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: - (2015)

Rubrik: Messungen 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: 09.07.2025

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 2015
Résultats 2015

7

Messung von Spezialnukliden

Mesures de nucléides spéciaux

7.1 Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37	**96**
Zusammenfassung	96
Kohlenstoff-14 (^{14}C)	96
^{14}C im Umfeld der Schweizer Kernkraftwerke	98
Kernkraftwerk Leibstadt	98
Kernkraftwerk Gösgen	99
Kernkraftwerk Mühleberg	99
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau	100
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	100
Messungen in der Region Basel-Stadt	101
Vergleichmessungen im Jahr 2015	103
Argon-37 (^{37}Ar) und Krypton-85 (^{85}Kr)	104
Krypton-85 (^{85}Kr)	104
Argon-37 (^{37}Ar)	105
7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement en Suisse en 2015	**106**
Résumé	106
Introduction	106
Résultats et discussion	107
Conclusions	109

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

Th. Stocker
P. Dürring
R. Purtschert
T. Wagner
Abt. Klima- und Umweltphysik
Physikalisches Institut
Universität Bern
Sidlerstrasse 5
3012 Bern

S. Szidat
Departement für Chemie und Biochemie
Universität Bern
Freiestrasse 3
3012 Bern

C. Schlosser
M. Konrad
S. Schmid
Bundesamt für Strahlenschutz
Rosastrasse 9
D-79098 Freiburg im Brisgau

J. Eikenberg
R. Siegwolf
Paul Scherrer Institut
5232 Villigen-PSI

Zusammenfassung

Die Messungen des Gehalts an Kohlenstoff-14 (^{14}C) im Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne, Thun und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2015 weitergeführt. Als Referenzwert diente hierbei der ^{14}C-Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C-Quellen und Verdünnungen, an denen im Jahresverlauf je drei Messungen (im Mai, Juli und Oktober 2015) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2015 der $\Delta^{14}C$-Referenzwert 18 ± 3‰.

Die 100 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -20‰ (Basel, Rosental IV Strassenseite E-42) bis maximal +154‰ (Kernkraftwerk Leibstadt, Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lagen die Höchstwerte bei 16‰ (E-34, Solitude) bzw. 15‰ (W-06, Voltaplatz). Diese Werte entsprechen einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von nicht mehr als 2 μSv (1 μSv = 10^{-6} Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von ca. 3'000 μSv/a fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr kaum ins Gewicht.

Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 (^{85}Kr) und Argon-37 (^{37}Ar) werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}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}Kr auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von ^{37}Ar sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

Kohlenstoff-14 (^{14}C)

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

Referenzwert

Zwischen 1955 und 1966 wurden im Rahmen von Nuklearwaffentests grosse Mengen an $^{14}CO_2$ in der Atmosphäre freigesetzt (so genannter Bomben-Peak). Zwar nimmt seitdem der ^{14}C-Gehalt von atmosphärischem CO_2 durch Aufnahme von $^{14}CO_2$ durch die Ozeane und Verbrennung fossiler, d. h. ^{14}C-freier, Brennstoffe weltweit wieder ab, doch liegt dieser Gehalt gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbondatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

(1) $^{14}A_0$ = (13.56 ± 0.07) dpm/gC = (0.226 ± 0.001) Bq/gC

Auf lokaler Ebene lässt sich eine als «Süss»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen $^{14}CO_2$ nachweisen. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem ^{14}C-Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen $^{14}CO_2$-Konzentration.

Radiocarbon-Quellen und –Verdünnungen (KKW, KVA, Industrie, Autobahnen) können den ^{14}C-Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich somit als ^{14}C-Monitor.

Die für diesen Bericht gemessenen ^{14}C-Werte werden mit dem Radiocarbonstandard $^{14}A_0$ verglichen:

(2) $\Delta^{14}C_{Probe} = (^{14}A_{Probe} / {}^{14}A_0 - 1) \times 1000$ [‰]

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ^{14}C-Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ^{14}C-Quellen oder Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter gesammelt. Ihr ^{14}C-Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit $^{14}A_0$ verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden $\Delta^{14}C$-Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2015 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juni, August und Oktober gesammelten Blätter.

(3) $\Delta^{14}C_{Ref,\,2015} = 18 \pm 3$ [‰]

Die Differenz

(4) Netto $\Delta^{14}C = \Delta^{14}C_{Probe} - \Delta^{14}C_{Ref,\,2015}$

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

Aufbereitung von Laubproben für die ^{14}C-Messung
Es kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

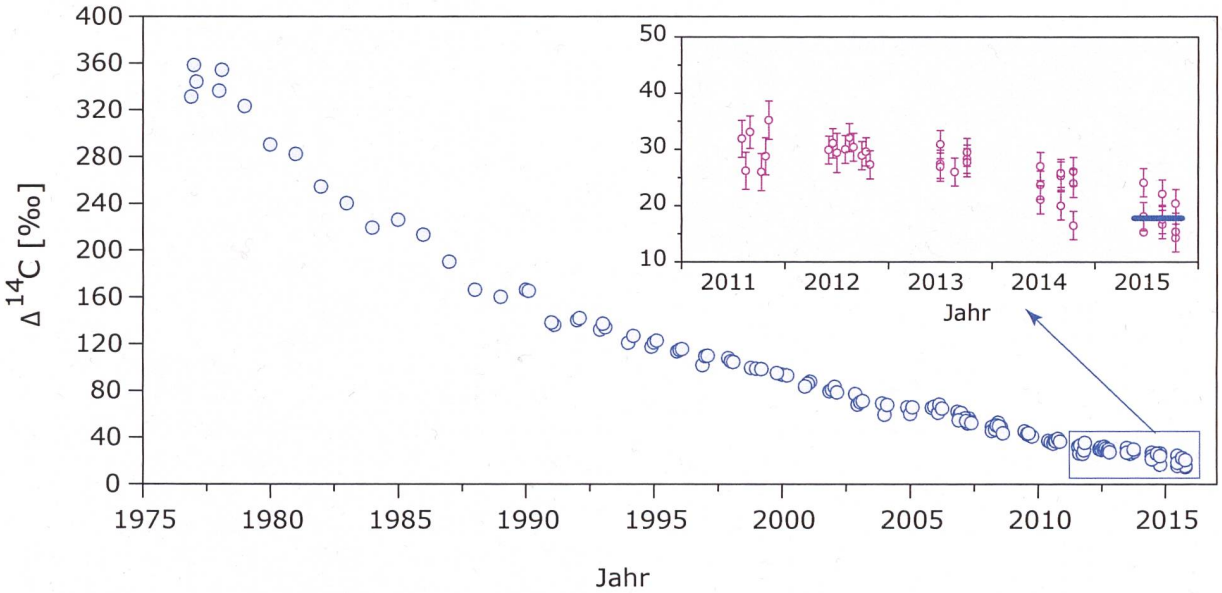
- **Methode A:** ^{14}C-Bestimmung nur in der Blattkohle [1]
- **Methode B:** ^{14}C-Bestimmung im ganzen Blatt

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

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

Tabelle 1:
Messwerte 2015 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	$\Delta^{14}C$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	24	17	14	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald (Blätter)
Belpberg	15	18	15	606050 / 190800	825	Rotbuchen auf Krete (Blätter)
Ballenbühl	18	22	20	612550 / 192800	852	2 Linden freistehend (Blätter)



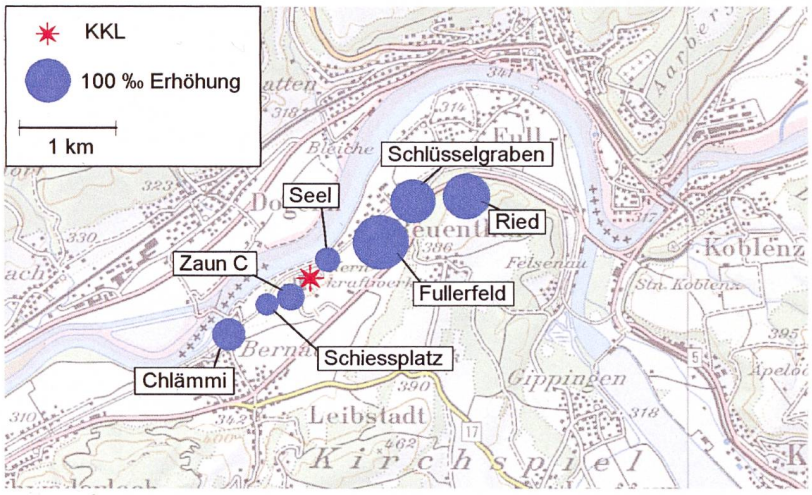
Figur 1:
$\Delta^{14}C$-Werte in Buchen- und Lindenblättern von den Referenzstationen. Die blaue horizontale Linie zeigt den bestimmten Referenzwert während der Vegetationzeit.

