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: - (1997)

Rubrik: Messungen von Spezialnukliden

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

7. Messungen von Spezialnukliden

Zusammenfassung

(hv) In diesem Kapitel sind die Messergebnisse jener Radionuklide zusammengestellt, die nicht mittels Gamma-Spektrometrie erfasst werden. Es sind dies die Betastrahler Tritium (^{3}H), sowie ^{14}C, das radioaktive Edelgas ^{85}Kr und ^{90}Sr. Deren Nachweis erfordert spezielle Anreicherungs-, Trenn- und Nachweisverfahren. Eine weitere Kategorie sind die Alphastrahler $^{239+240}Pu$, ^{238}Pu und ^{241}Am.

Tritium in der Biosphäre (Niederschläge, Gewässer und Pflanzen) stieg in den 60er-Jahren in der Schweiz durch die Kernwaffenversuche bis gegen 1000 Bq/l an und hat seither stetig abgenommen. Tritium liegt heute mit wenigen Bq/l nur noch knapp über dem natürlichen Pegel. Beim ^{14}C führten die Kernwaffenversuche ungefähr zu einer Verdoppelung gegenüber dem naturlichen Gehalt von 227 Bq/kg Kohlenstoff. Heute liegt der künstliche Anteil noch bei 107 Promille des natürlichen Gehaltes. In der Nahumgebung der Kernanlagen ist er durch deren Emissionen zusätzlich um bis zu 125 Promille erhöht, in der Umgebung der Kehrichtverbrennungsanlage von Basel bis zu 410 Promille. Das vor allem bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoff freigesetzte ^{85}Kr zeigt eine steigende Tendenz und dessen Konzentration beträgt auf dem Jungfraujoch und im Rheintal bei Freiburg im Breisgau ca. 1.3 Bq/m^3 Luft (siehe Kap. 7.1).

^{90}Sr, ein Radionuklid aus der Kernspaltung wird wie Kalzium, vom Organismus vor allem in die Knochen und Zähne eingelagert und bestrahlt dort die blutbildenden Organe. Es wird deshalb seit dem Kernwaffenausfall speziell verfolgt. Die Messungen umfassen die gesamte Belastungskette Boden – Gras – Milch/Getreide (siehe Kap. 7.2) und den menschlichen Körper (d.h. Milchzähne und Wirbelknochen; siehe Kap. 6). Bei Boden, Gras und Milch ist ein Rückgang seit den 60er-Jahren zu verzeichnen, wobei die Messwerte aus der Bergregion systematisch etwas höher sind als jene aus dem Unterland. Die Resultate von 1997 zeigen keinen Unterschied zu den Werten der vorangehenden Jahre und in der Nahumgebung der Kernanlagen ist keine Erhöhung feststellbar.

Die Alpha-Strahler $^{234+240}Pu$ sowie ^{241}Am stammen im wesentlichen von der Kernwaffenversuchen, während ^{238}Pu von einem Satelliten mit Thermonuklearbatterie (SNAP 9A) herkommt, der 1964 in der Atmosphäre verglühte. Messungen von $^{239+240}Pu$ wurden 1997 im Boden (0.1 – 1.6 Bq/kg), Sediment (0.13 – 0.25 Bq/kg), Gewässer und Luftfiltern (1.8 – 4.0 nBq/m^3 Luft) durchgeführt. ^{238}Pu (HWZ 86.4 Jahre) macht heute noch etwa 3 Prozent der Aktivität von ^{239}Pu (HWZ 24'400 Jahre) aus, ^{241}Am (HWZ 458 Jahre) etwa die Hälfte. Ein Einfluss der Emissionen von Kernanlagen oder des Reaktorunfalles in Tschernobyl ist nicht erkennbar. Die Beiträge dieser Radionuklide zur Strahlenexposition der Bevölkerung sind vernachlässigbar gering.

