von einander abweichende Resultate liefern. Ausschlaggebend ist dabei, ob der bei der Assimilation aufgenommene Kohlenstoff bereits im Blattgerüst eingebaut (bleibt bei dem Standardverfahren in der Blattkohle zurück) oder noch in der Zellflüssigkeit gelöst (kann beim Standardverfahren verloren gehen) ist.

Nach Möglichkeit wurde bei Laub von kritischen Standorten das intensive Verfahren für die Probenvorbereitung gewählt. In den Figuren 17 und 18 sind so gewonnene Messpunkte dem gewählten Verfahren entsprechend gekennzeichnet.

### Kernkraftwerk Leibstadt (KKL)

2008 wurden beim KKL im Frühling, Sommer und Herbst Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z.T. seit 1982 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchsten  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen ergaben sich in 500 - 1'000 m Distanz vom KKL sowohl in nordöstlicher Richtung bei den Birken vom Standort Meteostation als auch gegen Südwesten bei der Rotbuche an der Position Zaun C (Figur 5).



**Figur 5:**

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL). Probenahme: 28. Juli 2008. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

In Tabelle 3 ist für jeden Standort der höchste im Jahr 2008 gemessene Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert angeführt und dem maximalen in den Jahren 1997 - 2007 dort gemessenen Wert gegenüber gestellt.

**Tabelle 3:**

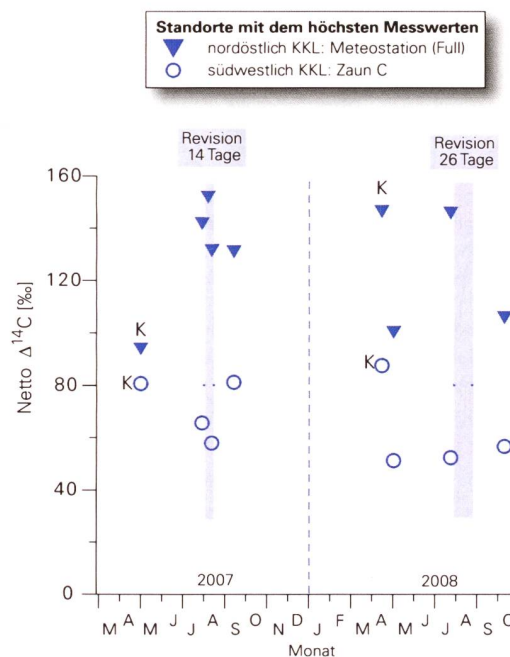
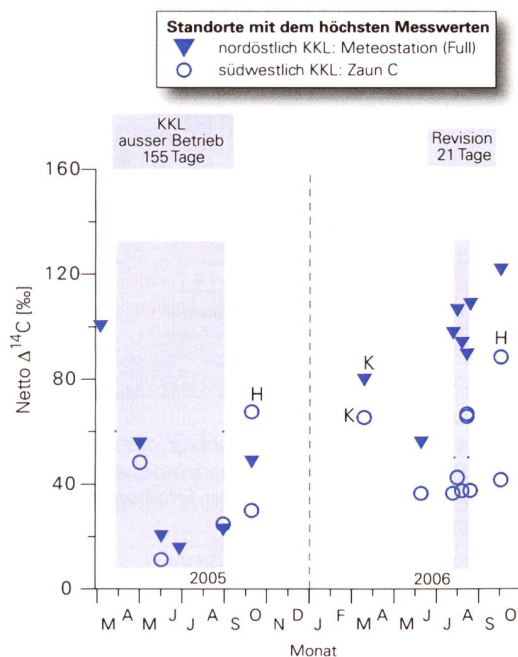
Im Jahre 2008 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern in der Umgebung des KKL im Vergleich mit früheren Jahren (1997 - 2007)

Ort	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 2008 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 1997-2007 [‰]
Meteostation	146.3	238.0 (2002)
Ried	121.6	127.8 (2002)
Seel	39.4	64.5 (2002)
Schlüsselgraben	124.5	127.3 (1999)
Chlammli	62.0	83.1 (1998)
Schiessplatz	39.9	59.6 (2007)
Zaun C*	87.4	80.6 (2007)

\* Messbeginn 2005

In den Figuren 6 und 7 sind für die Stationen mit den höchsten  $^{14}\text{C}$ -Werten (Meteostation und Zaun C) sämtliche Messungen für die Jahre 2005 - 2006, bzw. 2007 - 2008 sowie der Zeitpunkt und die Dauer des Betriebsunterbruchs 2005 und der Revisionen 2006, 2007 und 2008 eingetragen. Deutlich zu erkennen ist das Absinken der  $^{14}\text{C}$ -Messwerte im Verlaufe des Betriebsunterbruchs, während die wesentlich kürzeren, rund zwei- bis dreiwöchigen Revisionen keine eindeutigen Spuren hinterlassen.

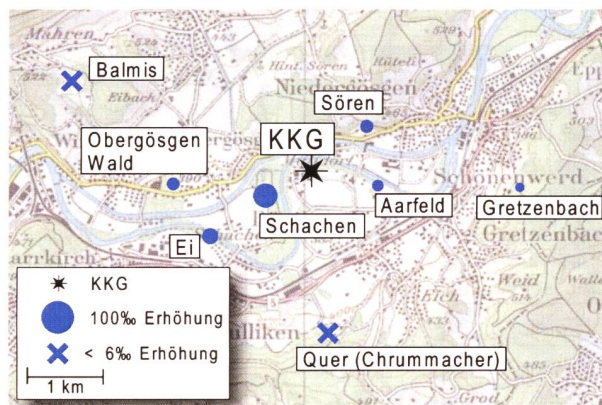
Bei Zaun C entsprechen die  $^{14}\text{C}$ -Gehalte der Knospen K im Frühjahr 2006 und 2007 verglichen mit den Werten der Herbstknospen H des Vorjahres recht gut den Erwartungen.

**Figuren 6 und 7:**

Sämtliche  $^{14}\text{C}$ -Messungen an Blättern, Knospen (K) und Herbstknospen (H) für die Standorte mit den höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten (Meteostation und Zaun C, Lage siehe Figur 5) in den Jahren 2005 - 2006 und 2007 - 2008.



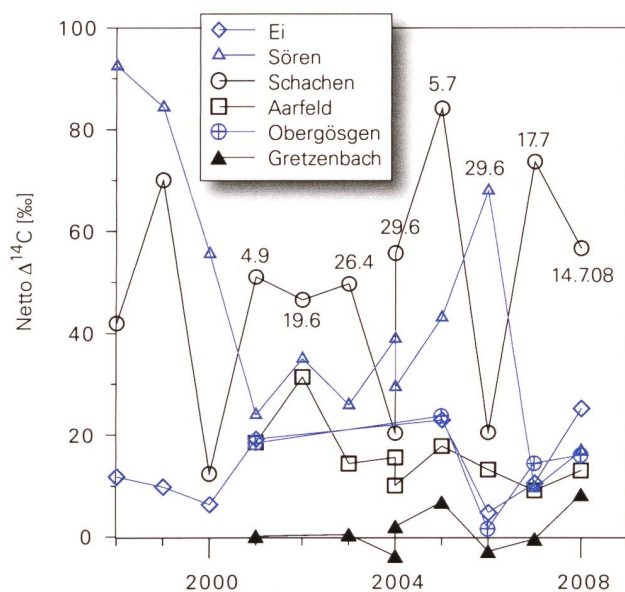
## Kernkraftwerk Gösgen (KKG)



**Figur 8:**  
Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

In der Figur 8 sind die Resultate der am 14. Juli 2008 gewonnenen Blattproben dargestellt. Die Ausbreitung erfolgte vorwiegend in südwestlicher Richtung mit einem maximalen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 57‰ in Schachen.

Die Standorte Chrummacher (408 m.ü.M.) und Balmis (465 m.ü.M.) befinden sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Die Messwerte bei Chrummacher und bei Balmis weichen vom Referenzwert von  $48 \pm 3\%$  um +5.7%, bzw. +1.8%, d.h. um weniger als 2σ ab.



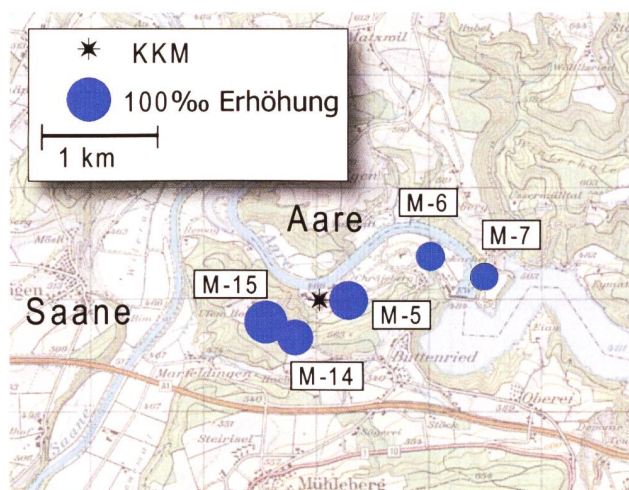
**Figur 9:**  
Zeitliche Entwicklung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des KKG (Standorte siehe Figur 8)

Das Langzeitüberwachungsprogramm des KKG wurde im Jahre 2008 weitergeführt und ergab die in der Figur 9 dargestellten Werte. 2008 wurden ähnliche Erhöhungen gemessen wie in früheren Jahren. Abgesehen vom Standort Schachen lagen alle Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte zwischen 2 und 25‰. Der Wert von 57‰ für die Blätter von Schachen ist nicht aussergewöhnlich, ergaben doch die Messungen auch schon früher, dass sowohl Sören als auch Schachen in einer Entfernung von 800 bis 1'000m von der Emissionsquelle recht gut als kritische Geländepunkte gelten können (Figur 8).

Die Probennahme an diesen zwei Stationen erfolgte in den Jahren 2005 bis 2008 jeweils zwischen Ende Juni und Mitte Juli. Das Pendeln zwischen hohen und tiefen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten am gleichen Standort von Jahr zu Jahr ist somit nicht saisonal bedingt, sondern hat seinen Grund eher in unterschiedlichen meteorologischen Lagen (Windrichtung).

## Kernkraftwerk Mühleberg

Die in Figur 10 symbolisch dargestellte Verteilung der Messwerte um das KKM zeigt ein ähnliches Bild wie im Vorjahr. Die grössten Erhöhungen finden sich wieder bei den Standorten M-5 Schiessplatz und M-15 Ufem Horn.



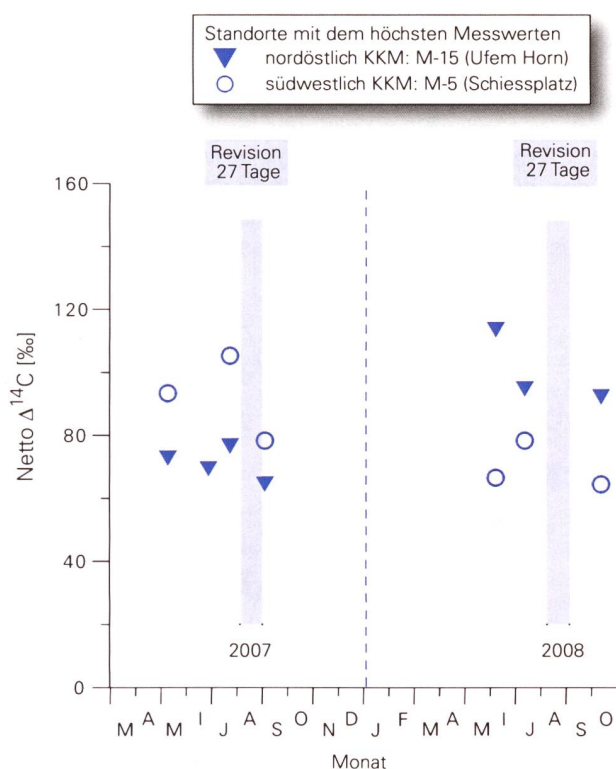
**Figur 10:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) für die Probennahme vom 14. Juli 2008. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Tabelle 4:**

Im Jahre 2008 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern in der Umgebung des KKM im Vergleich mit früheren Jahren (1977 - 2007)

Ort	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 2008 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 1977-2007 [‰]
EW M-6	43.6	83.0 (1977)
Wickacker M-7	39.0	65.0 (1977)
Rain M-14	66.1	85.0 (1987)
Horn M-15	113.2	116.0 (1984)
Schiessplatz M-5	78.3	105.3 (2007)

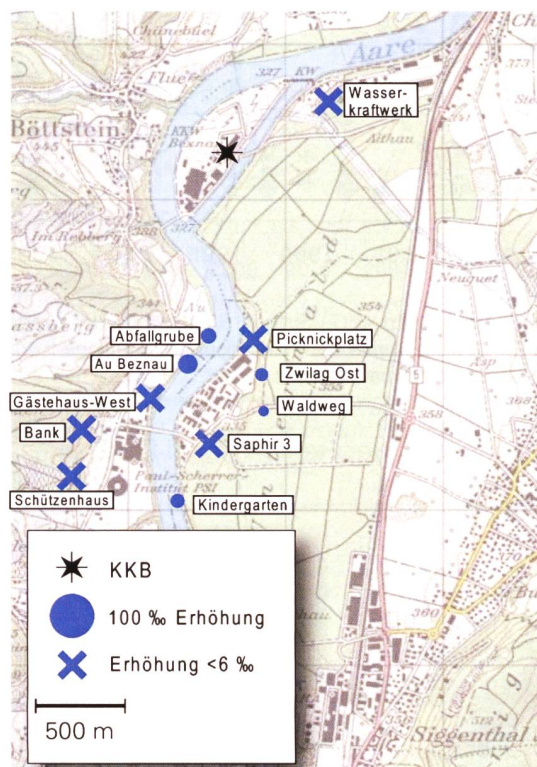
**Figur 11:**

Sämtliche  $^{14}\text{C}$ -Messungen an den Standorten mit den höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten (M-15 Ufem Horn und M-5 Schiessplatz) in den Jahren 2007 - 2008

Die Überwachung der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität in der Umgebung des Kernkraftwerks Mühleberg (KKM) im Jahr 2008 brachte mit Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten zwischen 39‰ (M-7 Wickacker 14.7.08) und 113‰ (M-15 Ufem Horn 9.6.08) mit dem Vorjahr durchaus vergleichbare Werte. Mit Ausnahme des Standorts M-15 liegen alle Werte deutlich unter den Höchstwerten seit Messbeginn im Jahre 1977 (siehe Tabelle 4). Beim Standort M-15 wurde derselbe Messwert gemessen wie bereits im Jahre 2001. Die Differenz zum Höchstwert aus dem Jahre 1984 beträgt nur 3%.

