

<b>Zeitschrift:</b>	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
<b>Herausgeber:</b>	Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz
<b>Band:</b>	- (2014)
<b>Rubrik:</b>	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 2014 Résultats 2014



## 7

### Messung von Spezialnukliden Mesures de nucléides spéciaux

<b>7.1 Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37</b>	<b>98</b>
Zusammenfassung	98
Kohlenstoff-14 ( $^{14}\text{C}$ )	98
Kernkraftwerk Leibstadt	100
Kernkraftwerk Mühleberg	101
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau	102
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	102
Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ ) und Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )	106
Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )	106
Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ )	108
<b>7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement en Suisse en 2014</b>	<b>109</b>
Résumé	109
Introduction	109
Conclusions	111



## 7.1

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

### **Th. Stocker, P. Dürring, R. Fischer, R. Purtschert und T. Wagner**

Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

### **S. Szidot**

Departement für Chemie und Biochemie, Universität Bern, Freiestrasse 3, 3012 BERN

### **C. Schlosser, M. Konrad und S. Schmid**

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 Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne, Thun und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2014 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, Juli und September 2014) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2014 der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert  $24 \pm 3\%$ .

Die 100 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um  $-39\%$  (Basel, Rosental IV Strassenseite E-42) bis maximal  $+130\%$  (Kernkraftwerk Leibstadt Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lag der Höchstwert bei  $26\%$  (E-12, Ackerstrasse, etwa auf halbem Weg zwischen dem Novartis-Werk St. Johann und der regionalen Sondermüllverbrennungsanlage). Diese Werte entsprechen einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von nicht mehr als  $2 \mu\text{Sv}$  ( $1 \mu\text{Sv} = 10^{-6}$  Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von ca.  $3'000 \mu\text{Sv/a}$  fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr kaum ins Gewicht.

Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 und Argon-37 werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert.  $^{85}\text{Kr}$ , freigesetzt bei der Wiederaufbereitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von  $^{85}\text{Kr}$

auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

## Kohlenstoff-14 ( $^{14}\text{C}$ )

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

### 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). Zwar nimmt seitdem der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  durch Aufnahme von  $^{14}\text{CO}_2$  durch die Ozeane und Verbrennung fossiler, d. h.  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe weltweit wieder ab, doch liegt dieser Gehalt gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

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

Auf lokaler Ebene lässt sich eine als «Süss»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$  nachweisen. 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 somit als  $^{14}\text{C}$ -Monitor. Die für diesen Bericht gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Werte werden mit dem Radiocarbonstandard  $^{14}\text{A}_0$  verglichen:

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

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 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 2014 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juni, August und Oktober gesammelten Blätter.

$$(3) \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref}, 2014} = 24 \pm 3 [\text{‰}]$$

Die Differenz

$$(4) \text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref}, 2014}$$

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

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

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

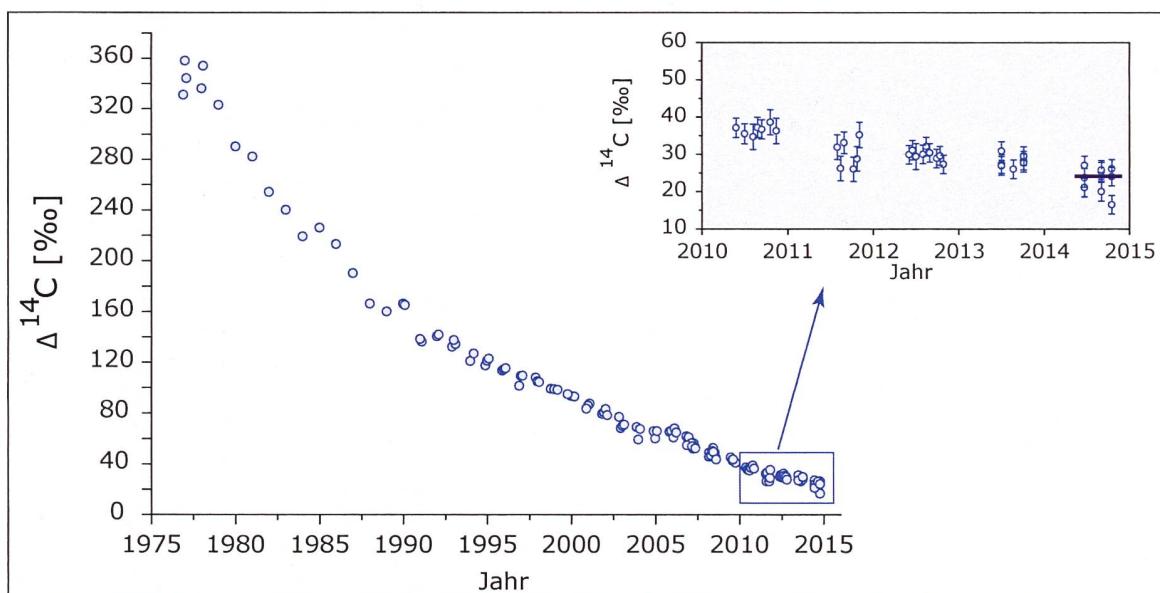
Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber den wahren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Blätter besser wiedergebende Methode B wird für Proben von Standorten verwendet, die bereits in den Vorjahren deutlich höhere Werte zeigten.

Mit  $24 \pm 3 \text{ ‰}$  ist der Referenzwert 4 % unter dem Wert des Vorjahres.

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

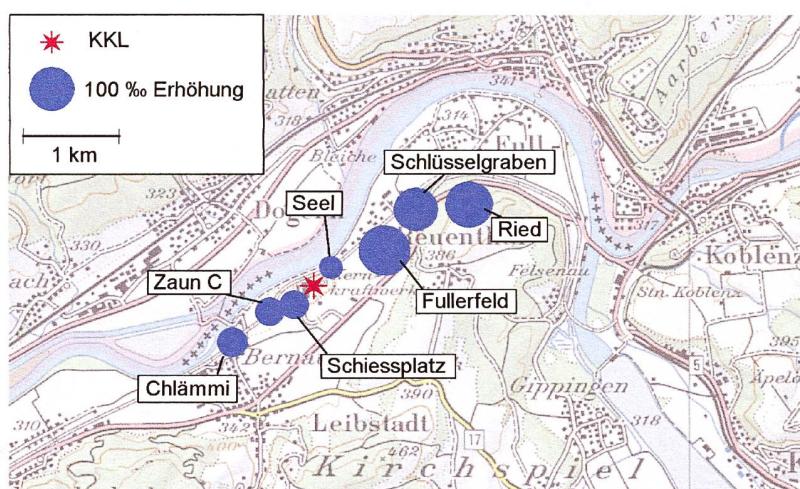
**Tabelle 1:**  
Messwerte 2014 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	$\Delta^{14}\text{C}$ [%‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juli	Aug.	Okt.			
Taanwald	27	20	17	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald (Blätter)
Belpberg	24	25	26	606050 / 190800	825	Rotbuchen auf Krete (Blätter)
Ballenbühl	21	26	25	612550 / 192800	852	2 Linden freistehend (Blätter)



**Figur 1:**  
 $^{14}\text{C}$ -Werte in Buchen- und Lindenblättern von den Referenzstationen. Die dunkle horizontale Linie zeigt den bestimmten Referenzwert während der Vegetationszeit.

Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von Blättern ist im Jahr 2014 wieder abgefallen, nachdem er in den Jahren 2011 bis 2013 relativ konstant geblieben war. 2014 war ein überdurchschnittlich warmes Jahr, allerdings mit recht kühlen, feuchten Sommermonaten. Möglicherweise bremsen heisse Sommer die jährliche  $^{14}\text{CO}_2$ -Abnahme in der Atmosphäre aufgrund einer geringeren Aufnahme von  $^{14}\text{CO}_2$  durch die Ozeane, welche in wärmeren Jahren eine verstärkte Stratifizierung der obersten Wasserschichten aufweisen. Man würde in diesem Fall auch einen verstärkten Anstieg von  $\text{CO}_2$  in der Atmosphäre erwarten. Das ist konsistent mit der Beobachtung von verstärkten Anstiegsraten von  $\text{CO}_2$  während El-Niño-Jahren und verringerten Raten bei Abkühlungen (z. B. Pinatubo-Eruption).



**Figur 2:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2014. Probenahme: 05.08.2014. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

## Kernkraftwerk Leibstadt

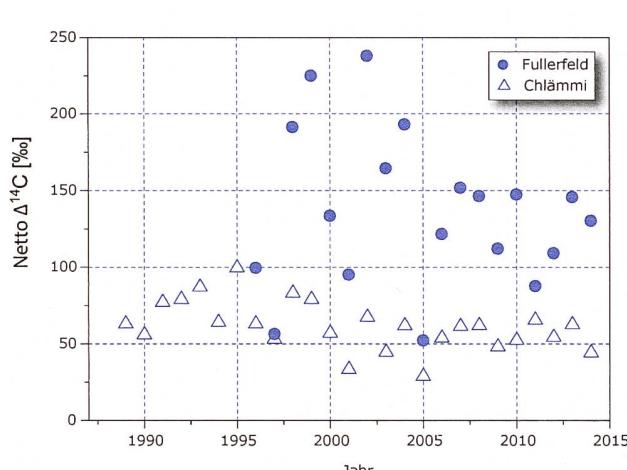
Im Sommer 2014 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste  $^{14}\text{C}$ -Konzentration ergab sich in ca. 1'000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Fullerfeld (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Chlämmi die höchsten Werte auf.