7.1. Tritium, Kohlenstoff-14, und Krypton-85

H. Loosli, U. Schotterer und H. Bürki — Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstr. 5, 3012 BERN

F. Cartier und J. Löhle — Hauptabteilung für die Sicherheit von Kernanlagen 5232 VILLIGEN-HSK

W. Weiss und H. Sartorius — Institut für Atmosphärische Radioaktivität, BfS, Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

7.1.1. Zusammenfassung

Die ^{14}C - Messungen in Baumblättern ergaben 1997 an der Referenzstation einen Wert von $\Delta^{14}C$ = 107 + 1,6 ‰. Verglichen mit diesem Wert wurden wie in früheren Jahren Nettoerhöhungen in Baumblättern aus der Umgebung des Kernkraftwerkes Leibstadt und aus der Umgebung des Verbrennungsofens der Firma NOVARTIS in Basel festgestellt. Die beim KKL gefundene maximale Erhöhung betrug 125 ‰ und stimmt innerhalb etwa eines Faktors 2 mit Ausbreitungsrechnungen der HSK für die Wachstumsperiode der Blätter überein. Die Erhöhungen in Basel traten vor allem in drei Windrichtungen vom neuen Verbrennungsofen auf. Zwei davon stimmen mit Windrichtungen überein, die während der Verbrennungen ^{14}C - haltiger Abfälle in der Wachstumsperiode herrschten. Der dritte Sektor stimmt mit den Ausbreitungsbedingungen schlechter überein; eine zusätzliche aber noch unbekannte ^{14}C - Quelle auf dem linken Rheinufer könnte die Ursache der Erhöhungen sein. In der Umgebung des PSI resp. des im Aufbau befindlichen Zwischenlagers wurden zur Beweissicherung mehr Proben genommen und gemessen als früher. Maximale Netto- $\Delta^{14}C$ - Werte betrugen in der Nahumgebung des ehemaligen Forschungsreaktors SAPHIR 27 ‰. Die Resultate zeigen ferner, dass in der Umgebung des PSI die früheren Erhöhungen deutlich abgenommen haben.

Alle gemessenen ^{14}C - Erhöhungen führen zu hypothetischen zusätzlichen Dosen, die in der Grössenordnung von µSv pro Jahr liegen; sie fallen also nicht ins Gewicht.

^{85}Kr- Messungen in Wochenproben vom Jungfraujoch und in Stichproben aus Bern ergeben Basiswerte von ca. 1,3 Bq/m^3 Luft. Zeitreihen zeigen einen langsamen Anstieg der atmosphärischen ^{85}Kr- Aktivität, was auf eine vermehrte Aufarbeitung von Kernbrennstoff in den Wiederaufbereitungsanlagen schliessen lässt. Damit stimmt überein, dass an mehreren europäischen Stationen häufiger kurzfristig erhöhte Werte (1997 bis 4 Bq/m^3) auftreten als früher. Die Strahlendosis durch ^{85}Kr (β- Dosis der Haut und γ- Dosis) ist vernachlässigbar.

Die ^{3}H- Aktivität in gewichteten Niederschlägen an ungestörten Stationen der Schweiz (z. B. Grimsel, Guttannen, Meiringen, Nyon, La Brévine und Locarno) betrugen 1997 im Mittel 1 bis 2 Bq/l. Dank einem empfindlicheren Liquid- Szintillationszähler konnte in unserem Tiefenlabor nun auch wieder ein Jahresgang mit tiefen Werten im Winter und höheren Werten im Frühling und Sommer nachgewiesen werden.

7.1.2. Einleitung

^{3}H, ^{14}C und ^{85}Kr sind Beispiele derjenigen speziellen Nuklide, die im lokalen und/oder globalen Massstab künstliche Aktivitätsbeiträge deutlich erkennen lassen. Sie sind aber auch deshalb speziell, weil sie als β-Strahler nicht leicht messbar sind.

^{3}H wurde vor allem in den Sechzigerjahren durch Kernwaffentests in grossen Mengen erzeugt (siehe BAG Bericht 1996, Seite B 7. 1. 18). Heute liegt der ^{3}H -level in Niederschlägen ungestörter Stationen mit 1 bis 2 Bq/l nur noch wenig über dem vornuklearen Bereich. Bei hoher Messgenauigkeit lässt sich an ungestörten Stationen ein deutlicher Jahresgang feststellen (NTB 96-01), während in der Schweiz an gewissen Stationen der lokale Einfluss von künstlichen ^{3}H -Emissionen erkennbar ist.

Auch ^{14}C wurde durch die Kernwaffenexplosionen erzeugt. Die zusätzliche ^{14}C -Aktivität verschwindet kontinuierlich aus der Atmosphäre, weil der CO_2- Austausch mit den Weltmeeren zu einem Nettofluss von ^{14}C in den Ozean führt. In regionalem Massstab lassen sich ^{14}C - Erhöhungen in der Umgebung von Emittenten feststellen, so dass Vergleiche zwischen Modellvoraussagen und Messwerten möglich werden. Messungen der $\Delta^{14}C$ - Levels in Baumblättern stimmen bis auf einige $‰_0$ mit der Aktivität im atmosphärischen CO_2 der Nord-Troposphäre überein (Levin und Kromer, 1997).