Nach der Revision des Werkes vom 10.8. bis 6.9.08 und dem damit verbundenen Stillstand zeigten die Messungen der Laubproben vom 14.10.08 an allen Standorten tiefere  $^{14}\text{C}$ -Werte als am 14.7.08, d.h. vor der Revision. Dasselbe Bild ergab sich bereits 2007 (siehe Figur 11).

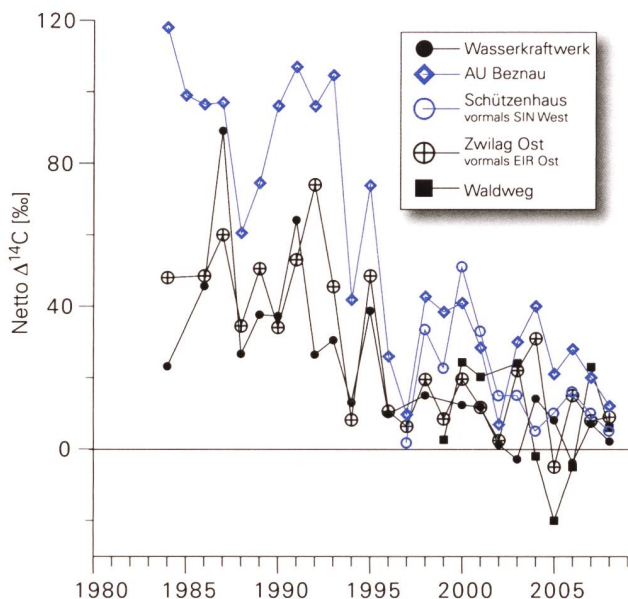
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau

**Figur 12:**

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahre 2008 (Jost Eikenberg, R. Siegwolf, PSI). Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

Die  $^{14}\text{C}$ - und  $\delta^{13}\text{C}$ -Messungen in den Blattproben wurden am PSI durchgeführt. Die Messunsicherheit für die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte beträgt 6 bis 7‰. Die  $\delta^{13}\text{C}$ -Werte liegen alle zwischen -27.6‰ und -33.4‰. In der Umgebung des PSI wurden nur vereinzelt erhöhte  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte gemessen (bis maximal 19‰).

Die Messungen für die Blattproben, die im Jahre 2008 genommen wurden, ergaben ähnliche Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte wie in den früheren 10 Jahren (Siehe Figur 13). Daraus kann auf ziemlich konstante Emissionsraten geschlossen werden. Die Variationen sind primär auf veränderliche Ausbreitungsbedingungen während des Wachstums der Blätter zurückzuführen.



**Figur 13:**  
Zeitreihen der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Blättern aus der Umgebung des PSI, des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen und des KKB (Standorte: siehe Figur 12).

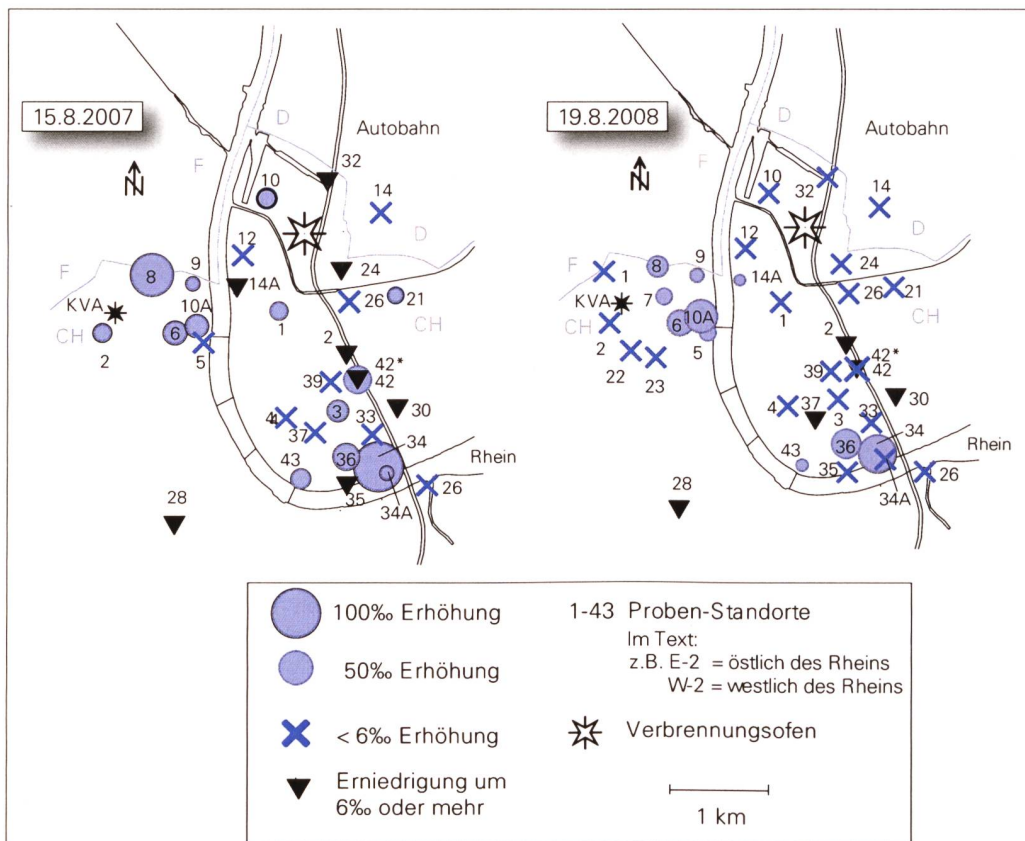
Wie die Novartis am 18.9.08 mitteilte, ist am 17.9.08 im Werk St.Johann eine nicht meldepflichtige Menge  $\text{CO}_2$  freigesetzt worden, die  $^{14}\text{C}$  enthielt. Die Aktivität betrug 7.5 GBq  $^{14}\text{C}$ . Daraufhin erfolgten am 6.10.08 in der Windfahne nordnordwestlich zusätzliche Probennahmen, und zwar in unterschiedlicher Distanz zur vermuteten Quelle. Es betrifft dies den bisherigen Standort W-07 sowie erstmals die 150 m und 300 m entfernten Standorte W-71, W-72.

Bringt man den  $^{14}\text{C}$ -Referenzwert von 48‰ für das Jahr 2008 in Abzug, so ergibt sich vor der Freisetzung am 19.8. bei W-07 ein Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 16‰. Am 6.10. beträgt der entsprechende Wert 152‰, ist also verglichen mit der Messung an der August-Probe erhöht. Die Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte für W-71 und W-72 sind 227‰, bzw. 107‰. Gemessen wurde standardmässig an der Blattkohle.

Bei W-07 wurde an der Probe vom 6.10. zusätzlich der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt im ganzen Blatt bestimmt. Es resultierte ein Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 253‰. Auch dieser Wert ist verglichen mit den  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen früherer Jahre nicht aussergewöhnlich (siehe Figur 15). Die natürliche Strahlenbelastung ist um den Faktor 1'000 grösser.

## Messungen in der Region Basel Stadt

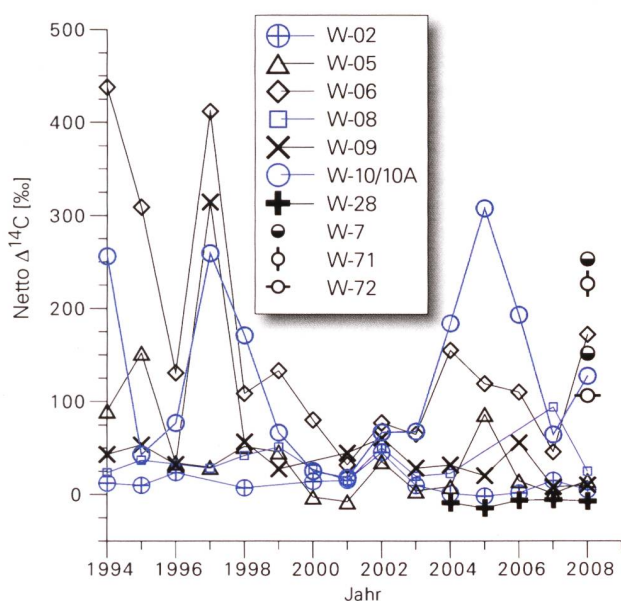
Wie bereits im Vorjahr fand die Hauptprobennahme 2008 in Basel im August statt. Der Vergleich der Grafiken für 2007 und 2008 zeigt, dass sich 2008 die Anzahl der Standorte mit einem Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert  $\geq 6\%$  verkleinert hat. Im Westen finden sich solche Standorte im und um das Novartis Werk St. Johann, im Osten um die Areale der Firmen Roche und Syngenta. Höchste Werte im August wurden bei W-10A mit +62% und bei E-34 mit +80% gemessen. Der 2007 auffällige Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von +94% bei W-08 ist im Berichtsjahr auf +25% gesunken.



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



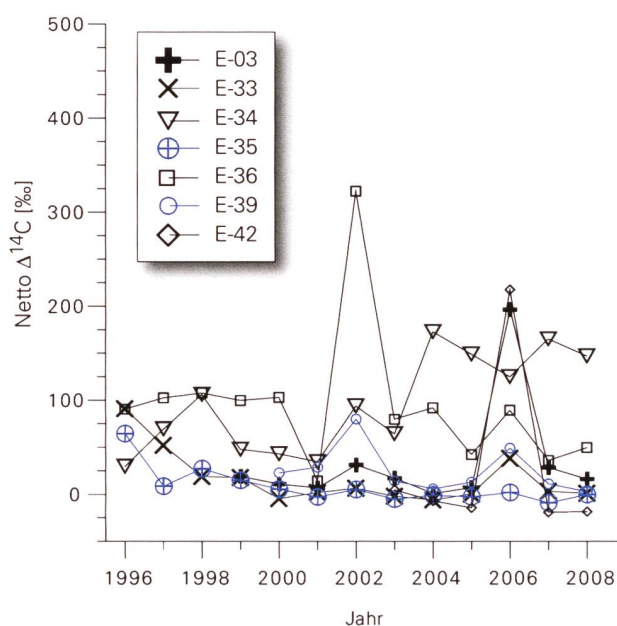
Die seit Jahren beprobte Platane E-42 an der verkehrsreichen Schwarzwälderallee steht vor dem Bau 1020 des Syngenta Werks Rosental. Der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert bei diesem Baum beträgt sowohl 2007 als auch 2008 -20%. Dies kommt in Anbetracht der aus Abgasen stammenden Mengen von  $^{14}\text{C}$ -freiem  $\text{CO}_2$  nicht unerwartet. Bemerkenswert ist jedoch, dass im Gegensatz dazu das Laub der hinter dem Bau 1020 im Hof zwischen den Gebäuden 1001 und 1002 wachsenden Rosskastanie E-42\* für 2007 einen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von +40% und für 2008 von 0% aufweist, obwohl die Distanz zwischen den Bäumen E-42 und E-42\* bloss ca. 60m beträgt, ein Hinweis darauf, wie sehr die städtische Topographie die Strömungsverhältnisse der Luftmassen beeinflusst.



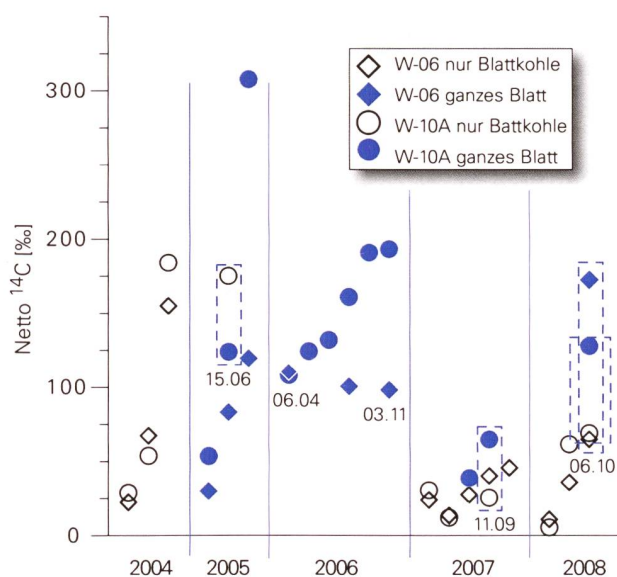
**Figur 15:** Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins in Basel beim Areal des Novartis Werks St.Johann und bei W-28 (Standorte: Figur 14). Liegen von einem Standort für ein Jahr mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen. Zusätzlich sind alle Messwerte der Beprobung vom 6.10.2008 an den Standorten W-7, W-71 und W-72 aufgeführt.