Figur 3 zeigt die aufgetretenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämmi seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. Im Jahr 2005 musste das Kernkraftwerk während 5 Monaten stillgelegt werden. Der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwert verringerte sich gegenüber dem Vorjahr von 193‰ auf 52‰. 2014 lag der höchste Messwert bei 130‰ (Fullerfeld). Der grösste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ (2002), ebenfalls am Standort Fullerfeld.

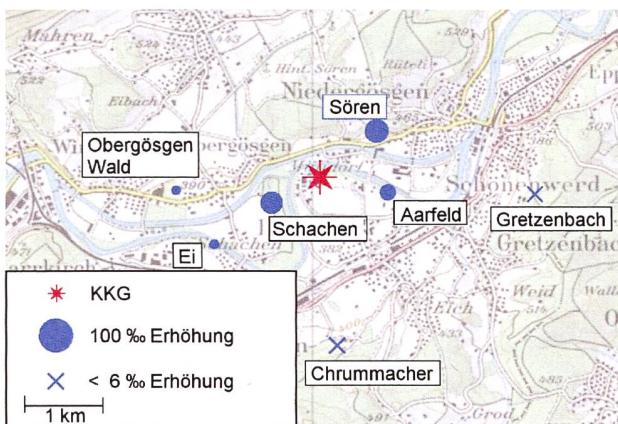
## Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 4 sind die Resultate der am 16. Juli 2014 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Die höchsten  $^{14}\text{C}$ -Messwerte resultierten in diesem Jahr mit 48‰ am Standort Sören und 43‰ am Standort Schachen. Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert des Standorts Chrummacher ist identisch mit den Werten der unbelasteten Referenzstandorte. Dasselbe gilt für den an einem Waldrand gelegenen Standort Gretzenbach.

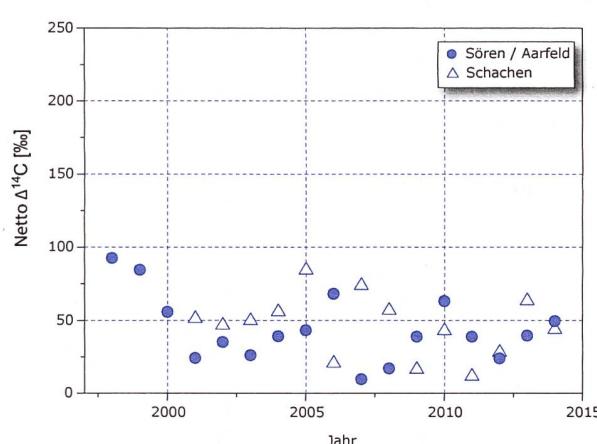
In Figur 5 sind die z. T. seit Messbeginn ermittelten höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Werte  $>100\text{‰}$  wurden in dieser Zeitspanne nie festgestellt. Höchstwerte resultierten jeweils in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer in derselben Windrichtung.



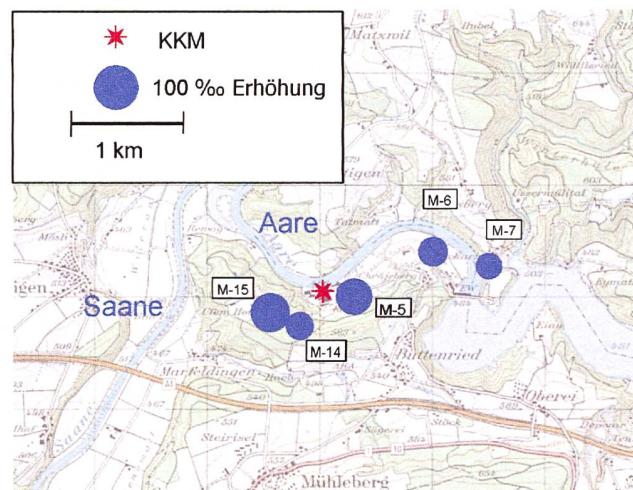
**Figur 3:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (△) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt. Standorte: siehe Figur 2.



**Figur 4:**  
Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Probenahme: 16.07.2014. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



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



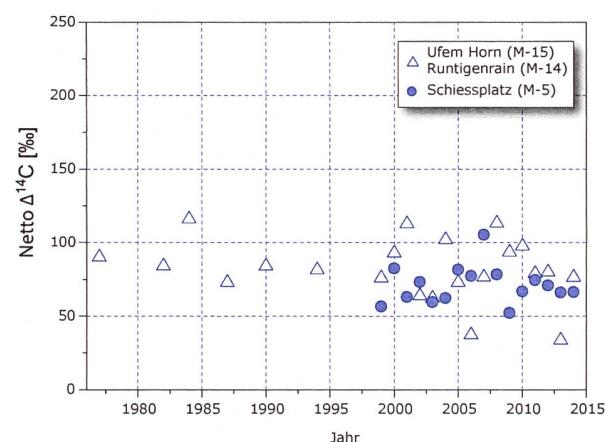
**Figur 6:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2014. Probenahme: 09.09.2014. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

## Kernkraftwerk Mühleberg

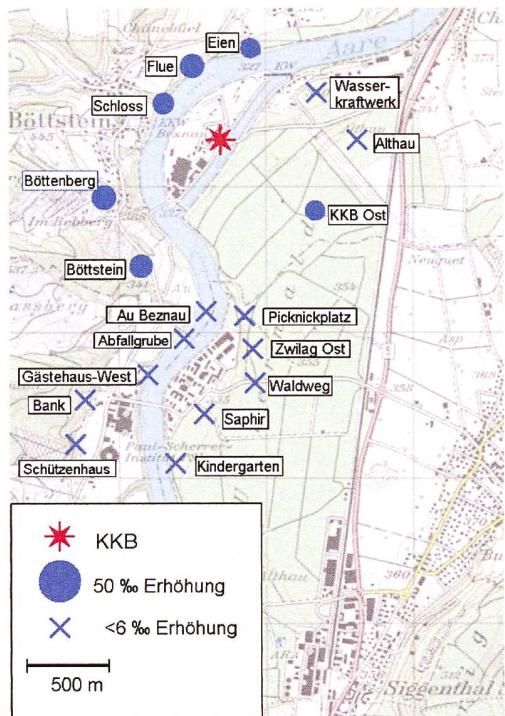
Die in Figur 6 mit Symbolen dargestellte Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) zeigt am Standort M-15 (Ufem Horn) mit 76‰ die grösste Erhöhung. Im Vorjahr lag der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert bei 66‰, und zwar am Standort M-5 (Schiessplatz).

Alle 2014 gemessenen Proben liegen unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

In Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2014 liegen nahe an den Mittelwerten der Vorjahre.

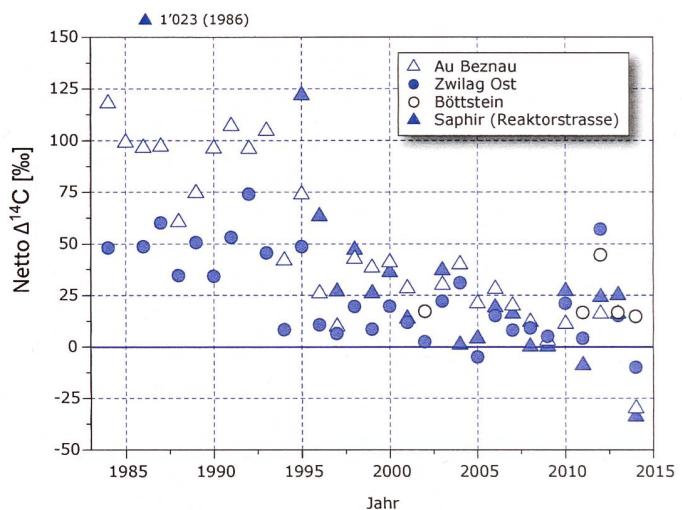


**Figur 7:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (•) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 6.



**Figur 8:**

Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahre 2014 (J. Eikenberg, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). 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 Kernkraftwerks Beznau seit Messbeginn Standorte: siehe Figur 8.