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

Der ^{14}C-Gehalt von Blättern der Referenzstationen ist im Jahr 2015 gegenüber dem Vorjahr erneut deutlich abgefallen, nachdem er in den Jahren 2011 bis 2013 relativ konstant geblieben war. Mit 18 ± 3‰ liegt der Referenzwert für das Jahr 2015 um 6‰ unter dem Wert des Vorjahres.

^{14}C im Umfeld der Schweizer Kernkraftwerke

Normalerweise werden die fünf Schweizer Kernkraftwerke im Sommer zu Revisionszwecken gestaffelt vom Netz genommen. Im Sommer 2015 jedoch trat der bislang einzige Fall ein, dass alle fünf Kernkraftwerke gleichzeitig abgeschaltet waren, teils im Rahmen von Störungsbehebungen wie im Falle des Kernkraftwerks Gösgen, teils für planmässige Revisionsarbeiten. Für 2015 waren daher vergleichsweise tiefe ^{14}C-Abgaben der Kernkraftwerke an die Umwelt zu erwarten. Diese Erwartung konnte durch unsere Messungen bestätigt werden, da der Zeitraum der Abschaltungen innerhalb der Wachstumsperiode der beprobten Bäume lag. Einzig das Kernkraftwerk Leibstadt, das erst kurz vor der Probenahme im August vom Netz genommen wurde, wies Werte auf, die mit denen der Vorjahre vergleichbar sind.

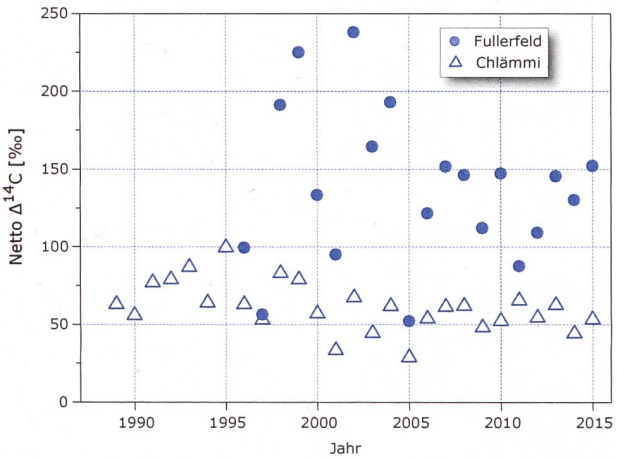


Figur 2:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2015. Revisionsabschaltung: 10.08.2015 bis 17.09.2015. Probenahme: 24.08.2015. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2015 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}C-Konzentration ergab sich wiederum in ca. 1000 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 $\Delta^{14}C$-Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämmi seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2015 lag der höchste Messwert bei 154‰ (Fullerfeld). Der grösste Netto $\Delta^{14}C$-Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ (2002), ebenfalls am Standort Fullerfeld.

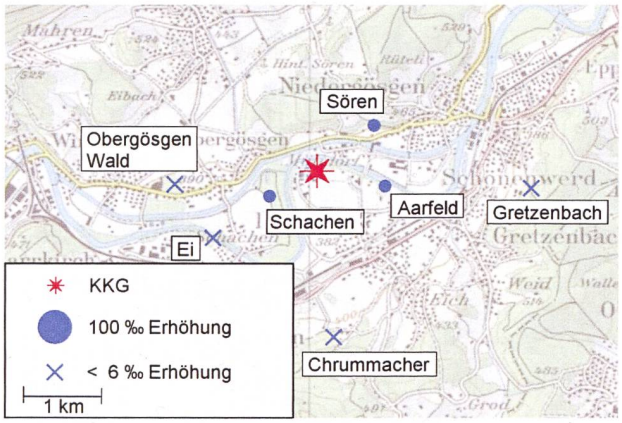


Figur 3:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (△) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt. Standorte: siehe Figur 2.

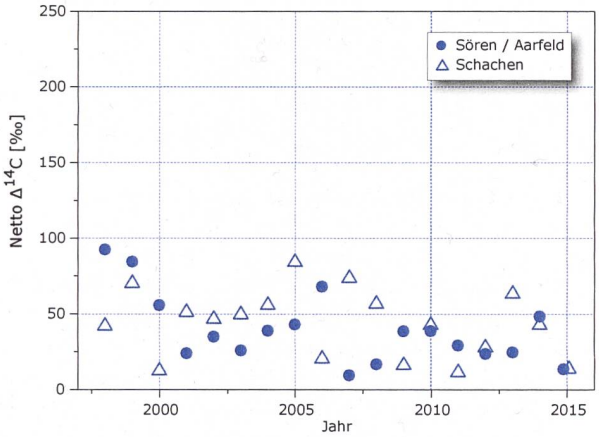
Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 4 sind die Resultate der am 10. August 2015 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Sämtliche Messwerte liegen zum Teil deutlich unter dem langjährigen Mittel. Die höchsten ^{14}C-Messwerte resultierten in diesem Jahr mit je 13 ‰ an den Standorten Sören, Schachen und Aarfeld. Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert des Standorts Chrummacher ist praktisch identisch mit den Werten von unbelasteten Referenzstandorten. Dasselbe gilt im Jahr 2015 auch für die an einem Waldrand gelegenen Standorte Gretzenbach, Ei und Obergösgen Wald.

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



Figur 4:
Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 06.06.2015 bis 06.07.2015. Probenahme: 10.08.2015. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



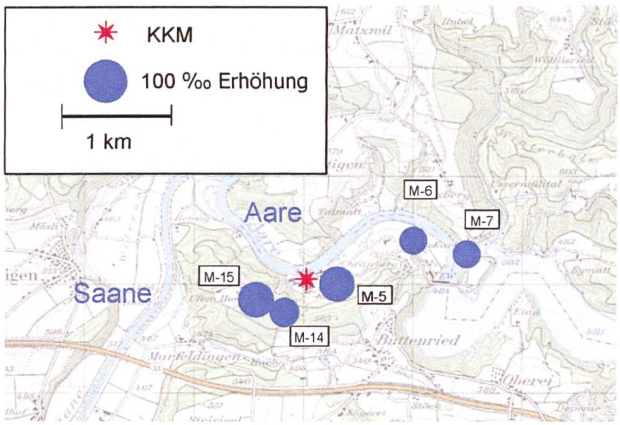
Figur 5:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte östlich (•) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4.

Kernkraftwerk Mühleberg

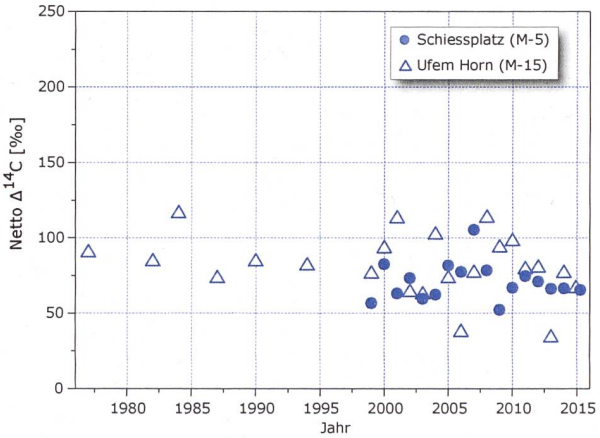
Figur 6 zeigt die Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM). Die grössten Erhöhungen wurden am Standort M-15 (Ufem Horn) mit 67 ‰ sowie am Standort M-5 (Schiessplatz) mit 66 ‰ gemessen. Die Probenahme erfolgte am 09. September 2015, d. h. eine Woche nach dem Hochfahren des Kraftwerks im Anschluss an die jährliche Revision.