Die Zeitreihen der Basler Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte wurden 2008 weitergeführt (Figuren 15 und 16). Es sei auf die 2008 verglichen mit dem Vorjahr erhöhten Werte bei W-06 Volta-platz und W-10A Bau 27 St. Johann von +172%, bzw. +128% hingewiesen. An beiden Stationen konnten Erhöhungen dieser Grössenordnung auch in früheren Jahren beobachtet werden.

Von den Standorten E-34 und E-36, W-06 und W-10A sind für die Jahre 2004 bis 2008 in den Figuren 17 und 18 sämtliche Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte eingetragen, und es wird angegeben, ob die Messung nur an der Blattkohle oder am ganzen Blatt vorgenommen wurde.



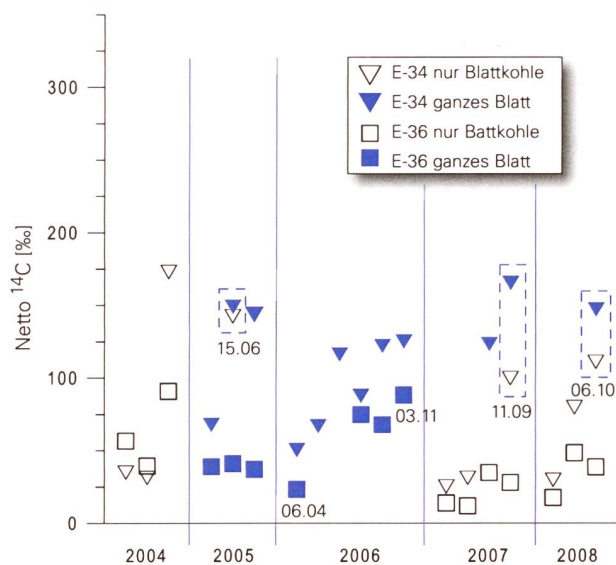
**Figur 16:** Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte östlich des Rheins in Basel bei den Arealen der Firmen Roche und Syngenta Werk Rosental (Standorte: Figur 14). Liegen von einem Standort für ein Jahr mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.



**Figur 17:** Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte an den Standorten W-06 und W-10A für die Jahre 2004 bis 2008 (alle Messungen)

Für das am 15.06.05, 11.09.07 und 16.10.08 an den Standorten E-34 und W-10A gepflückte Laub wurden die  $^{14}\text{C}$ -Messungen sowohl an der Blattkohle als auch am ganzen Blatt durchgeführt. Das gleiche gilt für die Blätter vom 6.10.08 bei W-06. Mit einer Ausnahme sind bei allen Wer-





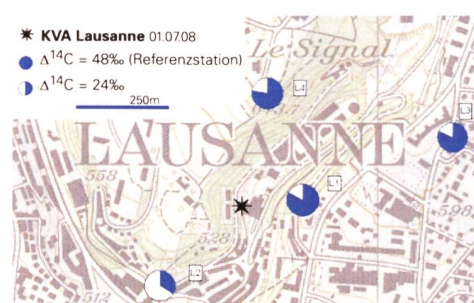
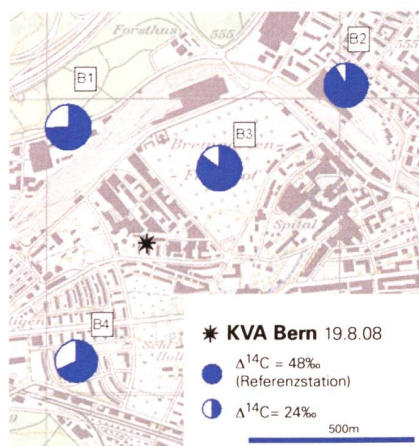
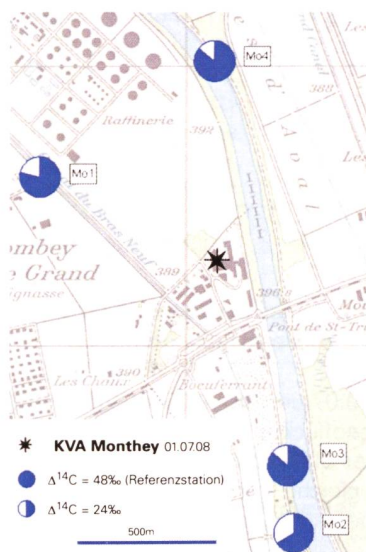
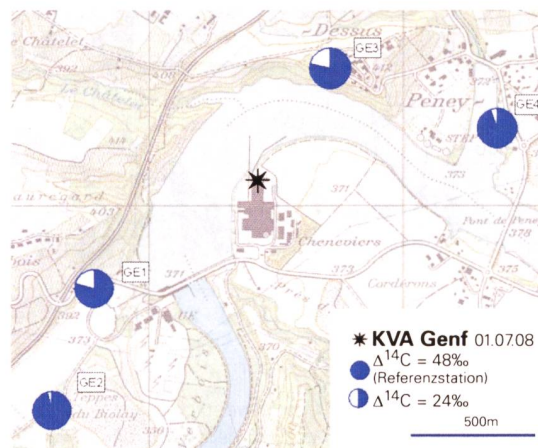
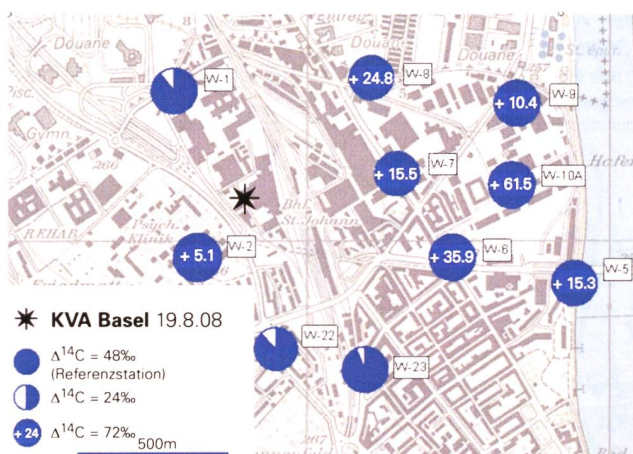
**Figur 18:**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte an den Standorten E-34 und E-36 für die Jahre 2004 bis 2008 – alle Messungen

tepaaren die Resultate der  $^{14}\text{C}$ -Messungen am ganzen Blatt höher als diejenigen an der Blattkohle. Am 15.06.05 scheint bei W-10A die verglichen mit dem Blattgerüst  $^{14}\text{C}$ -ärmere Blattflüssigkeit zu einem tieferen  $^{14}\text{C}$ -Messwert beim Gesamtblatt zu führen.

### Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

Werden in KVA grössere Mengen  $^{14}\text{C}$ -angereicherter Abfälle verbrannt, so führt das zu erhöhten  $^{14}\text{C}$ -Werten in der Umgebungsluft. Andernfalls sind die Verbrennungsgase aus KVA eher  $^{14}\text{C}$  reduziert, da in den Abfällen enthaltene Kunststoffe aus  $^{14}\text{C}$ -freiem Erdöl stammen.

Seit dem Jahr 2003 werden im Umfeld der KVA Bern, Thun, Lausanne und Zürich Blätterproben gesammelt und analysiert. Im Berichtsjahr 2008 wurde auf die Probennahme in Thun und Zürich verzichtet und das Augenmerk auf die nahe der Landesgrenze gelegenen Anlagen in Basel, Genf und Monthey (VS) gerichtet. Ausschlaggebend für diesen Entscheid war die im Jahr 2007 diskutierte Mög-



**Figur 19:**  
 $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in der Umgebung der KVA Basel, Bern, Genf, Lausanne, Monthey VS



lichkeit, insbesondere in der Genfer Anlage, Müll aus Neapel zu entsorgen.

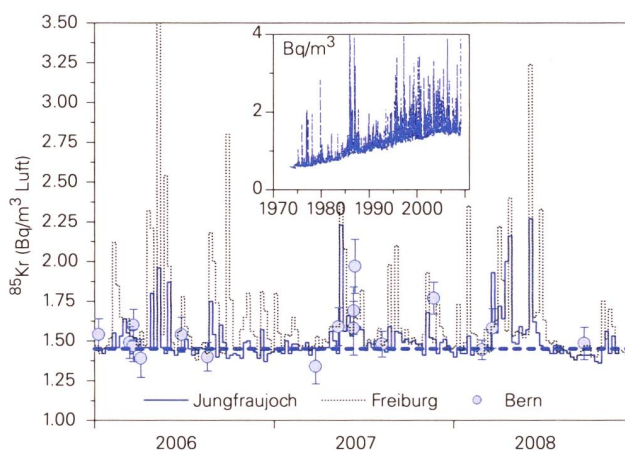
In Bern, Genf, Lausanne und Monthey sind die Resultate sämtlicher Stationen tiefer als der Referenzwert von 48‰, d.h. Netto  $\Delta^{14}\text{C} < 0\%$  (siehe Figur 19). Eventuell vorhandene  $^{14}\text{C}$ -Emissionen werden vom «Suess»-Effekt überdeckt. In Lausanne führt die topographische Lage der KVA dazu, dass der Standort L-2 im Gebiet des Aufschlagpunkts der Abgasfahne liegt. Der Messwert von  $\Delta^{14}\text{C} = 16.3\%$  lässt den Schluss zu, dass von der Lausanner KVA  $\text{CO}_2$  ausgestossen wird, welches verglichen mit den Referenzstandorten an  $^{14}\text{C}$  verdünnt ist. Es sei noch darauf hingewiesen, dass die KVA Genf in der Flugschneise von und nach dem Flughafen Genf-Cointrin liegt und dass die KVA Monthey weniger als 1km von einer Raffinerie entfernt ist.

Für die Beurteilung der Verhältnisse um die KVA Basel wurde auf das bei der Hauptprobennahme vom 19.8.08 gewonnene Material zurückgegriffen. Betrachtet man die Standorte W-1, W-2, W-22, W-23, W-6, W-7 und W-8 als einen Ring von Beobachtungsposten um die KVA Basel (Figur 19) und vergleicht die positiven Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte bei W-6, W-7 und W-8 mit denjenigen der weiter östlich gelegenen W-5, W-9 und W-10A, so scheint es plausibel,  $^{14}\text{C}$ -Quellen eher im Areal des Novartis Werks St. Johann als bei der Basler Kehrlichtverbrennungsanlage zu suchen.

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

Bis etwa 2003 nahm die Aktivitätskonzentration von Krypton-85 in der Atmosphäre kontinuierlich zu (Figur 20, kleines Bild). Krypton-85 wird überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt. In den letzten 5 Jahren stabilisierten sich die  $^{85}\text{Kr}$  Basiswerte in der Atmosphäre auf einem Aktivitätslevel von ca.  $1.45 \text{ Bq/m}^3$  Luft. Das bedeutet, dass die Aufarbeitungsraten zur Zeit nicht mehr zunehmen und dass sich ein Gleichgewicht zwischen der globalen Emissionsrate und dem radioaktiven Zerfall in der Atmosphäre bei ca. 300 - 400 PBq/Jahr eingestellt hat. Der Vergleich der Wochenwerte der Messstationen Freiburg i. Br. und auf dem Jungfraujoch über die letzten 3 Jahre ergibt praktisch identische Basiswerte für beide Stationen (Figur 20). Die Aktivitätsmaxima von Abluftfahnen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (E) und La Hague (F) sind bei der Forschungsstation Jungfraujoch jedoch weniger häufig und auch weniger ausgeprägt. Dies ist auf die erhöhte Lage des Jochs zurückzuführen, die vor allem in den Wintermonaten über der planetaren Grenzschicht liegt und somit von bodennahen Emissionen weniger beeinflusst wird.

Wie in den beiden Vorjahren beobachtet man an beiden Stationen auch im Jahr 2008 eine Abnahme der Häufigkeit



**Figur 20:**

Atmosphärische Krypton-85 Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3500 m. ü. M.), Freiburg i. Br. (276 m. ü. M.) sowie stichprobenartige Messungen in Bern über die letzten drei Jahre. Kleines Bild: Aktivitätsverlauf bei der Station Freiburg i. Br. über die letzten 36 Jahre; Die Messungen der Proben aus Freiburg und vom Jungfraujoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg i. Br. durchgeführt.