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

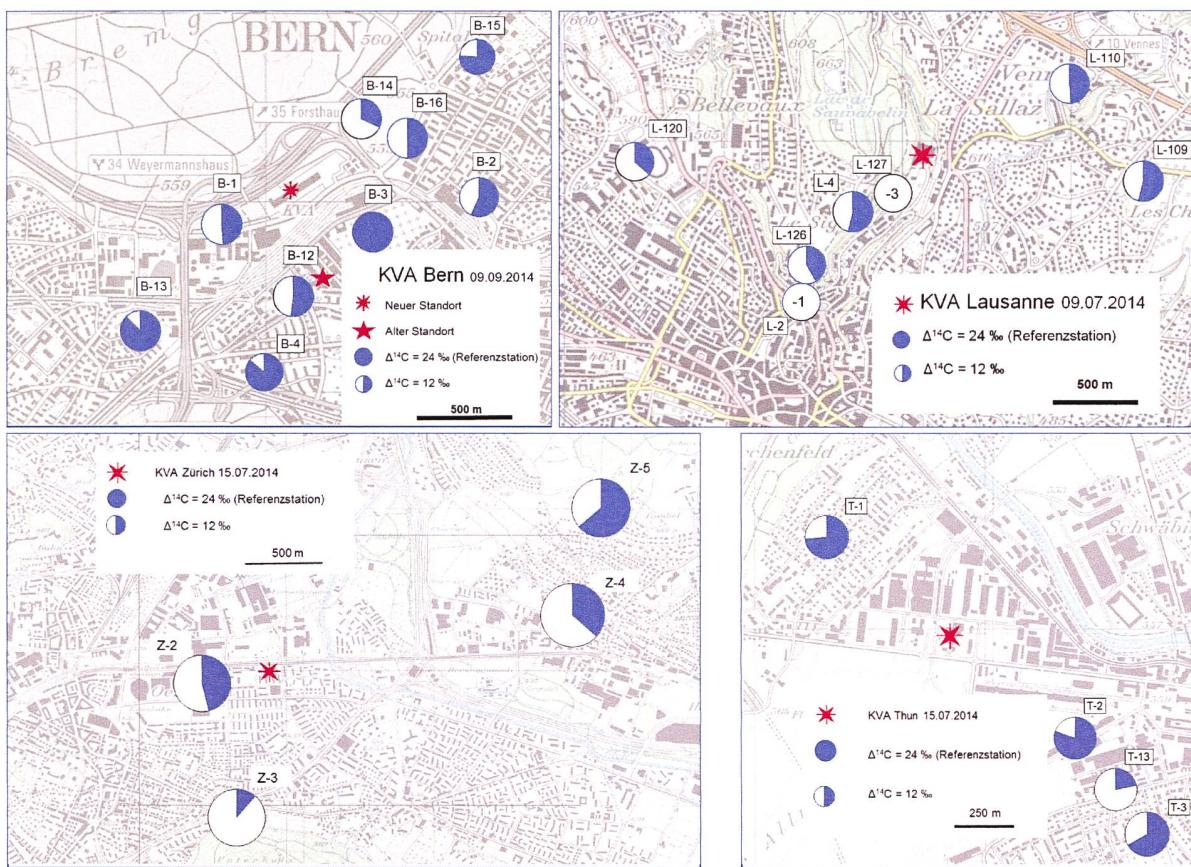
Die zu diesen Standorten gehörenden  $^{14}\text{C}$ -Messungen in den Blattproben wurden am PSI sowie an der Universität Bern durchgeführt. Die Messunsicherheit für die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte beträgt 6 %. Alle Werte in der Umgebung PSI/ZWILAG sind 2014 im Vergleich zum Vorjahr vermindert.

In Figur 9 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden. Im Jahr 2014 liegen die Werte dieser Standorte zum Teil deutlich unter dem Mittel der vergangenen Jahre. Alle Messungen ausser dem Standort Böttstein (Symbol O) erfolgten durch das PSI.

### Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

In Blättern von Bäumen, die im Umfeld von Kehrichtverbrennungsanlagen gesammelt wurden, konnte nur an einem Standort in Bern (B-2) eine erhöhte  $^{14}\text{C}$ -Konzentration festgestellt werden. Mit 36 % liegt dieser Wert um 12 % über dem Referenzwert für 2014. Alle anderen Messpunkte weisen Werte  $\leq 24\%$  auf. Dies als Folge der Abgase aus fossilen Brenn- und Treibstoffen (siehe «Süss»-Effekt, oben).

In Figur 10 sind die Messwerte als Kreise dargestellt. Die weisse Kreisfläche entspricht der Absenkung gegenüber der Referenzstation. In Lausanne wurden an den beiden Standorten L-2 und L-127 Werte gemessen, die den atmosphärischen Verhältnissen von 1890 resp. dem Standardwert vor den atmosphärischen Atombombentests (d. h. dem Jahr 1950) entsprechen. An den städtischen Probenahmepunkten im Umfeld der Kehrichtverbrennungsanlagen Zürich und Thun lagen sämtliche Messwerte unter denjenigen der Referenzstationen.

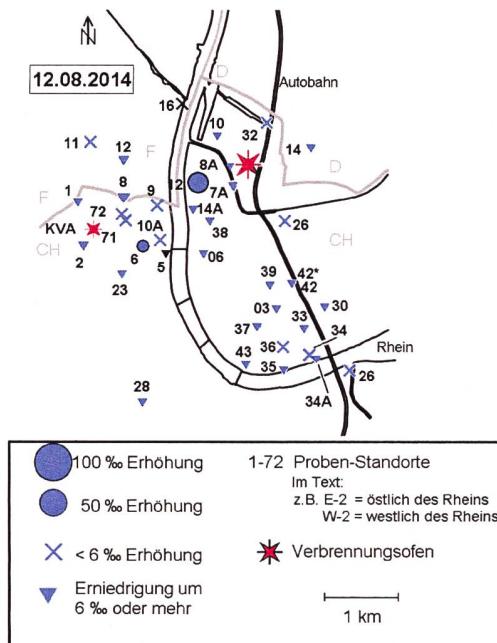


**Figur 10:**  
Δ¹⁴C-Messungen in der Umgebung der KVA Lausanne, Zürich, Bern und Thun.

### Messungen in der Region Basel-Stadt

Auch im Jahr 2014 fand die Hauptprobenahme in Basel im August statt. Im Westen des Stadtgebiets befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten diejenigen um das Areal der Firma Roche. Die höchsten am 12.08.2014 gemessenen Werte betrugen westlich des Rheins + 10 ‰ (Voltaplatz, Standort W-06) und östlich + 26 ‰ (Ackerstrasse, Standort E-12). Am Standort E-34 wurde im August erstmals eine Erhöhung um weniger als 6 ‰ gemessen. Die Messungen im Juli und Oktober lieferten für diesen Standort jedoch höhere Werte. Alle 2014 gemessenen Erhöhungen fallen im Vergleich zu der um den Faktor 1'000 grösseren natürlichen Strahlenbelastung kaum ins Gewicht.

Auf der französischen wie auch auf der deutschen Seite wurden im Raum Basel keine Erhöhungen registriert. Die Anzahl der Erniedrigungen um > 6 ‰ hat sich in den letzten 5 Jahren von 6 auf 24 erhöht (siehe Figur 11, Symbol ▼).