Alle 2015 gemessenen Proben liegen unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116 ‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

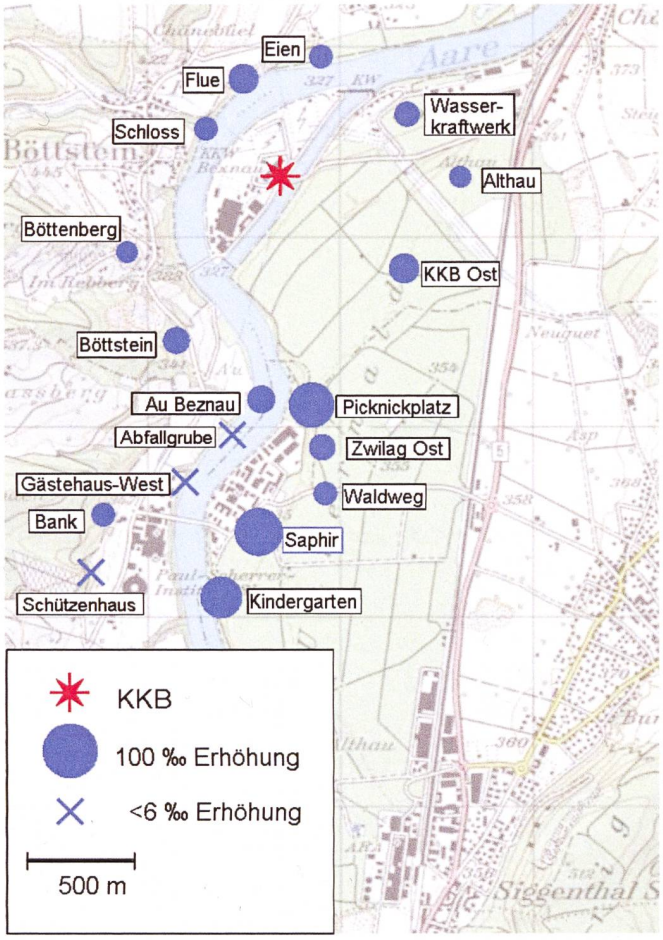
In Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen höchsten Netto $\Delta^{14}C$-Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2015 liegen etwas unter dem langjährigen Mittel.



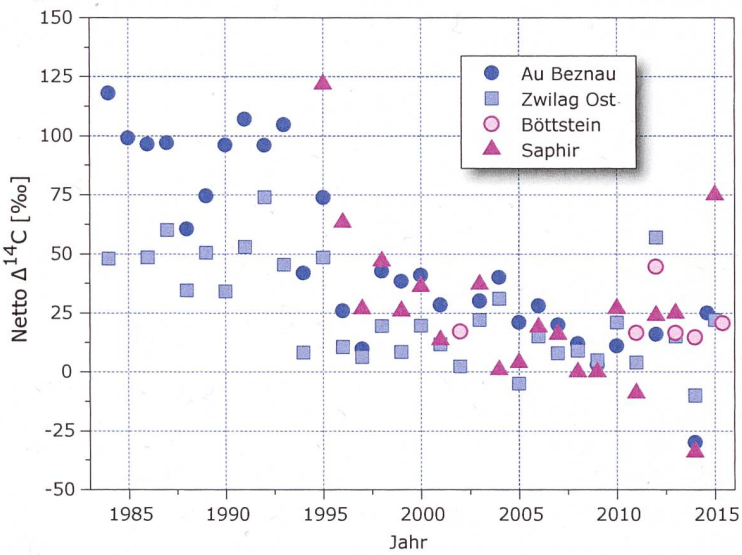
Figur 6:
Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2015. Revisionsabschaltung: 03.08.2015 bis 02.09.2015. Probenahme: 09.09.2015. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



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



Figur 8:
Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahr 2015 (J. Eikenberg, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 9:
Netto $\Delta^{14}C$-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}C-Messungen in den Blattproben wurden am PSI sowie an der Universität Bern durchgeführt. Die Messunsicherheit für die $\Delta^{14}C$-Werte beträgt 6 ‰. Die höchsten Werte wurden im Umfeld des PSI gemessen.

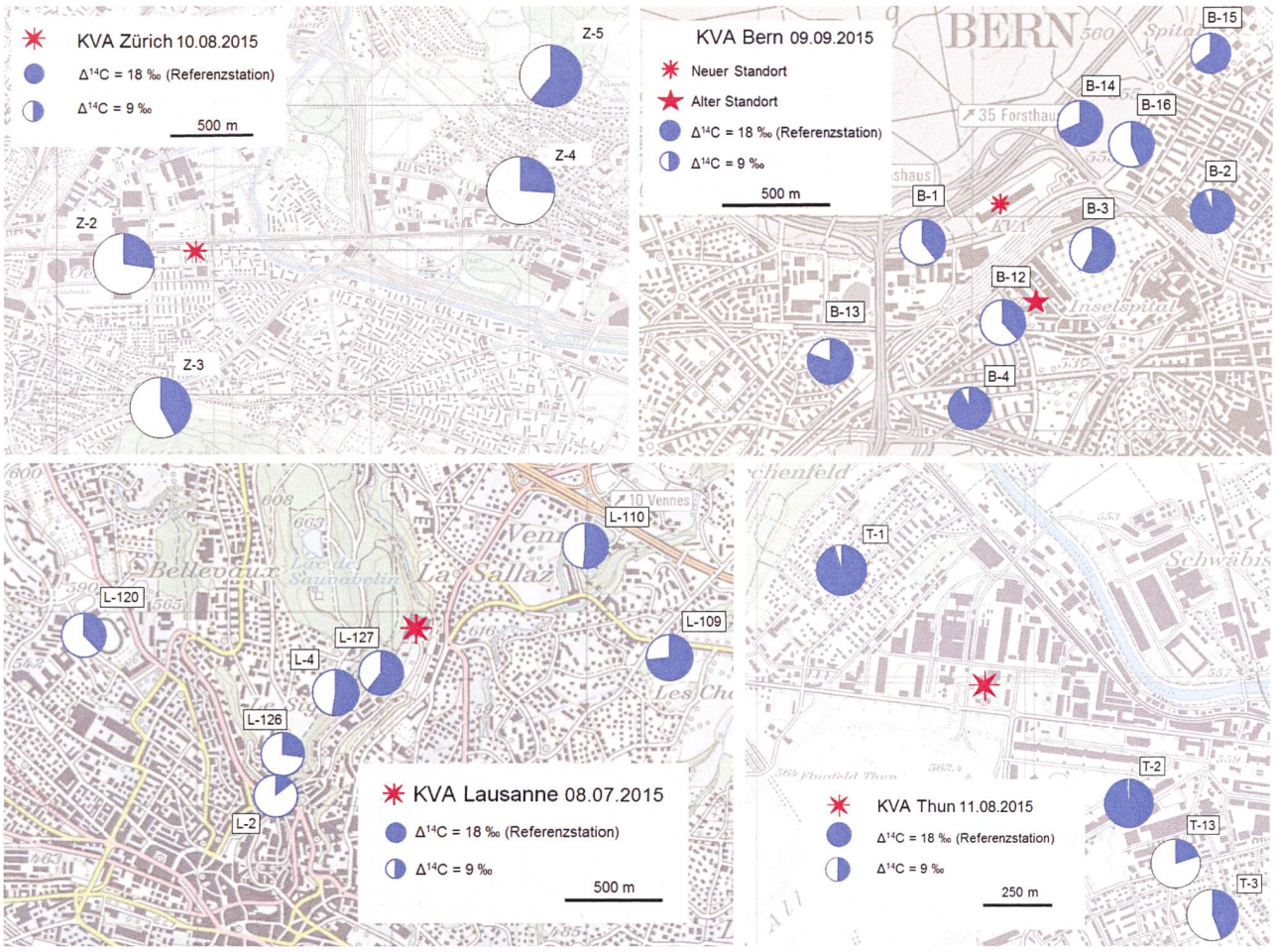
Das Kernkraftwerk Beznau (KKB) war während eines Grossteils des Jahres nicht am Netz: Block 1 war vom 13.03.2015 bis zum Redaktionsschluss dieses Berichts (April 2016), Block 2 vom 14.08.2015 bis zum 23.12.2015 heruntergefahren. Dies spiegelt sich in den geringen Erhöhungen der Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte im Umfeld des KKB wider. Laut der Roadmap [1], welche am 30. November 2015 von der Betreiberin Axpo Holding AG im Rahmen einer Medienmitteilung veröffentlicht wurde, wird Block 1 nicht vor Ende Juli 2016 wieder ans Netz gehen.