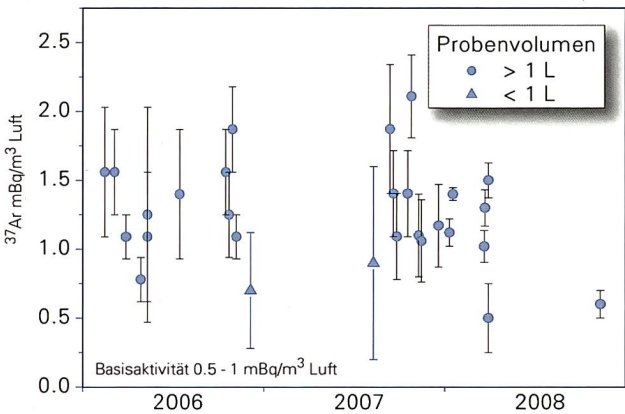
von Aktivitätsspitzen in den Sommermonaten. Für diesen Rückgang dürften weniger meteorologische Gründe verantwortlich sein als die reduzierte Aufarbeitungskapazität während der Ferienzeit. Auch am Physikalischen Institut der Universität Bern werden Stichprobenmessungen der Krypton-85 Aktivitätskonzentration durchgeführt (Figur 20). Diese Werte stimmen gut mit jenen vom Jungfraujoch und Freiburg i. Br. überein, welche am BfS in Freiburg gemessen wurden.

Die Kryptonaktivität macht zwar den grössten Anteil der künstlichen Radioaktivität in der Atmosphäre aus. Die Strahlendosis ist mit  $10^{-2} \mu\text{Sv/a}$  per  $\text{Bq/m}^3$  aber vernachlässigbar klein im Vergleich zur derjenigen von Radonfolgeprodukten.

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

Auch im Jahre 2008 wurde an der Universität Bern wieder die Argon-37 Aktivität in der Atmosphäre periodisch überwacht (Figur 21). Argon-37 wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion  $^{40}\text{Ar}(n, n^{37}\text{Ar})$  produziert. Die Neutronen stammen dabei von der kosmischen Strahlung. Künstlich produziertes Argon-37 in messbaren atmosphärischen Konzentrationen bedingt hohe Neutronenflüsse, wie sie nur bei nuklearen Testexplosionen auftreten. Insbesondere bei unterirdischen Tests werden grosse Mengen Argon-37 durch die  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$  Reaktion erzeugt. Bei unvollständiger Versiegelung der Testkaverne könnte das Gas an die Erdoberfläche und schliesslich in die Atmosphäre gelangen.

In den letzten drei Jahren gemessene Bernluftproben entsprechen der natürlichen Hintergrundaktivität von ca 0.5 - 1 mBq/m<sup>3</sup> Luft, also nochmals 3 Größenordnungen tiefer als die Krypton-85 Aktivität. Diese sehr geringe Hintergrundaktivität, bedingt durch die kurze Halbwertszeit von 35 Tagen und die kleine Produktionsrate, macht Argon-37 zu einem sensitiven Werkzeug zur Überwachung des Vertrags über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Kernwaffenteststopvertrag, CTBTO).



**Figur 21:**  
*<sup>37</sup>Ar Aktivität in Troposphärenluft (Probenaufarbeitung durch die Firma Carba AG)*

**Tritium (<sup>3</sup>H)**

Im Jahr 2008 haben die Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen (Tabelle 5) im gewichteten Jahresmittel gegenüber 2007 abgenommen. Ausgenommen davon ist Bern, wo die Konzentrationen praktisch gleich geblieben sind. Die Station St. Gallen ist nach der Umstellung durch Meteo Schweiz wieder in Betrieb. An den meisten Stationen entspricht der Verlauf der Monatsmittelwerte von 2008 weitgehend dem erwarteten Jahresgang mit einem Maximum der Konzentrationen im Frühsommer.

Die regionalen Unterschiede in den Tritiumkonzentrationen bestehen weiterhin. Die tiefsten Werte findet man in Locarno auf der Alpensüdseite. Die Nähe zum Mittelmeer ist der Hauptgrund dafür. Zudem ist dort der Anteil an solchen Luftmassen geringen, die über Westeuropa von potentiellen Emissionsquellen Tritium aufnehmen könnten. Die Monatsmittelwerte zeigen aber diesmal auch bei Nyon, La Brévine oder Vaduz keine aussergewöhnliche Erhöhungen. Geringfügige Unterschiede hängen wahrscheinlich mit der unterschiedlichen Niederschlagsverteilung zusammen. Die Kontaminationsfahnen der Tritium verarbeitenden Industrie bei Bern haben beispielsweise im Oktober die Konzentrationen in den Niederschlägen der Berner Oberlandstationen nicht beeinflusst.

Abgenommen haben auch die Tritiumkonzentrationen im Flusswasser der Aare bei Brugg, die Abgaben aus Gösgen sind über mehrere Wochen verteilt und wieder deutlich erkennbar.

**Tabelle 5:**  
*Gewichtete Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen in Niederschlag für die Jahre 2007 und 2008*

	Basel	Bern	Vaduz*
	(Bq/l)		
Mittel 2008	1.20	3.69	0.96
Mittel 2007	2.03	3.71	1.72
	Meiringen	Guttannen	Grimsel
	(Bq/l)		
Mittel 2008	1.07	1.06	1.05
Mittel 2007	1.25	1.12	1.12
	La Brévine*	Nyon*	Locarno
	(Bq/l)		
Mittel 2008	0.91	1.00	0.71
Mittel 2007	1.33	1.30	0.85
	Aare Brugg		
	(Bq/l)		
Mittel 2008	3.04		
Mittel 2007	3.62		



**Tabelle 6:**

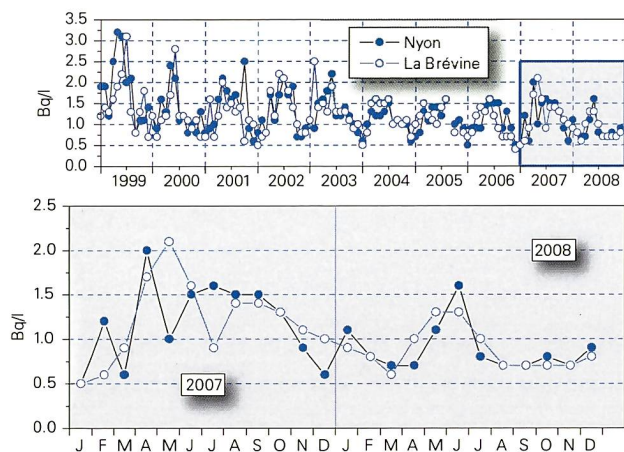
Tritiumkonzentrationen im Niederschlag; Monatsmittelwerte für 2008 [Bq/l]

	Basel		Bern		Grimsel		Guttannen		Meiringen		Locarno	
JAN	1.61	± 0.09	3.94	± 0.12	0.80	± 0.07	0.65	± 0.07	0.74	± 0.08	0.81	± 0.33
FEB	1.24	± 0.08	4.57	± 0.13	0.90	± 0.07	1.05	± 0.08	1.22	± 0.08	0.95	± 0.33
MAR	0.87	± 0.08	3.97	± 0.12	0.96	± 0.07	1.01	± 0.08	0.88	± 0.08	1.09	± 0.33
APR	1.39	± 0.08	4.63	± 0.13	1.28	± 0.08	1.28	± 0.08	1.21	± 0.08	1.38	± 0.33
MAI	1.40	± 0.09	2.87	± 0.10	1.18	± 0.07	1.03	± 0.07	1.31	± 0.08	1.77	± 0.33
JUN	1.96	± 0.08	3.01	± 0.10	1.87	± 0.08	1.88	± 0.08	1.87	± 0.09	0.90	± 0.33
JUL	1.21	± 0.08	3.23	± 0.10	1.47	± 0.08	1.35	± 0.07	1.38	± 0.07	1.04	± 0.33
AUG	0.78	± 0.07	1.49	± 0.08	1.04	± 0.07	1.30	± 0.07	0.94	± 0.08	0.84	± 0.33
SEP	0.98	± 0.07	2.84	± 0.10	0.89	± 0.07	0.83	± 0.07	0.87	± 0.07	0.84	± 0.47
OKT	1.11	± 0.06	7.53	± 0.19	0.92	± 0.08	0.73	± 0.07	0.69	± 0.07	0.79	± 0.47
NOV	0.92	± 0.06	1.42	± 0.08	0.08	± 0.07	0.87	± 0.07	0.67	± 0.07	0.76	± 0.47
DEZ	1.41	± 0.08	2.25	± 0.0	0.09	± 0.08	0.60	± 0.07	0.82	± 0.07	0.79	± 0.47

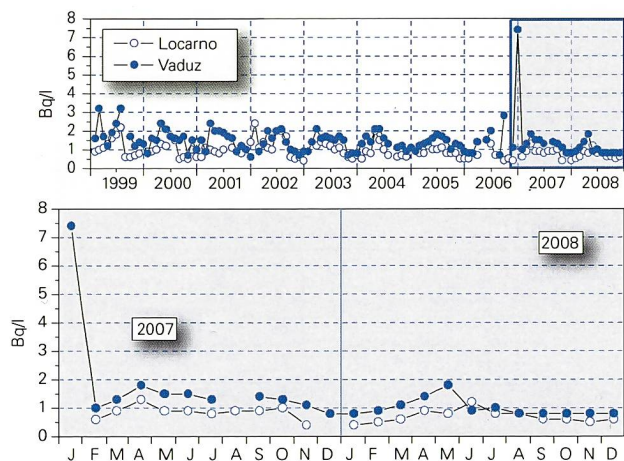
	Vaduz*		Nyon*		La Brévine*		St Gallen*	
JAN	0.81	± 0.33	1.07	± 0.08	0.90	± 0.08	keine Probe	
FEB	0.95	± 0.33	0.82	± 0.08	0.76	± 0.08	keine Probe	
MAR	1.09	± 0.33	0.67	± 0.07	0.63	± 0.07	keine Probe	
APR	1.38	± 0.33	0.70	± 0.07	1.00	± 0.08	1.24	± 0.08
MAI	1.77	± 0.33	1.07	± 0.08	1.30	± 0.08	1.67	± 0.08
JUN	0.90	± 0.33	1.63	± 0.09	1.31	± 0.08	1.42	± 0.09
JUL	1.04	± 0.33	0.85	± 0.08	0.97	± 0.07	1.03	± 0.09
AUG	0.84	± 0.33	0.69	± 0.04	0.74	± 0.07	0.99	± 0.08
SEP	0.84	± 0.47	0.70	± 0.07	0.71	± 0.07	0.77	± 0.07
OKT	0.79	± 0.47	0.81	± 0.07	0.74	± 0.07	1.00	± 0.07
NOV	0.76	± 0.47	0.65	± 0.07	0.70	± 0.07	0.68	± 0.08
DEZ	0.79	± 0.47	0.90	± 0.07	0.79	± 0.07	0.81	± 0.08

	Aare Brugg	
JAN	1.68	± 0.33
FEB	1.23	± 0.33
MAR	1.68	± 0.33
APR	14.83	± 0.33
MAI	2.48	± 0.33
JUN	3.85	± 0.33
JUL	1.89	± 0.33
AUG	1.16	± 0.33
SEP	1.73	± 0.47
OKT	2.10	± 0.47
NOV	2.11	± 0.47
DEZ	1.71	± 0.47

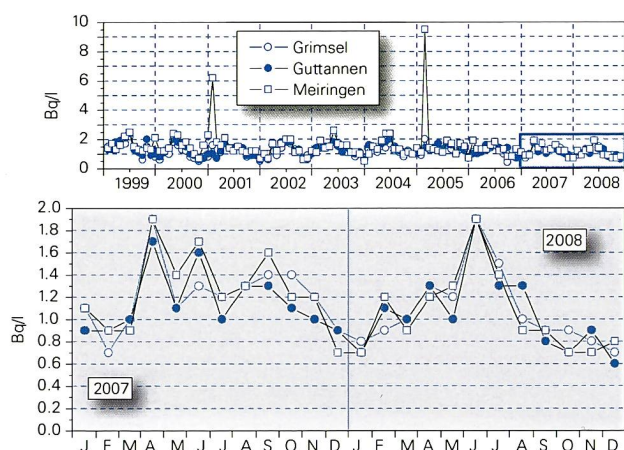
\* ISOT - Stationen (nationales Netz zur Beobachtung der Isotope im Wasserkreislauf)



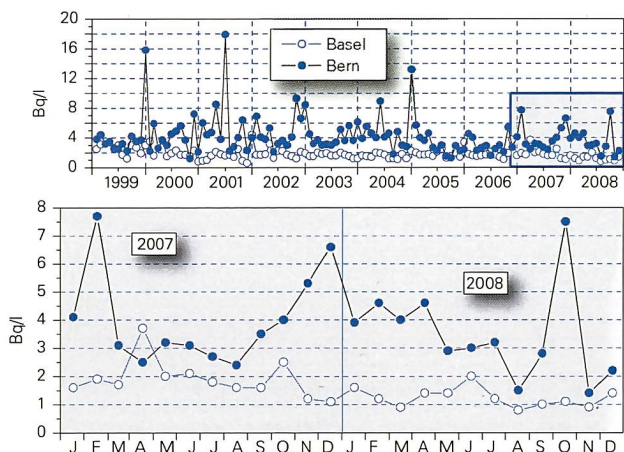
**Figur 22:**  
Tritiumkonzentrationen in der Westschweiz



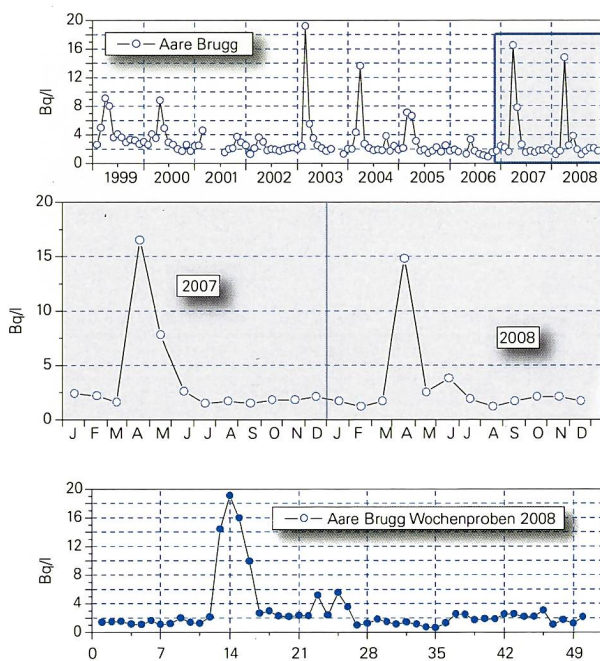
**Figur 23:**  
Tritiumkonzentrationen in der Südschweiz und im Fürstentum Liechtenstein. 2008 gab es in Vaduz keine aussergewöhnlichen Erhöhungen.