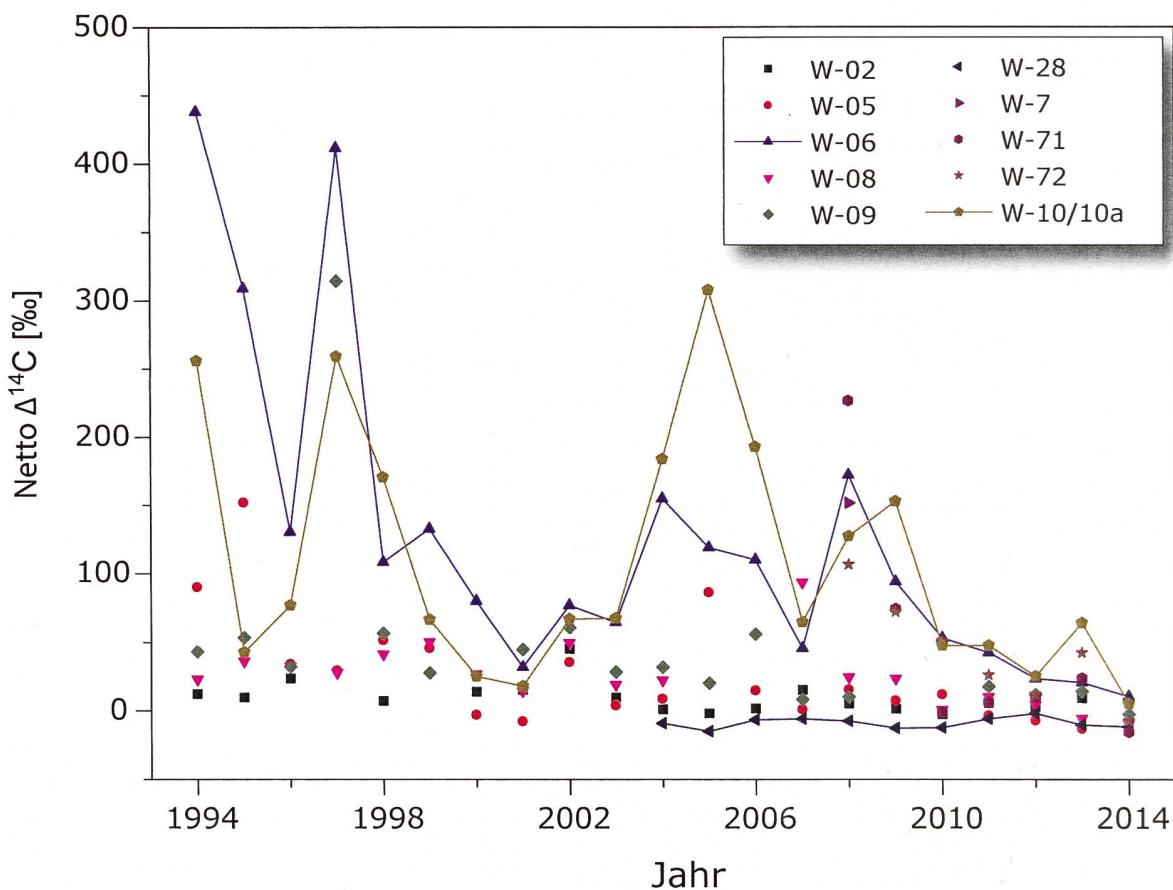


**Figur 11:**  
Netto Δ¹⁴C-Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

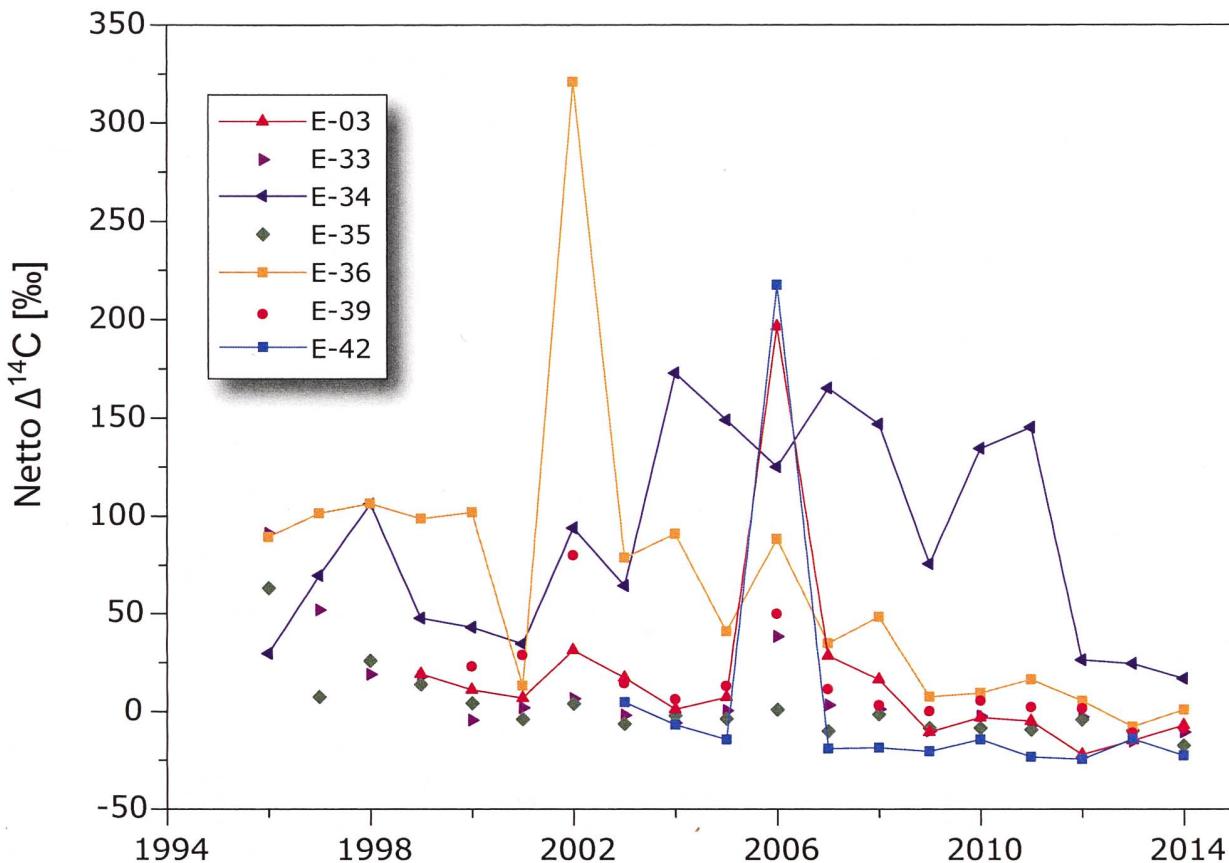
**Tabelle 2:**

Im Jahre 2014 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2013) am Standort Basel östlich (E-..) und westlich (W-..) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42\*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von  $^{14}\text{C}$ -Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	2014 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [%oo]	1994-2013 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [%oo]	2014 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [%oo]	2004 - 2013 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [%oo]
E-03	-7	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	-5	169 (1996)	-	-
E-34	2	106 (1998)	17	173 (2004)
E-42	-22	4 (2003)	-	-
E-42*	-19	218 (2006)	-	-
W-06	10	438 (1994)	3	172 (2008)
W-10A	-2	259 (1997)	5	308 (2005)
W-28	-15	-6 (2007)	-12	-13 (2013)
W-71	-15	227 (2008)	-1	75 (2009)
W-72	-8	107 (2008)	-3	115 (2010)

**Figur 12:**

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

**Figur 13:**

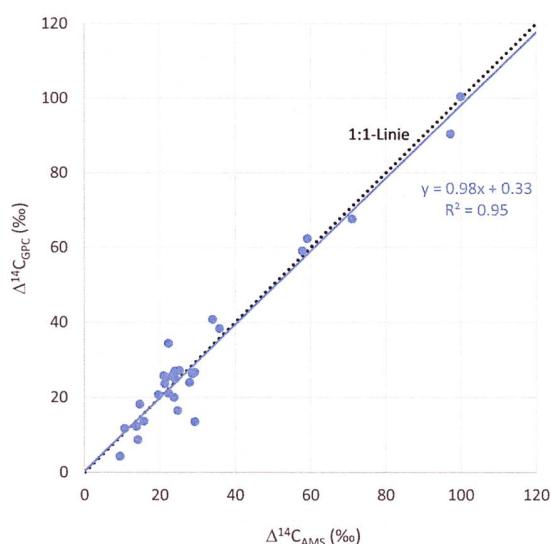
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.

Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Bei der Blattverkohlung allenfalls flüchtige Kohlenwasserstoffe werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewendet, wo Höchstwerte zu erwarten sind (siehe Tabelle 2).

Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Westlich des Rheins blieb der Höchstwert von Netto 438‰ (Standort W-06) aus dem Jahr 1994 die Ausnahme. Dasselbe gilt für Standort E-36 östlich des Rheins. Hier wurde der 2002 gemessene Höchstwert von 320‰ (E-36) in den letzten Jahren jeweils deutlich unterschritten.

### Vergleichsmessungen im Jahr 2014

Kürzlich wurde im Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern ein Beschleunigermassenspektrometer (accelerator mass spec-

**Figur 14:**

Vergleichsmessungen der beiden  $^{14}\text{C}$ -Verfahren an der Universität Bern im Jahr 2014 (30 Proben).

trometer, AMS) in Betrieb genommen, in dem das instabile Kohlenstoffisotop  $^{14}\text{C}$  von den stabilen Isotopen  $^{12}\text{C}$  und  $^{13}\text{C}$  getrennt wird. Der Aufbau des neuen Labors zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS (LARA) wurde wesentlich vom BAG mitfinanziert. Im Jahr 2014 wurden erstmals ausgewählte Blattproben sowohl durch das  $^{14}\text{C}$ -Labor am physikalischen Institut der Universität Bern als auch am LARA gemessen. Die beiden Labors verwenden völlig unterschiedliche Messverfahren. Am physikalischen Institut werden die Blattproben in Gramm-Mengen zunächst zu  $\text{CO}_2$  oxidiert und dann zu  $\text{CH}_4$  reduziert. Anschliessend wird der Zerfall des  $^{14}\text{CH}_4$  in Gasproportionalzählrohren (gas proportional counters, GPC) im Tieflabor des Instituts 70 Stunden lang gemessen, um den  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Blattproben zu bestimmen. Am LARA werden die Blattproben zunächst in Milligramm-Mengen verbrannt, graphitisiert und anschliessend im AMS gemessen.