^{85}Kr ist eines der wenigen Radionuklide, deren Konzentration in der Atmosphäre heute noch zunimmt. Ursache davon sind die Emissionen von Wiederaufbereitungsanlagen, die in den letzten Jahren ihre Kapazität erhöht haben. Neben dem globalen Anstieg sind in Europa kurzfristig auch erhöhte Werte dann messbar, wenn sich die Probenahmestation gerade in der noch nicht vollständig verdünnten Abluftfahne einer Aufbereitungsanlage befindet.

7.1.3. ^{14}C an der Referenzstation

Die ^{14}C - Aktivität in Buchenblättern von der Referenzstation wurde dreimal gemessen und ergab für 1997 einen Mittelwert von $\Delta^{14}C = 107 + 1{,}6\ ‰_0$. (Tabelle 1)

Als Referenzstationen dienen seit vielen Jahren Probenahmestandorte ca. 15 km südlich von Bern (1997: Wiler auf dem Belpberg). Sie wurden so ausgewählt, dass keine Beeinflussung der ^{14}C -Konzentration durch künstliche Emissionen zu befürchten ist, weder durch Verbrennung fossiler Brennstoffe noch durch Abgaben von ^{14}C -Aktivität. Der Messwert von $107‰_0$ stimmt innerhalb der Fehler mit den tiefsten Werten überein, die in der Umgebung der Kernanlagen und des Verbrennungsofens in Basel gemessen wurden (siehe Tabelle 1 und Figur 5). Diese Uebereinstimmung zeigt, dass die Referenzstation gut ausgewählt ist und dass die Probenaufbereitung zu reproduzierbaren Resultaten führt.

Der gemessene $\Delta^{14}C$ - Wert von 107 $‰_0$ bedeutet, dass die heutige ^{14}C - Konzentration noch 107 $‰_0$ über dem Level von 1850 liegt. Diese Erhöhung stammt noch von den grossen Kernwaffenversuchen der Sechzigerjahre. Die Verbrennung fossiler Brennstoffe hätte allerdings die ^{14}C -Konzentration von 1850 verdünnt; man schätzt, dass dieser Suess- Effekt heute etwa zu einer atmosphärischen Konzentration von $\Delta^{14}C = -50\ ‰_0$ geführt hätte [F. Joss, 1998]. Somit ist heute den Bombenversuchen eine ^{14}C - Erhöhung von rund 150 $‰_0$ zuzuordnen. Wenn man annimmt, dass alle Nahrungsmittel diese „Bomben- Erhöhung" aufweisen, lässt sich nach UNSCEAR 1988 eine zusätzliche jährliche Dosis von ca. 2 μSv abschätzen.

In Figur 1 sind die $\Delta^{14}C$ - Konzentrationen der Referenzstationen für die letzten rund 20 Jahre dargestellt. Man sieht, dass ein Rückgang der ^{14}C - Aktivität in der Atmosphäre festzustellen ist, der ungefähr einen exponentiellen Verlauf nimmt. Der atmosphärische ^{14}C - Ueberschuss von den Kernwaffenversuchen wird eben durch den CO_2- Austausch zwischen der Atmosphäre und den Weltmeeren langsam abgebaut.

Im Folgenden werden die ^{14}C - Resultate als Nettoerhöhungen gegenüber dem gemessenen Referenzwert angegeben. Für alle Resultate ist die Δ- Notation verwendet, die nach Stuiver und Polach, 1977, die Fraktionierung der Masse 14 durch die Blätter auskorrigiert; deshalb sind für alle Proben auch die $\delta^{13}C$- Werte bestimmt worden und z.B. in Tabelle 1 aufgeführt.

Die Fraktionierungskorrektur führt dazu, dass alle ^{14}C - Werte auf einen $\delta^{13}C$- Wert von -25‰ bezogen ist.