**Figur 24:**  
Tritiumkonzentrationen im Berner Oberland im Verlauf der letzten 10 Jahre und im Vergleich der beiden letzten Jahre. Der Jahresgang ist 2008 von den Emissionen aus dem Raum Bern kaum betroffen.



**Figur 25:**  
Tritiumkonzentrationen in Basel und Bern. Die lokalen Emissionen überdecken den natürlichen Jahresgang der Tritiumkonzentrationen im Niederschlag.



**Figur 26:**  
Tritiumkonzentrationen im Flusswasser der Aare bei Brugg. Die jährlichen Tritiumabgaben aus Gösgen sind über mehrere Wochen verteilt.



## Chapitre 7.2

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

**J.A. Corcho Alvarado, P. Froidevaux, F. Luisier, F. Barraud, J. Dlala, A. Savary, F. Bochud**

Institut Universitaire de Radiophysique Appliquée, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

### Résumé

En 2008, une nouvelle procédure pour la détermination de plutonium et d'américium a été établie dans notre laboratoire. La procédure a été validée avec plusieurs matériaux de référence de l'IAEA et lors de deux intercomparaisons, avec d'excellents résultats. Ensuite, la procédure a été utilisée pour l'analyse de plutonium et d'américium sur des sols, des sédiments, des filtres à air et des eaux du plan de prélèvement 2008.

En plaine les activités en plutonium dans les échantillons de sol (0 - 5 cm) prélevés en 2008 se situent entre 0.11 et 0.22 Bq/kg. En montagne, elles sont significativement plus élevées, avec des valeurs entre 0.25 et 17.6 Bq/kg. Aux alentours des centrales nucléaires suisses l'activité des actinides dans les sols et les sédiments ne dépassent pas 0.25 Bq/kg (plutonium) et 0.10 Bq/kg (américium) et montrent un rapport d'activité d'environ 0.03 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  et 0.4 pour  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ . La moyenne du rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  de 0.03 - 0.04 indique une contamination provenant des essais d'armes atomiques effectués durant les années soixante et de la chute du satellite SNAP-9A. Cette origine est confirmée par le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  de  $0.396 \pm 0.062$  en moyenne. L'activité en plutonium et américium des eaux de pluie, de rivière et de surface ne dépasse pas les valeurs des années précédentes ( $< 10 \text{ mBq/m}^3$ ).

L'activité des filtres à air analysés en 2008 est très faible ( $< 3 \text{ nBq/m}^3$ ), sauf pour l'américium dans les filtres à air du Weissfluhjoch, de manière similaire à ce qui a été observé depuis quelques années. Cette station montre en 2008 une activité en  $^{241}\text{Am}$  de  $217 \text{ nBq/m}^3$ . Nous avons effectué en collaboration avec l'OFSP une étude sur l'origine de cette contamination en août 2008. L'étude a conclu que la contamination résulte des travaux effectués dans la station de recherche vers la fin des années 1990, avec l'incinération de matériaux de construction qui contenaient probablement des détecteurs d'incendie à l'américium. En effet, les déchets de chantier trouvés sur place ainsi que l'ensemble du dispositif de pompage - filtration de l'air présentaient des contaminations à l'américium.

### Introduction

Le plutonium a été distribué dans l'environnement suite aux essais d'armes atomiques en atmosphère, au fonctionnement d'installations nucléaires et au cycle nucléaire (retraitement) ainsi qu'à divers accidents comme celui de la centrale nucléaire de Tchernobyl (Tableau 1). L'américium est généré par la désintégration bêta du  $^{241}\text{Pu}$ , et a été introduit d'une façon non uniforme dans les deux hémisphères par les mêmes sources que le plutonium (Tableau 1). L'importance de la surveillance de ces deux radioéléments dans l'environnement se justifie par leur radiotoxicité et leur longévité dans les systèmes biologiques.

Le but de ce travail était d'évaluer tout d'abord la présence des radioéléments plutonium et américium dans l'environnement en Suisse, d'en attribuer l'origine et d'analyser leur comportement et leur devenir. Le comportement du plutonium et de l'américium dans les systèmes naturels dépend de la solubilité et des réactions de sorption, du couple pH - Eh, de l'hydrolyse et des réactions de complexation, notamment avec des ligands organiques présents dans les sols et les eaux (Tableau 2, [1]). Par conséquent, la mesure du plutonium et de l'américium au niveau de traces dans l'environnement est indispensable à la compréhension de ces mécanismes de mobilisation. Pour cette raison, des sols, des sédiments, de l'eau et des filtres à air ont été analysés.

### Méthode de séparation chimique

En 2008, nous avons développé une nouvelle méthode de séparation chimique pour l'analyse séquentielle de plutonium et d'américium. La méthode a été développée à partir de l'ancienne méthode du GSE, qui utilise la digestion micro-onde des échantillons et la chromatographie d'échange et d'extraction. La nouvelle méthode consiste à séparer séquentiellement le plutonium et l'américium sur des résines d'extraction TEVA® et DGA®. La résine DGA est beaucoup plus sélective pour l'américium ( $\sim 10^3$  fois, en  $\text{HNO}_3$  8M) que la résine TRU utilisée auparavant dans la



**Tableau 1:**

Propriétés radioactives des actinides et leurs sources dans l'environnement. Dernière colonne: le "% du NWT-fallout-Pu" est donné en % de masse, le rapport "r" est donné en activité. NWT = nuclear weapon testing.

Radio-isotope	Emission	Energie (MeV)	Période (a)	Remarques (origine)
$^{238}\text{Pu}$	$\alpha$	5.456, 5.499	87.8	Satellites SNAP, $r(^{238}\text{Pu})/(^{239,240}\text{Pu})=0.036$
$^{239}\text{Pu}$	$\alpha$	5.101, 5.143	$2.41 \cdot 10^4$	84% du NWT-fallout Pu
$^{240}\text{Pu}$	$\alpha$	5.124, 5.168	$6.57 \cdot 10^3$	15% du NWT-fallout Pu
$^{241}\text{Pu}$	$\beta$	0.021	14.1	0.7% du NWT-fallout Pu, fille: $^{241}\text{Am}$
$^{242}\text{Pu}$	$\alpha$	4.856, 4.900	$3.74 \cdot 10^5$	0.3% du NWT fallout Pu
$^{241}\text{Am}$	$\alpha$	5.443, 5.485	433	Fille: $^{237}\text{Np}$ , $r(^{241}\text{Am})/(^{239,240}\text{Pu})=0.39$

**Tableau 2:**

Propriétés chimiques des actinides dans l'environnement. Les constantes de stabilités correspondent à la première hydrolyse ( $\log K \text{ M(OH)}$ , col. 3) et à la formation du complexe 1:1 avec l'oxalate ( $\log K \text{ Mox}$ , col. 4) [1]. Colonne 5: tendance d'adsorption à des surfaces telles que les colloïdes.

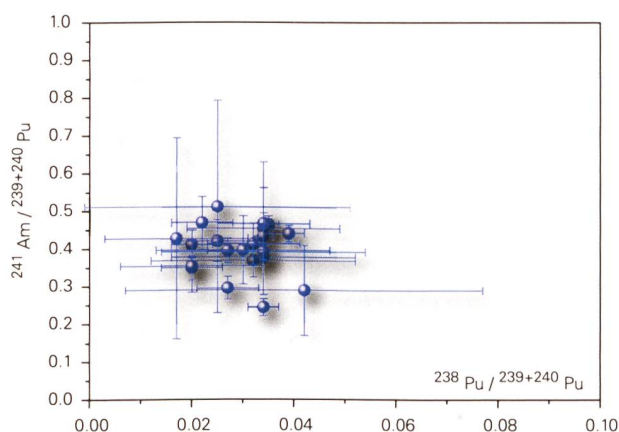
Elément	Espèce aqueuse	$\log(K) \text{ M(OH)}$	$\log(K) \text{ Mox}$	Sorption aux colloïdes
Plutonium	$\text{Pu}^{3+}$	7	6.5	+++
	$\text{Pu}^{4+}$	13.3	10.9	+++
	$\text{PuO}_2^+$	4.3	4.3	++
	$\text{PuO}_2^{2+}$	8.4	7	++
Américium	$\text{Am}^{3+}$	7.5	6.5	+++

méthode précédente [2]. La résine DGA, n'est pas affectée par la teneur en fer des échantillons, contrairement à la résine TRU [3]. C'est un grand avantage par rapport à l'ancienne méthode parce que les actinides peuvent facilement être concentrés sur un micro-précipité d'hydroxydes de fer. Après la séparation sur résines, les actinides sont électrodéposés sur des disques d'acier [4]. Les sources sont ensuite mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS, pendant environ  $10^6$  secondes.

La nouvelle méthode a été testée sur des échantillons de référence (IAEA-300, IAEA-367, IAEA-368 et IAEA-Soil-6), et lors d'intercomparisons organisées par PROCORAD (2008) et par le BFS (2008). La performance de la méthode s'est avérée excellente, avec tous les résultats à moins de 5% d'écart par rapport à la valeur cible [5, 6]. Les rendements obtenus pour la séparation du plutonium (environ 82%) et de l'américium (environ 78%) dans les échantillons prélevés en 2008 (sols, sédiments, filtres à air et l'eau) sont supérieurs à ceux obtenus les années précédentes par l'ancienne méthode.

## Résultats et discussion

Les tableaux 3 et 4 rapportent les principaux résultats obtenus en 2008. Sauf indication contraire, les incertitudes des mesures sont reportées pour un intervalle de confiance de 95% ( $k=2$ ). Le tableau 3 présente les résultats obtenus dans l'analyse de différents sols de Suisse ainsi que pour les sédiments en aval des centrales nucléaires suisses. La couche analysée est 0 - 5 cm, sauf pour les sols du Val Piora où des profils ont été prélevés. Lors de la mesure des sols, en plaine, l'activité en plutonium se situe entre 0.11 et 0.22 Bq/kg de sol, ce qui correspond bien à la gamme des valeurs observées pour ces analyses lors des mesures des années précédentes. Aux alentours des centrales nucléaires suisses l'activité des actinides dans les sols et les sédiments ne diffère guère du reste du territoire de plaine et ne dépasse pas 0.25 Bq/kg (plutonium) et 0.11 Bq/kg (américium). En montagne, l'activité en plutonium peut s'élever au-dessus de 1.0 Bq/kg avec un maximum de 17.6 Bq/kg dans un sol du Val Piora (Tessin).

**Figure 1.**

Rapports isotopiques  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  en fonction du rapport  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  dans 19 échantillons de sol (0-5cm) et 3 échantillons de sédiment prélevés sur l'ensemble de la Suisse. Le rapport isotopique moyen  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  est de  $0.029 \pm 0.007$ , et celui de  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  est de  $0.395 \pm 0.062$ .



**Tableau 3:**

Plutonium et américium (Bq/kg de matière sèche) dans les sols (0-5 cm) et les sédiments aquatiques en aval des centrales nucléaires suisses relevés en 2008. Les sols du Val Piora ont été prélevés en 2006. Les incertitudes sont indiquées pour  $\sigma=2$ .