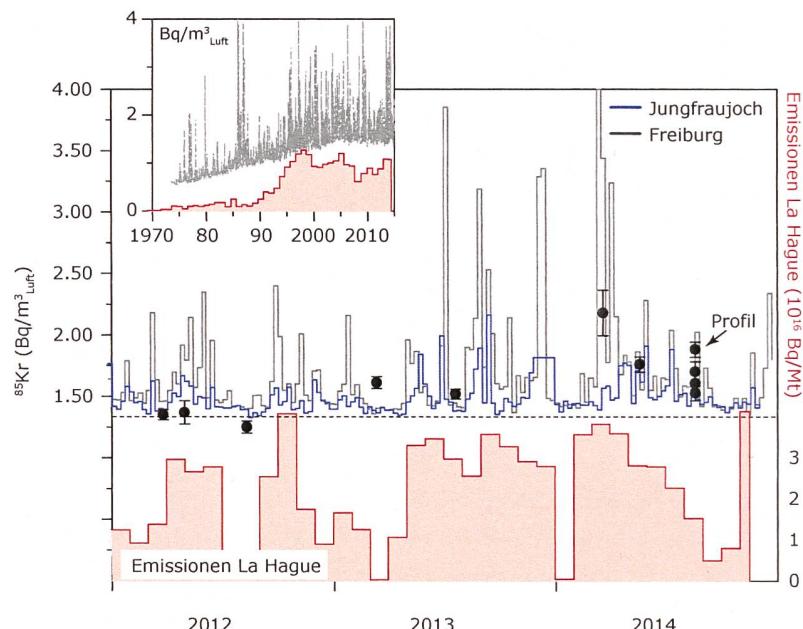
Bis auf wenige Ausreisser, die vor allem bei einigen tieferen Werten auftraten, konnten auf Anhieb gute Übereinstimmungen zwischen den Messergebnissen der beiden Institute erzielt werden (Figur 14). Die mittlere Abweichung der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen lag lediglich bei 0.4 ‰, was deutlich tiefer ist als die typische Messunsicherheit, die für beide Verfahren bei 2.0-2.5 ‰ liegt. Die Ursachen der Ausreisser werden in Nachmessungen analysiert, um sie für die kommenden Jahre zu minimieren oder zu beseitigen.

## Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ ) und Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )

Die beiden Edelgas-Radionuklide  $^{37}\text{Ar}$  und  $^{85}\text{Kr}$  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 10.76 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von  $^{85}\text{Kr}$  auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von  $^{37}\text{Ar}$  sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

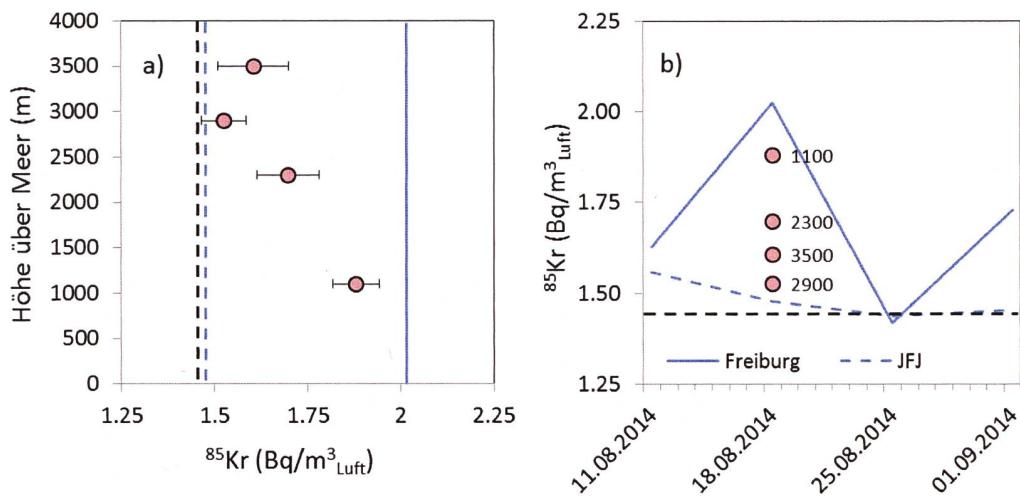
## Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )

Das radioaktive Edelgasisotop  $^{85}\text{Kr}$  ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von  $10.76 \pm 0.02$  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  $9 \cdot 10^{11} \text{ Bq}$  [1] oder einer spezifischen Aktivi-



**Figur 15:**

Atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$  Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3'500 m.ü.M.), Freiburg i. Br. (276 m.ü.M.) in der bodennahen Luft sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Universität Bern) über die letzten drei Jahre. Kleines Bild: Aktivitätsverlauf bei der Station Freiburg i. Br. über die letzten 39 Jahre; die Messungen der Proben aus Freiburg und vom Jungfraujoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg i. Br. durchgeführt. Zum Vergleich ist der Verlauf der Emissionsraten der Aufbereitungsanlage von La Hague dargestellt (rote Balken). Am 18.8.2014 wurde von der Universität Bern ein vertikales Luftprofil beprobt (Profil), das in Fig. 16 dargestellt ist.

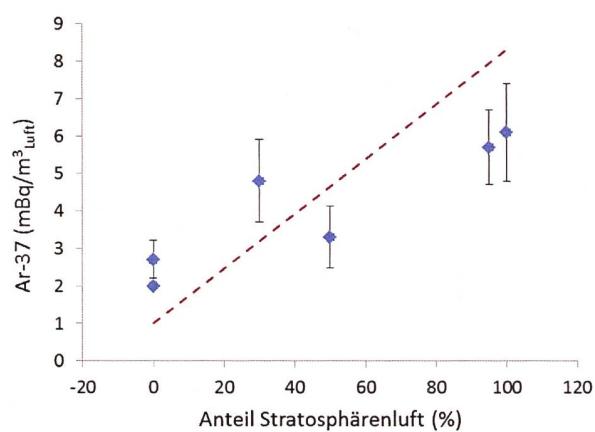
**Figur 16:**

a) Vertikales  $^{85}\text{Kr}$  Höhenprofil über Spiez am 18.8.2014.  
 b) Vergleich mit Wochenmittelwerten von Freiburg i.Br. (blaue Linie) und dem Jungfraujoch (blaue gestrichelte Linie). Die gestrichelte schwarze Linie gibt jeweils die Basisaktivitätskonzentration von ca.  $1.4 \text{ Bq}/\text{m}^3$  an.

tätskonzentration von  $\sim 0.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Im Gegensatz dazu stammt das derzeitige  $^{85}\text{Kr}$  in der Atmosphäre hauptsächlich aus der Wiederaufarbeitung von Brennstäben und wird lokal und zeitlich gepulst freigesetzt. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Figur 15) [2]. Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6.4 % ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von  $^{85}\text{Kr}$  übertroffen, was zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 15, kleines Bild). In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von  $1.4\text{--}1.5 \text{ Bq}/\text{m}^3$  in Mitteleuropa zu beobachten (gestrichelte Linie in Figur 15). Seit dem Jahre 2013 liegen die Gesamtemissionen von La Hague wieder leicht höher im Vergleich zu den Vorjahren [3]. Amplitude und Frequenz von Emissionswolken von La Hague (und Sellafield) nehmen mit geographischer Distanz und Höhenlage ab. Dies wird auch deutlich beim Vergleich der Daten der Stationen vom Jungfraujoch und Freiburg i.Br. (Figur 15). 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 gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa  $3.2 \text{ mSv}$  verursacht durch natürlich vorkommendes Radon. Das für die Messung der  $^{85}\text{Kr}$  Wochenproben zuständige Edelgaslabor des deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg i.Br. ist seit 2014 akkreditiert nach DIN EN ISO/IEC 17025.

Stichproben gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern bestätigen den Aktivitätsbereich, der in Freiburg oder auf dem Jungfraujoch beobachtet wird. Die Streuung kommt durch die

geographische Distanz aber vor allem durch den kürzeren Sammelzeitraum zustande. Die BfS-Messungen entsprechen Wochenmittelwerten. Am 18.8.2014 wurde mittels einem Kleinflugzeug ein vertikales Luftprofil über Spiez vermessen (ca. 27 km von der Sammelstation Jungfraujoch entfernt, welche sich auf 3'500 m.ü.M. befindet). Innerhalb von ca. 2 Stunden wurden 4 Luftproben in Höhen von 1'100 m.ü.M. bis 3'500 m.ü.M. genommen (Fig. 16a). Zum Vergleich sind auch die diesem Zeitraum entsprechenden Wochenmittelwerte von Freiburg i. Br. und dem Jungfraujoch dargestellt (Fig. 16b). Die Werte des Luftprofiles liegen dazwischen mit geringeren Aktivitäten in grosser Höhe in Übereinstimmung mit der Erwartung, wonach die tieferen Luftsichten verstärkt von Abluftfahnen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen beeinflusst sind.

**Figur 17:**

Gemessene  $^{37}\text{Ar}$  Aktivitäten in Luftproben in Abhängigkeit des Anteils stratosphärischer Höhenluft. Die gestrichelte Linie entspricht der Erwartung gemäss Literaturwerten [5].

Mit Hilfe der  $^{85}\text{Kr}$  Messreihen des BfS wird ein derzeitiges atmosphärisches Gesamtinventar von etwa  $5 \cdot 10^{18} \text{ Bq } ^{85}\text{Kr}$  ermittelt, was etwa 7 Grössenordnungen über dem natürlichen Niveau liegt.