7.1.4. $\Delta^{14}C$ -Werte in der Umgebung von Kernanlagen

Im Jahre 1997 lagen die Schwergewichte der Ueberwachung in der Umgebung des Kernkraftwerkes Leibstadt (KKL) und des Paul- Scherrer- Instituts (PSI). Die Messungen der ^{14}C - Aktivität in Blattproben beim KKL hatten zum Ziel, die experimentellen Resultate mit den Ausbreitungsmodellen zu vergleichen, und die intensivierten Messungen beim PSI sind Teil der von der ZWILAG angeregten Beweissicherung. In Tabelle 1 sind die gemessenen $\delta^{13}C$- und $\Delta^{14}C$ - Werte und die Nettoerhöhungen gegenüber dem Referenzwert zusammengestellt.

Abbildung 2 zeigt die radiale Abhängigkeit der ^{14}C - Aktivität in den beiden Hauptwindrichtungen vom KKL und die zeitliche Entwicklung der Immissionen in den letzten 10 bis 15 Jahren in einem bis zwei Kilometern Entfernung vom Emissionspunkt. Die mittlere Figur zeigt, dass - wie auch schon im Jahre 1996- die höchsten Nettowerte ungefähr in einem Kilometer Entfernung vom Abluftkamin vorkommen und dass die Werte näher am Emissionspunkt geringer sind. Dies ist nicht selbstverständlich. Auch wenn die Ausbreitungsmodelle diese Beziehungen erwarten lassen, könnten für die Langzeitausbreitung wegen den variablen Windverhältnissen grössere Schwankungen auftreten. In grösseren Entfernungen als der kritische Punkt nehmen die Nettoerhöhungen deutlich ab. Die untersten beiden Teilfiguren zeigen, dass in den letzten Jahren die Netto- $\Delta^{14}C$ - Werte ungefähr in der kritischen Entfernung bemerkenswert konstant waren. Daraus kann geschlossen werden, dass die Emissionen und die mittlere Verdünnung während der Wachstumszeit ungefähr gleich blieben.

In Figur 3 werden Messwerte in der Umgebung des KKL mit Ergebnissen der Modellrechnungen verglichen. Im oberen Teil sind die dargestellten Kreisflächen proportional zum gemessenen Nettoeffekt. Das Resultat der Station Laufenburg, das innerhalb des statistischen Fehlers mit dem Messwert der Referenzstation übereinstimmt (Tabelle 1) ist in Figur 3 nicht enthalten, weil sich der Standort ca. 9 km westlich vom KKL befindet (Figur 2). Dieser obere Teil der Figur zeigt, dass die höchsten Nettoeffekte in den beiden Hauptwindrichtungen im Rheintal vorkommt und dass die Erhöhungen quer dazu kleiner sind. Im unteren Teil der Figur sind die Ergebnisse des von der HSK verwendeten Gauss'schen Ausbreitungsmodells dargestellt (siehe auch HSK- R41 und BAG- Bericht 1996, Seite B 7. 1. 4.). Die ortsabhängigen Ausbreitungsparameter wurden für den Zeitraum vom 13. April bis 11. Mai 1997 gemittelt, wobei die Wind- und Temperaturdaten für die Nacht eingeschlossen wurden, obwohl Pflanzen nur bei Helligkeit assimilieren. Die erwartete Konzentration bei

Mittelung nur über Tag wären ca. 25 % geringer als wenn über Tag und Nacht gemittelt wird. Das Modell gibt für den Aufschlagspunkt einen Verdünnungsfaktor von $\chi = 5 \times 10^{-7}$ s/m^3 . Die durch das Modell berechneten ^{14}C -Nettoeffekte stützen sich zusätzlich auf vier im April/Mai 1997 vom KKL gemessene Abgabekonzentrationen von im Mittel ca. 30 Bq/m^3. Nimmt man über den betrachteten Zeitraum von ca. einem Monat eine konstante Emission an, entspricht die erwähnte Konzentration einer mittleren Emissionsrate von ca. 6 kBq/s. Damit und mit dem erwähnten Verdünnungsfaktor ergibt sich am Aufschlagspunkt ein Nettoeffekt von 3×10^{-3} Bq/m^3 . Dieser entspricht einem $\Delta^{14}C$ - Wert von ca. 80‰, weil die natürliche ^{14}C -Konzentration (von 1000 ‰) einer Konzentration von 0.042 Bq/m^3 Luft entspricht.