Lieu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$
<b>Sol de plaine hors centrale</b>				
Grangeneuve	$0.135 \pm 0.010$	$0.033 \pm 0.002$	$0.034 \pm 0.003$	$0.243 \pm 0.023$
Arenenberg	$0.112 \pm 0.018$	$0.055 \pm 0.018$	$0.034 \pm 0.015$	$0.453 \pm 0.176$
<b>Sol centrales nucléaires + PSI</b>				
Beznau	$0.221 \pm 0.021$	$0.093 \pm 0.012$	$0.025 \pm 0.008$	$0.420 \pm 0.055$
Gösgen	$0.245 \pm 0.022$	$0.115 \pm 0.014$	$0.022 \pm 0.006$	$0.468 \pm 0.07$
Leibstadt	$0.219 \pm 0.008$	$0.095 \pm 0.004$	$0.034 \pm 0.002$	$0.433 \pm 0.024$
Mühleberg	$0.139 \pm 0.010$	$0.050 \pm 0.002$	$0.039 \pm 0.003$	$0.361 \pm 0.030$
PSI (ZWILAG)	$0.128 \pm 0.004$	$0.056 \pm 0.002$	$0.035 \pm 0.002$	$0.440 \pm 0.021$
PSI (OASE)	$0.117 \pm 0.004$	$0.054 \pm 0.002$	$0.035 \pm 0.002$	$0.463 \pm 0.023$
<b>Sol sites d'altitude</b>				
Allmendhubel	$0.312 \pm 0.112$	$0.090 \pm 0.020$	$0.042 \pm 0.035$	$0.289 \pm 0.120$
Diesse	$0.240 \pm 0.028$	$0.099 \pm 0.004$	$0.032 \pm 0.009$	$0.413 \pm 0.054$
Fahrni	$0.407 \pm 0.046$	$0.150 \pm 0.006$	$0.032 \pm 0.020$	$0.368 \pm 0.044$
Gimmelwald	$0.218 \pm 0.028$	$0.082 \pm 0.016$	$0.034 \pm 0.018$	$0.377 \pm 0.088$
Davos	$1.340 \pm 0.082$	$0.469 \pm 0.032$	$0.020 \pm 0.006$	$0.349 \pm 0.032$
Val Piora 2, 5-10cm	$17.560 \pm 1.040$	$6.95 \pm 0.42$	$0.027 \pm 0.004$	$0.395 \pm 0.033$
Val Piora 2, 10-16cm	$8.920 \pm 0.540$	$3.67 \pm 0.24$	$0.020 \pm 0.004$	$0.411 \pm 0.037$
Val Piora 2, 16-24cm	$0.237 \pm 0.026$	$0.084 \pm 0.014$	$0.020 \pm 0.014$	$0.353 \pm 0.070$
Val Piora 8, 5-10cm	$2.250 \pm 0.140$	$0.664 \pm 0.052$	$0.027 \pm 0.006$	$0.295 \pm 0.030$
Val Piora 8, 10-12 cm	$0.061 \pm 0.014$	$0.026 \pm 0.016$	$0.017 \pm 0.014$	$0.427 \pm 0.266$
Val Piora 8, 12-16cm	$0.024 \pm 0.008$	$0.012 \pm 0.006$	$0.025 \pm 0.026$	$0.510 \pm 0.282$
<b>Sédiments</b>				
Hagneck	$0.069 \pm 0.011$	$0.031 \pm 0.008$	$0.034 \pm 0.009$	$0.446 \pm 0.095$
Klingnau	$0.138 \pm 0.018$	$0.055 \pm 0.012$	$0.030 \pm 0.017$	$0.396 \pm 0.09$
Pratteln	$0.086 \pm 0.012$	$0.034 \pm 0.008$	$0.034 \pm 0.020$	$0.392 \pm 0.102$
<b>Moyenne suisse (n=22)</b>			<b><math>0.029 \pm 0.007</math></b>	<b><math>0.395 \pm 0.062</math></b>

Les valeurs élevées en Pu des sols du Val Piora s'expliquent par l'altitude du site (2000 m) et la faible densité de ces sols riche en matière organique. Nous avons récemment pu mettre en évidence ce phénomène d'augmentation de la déposition du  $^{90}\text{Sr}$  avec l'altitude à l'échelle de l'Europe occidentale [7].

La figure 1 illustre les rapports en  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  dans les sols et sédiments. Tous les échantillons sont regroupés autour d'une valeur (0.03, 0.4) représentative des rapports des retombées des essais nucléaires réalisés dans les années soixante et de la chute du satellite (source de  $^{238}\text{Pu}$ ) SNAP-9A. Les moyennes observées en

2008 sont de  $0.029 \pm 0.007$  pour le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  et de  $0.395 \pm 0.062$  pour le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ . Il faut toutefois préciser que le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  représente un coefficient entre deux éléments de chimie différente, donc de comportement potentiellement différent dans le sol. Néanmoins, comme l'américium est issu de la désintégration radioactive bêta d'un isotope du plutonium ( $^{241}\text{Pu}$ ) on retrouve en général le même rapport de ces isotopes (entre 0.3 - 0.5) particulièrement dans les sols. On peut malgré tout observer parfois des rapports  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  significativement différents, dû à des migrations différentes de ces deux éléments, sans qu'il y ait un apport supplémentaire par une contamination d'origine accidentelle.



**Tableau 4:**

Mesure de plutonium et d'américium dans les eaux (mBq/m<sup>3</sup>) et les filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>) prélevés en Suisse en 2008. Les incertitudes sont indiquées pour 2σ.

Lieu	Type	<sup>239,240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>241</sup> Am / <sup>239,240</sup> Pu
<b>Eau (mBq/m<sup>3</sup>)</b>				
Mühleberg	eau de pluie	3 ± 1	<DL	<DL
Fribourg	eau de pluie	5 ± 1	1.0 ± 0.4	0.284 ± 0.098
Rhône (Genève)	rivière	2 ± 1	1.0 ± 0.4	0.404 ± 0.171
Val Piora 2W	eau de surface, <0.45 µm, 200 L	7 ± 1	4.0 ± 1.0	0.544 ± 0.136
Val Piora 8P	eau de surface, <0.45 µm, 200 L	8 ± 1	2.0 ± 1.0	0.304 ± 0.102
<b>Filtres d'air (nBq/m<sup>3</sup>)</b>				
Klingnau	V <sub>filtré</sub> = 5'368'840 m <sup>3</sup>	0.769 ± 0.027	<DL	<DL
Weissfluhjoch	V <sub>filtré</sub> = 382'922 m <sup>3</sup>	2.425 ± 0.087	217 ± 5	89.6 ± 3.9
Fribourg	V <sub>filtré</sub> = 519'477 m <sup>3</sup>	0.792 ± 0.028	<DL	<DL
Mühleberg	V <sub>filtré</sub> = 552'695 m <sup>3</sup>	0.627 ± 0.022	<DL	<DL

Pour l'analyse des eaux, au moins 100 litres ont été prélevés. Dans l'eau des fleuves et de surface, l'activité représente des actinides en suspension dans la partie sédimentaire ou associés aux colloïdes organiques. Dans les eaux de pluie, l'activité est due à la re-suspension de particules de sol sur lesquelles les actinides sont adsorbés. L'activité en plutonium et américium des eaux de pluie, de rivière et de surface (Tableau 4) sont faibles et s'insèrent dans la gamme observée lors des années précédentes (< 10 mBq/m<sup>3</sup>). Les rapports <sup>241</sup>Am/<sup>239,240</sup>Pu de ces échantillons sont proches du rapport isotopique des retombées des essais nucléaires (0.4).

L'activité en plutonium et en américium des filtres à air reflète en général le phénomène de re-suspension des particules de sol [6]. En Suisse, nous étudions annuellement quatre sites, Fribourg, Klingnau, Mühleberg et le Weissfluhjoch, sur lesquels des prélèvements de filtres à air sont effectués de façon hebdomadaire. Après analyse par spectrométrie gamma, ces filtres sont réunis pour former un échantillon annuel par site, pour l'analyse du plutonium et de l'américium. Le volume d'air ainsi prélevé est d'au moins 300'000 m<sup>3</sup>, ce qui permet une analyse à très bas niveau d'activité (nBq/m<sup>3</sup>). Depuis le début de ces analyses (1994 pour le plutonium et 1998 pour l'américium), les activités mesurées en plutonium et américium sont toujours inférieures à 20 nBq/m<sup>3</sup>, sauf pour l'américium sur le site du Weissfluhjoch. Sur ce site on mesure des activités en américium supérieures à 100 nBq/m<sup>3</sup> depuis 2002, alors que les activités en plutonium sont restées inférieures à 10 nBq/m<sup>3</sup>.

En août 2008, l'OFSP, conjointement avec l'IRA, a effectué une campagne de prélèvement de frottis et d'échantillons dans et autour du local de pompage du Weissfluhjoch, situé

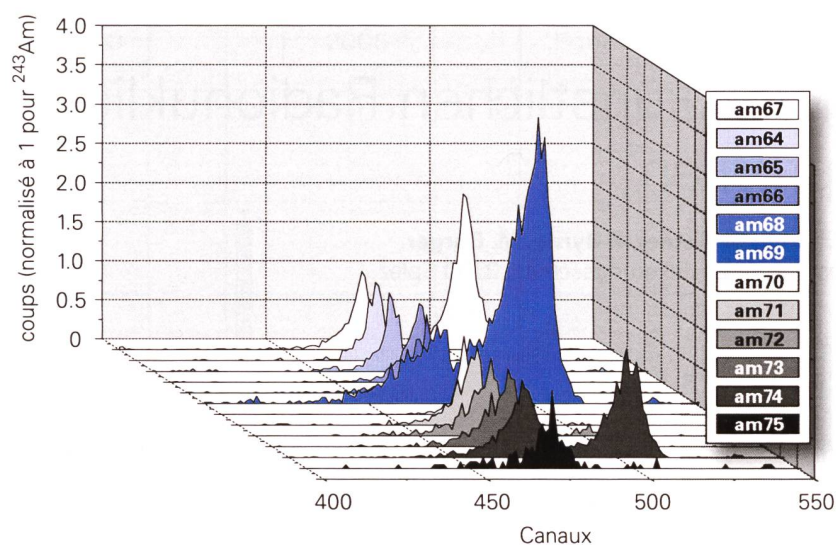
dans les bâtiments de l'institut de recherche sur la neige et les avalanches. Les résultats de cette étude ont montré que l'ensemble du système pompe - filtration était contaminé et qu'une partie des déchets de chantier présent à proximité de la prise d'air sont, eux aussi, contaminés en <sup>241</sup>Am (Figure 2). Il est donc probable que la contamination résulte de travaux effectués dans la station de recherche vers la fin des années 1990, date à partir de laquelle nous avons commencé à observer de l'américium (<sup>241</sup>Am) sur les filtres à air. L'hypothèse la plus vraisemblable est l'incinération de dispositifs contenant <sup>241</sup>Am, soit dans des détecteurs d'incendie (le plus probable), soit dans des dispositifs scientifiques présents dans la station de recherche du Weissfluhjoch (possibilité), lors des travaux.

Les mécanismes suivants ont été formulés pour la contamination de l'ensemble du dispositif de pompage - filtration de l'air:

1. Incinération de dispositifs contenant <sup>241</sup>Am et contamination de l'air.
2. Aspiration de grands volumes d'air contaminé dans le système pompe - unité de filtration et contamination de celui-ci.
3. Contamination ultérieure des filtres par contact avec le dispositif contaminé.
4. Contamination permanente de l'air aux environs de la prise d'air par la présence de <sup>241</sup>Am dans les déchets de chantier.

Il est peu probable que les quantités d'américium présent dans les déchets nécessitent un assainissement du site probablement coûteux, mais une étude de la contamination du site par spectrométrie gamma in-situ (<sup>241</sup>Am émet un gamma à 59 keV) devrait toutefois être effectuée. Il est





**Figure 2.**

Spectres alpha de tous les échantillons après extraction de l'américium sur résine DGA et électrodéposition. Les spectres sont normalisés à 1 par rapport à  $^{243}\text{Am}$ . Le pic à gauche correspond à  $^{243}\text{Am}$  (traceur), celui de droite à  $^{241}\text{Am}$  (contaminant).

évident que le dispositif pompe - unité de filtration ne peut plus être utilisé si l'américium doit être également mesuré sur les filtres. Il faut donc envisager soit sa décontamination totale, soit son remplacement. De plus il est apparu lors de cette étude que la position de la prise d'air n'est pas idéale (très encaissée au pied des bâtiments) pour la détection de contamination des masses d'air atmosphérique et l'ensemble du dispositif doit être déplacé pour positionner la prise d'air en hauteur.

## Conclusions

Les analyses de plutonium et d'américium dans l'environnement en 2008 n'ont pas relevé d'activité inattendue à l'exception du cas de l'américium des filtres à air du Weisfluhjoch. La source de cette contamination en américium est maintenant identifiée et des mesures seront prises pour assainir le dispositif d'échantillonnage de l'air. Les mesures de plutonium et d'américium dans les échantillons de sol sur l'ensemble de la Suisse montrent que la déposition est faible sur le plateau suisse et croît avec l'altitude du site de prélèvement. Cette relation entre le niveau d'activité et l'altitude ou encore le niveau de précipitation est maintenant un phénomène bien connu pour les dépositions de radioéléments suite aux essais des bombes atomiques réalisés en atmosphère.

Pour tous les échantillons l'analyse des rapports isotopiques  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$  a montré que l'origine de la contamination provient des essais des armes atomiques réalisés en atmosphère durant les années soixante et de la désintégration dans l'atmosphère du satellite SNAP-

9A contenant une source de  $^{238}\text{Pu}$ . Les résultats obtenus dans des compartiments de l'environnement autres que le sol montrent que le rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  est un bon indicateur de l'origine de la contamination mais que le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  doit être utilisé avec précaution car ces deux éléments sont susceptibles de fractionnement au cours du processus de mobilisation.