In Figur 9 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden. Alle Messungen ausser dem Standort Böttstein (Symbol ○) erfolgten durch das PSI.

Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

In Blättern von Bäumen, die im Umfeld von Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA) gesammelt wurden, konnte an keinem Standort eine erhöhte ^{14}C-Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Messpunkte weisen Werte ≤ 18 ‰ auf. Dies als Folge der Abgase aus fossilen Brenn- und Treibstoffen.

In Figur 10 sind die Messwerte als Kreise dargestellt. Die weisse Kreisfläche entspricht der Absenkung gegenüber den Referenzstationen (siehe «Süss»-Effekt, Seite 99).



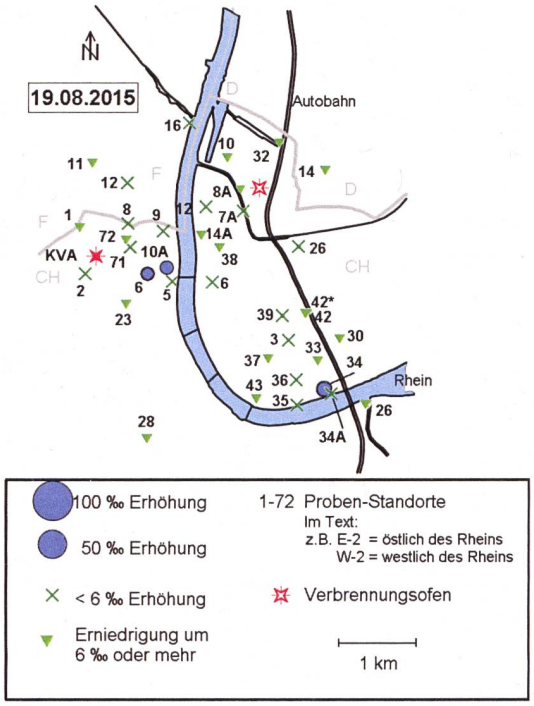
Figur 10:
$\Delta^{14}C$-Messungen in der Umgebung der KVA Lausanne, Zürich, Bern und Thun.

Messungen in der Region Basel-Stadt

Auch im Jahr 2015 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 19.08.2015 gemessenen Werte betrugen westlich des Rheins +14 ‰ (Voltaplatz, Standort W-06) und östlich +15 ‰ (Solitude, Standort E-34). Alle 2015 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. An 16 Standorten wurden Erniedrigungen um ≥ 6 ‰ ermittelt (Figur 11, Symbol ▼).

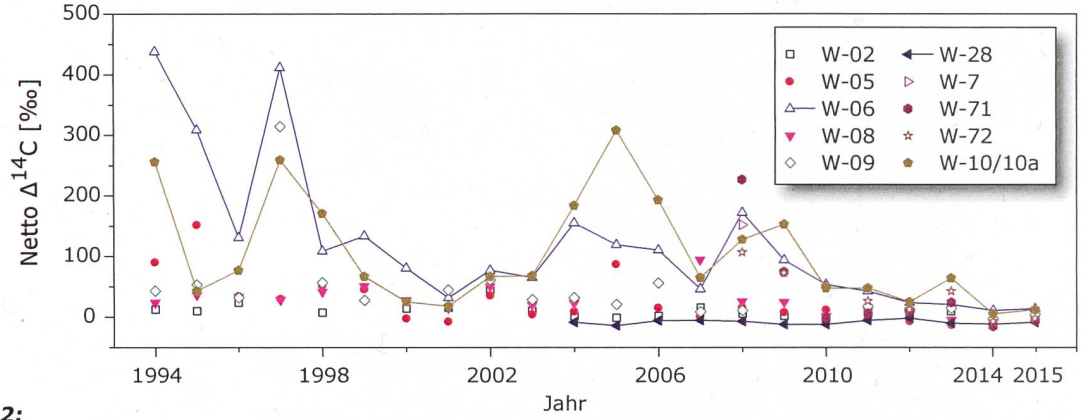
Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Kohlenwasserstoffe, die sich bei der Blatt-



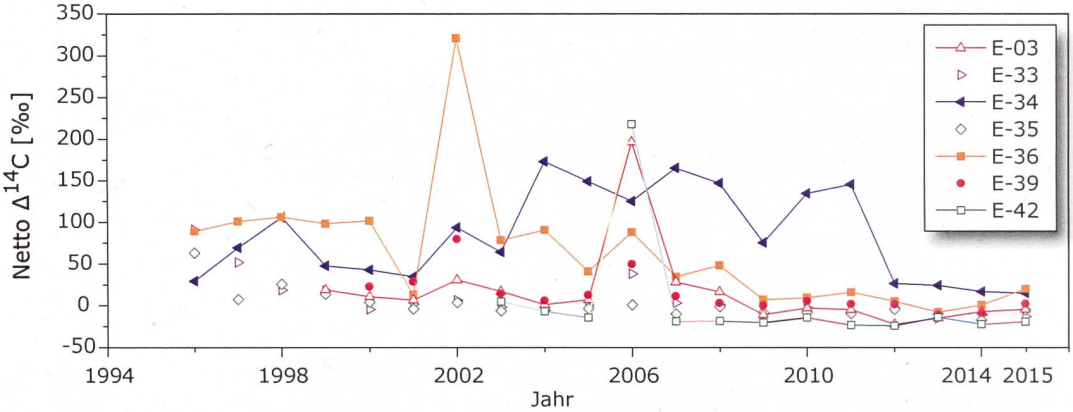
Figur 11:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

Tabelle 2:
Im Jahre 2015 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}C$-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}C-Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.*

Ort	In der Blattkohle			Im ganzen Blatt		
	2015 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]	1994-2014 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]		2015 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]	2004 - 2014 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]	
E-03	-4	197	(2006)	-	23	(2007)
E-26	-1	169	(1996)	-	-	
E-34	6	106	(1998)	15	173	(2004)
E-42	-20	4	(2003)	-	-	
E-42*	-6	218	(2006)	-	-	
W-06	4	438	(1994)	14	172	(2008)
W-10A	12	259	(1997)	13	308	(2005)
W-28	-9	-6	(2007)	-11	-13	(2013)
W-71	-6	227	(2008)	-3	75	(2009)
W-72	-2	107	(2008)	-	115	(2010)



Figur 12:
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Am Standort W-28 wird die ^{14}C unbelastete Stadtluft gemessen. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}C$-Wert eingetragen.



Figur 13:
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}C$-Wert eingetragen.