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

$^{37}\text{Ar}$  wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion  $^{40}\text{Ar}(n,4n)^{37}\text{Ar}$  produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposphärischen Gleichgewichtsaktivität liegen bei ca.  $0.5\text{--}2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$  [5], in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 6 Jahre gemessenen Basiswerten. Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Einflüsse stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre, welche vor allem im Frühjahr zu erwarten sind, können zu leicht erhöhten  $^{37}\text{Ar}$ -Aktivitäten bis  $8\text{--}10 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$  führen [5]. Diese Abschätzungen konnten durch Luftproben, die im Rahmen des CARIBIC Projektes (**C**ivil **A**ircraft for the **R**egular **I**nvestigation of the atmosphere **B**ased on an **I**nstrument **C**ontainer [6]) genommen wurden, bestätigt werden. Dazu wurde ein Lufthansa Airbus A340-600 mit einem Messcontainer ausgestattet, der Luftproben bis in grosse Höhen ermöglicht. Die gemessenen  $^{37}\text{Ar}$  Werte nehmen mit zunehmendem Anteil von Stratosphärenluft bis auf ca.  $6\text{--}8 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$  zu (Fig. 17).

### Referenz:

- [1] Schröder, K.J.P. and Roether, W., The releases of krypton-85 and tritium to the environment and tritium to krypton-85 ratios as source indicators, International Atomic Energy Agency, Vienna 1975, IAEA-SM-191/30.
- [2] Schlosser, C., Heidmann, V., Konrad, K. and Schmid, S., Krypton-85 and Radioxenons: Environmental Tracers and Indicators for Nuclear Activities, Talk given at the DPG Spring Meeting 2015, March 26, 2015, Heidelberg, Session: Applied Noble Gas Physics.
- [3] <http://www.areva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-areva-la-hague-plant.htm>
- [4] ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60, ICRP Publication 119, Ann. ICRP 41 (Suppl.), Table C.1., p. 61.
- [5] Lal, D., Peters, B., Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth, Springer-Verlag, 1967, Vol. 46.
- [6] Wandel, A., Waschitschek, K., Wiedensohler, A., Xueref-Remy, I., Zahn, A., Zech, U. and Ziereis, H. (2007), Civil Aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container: The new CARIBIC system. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 4953–4976.

## 7.2

# Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement en Suisse en 2014

**P. Froidevaux, P.-A. Pittet, M. Straub, F. Barraud, M. Pedro, F. Bochud**

Institut de Radiophysique, CHUV, Rue du Grand Pré 1, 1007 Lausanne

## Résumé

Les mesures de plutonium et d'américium dans différents compartiments de l'environnement en Suisse en 2014 ont permis de mettre en évidence des quantités inhabituelles de plutonium dans les milieux aquatiques. Ces contributions sont très faibles mais mesurables, notamment par comparaison avec les rapports isotopiques des retombées des essais nucléaires des années soixante. Les rapports isotopiques correspondant aux retombées des années soixante sont toutefois conservés dans les échantillons de sol et les activités des filtres à air sont très faibles, ce qui montre qu'il n'y a pas eu de contribution atmosphérique supplémentaire due aux centrales nucléaires ou à d'autres apports atmosphériques.

## Introduction

Le plutonium et l'américium sont des radioéléments de préoccupation majeure car ils sont tous les deux des émetteurs alpha dont la toxicité est avérée. La majeure partie de l'inventaire du plutonium et de l'américium dans l'environnement en Suisse provient des retombées des essais nucléaires des années soixante. Toutefois, l'utilisation de la fission nucléaire pour produire de l'énergie augmente constamment le stock mondial de plutonium et d'américium, rendant nécessaire une gestion rigoureuse de ces déchets.

Le plutonium est présent majoritairement sous forme de Pu(IV) dans notre environnement. Cette forme de plutonium est relativement peu soluble et s'adsorbe fortement sur les particules de sol. Elle est considérée peu mobile dans l'environnement. Toutefois des études récentes ont montré une mobilité plus importante qu'attendu pour ce radioélément, notamment associé à la fraction des colloïdes de l'eau [1,2]. L'américium est présent sous forme Am(III) et sa chimie dans l'environnement ressemble beaucoup à celle des lanthanides(III).

La toxicité pour la biosphère de ces radioéléments est fortement dirigée par leur biodisponibilité, qui est définie comme la fraction libre ou labile des complexes entre ces actinides et la matière organique en solution dans l'eau. Cusnir et al. [3] ont utilisé la technique de diffusion dans des gels (DGT) pour déterminer la biodisponibilité du plutonium dans les aquifères des rivières Venoge et Noiraigue, dans le Jura suisse. Les résultats montrent que le plutonium est totalement bio-disponible dans l'eau de la Venoge et que les interactions entre la matière organique de la rivière Noiraigue et le plutonium sont réversibles, ce qui rend le plutonium particulièrement mobile et bio-disponible dans ces conditions.

Dans ce travail, des échantillons de sol et de filtres à air de grands volumes ont été analysés pour leur activité en plutonium et en américium. Dans ce contexte, les environs des centrales nucléaires suisses ont été particulièrement choisis comme sites de prélèvement, parallèlement à des sites de référence peu soumis à l'influence des centrales nucléaires. De plus, le milieu aquatique (sédiments, plantes aquatiques, eaux de rivière et poissons) en aval des quatre centrales nucléaires suisses a également été étudié en détail, afin de caractériser l'effet des rejets des centrales nucléaires sur l'environnement.

### Méthode de séparation chimique

Les méthodes d'analyses du plutonium et de l'américium dans les différents compartiments de l'environnement sont décrites en détail dans la référence [4].

### Résultats et discussion

Les principaux résultats sont présentés dans les différents tableaux ci-dessous. Les résultats des mesures de plutonium et d'américium dans les échantillons de sol, principal réceptacle des dépositions atmosphériques, indiquent que la déposition

provient des essais d'armes atomiques des années soixante, caractérisée en 2014 par un rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  proche de 0.03 et un rapport isotopique  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  proche de 0.4; les rapports obtenus sont respectivement de  $0.035 \pm 0.013$  et de  $0.51 \pm 0.19$  (Tableau 1). Les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  ne dépassent pas 0.230 Bq/kg de masse sèche, ce qui est faible et comparable aux activités obtenues les années précédentes pour des échantillons similaires. Les activités en  $^{241}\text{Am}$  représentent environ la moitié de celles en plutonium. Les activités des filtres à air de grands volumes, collectés sur l'année puis analysés ensemble, à l'exception du site de Liebefeld pour lequel les analyses ont été faites par semestre, confirment qu'il n'y a pas eu d'apport atmosphérique significatif en Suisse pour ces deux radioéléments; les activités sont restées inférieures à 2.5 nBq/m<sup>3</sup> et difficilement mesurables au-dessus de la limite de détection ( $\text{LD}=0.2 \text{ nBq/m}^3$ ). Certaines mesures sont ainsi entachées d'une incertitude supérieure à 50%. Apparemment, les activités sont plus élevées au deuxième semestre sur le site de Liebefeld, ce qui est indicatif d'une période de prélèvement plus sèche. En effet, en absence d'une composante atmosphérique, les activités mesurées sont principalement dues à la re-suspension dans l'air de particules de sol, favorisée en période sèche.