## Références

1. Pearson F.J.Jr., Berner U., Hummel W., Nagra Technical Report NTB 91-18 (1992).
2. Horwitz E.P., McAlister D.R., Bond A.H., Barrans R.E., Solvent Extraction and Ion Exchange 23, 319 (2005).
3. Toribio M., J.F. Garcia, Rauret G., Pilvio R., Bickel M., Analytica Chimica Acta 447, 179 (2001).
4. Bajo S., Eikenberg J., Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 242, 3, 745-751 (1999).
5. PROCORAD, Association for the Promotion of Quality Control of Analyses in Medical Radiobiology, Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Bureau du Conseiller Médical DRHRS/CM, 31-33 rue de la Fédération, 75752 Paris Cedex 15 France.
6. BFS, Bundesamt Für Strahlenschutz, Bestimmung des Radionuklidgehaltes in Wasser, Rinversuch 2/2008, BFS, Willy-Brandt Strasse 5, 38226 Salzgitter, Deutschland.
7. Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux, P., Chemosphere 66, 1571-1579 (2007).
8. Garcia-Olivares A., J.Environ. Radioact., 37, 101-114 (1997).



## Kapitel 7.3

# Messung von künstlichen Radionukliden in Bodenprofilen

**S.Röllin, R. Holzer, H. Sahli, M. Astner, F. Byrde, M. Burger**

LABOR SPIEZ, Bundesamt für Bevölkerungsschutz, 3700 Spiez

### Zusammenfassung

Es wurden vier Bodenprofile im Labor aufgearbeitet und analysiert. Durch die sehr tiefen Nachweisgrenzen konnte die Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  bis 50 cm in die Tiefe bestimmt werden. Trotz der sehr unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der drei verschiedenen Elemente ist deren Migration in den Boden ziemlich ähnlich. Anhand der Bodenprofile konnte der Gesamteintrag an Radionukliden bestimmt werden. Durch die Möglichkeit Isotopenverhältnisse zu messen, konnten wertvolle Informationen über deren Herkunft erhalten werden. Plutonium und Neptunium konnte als Global Fallout der Kernwaffentests identifiziert werden. Ca. 80% der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität für die Proben aus dem Tessin und ca. 40% für die Proben von La-Chaux-de-Fonds und La Foully konnte dem Reaktorunfall von Tschernobyl zugeordnet werden.

### Einleitung

Für die quantitative Bestimmung von künstlichen Radionukliden im Boden mittels in-situ Gammaskpektrometrie ist die Tiefenverteilung der Nuklide im Boden ein wesentlicher Faktor. Es wurden darum anlässlich der letzten 4 gemeinsamen in-situ Übungen der Schweizer in-situ Messequippen je ein Tiefenprofil entnommen. Die ca. 50 cm langen Tiefenprofile wurden in 5 cm Schichten aufgeteilt und im Labor aufgearbeitet. Neben der Bestimmung von  $^{137}\text{Cs}$  mittels Gammaskpektrometrie wurden die langlebigen Isotope von Plutonium und Neptunium massenspektrometrisch bestimmt. Bei einem Tiefenprofil wurde zusätzlich noch  $^{241}\text{Am}$  und  $^{90}\text{Sr}$  gemessen. Damit kann das Migrationsverhalten von 5 Elementen mit verschiedenen chemischen Eigenschaften verglichen werden. Anhand von Tiefenprofilen kann zudem auch der Gesamteintrag von Radionukliden bestimmt werden.

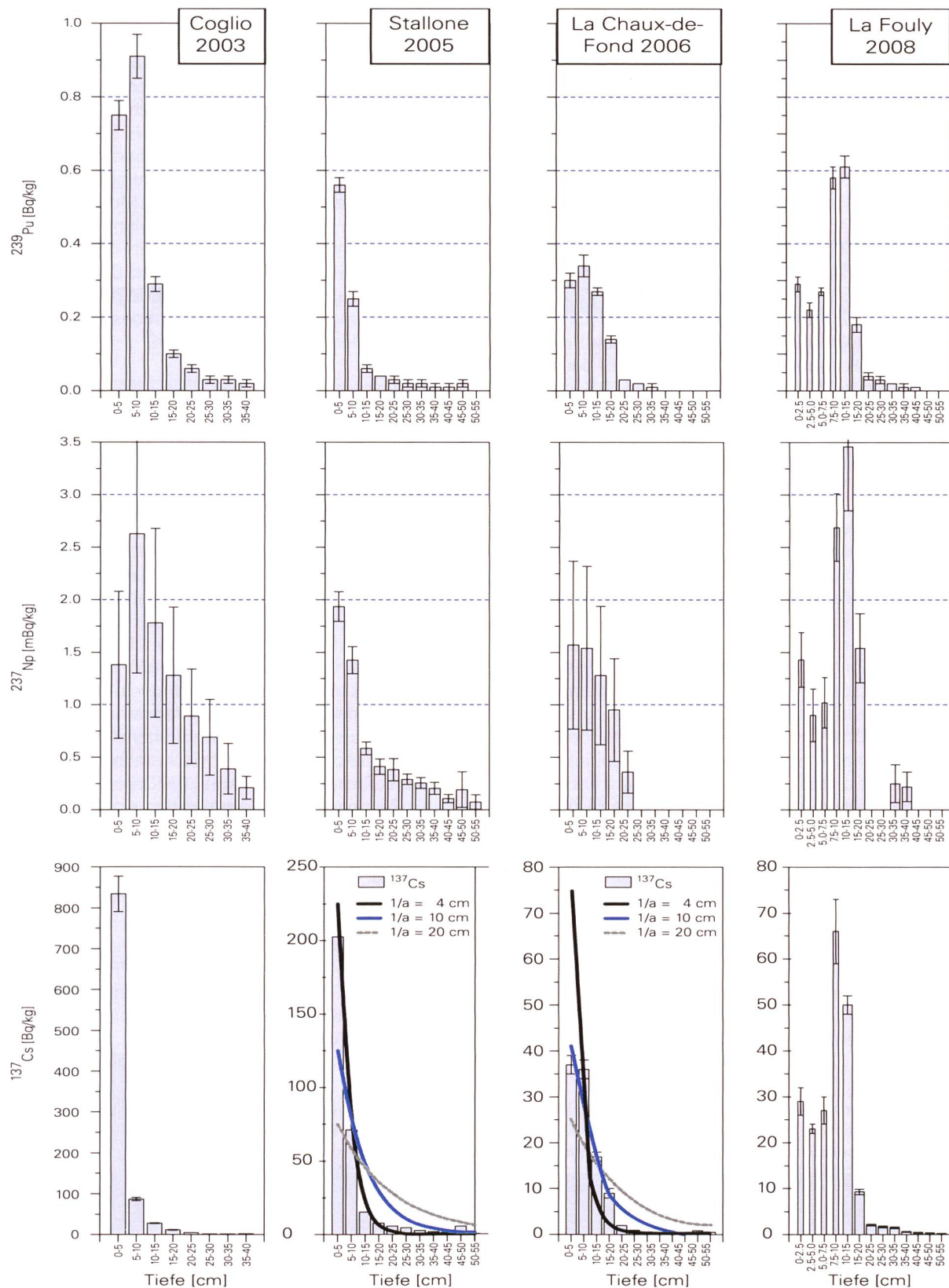
### Probennahme und Aufarbeitung

Es wurden die folgenden Bodenprofile entnommen: Coglio 2003 im Maggiatal, Stallone 2005 beim Flughafen

in Locarno, La-Chaux-de-Fonds 2006 bei Bas de Brandt und La Foully 2008 im Val Ferret beim grossen St. Bernhard. Die Bodenprofile wurden mit einem U-förmigen Stahlprofil mit einem Innenquerschnitt von 10x10 cm entnommen. Die ca. 50 cm langen Bodenprofile wurden in 5 cm Schichten aufgeteilt und im Labor getrocknet. Die getrockneten Proben wurden zerkleinert, gesiebt und homogenisiert. Die Proben wurden anschliessend in Messgeometrien verpackt und mittels Gammaskpektrometrie gemessen. Ca. 50 g der Proben wurden bei 520 °C verascht. Zu 5 g der Bodenmasche wurde der entsprechende Ausbeutetracer ( $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Np}$ ) zugegeben und die Proben mit einem Lithiumborat Schmelzaufschluss in Gold-/Platintiegel aufgeschmolzen und anschliessend in Salpetersäure gelöst. Plutonium und Neptunium wurden auf TEVA-Extraktionschromatographiesäulen (Eichrom) abgetrennt [Röllin et al., 2009]. Für die Proben von Coglio 2003 und La-Chaux-de-Fonds 2006 wurde die Np-Ausbeute der Pu-Ausbeute gleichgesetzt, mit einer entsprechenden Ausbeutesicherheit von 50%. In den Proben von Stallone 2005 wurde zusätzlich  $^{241}\text{Am}$  mit Alphaskpektrometrie und  $^{90}\text{Sr}$  mit einem Betacounter gemessen. Für die  $^{241}\text{Am}$  Bestimmung wurde zu 5 g Bodenmasche ein  $^{243}\text{Am}$  Ausbeutetracer gegeben und ein Schmelzaufschluss analog der Plutoniumbestimmung gemacht. Americium wurde mittels TRU-Extraktionschromatographiesäulen (Eichrom) abgetrennt. Strontium wurde aus 20 g der Bodenmasche mit 8 M  $\text{HNO}_3$  extrahiert und mit Sr-Spec Säulen (Eichrom) abgetrennt.  $^{90}\text{Sr}$  wurde nach Einstellung des radiologischen Gleichgewichtes über die Tochter  $^{90}\text{Y}$  bestimmt.

### Massenspektrometrische Bestimmung

Die Proben wurden mit einem Finnigan Element2 ICP-MS (induktiv gekoppeltes Plasmamassenspektrometer) gemessen. Durch die sehr hohe Empfindlichkeit im hohen Massenbereich können für die langlebigen, schweren Aktinidenisotope sehr tiefe Nachweisgrenzen im  $10^{-15}$  g/g-Bereich erreicht werden. Damit ist es möglich Plutonium und Neptunium bis 50 cm in die Tiefe nachzuweisen. Durch die Möglichkeit Isotopenverhältnisse zu messen, können so auch Aussagen über die Herkunft der Aktinide gemacht werden.



**Figur 1:** Tiefenprofile von  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  in Bq/kg und von  $^{237}\text{Np}$  in mBq/kg, alle Konzentrationen sind auf das Trockengewicht und das Probenahmedatum bezogen.



## Resultate

Fig. 1 zeigt die Tiefenprofile von  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  der Bodenproben von Coglio 2003, Stallone 2005, La-Chaux-de-Fonds 2006 und La-Fouly 2008. Trotz der sehr unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der drei verschiedenen Elemente ist deren Migration in den Boden ziemlich ähnlich. Es wird angenommen dass Neptunium als  $\text{NpO}_2^+$  vorliegt und so schneller migriert als Plutonium, das als  $\text{Pu}^{4+}$  vorliegt.  $^{137}\text{Cs}$  bindet sehr gut an Tonminerale und scheint so am wenigsten mobil zu sein. Da bei den Bodenproben aus dem Tessin bis zu 80% des  $^{137}\text{Cs}$  aus dem Tschernobylunfall stammen, hat die dadurch kürzere Migrationszeit jedoch ebenfalls einen Einfluss auf die Form des Tiefenprofils. Bei den Bodenproben aus dem Tessin sind ca. 90% des  $^{137}\text{Cs}$ , 75% des  $^{239}\text{Pu}$  und 50% des  $^{237}\text{Np}$  in den obersten 10 cm des Profils gebunden. Bei den Proben aus La Fouly sind nur noch ca. 50% des  $^{137}\text{Cs}$ , 40% des  $^{239}\text{Pu}$  und 30% des  $^{237}\text{Np}$  in den obersten 10 cm des Profils gebunden.

Bei in-situ Messungen von künstlichen Radionukliden wird eine exponentielle Tiefenverteilung zugrunde gelegt. Für die  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenprofil von Stallone 2005 und La-Chaux-de-Fonds wurden die Tiefenverteilungen mit einer Exponentialfunktion und drei unterschiedlichen Relaxationslängen mit der gemessenen Tiefenverteilung verglichen. Die Exponentialfunktionen wurden so angepasst, dass die gesamte eingetragene Aktivität gleich der gemessenen gesamten Aktivität ist. Da die Tiefenverteilung vor allem durch Advektions- und Diffusionsprozesse beeinflusst wird, ist auch theoretisch keine exponentielle Tiefenverteilung zu erwarten. Aus den Abbildungen geht hervor, dass die angenommenen exponentiellen Tiefenverteilungen bei in-situ Messungen für mehrere Jahre alte Kontaminationen nur eine rudimentäre Annäherung ist. Um in-situ Messungen und die daraus berechneten Dosen miteinander zu vergleichen ist es deshalb wichtig die Auswerteparameter festzulegen.

In Tab. 1 wurde aus der Summe der Konzentrationen der einzelnen Schichten der Gesamteintrag pro Flächeneinheit berechnet. Aufgrund der eingetragenen  $^{239}\text{Pu}$  Aktivität und der in Fig. 4 berechneten  $^{137}\text{Cs} / ^{239}\text{Pu}$  Verhältnisse des

Global Fallouts kann so die aufgrund des Global Fallouts eingetragene  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität berechnet werden. Das übrige  $^{137}\text{Cs}$  entstammt dem Reaktorunfall von Tschernobyl. Für die Proben aus dem Tessin lag der Tschernobyl Anteil bei ca. 80% der totalen  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität. Dies stimmt auch mit den Messungen der Lago Maggiore Sedimente überein [Klemm et al., 2009], wo die beiden Einträge im Sediment voneinander getrennt sind. Aus den Modellrechnungen geht nach dem Fallout des Tschernobylunfalles ein durchschnittlicher Eintrag von ca.  $5'000 \text{ Bq/m}^2$   $^{137}\text{Cs}$  in das Einzugsgebiet des Lago Maggiore hervor. Dies ist wesentlich weniger als die  $^{137}\text{Cs}$  Einträge in Coglio und Stallone. Der  $^{137}\text{Cs}$  Eintrag in das Einzugsgebiet des Lago Maggiore muss daher ziemlich inhomogen sein.