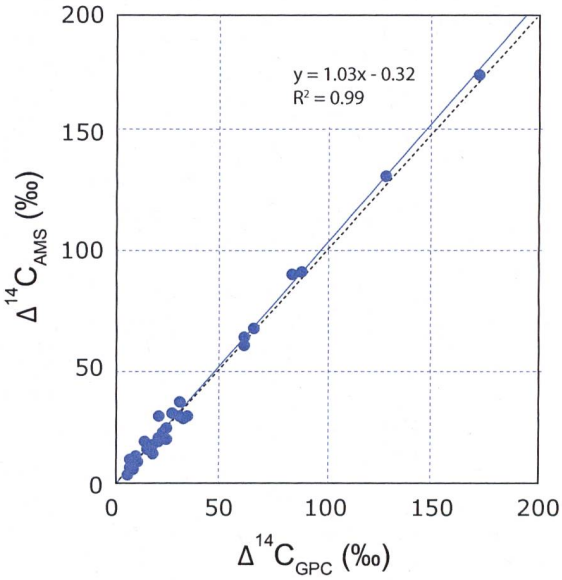
verkohlung möglicherweise verflüchtigen würden, werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewendet, wo Höchstwerte zu erwarten sind (siehe Tabelle 2).

Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Westlich des Rheins scheinen sich die Netto-Messwerte auf einem relativ niedrigen Niveau zu stabilieren. Die historischen Netto-Höchstwerte (Standorte W-06 und W-10) wurden bereits seit einigen Jahren nicht mehr erreicht. Dasselbe gilt für Standort E-36 östlich des Rheins. Hier wurde der 2002 gemessene Höchstwert von 320‰ (E-36) in den letzen Jahren jeweils deutlich unterschritten.

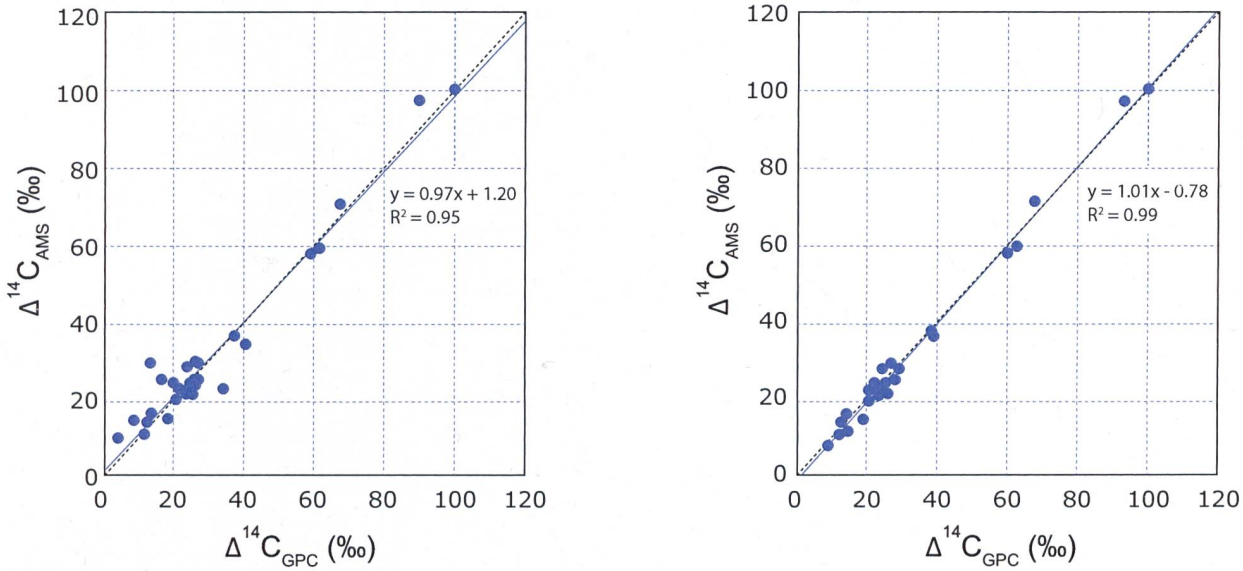
Vergleichsmessungen im Jahr 2015

Die ^{14}C-Vergleichsmessungen ausgewählter Laubproben zwischen dem ^{14}C-Labor am Physikalischen Institut der Universität Bern (GPC: gas proportional counting) und dem Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS, LARA (AMS: accelerator mass spectrometry) am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern wurden 2015 fortgesetzt. In einem ersten Schritt wurden Nachmessungen an jenen zehn Proben aus dem Jahr 2014 durchgeführt, bei denen es im Vorjahr zu den grössten Differenzen der Messergebnisse gekommen war. Hierbei konnten die Quellen dieser Differenzen, die in beiden Labors identifiziert werden konnten, grösstenteils eliminiert werden.

Im Jahr 2015 wurden Laubproben an denselben Probenahmepunkten und an zwei weiteren Standorten entnommen wie im Vorjahr und erneut von beiden ^{14}C-Labors gemessen. Die mittlere Abweichung der $\Delta^{14}C$-Messergebnisse liegt mit 0.7‰ innerhalb der Messunsicherheiten beider Verfahren von ~2.5‰. Nachmessungen sind für vier Proben geplant, bei denen die höchsten Abweichungen der Messergebnisse aufgetreten sind.



Figur 15:
Vergleichsmessungen der beiden ^{14}C-Verfahren an der Universität Bern im Jahr 2015 (32 Proben).



Figur 14:
Erstmessungen (links) vs. Nachmessungen (rechts) durch die beiden ^{14}C-Labore der Universität Bern an 30 Proben aus dem Jahr 2014.

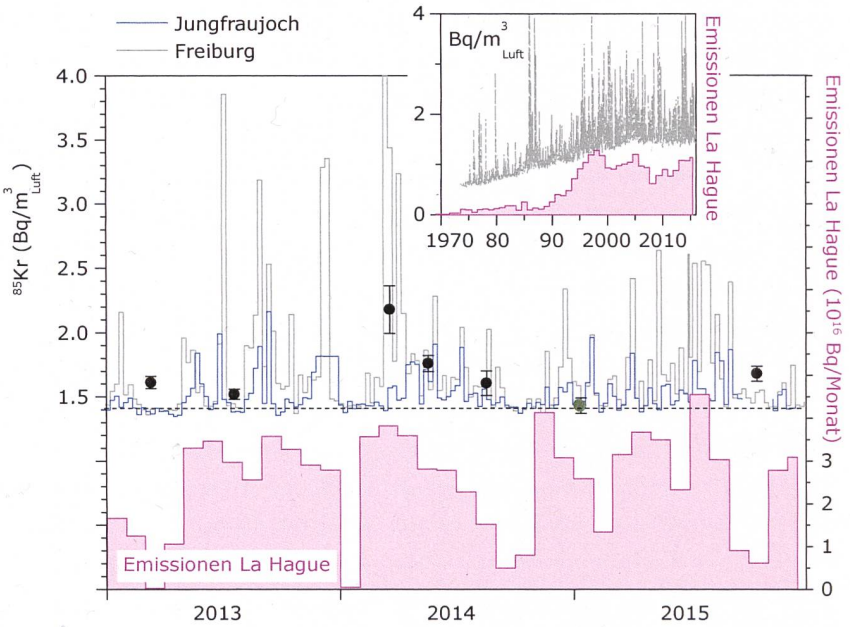
Argon-37 (^{37}Ar) und Krypton-85 (^{85}Kr)

Die beiden Edelgas-Radionuklide ^{37}Ar und ^{85}Kr werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}Kr, freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.76 Jahren und den lange Zeit zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von ^{37}Ar sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

Krypton-85 (^{85}Kr)

Das radioaktive Edelgasisotop ^{85}Kr ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von 10.76 ± 0.02 Jahren. Natürliches atmosphärisches ^{85}Kr hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch ^{84}Kr in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen ^{85}Kr-Inventar von etwa $9 \cdot 10^{11}$ Bq oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von ~0.2 $\mu Bq/m^3_{Luft}$. Im Gegensatz dazu stammt das derzeitige ^{85}Kr in der Atmosphäre hauptsächlich aus der Wiederaufarbeitung von Brennstäben und wird lokal und zeitlich gepulst freigesetzt. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Figur 16). Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6.2 % ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von ^{85}Kr übertroffen, was zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 16, kleines Bild). In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von 1.4 - 1.5 Bq/m^3_{Luft} in Mitteleuropa zu beobachten.