Der Vergleich zwischen Mess- und Modellwerten der Figur 3 zeigt eine gute Uebereinstimmung, sowohl in der Hauptwindrichtung wie auch quer dazu.. Insbesondere fällt der Ort mit maximaler Konzentration in den Blättern mit dem Aufschlagspunkt des Modells zusammen. Allerdings wurde dort (Feld Schiessplatz, Tabelle 1) ein Nettoeffekt von 125‰ gemessen, während das Modell nur ca. 80 ‰ voraussagt (resp. ca. 60 ‰, wenn nur über Tag gemittelt wird). Möglicherweise sind die vom KKL bestimmten Emissionskonzentrationen zu klein; eine Uebereinstimmung innerhalb eines Faktors 2 zwischen Modell- und Messwerten für Langzeitausbreitung ist aber bereits als gut zu qualifizieren.

Abbildung 4 zeigt die Messergebnisse in der Umgebung des PSI. Wiederum entspricht die Fläche der Kreise den gemessenen Nettoerhöhungen. Saphir 2 bis 5 und EIR Süd sind eine Fortsetzung einer langjährigen Messserie. In der Umgebung des im Bau befindlichen Zwischenlagers wurden unter Einbezug der bisherigen Standorte EIR- Ost und Au zur Beweissicherung drei neue Standorte ausgewählt und auch in der Umgebung des SIN/PSI-West wurden zur Ueberwachung drei Proben genommen.

Der in der Umgebung des ehemaligen Forschungsreaktors Saphir seit 1992 beobachtete Rückgang der Netto-$\Delta^{14}C$ - Werte setzte sich auch 1997 fort. Maximalwerte seit der Stillegung am 17. 12 1993 waren: (1994) 202 ‰, (1995) 131‰, (1996) 66 ‰, (1997) 27 ‰. Parallel dazu ist ein Rückgang der Netto - $\Delta^{14}C$ - Werte an den Standorten Au und EIR-Ost festzustellen, so dass die Vermutung nahe liegt, dass die früheren Erhöhungen an diesen beiden Standorten primär dem Saphir zuzuordnen sind. Andere Quellen (z.B. Verbrennung im PSI von ^{14}C -haltigen Abfällen, KKB) können aber noch nicht definitiv ausgeschlossen werden. Die zur Beweissicherung des ZWILA und in der Umgebung des PSI-West entnommenen Proben zeigen Werte, die nahe an der Nachweisgrenze liegen oder sich nicht signifikant von den Werten der Referenzstation unterscheiden. Die Beweissicherung wird fortgesetzt.

7.1.5. $\Delta^{14}C$ - Werte in der Stadt Basel

Im Auftrag der Firma NOVARTIS wurden auch 1997 die ^{14}C - Messungen in der Stadt Basel fortgesetzt. Die Probenahme erfolgte unter verdankenswerter Mithilfe des kantonalen Laboratoriums und der Stadtgärtnerei. Zielsetzungen waren, den Verlauf der $\Delta^{14}C$ - Aktivität in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens K- 930 zu verfolgen und zu bestätigen, dass die Erhöhungen in der Umgebung des alten Verbrennungsofens K- 227 (Voltaplatz und Umgebung) weiter zurückgehen.

In Figur 5 sind die Netto-$\Delta^{14}C$ - Werte aller im Jahre 1997 gewonnenen Blattproben schematisch dargestellt. Die Fläche der Kreise ist wiederum proportional zur Nettoerhöhung. Drei Messwerte sind innerhalb von 6 ‰ gleich hoch wie diejenigen der Referenzstation und sind

in der Figur als Kreuze markiert. Dies zeigt die Reproduzierbarkeit unseres Probenaufbereitungs- und Messverfahrens.

Deutliche Erhöhungen der $\Delta^{14}C$ -Werte über demjenigen der Referenzstation sind in nordwestlicher, südöstlicher, aber auch in südwestlicher Richtung vom neuen Verbrennungsofen festgestellt worden. Die drei höchsten $\Delta^{14}C$ - Nettowerte von 260 bis 410 ‰ sind im Westen des Rheins in der Nähe des Voltaplatzes aufgetreten. An drei der vier Standorte in der Nahumgebung der Firma ROCHE blieben die $\Delta^{14}C$ - Erhöhungen ähnlich wie im Jahre 1996 (50 bis 100 ‰).