Für das Massenverhältnis von  $^{237}\text{Np} / ^{239}\text{Pu}$  wurde für die Proben von Stallone 2005 und La Fouly 2008, die mit dem Ausbeutetracer  $^{239}\text{Np}$  gemessen wurden, ein Wert von  $0.50 \pm 0.03$  resp.  $0.48 \pm 0.09$  gemessen. Die Verhältnisse stimmen mit dem von Kelley et al. (1999) anhand von 24 Proben aus der nördlichen Hemisphäre berechneten Durchschnittswert von  $0.48 \pm 0.07$  gut überein. Für die Proben von Coglio 2003 und La-Chaux-de-Fonds 2006 wurde die Np-Ausbeute gleich der Pu-Ausbeute gesetzt, mit dementsprechend grosser Unsicherheit.

Figur 2 zeigt das gemessene Isotopenverhältnis  $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  für das Bodenprofil Coglio 2003. Für die ersten drei Schichten wurde ein Wert von  $0.19 \pm 0.1$  gemessen, was mit dem abgeschätzten Verhältnis für Global Fallout Plutonium von  $0.18 \pm 0.01$  gut übereinstimmt [Kelley, 1999]. Für Plutonium aus dem Tschernobylreaktor würde man ein Verhältnis von  $0.40 \pm 0.01$  [Boulyga et al., 2002] und für Plutonium das in Atomwaffen eingesetzt werden kann ein Verhältnis von kleiner als 0.07 erwarten. Obwohl die Unsicherheit aufgrund der kleinen Plutoniumkonzentrationen für tiefere Schichten zunimmt, reicht die Genauigkeit aus um selbst für Plutoniumkonzentrationen kleiner als  $0.05 \text{ Bq/kg}$  noch Aussagen über die Herkunft des Plutoniums zu machen. Die  $^{241}\text{Pu}$  Konzentration ist sehr klein, so dass das Isotopenverhältnis  $^{241}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  nur gerade in den obersten Schichten bestimmt werden konnte. Der Wert von  $0.0016 \pm 0.0004$  stimmt sehr gut mit dem in Fig. 4 berechneten Wert von 0.0016 überein. Ein zusätzlicher

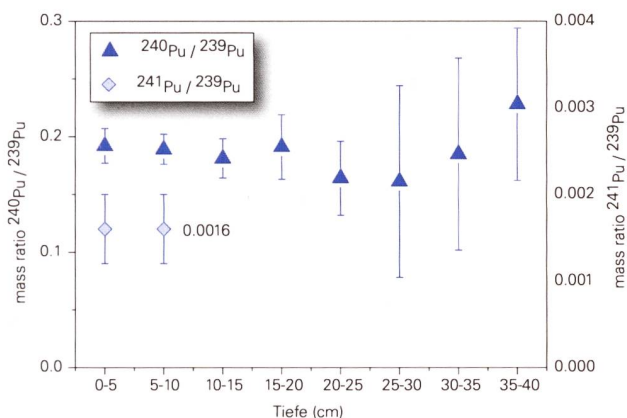
**Tabelle 1:**

Pro Flächeneinheit eingetragene Aktivitäten und Massenverhältnis von  $^{237}\text{Np} / ^{239}\text{Pu}$  der vier Bodenprofile. Der  $^{137}\text{Cs}$ -Eintrag aufgrund des Reaktorunfalles von Tschernobyl wurde als Differenz des totalen  $^{137}\text{Cs}$  Eintrages und des Eintrages durch den Global Fallout der Kernwaffentests berechnet. Sämtliche Aktivitäten beziehen sich auf das Probennahmedatum.

	$^{137}\text{Cs}$ [Bq/m <sup>2</sup> ]	$^{237}\text{Np}$ [Bq/m <sup>2</sup> ]	$^{239}\text{Pu}$ [Bq/m <sup>2</sup> ]	$^{237}\text{Np} / ^{239}\text{Pu}$ Massen verhältnis	$^{137}\text{Cs}$ Tschernobyl %]
Coglio 2003	$34'583 \pm 3'097$	$0.5 \pm 0.1$	$103 \pm 4$	$0.41 \pm 0.1$	84
Stallone 2005	$18'224 \pm 1'393$	$0.33 \pm 0.02$	$59 \pm 2$	$0.50 \pm 0.03$	83
La-Chaux-de-Fonds 2006	$5'064 \pm 288$	$0.3 \pm 0.1$	$55 \pm 2$	$0.45 \pm 0.1$	45
La-Fouly 2008	$6'402 \pm 306$	$0.41 \pm 0.04$	$75 \pm 2$	$0.48 \pm 0.09$	43

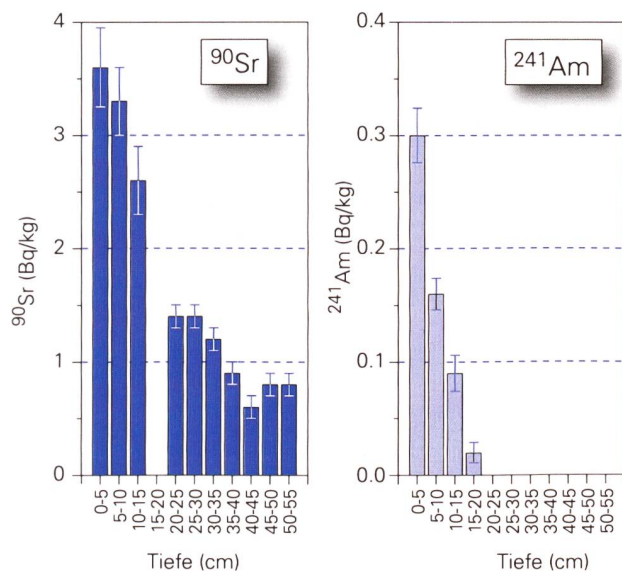


Eintrag von Plutonium aus einer anderen Quelle könnte sehr gut über dieses Isotopenverhältnis bestimmt werden da z.B. in frischem nuklearen Brennstoff ein bis zu 100 mal grösseres Massenverhältnis zu erwarten ist. Durch die relativ kurze Halbwertszeit von  $^{241}\text{Pu}$  (14.4 a) ist die Aktivitätskonzentration von  $^{241}\text{Pu}$  immer noch doppelt so hoch wie diejenige von  $^{239}\text{Pu}$ .



**Figure 2:** Isotopenverhältnis  $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  im Profil Coglio 2003. Aufgrund der sehr tiefen  $^{241}\text{Pu}$  Konzentration konnte  $^{241}\text{Pu}$  nur in den obersten zwei Schichten bestimmt werden.

Fig. 3 zeigt die Aktivitätskonzentrationen von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{241}\text{Am}$  für das Tiefenprofil von Stallone 2005. Tab. 2 zeigt die pro Flächeneinheit eingetragenen  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{241}\text{Am}$  Aktivitäten. Für  $^{241}\text{Am}$  stimmt das Verhältnis zu  $^{239}\text{Pu}$  gut mit dem in Fig. 4 berechneten Wert überein. Das Verhältnis von  $^{90}\text{Sr}$  ist hingegen im Vergleich zum berechneten Wert



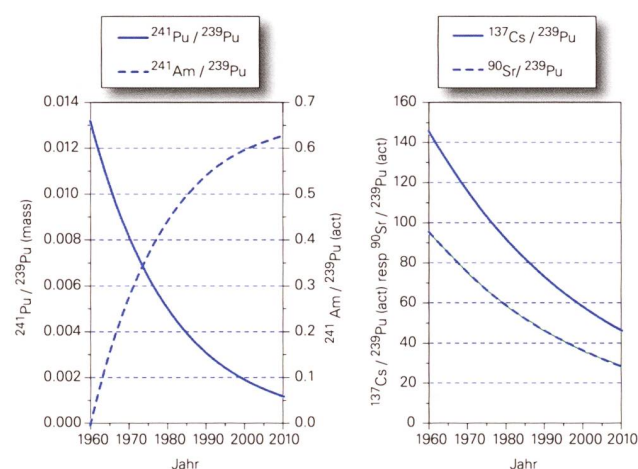
**Figure 3:** Tiefenprofile von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{241}\text{Am}$  der Bodenprobe von Stallone 2005. Die Konzentrationen sind auf das Trockengewicht und das Probennahmedatum bezogen.

nur halb so gross. Eine Abreicherung an  $^{90}\text{Sr}$  im Boden verglichen mit der totalen Freisetzung aufgrund der Kernwaffentests wurde auch von anderen Autoren [Bossew et al., 2007] festgestellt.

**Tabelle 2:**

Pro Flächeneinheit eingetragene Aktivitäten von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{241}\text{Am}$  und deren Verhältnisse zu  $^{239}\text{Pu}$  für das Bodenprofil Stallone 2005.

	$^{90}\text{Sr}$ [Bq/m <sup>2</sup> ]	$^{241}\text{Am}$ [Bq/m <sup>2</sup> ]	$^{90}\text{Sr} / ^{239}\text{Pu}$ Aktivitäts- verhältnis	$^{241}\text{Am} / ^{239}\text{Pu}$ Aktivitäts- verhältnis
Stallone 2005	910 ± 35	33 ± 2	15 ± 0.8	0.62 ± 0.04



**Figure 4:**

Ausgehend von den durch überirdische Atomwaffentests freigesetzten Nuklidmengen (UNSCEAR, 2000) wurde unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls das Massenverhältnis der Isotopen von  $^{241}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$  (mass) und die Aktivitätsverhältnisse  $^{241}\text{Am} / ^{239}\text{Pu}$  (act),  $^{137}\text{Cs} / ^{239}\text{Pu}$  (act) und  $^{90}\text{Sr} / ^{239}\text{Pu}$  (act) berechnet.



## Schlussfolgerung

Durch die Entnahme von Bodenprofilen konnten sowohl die Migration von Radionukliden wie auch das gesamte Inventar an abgelagerten Radionukliden bestimmt werden. Der anhand der Pu Messungen berechnete Tschernobylanteil an der total eingetragenen  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität stimmte mit den Messungen der Sedimente des Lago Maggiore überein. Der aus Modellrechnungen bestimmte durchschnittliche Eintrag von  $^{137}\text{Cs}$  in das Einzugsgebiet des Lago Maggiore ist hingegen wesentlich kleiner als die  $^{137}\text{Cs}$  Einträge in Coglio und Stallone. Der  $^{137}\text{Cs}$  Eintrag aufgrund des Tschernobylunfalles in das Einzugsgebiet des Lago Maggiore muss daher ziemlich inhomogen sein.

Die Tiefenprofile zeigten dass durch die Annahme von exponentiellen Verteilungen für die quantitative Bestimmung mittels in-situ Gammaskpektrometrie die realen Verteilungen nur beschränkt angenähert werden können. Um in-situ Messungen und die daraus berechneten Dosen miteinander zu vergleichen ist es deshalb wichtig die Auswerteparameter festzulegen.

Durch die sehr tiefen Nachweisgrenzen von massenspektrometrischen Analysen langlebiger Radionuklide können Pu und Np bis ca. 50 cm Tiefe im Boden bestimmt werden. Zudem können aus den Isotopenverhältnissen wertvolle Information über deren Herkunft erhalten werden. Durch genaue Kenntnis der jetzigen Konzentrationsverhältnisse können so auch eventuelle neue Einträge von Aktiniden sehr leicht erkannt werden.

## Referenzen

- 1) Boulyga, S.F., Becker, J.S., 2002. Isotopic analysis of uranium and plutonium using ICP-MS and estimation of burn-up of spent uranium in contaminated environmental samples. *J. Anal. At. Spectrom.*, 17, 1143-1147
- 2) Bossew, P., Lettner, H., Hubmer, A., Erlinger, C., Gastberger, M., 2007. Activity ratios of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  in environmental samples. *J. of environmental radioactivity*, vol. 97, no. 1, 5-19.
- 3) Kelley, J.M., Bond, L.A., Beasley, T.M., 1999. Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$ . *The Science of the Total Environment* 237/238, 483-500.
- 4) Putyrskaya, V., Klemm, E., Rölli, S., 2009. Migration of  $^{137}\text{Cs}$  in tributaries, lake water and sediment of Lago Maggiore (Italy, Switzerland) – analysis and comparison with Lago di Lugano and other lakes. *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 100, 35-48
- 5) Rölli, S., Sahli, H., Holzer, R., Astner, M., Burger, M., 2009. Pu and Np analysis of soil and sediment samples with ICP-MS. *Applied Radiation and Isotopes*, in press
- 6) UNSCEAR, 2000. United Nations Scientific Committee on the Effects on Atomic Radiation. *Sources and Effects of Ionizing Radiation*, vol. 1, Annex C, New York.