Auch im Jahre 2015 blieb diese Basisaktivität stabil. Dies geht aus den tiefsten Werten hervor, die sowohl auf dem Jungfraujoch wie auch in Freiburg i. Br. gemessen werden (gestrichelte Linie in Figur 16). An beiden Stationen korrelieren Amplitude und Frequenz von Aktivitätsspitzen mit den publizierten Emissionsmengen von La Hague [2]. Die höchsten Werte werden typischerweise in Frühjahr und Sommer beobachtet. Wegen der erhöhten Lage des Jungfraujochs wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst. Die durch den ^{85}Kr Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca. 11 nSv/Jahr ($8 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq m^{-3} Jahr [3]) und ist damit gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa 1.1 mSv verursacht durch natürlich vorkommendes Radon.



Figur 16:
Atmosphärische ^{85}Kr-Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3500 m.ü.M.), Freiburg i. Br. (276 m.ü.M.) sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Uni Bern) über die letzten drei Jahre. Im Januar 2015 wurde zum Vergleich eine Probe in Kalifornien genommen (in grün). 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).

Stichproben, genommen in wenigen Minuten und gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern, bestätigen den Aktivitätsbereich, der in Freiburg oder auf dem Jungfraujoch beobachtet wird. Die Streuung kommt durch die geografische Distanz, aber vor allem durch den kürzeren Sammelzeitraum zustande. Die BfS-Messungen entsprechen Wochenmittelwerten. Die Basisaktivitätskonzentration von 1.4 Bq/m^3_{Luft} wird meist überschritten. Eine Probe, die zum Vergleich in Kalifornien genommen wurde (in grün), stimmt innerhalb der Messgenauigkeit mit dem Basiswert für die Nordhemisphäre überein. In den USA finden keine bekannten Aufarbeitungsaktivitäten statt.

Argon-37 (^{37}Ar)

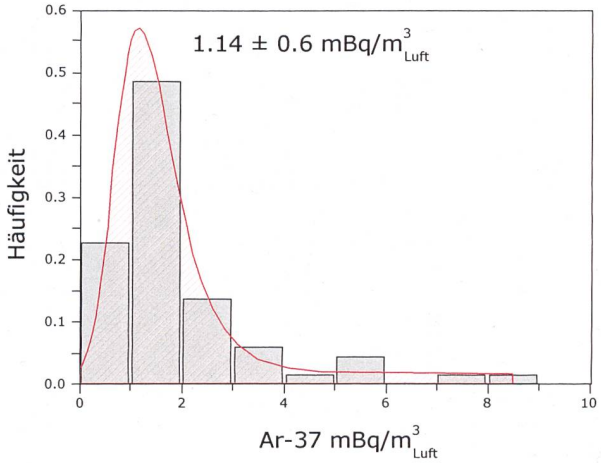
^{37}Ar wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion $^{40}Ar(n,4n)^{37}Ar$ produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposhärischen Gleichgewichtsaktivität liegen bei ca. 0.5-2 mBq/m^3_{Luft}, in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 6 Jahre gemessen Basiswerten (Fig. 17). 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}Ar-Aktivitäten bis 8-10 mBq/m^3_{Luft} führen. Werte im Bereich 2-10 mBq/m^3_{Luft} sind möglicherweise auch durch Emissionen vom Kraftwerk Mühleberg verursacht. Auch beim Betrieb des Zyklotron-Teilchenbeschleunigers am Berner Inselspital wird ^{37}Ar emittiert, das wie ^{41}Ar durch die Aktivierung von Luftargon produziert wird. Es konnten in den letzten 6 Jahren aber keine Aktivitäten beobachtet werden, die signifikant über der natürlichen Variabilität liegen (Fig. 17).

Referenz

[1] Axpo Holding AG (Hrsg.), 2015: KKW Beznau: Roadmap für Wiederinbetriebnahme Block 1 erstellt – Block 2 ohne auffällige Messresultate

[2] http://www.areva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-areva-la-hague-plant.htm

[3] ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.). Table C.1., p. 61



Figur 17:
^{37}Ar-Aktivitäten gemessen an 66 Luftproben, die über die letzten 6 Jahre in Bern gesammelt wurden. Die drei im Jahre 2015 gemessenen Proben wiesen alle eine Aktivität von weniger als 2 mBq/m^3_{Luft} auf. Die am häufigsten gemessene Aktivität von 1.14 mBq/m^3_{Luft} stimmt mit der Erwartung für die natürliche Hintergrundaktivität überein. Alle Messwerte liegen im Bereich der natürlichen Variabilität von 0 - 10 mBq/m^3_{Luft}.

7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement en Suisse en 2015

P. Froidevaux
P.-A. Pittet
F. Barraud
M. Pedro
F. Bochud
Institut de Radiophysique
CHUV
Grand Pré 1
1007 Lausanne

Résumé

Nous avons mesurés le Pu et l'Am dans des échantillons de sol, de sédiments, de filtres à air, de plantes aquatiques, d'eau de pluie et d'eau de rivière.

Les résultats sont compatibles avec une contamination provenant essentiellement des retombées des essais nucléaires des années soixante. Ce dépôt est bien fixé dans le sol, comme en attestent les mesures des filtres à air et des eaux de pluie. Les mesures des plantes aquatiques et des poissons prélevés dans les rivières en aval des centrales nucléaires montrent que l'activité présente dans les plantes est probablement liée au dépôt de carbonate de Ca ou de particules de sédiments enrichis en Pu et Am sur les feuilles. Les poissons ne présentent pas d'activité en Pu et Am mesurables au-dessus de la limite de détection de la méthode.

7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement en Suisse en 2015 - @OFSP 2016

Introduction

Le plutonium et l'américium sont deux radioéléments artificiels dont l'origine dans l'environnement remonte aux essais d'armes nucléaires en atmosphère durant les années soixante, à différents accidents nucléaires (Windscale, Tchernobyl, Mayak) ainsi qu'à des émissions (notamment dans l'eau) autorisées. Ces deux radioéléments représentent un risque radiologique s'ils sont incorporés dans l'organisme via la chaîne alimentaire.

Le plutonium possède une chimie d'oxydoréduction complexe et existe sous des formes physico-chimiques variées dans l'environnement. En conséquence, déterminer son comportement géochimique (dont sa mobilité) et sa biodisponibilité représente un véritable challenge. Le Pu peut être présent simultanément dans ses formes réduites (+III et +IV) et oxydées (+V et +VI), bien que les formes de Pu(IV) et Pu(V) sont les plus représentées. Le Pu(IV) est fortement hydrolysé en $Pu(OH)_4$ insoluble mais peut être remobilisé lors de l'oxydation en Pu(V), une forme de Pu moins sensible à l'hydrolyse et à l'adsorption sur des particules colloïdales. Ainsi, le Pu(IV) adsorbé sur des particules immobiles peut être transformé en Pu(V) soluble et labile et ainsi accroître le transport et la biodisponibilité du Pu dans les systèmes aquatiques. De plus, la dissolution oxydative du Pu et les interactions du Pu avec la matière organique dissoute (NOM) ont des effets critiques sur la cinétique d'adsorption/désorption du Pu. La labilité des complexes Pu-NOM récemment mise en évidence dans des expériences de laboratoire induisent de nouvelles raisons de reconsidérer la mobilité et la biodisponibilité du Pu dans l'environnement [1, 2]. L'américium quant à lui possède une chimie en tout point similaire à celle des lanthanides et le meilleur analogue stable pour l'Am(III) est l'Eu(III). De ce point de vue Am est également facilement hydrolysable mais ne possède qu'un degré d'oxydation stable (+III). Comme les Ln(III), il forme des complexes forts avec des ligands comme EDTA ou des ligands naturels comme les acides carboxyliques ou le citrate.