**Tableau 1:**

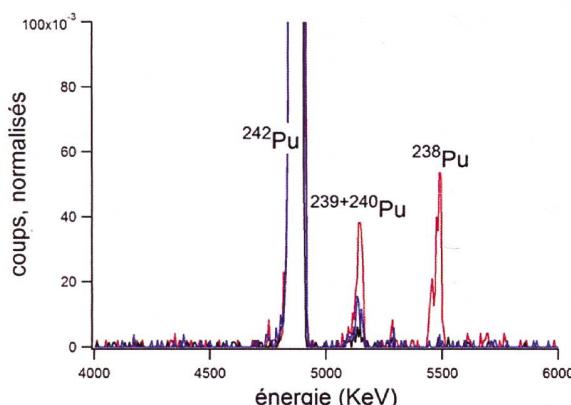
Activités (Bq/kg de matière sèche) en plutonium et américium dans les échantillons collectés sur le territoire suisse en 2014 (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg MS	$^{238}\text{Pu}$ Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}$ Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Arenenberg	$0.114 \pm 0.006$	$0.0039 \pm 0.0009$	$0.056 \pm 0.005$	$0.49 \pm 0.05$	$0.034 \pm 0.008$
Beznau	$0.100 \pm 0.005$	$0.0032 \pm 0.0008$	$0.036 \pm 0.003$	$0.36 \pm 0.04$	$0.032 \pm 0.008$
Cadenazzo	$0.081 \pm 0.005$	$0.0041 \pm 0.0009$	$0.029 \pm 0.003$	$0.35 \pm 0.04$	$0.051 \pm 0.011$
CERN (Genève)	$0.104 \pm 0.006$	$0.0053 \pm 0.0011$	$0.053 \pm 0.003$	$0.51 \pm 0.04$	$0.051 \pm 0.011$
Gösgen	$0.225 \pm 0.013$	$0.0064 \pm 0.0018$	$0.082 \pm 0.014$	$0.36 \pm 0.07$	$0.028 \pm 0.008$
	$0.182 \pm 0.008$	$0.0037 \pm 0.0010$	$0.099 \pm 0.006$	$0.54 \pm 0.04$	$0.021 \pm 0.005$
Güttingen	$0.140 \pm 0.008$	$0.0035 \pm 0.0011$	$0.111 \pm 0.009$	$0.79 \pm 0.08$	$0.025 \pm 0.008$
	$0.097 \pm 0.006$	$0.0020 \pm 0.0008$	$0.056 \pm 0.003$	$0.58 \pm 0.05$	$0.021 \pm 0.008$
Leibstadt	$0.151 \pm 0.006$	$0.0026 \pm 0.0007$	$0.063 \pm 0.004$	$0.41 \pm 0.03$	$0.018 \pm 0.005$
Mühleberg	$0.177 \pm 0.011$	$0.0073 \pm 0.0021$	$0.064 \pm 0.011$	$0.36 \pm 0.07$	$0.041 \pm 0.012$
	$0.123 \pm 0.006$	$0.0033 \pm 0.0009$	$0.050 \pm 0.003$	$0.40 \pm 0.03$	$0.027 \pm 0.007$
Posieux	$0.215 \pm 0.011$	$0.0096 \pm 0.0021$	$0.056 \pm 0.006$	$0.27 \pm 0.03$	$0.044 \pm 0.010$
Villigen (PSI)	$0.062 \pm 0.006$	$0.0042 \pm 0.0014$	$0.060 \pm 0.013$	$0.96 \pm 0.22$	$0.066 \pm 0.023$
	$0.042 \pm 0.003$	$0.0016 \pm 0.0006$	$0.027 \pm 0.002$	$0.65 \pm 0.07$	$0.037 \pm 0.014$
Würenlingen (ZWILAG)	$0.138 \pm 0.009$	$0.0061 \pm 0.0017$	$0.064 \pm 0.009$	$0.46 \pm 0.07$	$0.044 \pm 0.012$
	$0.127 \pm 0.007$	$0.0043 \pm 0.0011$	$0.064 \pm 0.004$	$0.50 \pm 0.04$	$0.034 \pm 0.009$
<b>moyenne</b>					<b><math>0.51 \pm 0.19</math></b>
<b><math>0.035 \pm 0.013</math></b>					

**Tableau 2:**

Activités ( $\text{nBq/m}^3$ ) en plutonium et américium des filtres à air de grands volumes collectés en 2014 en Suisse. Les filtres hebdomadaires sont rassemblés pour former un échantillon annuel pour les mesures de plutonium et d'américium, ou, dans le cas de Liebefeld, un échantillon semestriel (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ nBq/m <sup>3</sup>	$^{238}\text{Pu}$ nBq/m <sup>3</sup>	$^{241}\text{Am}$ nBq/m <sup>3</sup>	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Leibstadt	$1.4 \pm 0.7$	< 0.2	< 0.2	< LD	< LD
Mühleberg	$1.4 \pm 0.4$	$0.20 \pm 0.05$	$0.29 \pm 0.16$	$0.21 \pm 0.13$	$0.14 \pm 0.05$
Posieux	$0.8 \pm 0.1$	< 0.2	$1.19 \pm 0.07$	$0.51 \pm 0.05$	< LD
	$0.9 \pm 0.1$	$0.10 \pm 0.03$	$0.58 \pm 0.04$	$0.73 \pm 0.11$	$0.11 \pm 0.03$
Liebefeld (semestre 1)	$0.74 \pm 0.08$	< 0.2	$0.29 \pm 0.03$	$0.39 \pm 0.05$	< LD
	$0.66 \pm 0.09$	$0.08 \pm 0.02$	$0.41 \pm 0.06$	$0.61 \pm 0.12$	$0.12 \pm 0.04$
Liebefeld (semestre 2)	$1.54 \pm 0.13$	< 0.2	$1.14 \pm 0.07$	$0.74 \pm 0.08$	< LD
	$1.49 \pm 0.17$	$0.09 \pm 0.02$	$1.01 \pm 0.14$	$0.67 \pm 0.12$	$0.059 \pm 0.016$
Klingnau	$2.34 \pm 0.16$	$0.065 \pm 0.02$	-	-	$0.028 \pm 0.011$
	$2.53 \pm 0.27$	$0.12 \pm 0.03$	$1.07 \pm 0.12$	$0.42 \pm 0.07$	$0.049 \pm 0.011$



**Figure 1:**  
Spectres alpha du plutonium dans les eaux de la retenue de Hagneck (Aar, Mühleberg).  
en noir: prélèvement sur le mois de février;  
en rouge prélèvement sur le mois de mars;  
en bleu : prélèvement sur le mois d'avril.  
Les coups sont normalisés à l'activité du traceur ( $^{242}\text{Pu}$ ).

Lors de l'analyse des eaux et des échantillons aquatiques, les rapports isotopiques entre le plutonium et l'américium peuvent varier de manière importante car la chimie aquatique du plutonium et de l'américium n'est pas identique. Le plutonium est très sensible aux conditions oxydo-réductrices, avec des espèces pouvant varier de +3 à +6, alors que l'américium se retrouve toujours dans son degré d'oxydation +3 et suit une chimie proche de celle des lanthanides(III). Le terme source du plutonium est ainsi très important pour déterminer la solubilité du plutonium dans l'environnement. Les résultats des analyses de prélèvement d'eau en 2014 en aval des centrales nucléaires suisses ont montré des résultats inhabituels pour les prélèvements du mois de mars, pour lesquels un excès de  $^{238}\text{Pu}$  a été observé à Hagneck (aval de Mühleberg, Figure 1), à Klingnau (aval de Gösgen et Beznau) et Pratteln

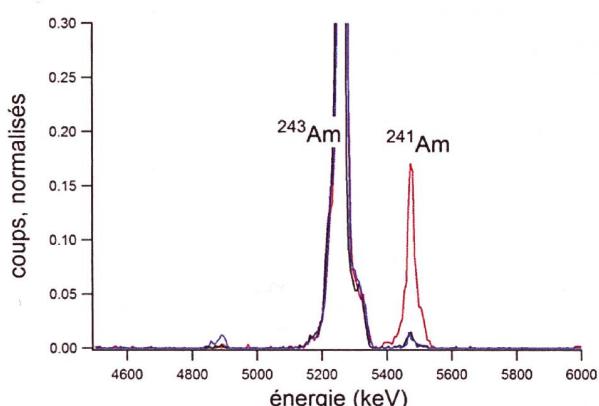
(aval de Leibstadt). Cet excès se reflète dans les rapports isotopiques supérieurs à l'unité, mais l'activité mesurée ne constitue que quelques mBq de  $^{238}\text{Pu}$  par  $\text{m}^3$  d'eau (Tableau 3). Les rapports isotopiques  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  de combustible nucléaire civile usagé sont compris normalement entre 1 et 1.5, des valeurs assez proches de celles observées dans ce travail. Un excès significatif de  $^{241}\text{Am}$  a également été observé à Pratteln durant la même période de prélèvement (Figure 2). Ces activités inhabituelles en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  dans les prélèvements de mars n'ont pas été observées dans les prélèvements de février et avril. La traçabilité des échantillons entre le lieu de prélèvement et d'analyse n'a pas permis de considérer l'hypothèse d'une contamination des échantillons dans les différences laboratoires, ceux-ci n'ayant pas manipulé de plutonium à des activités significatives au moment des analyses. De plus, des analyses de filtres à air effectués parallèlement n'ont pas montré de contamination en plutonium ou américium. Néanmoins, il est difficile d'attribuer ces activités inhabituelles aux centrales nucléaires car l'augmentation d'activité en  $^{238}\text{Pu}$  est similaire sur les trois sites de prélèvement ; la dilution importante de l'eau entre ces trois sites permet d'exclure le rôle d'une seule centrale et seul un rejet simultané effectué en mars par les centrales permettrait de concilier les prélèvements et les mesures, ce qui est peu probable.

Les plantes aquatiques peuvent incorporer les radioéléments par absorption racinaire, par adsorption des particules et colloïdes aquatiques sur la surface des feuilles ou encore par un mécanisme d'absorption intracellulaire par les feuillages, lié à la biodisponibilité des radioéléments dans l'eau. Lors d'une étude sur la source de la rivière Venoge, Froidevaux et al. [2] ont montré que le plutonium était

**Tableau 3:**

Activités ( $\text{mBq}/\text{m}^3$ ) en plutonium et amérium des eaux collectées en Suisse en 2014  
(incertitudes à 95% / LD=0.1  $\text{mBq}/\text{m}^3$ ).