Dans ce travail, nous avons déterminé l'activité en Pu et Am de différents compartiments de l'environnement représentés par le sol, les sédiments de rivières, l'air, l'eau de pluie et l'eau de rivière, ainsi que les plantes aquatiques et les poissons. Les sites de prélèvements sont principalement les environs des centrales nucléaires suisses, et plus particulièrement les rivières desquelles elles puisent l'eau de refroidissement des réacteurs. La compréhension des mécanismes de mobilité et de biodisponibilité du Pu et de l'Am est donc un pré-requis indispensable à l'interprétation des données.

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 [3].

Résultats et discussion

Le tableau 1 présente les résultats obtenus dans la mesure des sols échantillonnés sur l'ensemble du territoire suisse, avec une focalisation sur les sites aux environs des centrales nucléaires suisses. La mesure du rapport isotopique $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et du rapport isotopique $^{241}Am/^{239+240}Pu$ permet de déterminer l'origine de la contamination. En effet, ces rapports sont de l'ordre de 0.03 pour $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et de 0.4 pour $^{241}Am/^{239+240}Pu$ si la contamination a pour origine les retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante. Le combustible irradié d'une centrale nucléaire montre quant à lui des rapports $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et $^{241}Am/^{239+240}Pu$ supérieurs à 1. La moyenne calculée en bas de tableau montre que l'origine du Pu et Am mesurés dans ce travail est bien les retombées des essais nucléaires pour tous les sites étudiés. Les activités sont inférieures à 1 Bq/kg pour l'ensemble des mesures avec moitié moins d'activité en ^{241}Am par rapport à $^{239+240}Pu$.

Les activités des filtres à air, autant aux abords des centrales nucléaires que des sites de références (Posieux et Liebefeld), sont inférieures à 2.5 nBq/m³ pour le $^{239+240}Pu$ et à peine supérieures à 1 nBq/m³ pour ^{241}Am. Malgré ces faibles activités, les méthodes utilisées permettent une détermination assez précise de ces valeurs (incertitudes < 30 %), bien que certaines mesures soient inférieures aux limites de détections. La mesure de ^{238}Pu est ainsi restée systématiquement au-dessous de la limite de détection car cet isotope représente à peine 3 % de l'activité totale en Pu. En absence d'un rejet accidentel de radioactivité dans l'atmosphère, l'activité de l'air mesurée dans ce travail représente l'activité des particules de sol très fines remises en suspension par l'érosion et le vent et accumulées sur les filtres à air. On calcule le coefficient de resuspension par le rapport RF_{obs}

$$RF_{obs} = \frac{[Pu]_{air}[\frac{Bq}{m^3}]}{[Pu]_{sol}[Bq/m^2]}$$

Bien que la déposition surfacique (Bq/m²) n'ait pas été mesurée dans ce travail, elle a été mesurée dans d'autres travaux antérieurs [4] et est estimée à 75 Bq/m² pour le plateau suisse. On obtient donc les RF_{obs} présentés dans le tableau 3. Ces valeurs sont identiques dans l'intervalle des incertitudes

Tableau 1:
Activités (Bq/kg de matière sèche MS) en plutonium et américium dans les échantillons de sol (0-5cm) collectés sur le territoire suisse en 2015 (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}Pu$ Bq/kg MS	^{238}Pu Bq/kg MS	^{241}Am Bq/kg MS	$^{241}Am/^{239+240}Pu$	$^{238}Pu/^{239+240}Pu$
Arenenberg	0.122 ± 0.013	0.0040 ± 0.0020	0.050 ± 0.008	0.41 ± 0.08	0.035 ± 0.019
	0.106 ± 0.012	0.0015 ± 0.0013	0.048 ± 0.006	0.46 ± 0.08	0.014 ± 0.013
Beznau	0.097 ± 0.011	0.0011 ± 0.0011	0.044 ± 0.008	0.45 ± 0.10	0.012 ± 0.012
Cadenazzo	0.114 ± 0.013	0.0041 ± 0.0009	0.058 ± 0.006	0.51 ± 0.08	0.035 ± 0.020
	0.052 ± 0.007	0.0028 ± 0.0017	0.019 ± 0.004	0.38 ± 0.10	0.054 ± 0.034
CERN (Meyrin)	0.089 ± 0.011	0.0022 ± 0.0017	0.046 ± 0.006	0.52 ± 0.10	0.025 ± 0.019
Gösgen (Däniken)	0.179 ± 0.018	0.0056 ± 0.0028	0.122 ± 0.026	0.68 ± 0.16	0.031 ± 0.016
	0.159 ± 0.013	0.0023 ± 0.0015	0.082 ± 0.009	0.52 ± 0.07	0.014 ± 0.009
Güttingen	0.183 ± 0.023	0.0036± 0.0027	0.067 ± 0.007	0.37 ± 0.06	0.020 ± 0.015
	0.060 ± 0.009	0.0027 ± 0.0019	0.024 ± 0.007	0.39 ± 0.13	0.045 ± 0.033
Leibstadt	0.089± 0.010	0.0045 ± 0.0022			0.050 ± 0.025
	0.129 ± 0.015	0.0031 ± 0.0022	0.054 ± 0.007	0.42 ± 0.07	0.024 ± 0.017
Mühleberg	0.122 ± 0.013	0.0043 ± 0.0023			0.035 ± 0.019
	0.109 ± 0.011	0.0028 ± 0.0016	0.051 ± 0.007	0.47 ± 0.08	0.025 ± 0.015
Posieux	0.119 ± 0.011	0.0035 ± 0.0016	0.048 ± 0.005	0.40 ±0.06	0.030 ± 0.014
Villigen (PSI)	0.094 ± 0.010	< 0.003	0.043 ± 0.009	0.45 ± 0.11	< LD
Würenlingen (ZWILAG)	0.153 ± 0.018	< 0.005	0.076 ± 0.007	0.49 ± 0.007	< LD
Caslano	0.087 ± 0.013	< 0.003	0.052 ± 0.007	0.59 ± 0.12	< LD
Stabio	0.604 ± 0.037	0.0198 ± 0.0048	0.265 ± 0.015	0.44 ± 0.04	0.033 ± 0.008
moyenne				**0.46 ± 0.08**	**0.030 ± 0.012**

Tableau 2:
Activités (nBq/m³) en plutonium et américium des filtres à air de grands volumes collectés en 2015 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	$^{239+240}$Pu nBq/m³	^{238}Pu nBq/m³	^{241}Am nBq/m³	^{241}Am/ $^{239+240}$Pu	^{238}Pu/ $^{239+240}$Pu
Leibstadt	0.7 ± 0.2	< 0.05	< 0.3	< LD	< LD
Mühleberg	0.8 ± 0.2	< 0.05	< 0.3	< LD	< LD
Klingnau	0.60 ± 0.07	< 0.05	0.40 ± 0.06	0.66 ± 0.12	<LD
Posieux	2.3 ± 0.2	< 0.05	1.04 ± 0.14	0.45 ± 0.07	< LD
Liebefeld (semestre 1)	0.67 ± 0.09	< 0.05	0.34 ± 0.06	0.51 ± 0.11	< LD
Liebefeld (semestre 2)	1.1 ± 0.1	< 0.05	0.67 ± 0.10	0.58 ± 0.11	< LD
moyenne				**0.55 ± 0.09**	

Tableau 3:
Facteur de resuspension RF_{obs} (m^{-1}) déterminé pour le Pu sur les différents sites de prélèvement d'air. La déposition surfacique en Pu est estimée à 75 Bq/m².

Lieu	RF_{obs}(m^{-1})	Fribourg[a)]	RF_{obs}(m^{-1})
Leibstadt	$9.3\ 10^{-12}$	1994	$1.8\ 10^{-11}$
Mühleberg	$1.0\ 10^{-11}$	1995	$1.6\ 10^{-11}$
Klingnau	$8.0\ 10^{-12}$	1997	$2.4\ 10^{-11}$
Posieux	$3.0\ 10^{-11}$	1998	2.910^{-11}
Liebefeld (semestre 1)	$8.9\ 10^{-12}$	1999	$2.0\ 10^{-11}$
Liebefeld (semestre 2)	$1.5\ 10^{-11}$	2003	$5.0\ 10^{-12}$

a) voir chap. « Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement en Suisse » des années correspondantes.

de mesures à celle déterminée sur le site de Fribourg entre 1994 et 2003 (tableau 3). Des valeurs inférieures à 10^{-10} m^{-1} indiquent des contaminations anciennes, bien fixées dans le sol. Un paramètre important dans l'interprétation du RF_{obs} est la présence de couverture végétale ou de couverture neigeuse. Ainsi, les zones arides montrent des facteurs de resuspension nettement plus élevés que dans des zones tempérées [5]. La différence de RF_{obs} entre le premier semestre et le deuxième semestre observée sur le site de Liebefeld (observée également en 2014) est ainsi probablement due au fait qu'en Suisse, la période de juillet à décembre est nettement plus sèche que la période de janvier à fin juin.

Les activités des eaux de pluie et de rivière sont présentées dans le tableau 4. En absence de rejet accidentel de radioactivité dans l'atmosphère, l'activité des eaux de pluie représente l'activité des particules de sol re-suspendues dans l'air et emportées au sol par la pluie. Ces activités sont restées au-dessous de la limite de détection, autant pour le Pu que pour l'Am. Par contre, les activités en Pu et Am des eaux de rivière sont mesurables au-dessus de la limite de détection; ces activités sont toutefois restées au-dessous de 30 mBq/m³ et n'ont pas présenté, contrairement à l'année dernière, des rapports isotopiques différents des retombées des essais nucléaires atmosphériques. Notamment, l'activité du ^{238}Pu est restée inférieure à la limite de détection. Dans une rivière du plateau suisse, Pu peut être présent sous forme de complexes carbonatés et de complexes associés à la matière organique dissoute. A partir d'un pH neutre, l'hydrolyse est aussi une réaction importante, produisant du $Pu(OH)_4$ insoluble qui s'adsorbe fortement aux colloïdes organiques ou minéraux. De la distribution de ces espèces dans l'eau va dépendre sa biodisponibilité pour les espèces aquatiques comme les plantes ou les poissons. Les rivières étudiées dans ce travail sont toutes fortement carbonatées et on peut s'attendre à trouver du Pu et de l'Am sous forme de complexes carbonatés. Dans ce cas de figure, le mécanisme d'absorption de Pu par les plantes aquatiques consiste en un dépôt de carbonate de Ca enrichi en Pu [6]. On constate en effet que les activités des plantes aquatiques, très similaires à celles mesurées l'année précédente, sont supérieures à celles des poissons pour lesquels un seul échantillon a une activité en Am mesurable au-dessus de la limite de détection. L'Am est mesuré dans les plantes aquatiques dans le rapport attendu pour les retombées des essais nucléaires et est probablement présent aussi sous une forme de complexes carbonatés, bien que l'adsorption de sédiments sur le feuillage soit aussi un mécanisme possible. Les sédiments montrent des activités très semblables à celles de l'année précédente, avec également un rapport isotopique ^{241}Am/$^{239+240}$Pu compatible avec celui des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

Tableau 4:
Activités (mBq/m³) en plutonium et américium des eaux collectées en Suisse en 2015 (incertitudes à 95% / LD=0.1 mBq/m³).

Type	Lieu	$^{239+240}$Pu mBq/m³	^{238}Pu mBq/m³	^{241}Am mBq/m³	^{241}Am/ $^{239+240}$Pu	^{238}Pu/ $^{239+240}$Pu
Eau de pluie	Mühleberg	< 2.0	< 2.0	< 0.2	< LD	< LD
	Leibstadt	< 0.3	< 0.3	< 0.1	< LD	< LD
	Posieux	< 0.2	< 2.0	0.18 ± 0.07	< LD	< LD
Eau de rivière	Rhône (GE)	1.7 ± 0.5	< 1.0	0.64 ± 0.15	0.36 ± 0.10	< LD
	Aar (Hagneck) juin	4.2 ± 1.7	< 1.5	< 1.5	0.73 ± 0.20	< LD
	Aar (Klingnau) juin	15.9 ± 0.6	< 2.5	2.9 ± 1.3	0.18 ± 0.10	< LD
	Rhin (Pratteln) juin	29.9± 5.0	1.4 ± 1.0	9.0 ± 2	0.30 ± 0.08	0.048 ± 0.033
moyenne					**0.39 ± 0.20**	

Tableau 5:
Activités (mBq/kg Matières Séches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2015 en aval des centrales nucléaires suisses (incertitudes à 95%, LD= 1 mBq/kg).

Type	Lieu	$^{239+240}$Pu mBq/kg MS	^{238}Pu mBq/kg MS	^{241}Am mBq/kg MS	^{241}Am/ $^{239+240}$Pu	^{238}Pu/ $^{239+240}$Pu
Plantes aquatiques	Aar (Hagneck)	107 ± 15.0	< 4	22.1 ± 6.1	0.21 ± 0.06	< LD
	Aar (Klingnau)	26.3 ± 5.3	< 1	9.9 ± 3.2	0.38 ± 0.14	< LD
	Rhin (Pratteln)	66.1 ± 11.0	< 2	20.1 ± 4.8	0.30 ± 0.09	< LD
Sédiments	Aar (Hagneck), juin	23.5 ± 3.9	< 1	5.6 ± 1.8	0.24 ± 0.09	< LD
	Aar (Klingnau), juin	32.7 ± 5.1	< 1	14.9 ± 3.1	0.46 ± 0.12	< LD
	Rhin (Pratteln), juin	37.0 ± 5.1	< 1	16.7 ± 3.3	0.46 ± 0.11	< LD
Poissons	Aar (Beznau),	< 1	< 1	3.0 ± 0.7	< LD	< LD
	Rhin (Dogern(D))	< 1	< 1	< 1	< LD	< LD
	Aar (Däniken)	< 2	< 2	< 1	< LD	< LD

Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible (< 1Bq/kg) de Pu et Am dans les sols de Suisse. Cette activité est bien fixée dans le sol et résulte dans des facteurs de resuspension, mesurés par l'activité dans les filtres à air, inférieurs à 10^{-10} m^{-1}, typiques de dépositions anciennes dans des régions tempérées. Les mesures dans les eaux de pluies sont restées inférieures à la limite de détection, autant pour Pu que pour Am. Ces mesures permettent de conclure à l'absence de rejet de Pu et Am dans l'atmosphère.

Les mesures dans les sédiments en aval des centrales nucléaires n'ont pas montré de marquage propre aux rejets de centrales; l'activité provient également des retombées des essais nucléaires.

Les plantes aquatiques montrent une activité en Pu et Am compatible avec la présence de dépôt carbonaté enrichi en Pu et Am sur la surface des feuilles et/ou avec le dépôt de particules de sédiments sur la surface des feuilles. Ces dépôts ont un rapport isotopique ^{241}Am/$^{239+240}$Pu compatible avec les retombées des essais nucléaires des années soixante.

Remerciements

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

Références

[1] Cusnir et al. A DGT Technique for Plutonium Bioavailability Measurements. Environ. Sci. Technol. 2014, 48, 10829–10834.

[2] Cusnir et al. Probing the kinetic parameters of Pu-NOM interactions in freshwaters using the DGT technique. Environ. Sci. Technol. in press.

[3] 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.

[4] Bundt et al. Impact of Preferential Flow on Radionuclide Distribution in Soil. Environ.Sci. Technol. 2000, 34, 3895-3899.

[5] Garcia-Olivares, Iranzo. Resuspension and transport of plutonium in the Palomares area. J. Environ. Radioact. 1997, 37, 101-114.

[6] Cusnir et al. Plutonium is bioavailable in karstic freshwater environments. 2016, manuscrit en préparation.