Type	Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ $\text{mBq}/\text{m}^3$	$^{238}\text{Pu}$ $\text{mBq}/\text{m}^3$	$^{241}\text{Am}$ $\text{mBq}/\text{m}^3$	$^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$
Eau de pluie	Mühleberg	$0.78 \pm 0.09$	< LD	$0.17 \pm 0.03$	$0.22 \pm 0.05$	< LD
	Leibstadt	$0.79 \pm 0.14$	< LD	$0.21 \pm 0.04$	$0.26 \pm 0.07$	< LD
	Posieux	$0.67 \pm 0.07$	< LD	$0.31 \pm 0.04$	$0.48 \pm 0.08$	< LD
Eau de rivière	Rhône (GE)	$1.8 \pm 0.3$	< LD	$0.64 \pm 0.15$	$0.36 \pm 0.10$	< LD
	Aar (Hagneck) février	$4.2 \pm 0.8$	$0.5 \pm 0.3$	$3.1 \pm 0.6$	$0.73 \pm 0.20$	$0.11 \pm 0.07$
	Aar (Hagneck) mars	$9.0 \pm 0.9$	$11.1 \pm 1.0$	$2.1 \pm 0.3$	$0.24 \pm 0.04$	$1.2 \pm 0.2$
	Aar (Hagneck) avril	$4.9 \pm 0.8$	$0.4 \pm 0.2$	$2.0 \pm 0.4$	$0.41 \pm 0.10$	$0.09 \pm 0.05$
	Aar (Klingnau) février	$4.2 \pm 0.9$	$0.8 \pm 0.4$	$1.3 \pm 0.4$	$0.30 \pm 0.11$	$0.18 \pm 0.10$
	Aar (Klingnau) mars	$4.7 \pm 0.9$	$12.0 \pm 1.2$	$3.5 \pm 0.6$	$0.75 \pm 0.19$	$2.6 \pm 0.6$
	Aar (Klingnau) avril	$3.9 \pm 0.2$	< LD	$4.1 \pm 0.6$	$0.51 \pm 0.26$	< LD
	Rhin (Pratteln) février	$3.6 \pm 0.8$	$1.2 \pm 0.5$	$3.3 \pm 0.6$	$0.93 \pm 0.27$	$0.33 \pm 0.15$
	Rhin (Pratteln) mars	$8.3 \pm 0.9$	$10.1 \pm 1.0$	$83.5 \pm 3.2$	$10.1 \pm 1.2$	$1.2 \pm 0.2$
	Rhin (Pratteln) avril	$5.1 \pm 1.0$	$1.4 \pm 0.5$	$0.3 \pm 0.2$	$0.05 \pm 0.03$	$0.27 \pm 0.11$



**Figure 2:**  
Spectres alpha de l'américium dans les eaux de Pratteln (Rhin, Leibstadt).  
en noir: prélèvement sur le mois de février;  
en rouge prélèvement sur le mois de mars;  
en bleu: prélèvement sur le mois d'avril.  
Les coups sont normalisés à l'activité du traceur ( $^{243}\text{Am}$ ).

présent dans la fraction intracellulaire des mousses aquatiques, laissant entrevoir une grande biodisponibilité du plutonium dans les conditions environnementales de la source. Ces résultats ont ensuite été confirmés par Cusnir et al. [3], qui ont utilisé la diffusion dans des gels pour mettre en évidence la fraction bio-disponible du plutonium. Dans la présente étude, les plantes aquatiques montrent

des activités significatives en plutonium et amérium, ce qui laisse supposer que les plantes aquatiques sont de bons indicateurs de la contamination au plutonium et à l'américium des milieux aquatiques. Les sédiments montrent des activités inférieures aux sols dont ils sont issus (voir Tableau 1) car ils acquièrent une composante organique en provenance de l'eau en formant des particules et colloïdes argilo-humiques. De plus, l'échange de cations avec la matière organique de l'eau peut également réduire l'activité de la phase sédimentaire. Les activités sont comparables entre les différents sites et les différentes périodes de prélèvement et sont comprises dans un intervalle de 24 à 65  $\text{mBq}/\text{kg}$ . Le rapport isotopique moyen  $^{241}\text{Am} / ^{238+239}\text{Pu}$  est de  $0.49 \pm 0.18$  et indique une composante majeure des essais nucléaires à l'activité globale. L'activité en  $^{238}\text{Pu}$  des sédiments est souvent inférieure à la limite de détection. Enfin, la chair des poissons ne contient que quelques  $\text{mBq}$  de plutonium et d'américium par kg de masse sèche. Contrairement aux données de la littérature, il ne semble pas y avoir d'accumulation préférentielle d'américium par rapport au plutonium dans les poissons, les rapports isotopiques  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  restant proches de l'unité (0.4 - 1.33).

**Tableau 4:**

Activités (mBq/kg Matières Séches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2014 en aval des centrales nucléaires suisses (incertitudes à 95%, LD= 1 mBq/kg).

Type	Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ mBq/kg MS	$^{238}\text{Pu}$ mBq/kg MS	$^{241}\text{Am}$ mBq/kg MS	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Plantes aquatiques	Aar (Hagneck)	125 ± 13	41 ± 7	42.2 ± 5.7	0.34 ± 0.06	0.33 ± 0.07
	Aar (Klingnau)	31.6 ± 3.1	2.0 ± 0.8	20.7 ± 2.4	0.65 ± 0.10	0.065 ± 0.025
	Rhin (Pratteln)	43.0 ± 5.2	3.1 ± 1.4	24.9 ± 3.8	0.58 ± 0.11	0.071 ± 0.033
Sédiments	Aar (Hagneck), février	50.9 ± 4.2	< LD	45.9 ± 5.2	0.90 ± 0.13	< LD
	Aar (Hagneck), mars	28.9 ± 3.7	6.2 ± 1.7	14.9 ± 2.3	0.52 ± 0.10	0.21 ± 0.06
	Aar (Hagneck), avril	24.2 ± 2.4	< LD	13.4 ± 1.7	0.55 ± 0.09	< LD
	Aar (Klingnau), février	49.0 ± 3.6	2.2 ± 0.07	22.2 ± 2.5	0.45 ± 0.06	0.044 ± 0.015
	Aar (Klingnau), mars	42.9 ± 3.6	4.4 ± 1.1	23.0 ± 2.1	0.53 ± 0.06	0.10 ± 0.03
	Aar (Klingnau), avril	55.9 ± 4.1	1.9 ± 0.007	28.6 ± 2.9	0.48 ± 0.06	0.032 ± 0.012
	Rhin (Pratteln), février	51.1 ± 3.6	< LD	16.2 ± 2.1	0.32 ± 0.05	< LD
	Rhin (Pratteln), mars	37.8 ± 3.2	1.3 ± 0.6	16.7 ± 1.9	0.44 ± 0.06	0.034 ± 0.015
	Rhin (Pratteln), avril	65.4 ± 4.3	< LD	17.2 ± 2.0	0.26 ± 0.04	< LD
Poissons	Aar (Mühleberg), août 2013	8.6 ± 1.5	2.0 ± 0.7	8.0 ± 0.9	0.93 ± 0.19	0.23 ± 0.09
	Rhin (Leibstadt), mai 2014	2.2 ± 0.4	< LD	1.4 ± 0.3	0.64 ± 0.18	< LD
	Aar (Schönenwerd), septembre 2014	2.4 ± 0.6	2.3 ± 0.6	3.3 ± 0.6	1.33 ± 0.39	0.9 ± 0.3
	Aar (Beznau), août 2014	8.4 ± 0.1	9.4 ± 0.2	3.4 ± 0.6	0.40 ± 0.07	1.12 ± 0.03
	Aar (Mühleberg), décembre 2014	3.8 ± 1.2	< LD	2.6 ± 0.7	0.69 ± 0.27	< LD
	Rhin (Leibstadt), octobre 2014	1.1 ± 0.5	< LD	< LD	< LD	< LD

## Conclusions

Les analyses de plutonium et d'américium réalisées dans l'environnement en Suisse ont permis de mettre en évidence, à très bas niveau d'activité, des valeurs inhabituelles de plutonium dans les prélèvements d'eau du mois de mars en aval des centrales nucléaires. Aucune contribution aérienne, mesurable par les filtres à air à haut débit ou par la déposition sur le sol n'a été observée. Il est ainsi important de continuer à renforcer la surveillance des milieux aquatiques, car, en fonctionnement normal, c'est par les rejets aquatiques que les centrales nucléaires contribuent le plus à l'augmentation de l'inventaire des radioéléments artificiels dans l'environnement.

## Remerciements

Nous remercions l'OFSP, les laboratoires cantonaux et l'EAWAG pour le prélèvement des échantillons.

## Références

- [1] Kersting et al. Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site. Nature 1999, 397 (6714), 56–59.
- [2] Froidevaux et al. Long term and long range migration of radioactive fallout in a karst system. Env. Sci. Technol. 2010, 44, 8479-8484.
- [3] Cusnir et al. A DGT technique for plutonium bioavailability measurements. Env. Sci. Technol. 2014, 48, 10829-10834.
- [4] Luisier et al. A new method for the determination of plutonium and americium using high pressure microwave digestion and alpha-spectrometry or ICP-SMS. J. Radioanal. Nucl. Chem. 2009, 281, 425–432.