Die Erhöhungen in der Umgebung des neuen Ofens in nordwestlicher und süd- südöstlicher Richtung stimmen mit den Windrichtungen überein, wie sie während der Verbrennungsperiode ^{14}C -haltiger Abfälle im Frühling und im Sommer herrschten (15. April, 13. Mai, 27. Mai, 3. Juni, 4. Juni, 20. August). Es scheint auch erklärbar, weshalb im Quadranten Nord bis Ost keine $\Delta^{14}C$ -Erhöhungen auftraten: obschon der Wind während der Verbrennungen am 29. April und 6. Mai in diesen Sektor blies, war vermutlich die Assimilation reduziert, weil die Sonneneinstrahlung fehlte. In südlicher Richtung blies der Wind nie während einer Verbrennungsperiode im Frühling und Sommer; es gibt in diesem Sektor auch keine ^{14}C - Erhöhungen.

Am schwierigsten verständlich sind die Erhöhungen, wie sie in der Nähe des Voltaplatzes bzw. der ehemaligen Firma SANDOZ auftraten. Wohl blies der Wind während der Verbrennung am 22. April in westlicher Richtung, aber man müsste eine Abweichung bzw. Schwankung von der gemessenen Windrichtung um ca. 30° annehmen, um die Erhöhungen in südwestlicher Richtung damit zu erklären. Die beobachtete Radialabhängigkeit mit den Maximalwerten erst in ca. 1,5 km Entfernung vom neuen Ofen wäre dagegen verständlich; ein ähnliches Ausbreitungsmuster wie in der Umgebung des KKL kann in Anbetracht der grossen Windgeschwindigkeiten am 22. April gut angenommen werden. Trotzdem bleibt die Frage einer lokalen zusätzlichen Emissionsquelle offen. Dass neue Emissionen für die ^{14}C - Erhöhungen nötig sind, wird auch in Figur 6 illustriert: hier ist der zeitliche Verlauf an den Standorten westlich des Rheins und bei der Dreirosenbrücke dargestellt. Man sieht, dass die Erhöhungen nach dem Abstellen des alten Ofens im Sommer 1994 in den Jahren 1995 und 1996 zurückgingen; dass sie aber 1997 erneut anstiegen. Die Vermutung einer eventuellen zusätzlichen Emissionsquelle westlich des Rheins wurde ja schon im BAG- Bericht 1996 geäussert, damals insbesondere wegen der Beobachtung, dass die Nettowerte der Station W- 06 im Herbst 1995 und 1996 je etwa auf +100‰ blieben. Allerdings kann nach Angabe von M. Goerg und P. Egli, Birmensdorf, der Anteil Kohlenstoff sehr schwanken, der von früheren Jahren in ein neues Blatt eingebaut wird. Der erneute Anstieg 1997 an den drei Standorten W- 06, W- 09 und W- 10 kann aber kein Memory-effekt seitens der Bäume sein.

Figur 7 zeigt, dass $\Delta^{14}C$ - Erhöhungen an Standorten in der Nahumgebung des neuen Verbrennungsofens erst nach Beginn des Verbrennens ^{14}C -haltiger Abfälle, d.h. erst ab 1996 auftraten. Insbesondere bestätigen die im BAG- Bericht 1996 angekündigten Nachmessungen der Proben E- 08, E- 26 und E- 27 diese Korrelation zwischen Verbrennung und Erhöhung.

Figur 8 zeigt die Ergebnisse von ^{14}C -Messungen in Baumringen; der frühere Standort des Baumes ist in Figur 5 angegeben. Damit soll versucht werden, frühere Immissionswerte in der Umgebung des alten Verbrennungsofens der Firma CIBA abzuklären. Man sieht in der Figur, dass in gewissen Jahren signifikante Nettoerhöhungen auftraten. Diese scheinen allerdings geringer auszufallen, als die in den Jahren 1994 und 1995 in der Umgebung des

alten Verbrennungsofens gemessenen Erhöhungen. Aber einerseits mitteln Holzproben die Erhöhungen über längere Zeit aus und andererseits liegt die Müllheimerstrasse in einer Ausbreitungsrichtung, die weniger häufig vorkommt.

7.1.6. Zusätzliche Strahlendosen wegen ^{14}C

Nach UNSCEAR 88 führt der natürliche ^{14}C - Gehalt in Nahrungsmitteln zu einer internen Dosis von ca. 13 µSv pro Jahr. Die in der Umgebung von Siedewasserreaktoren und auch in Basel gemessenen Erhöhungen der ^{14}C - Konzentration gegenüber dem Referenzwert liegt in der Grössenordnung von 100 ‰. Unter der konservativen Annahme, dass eine Person im Körper eine ^{14}C - Konzentration aufbauen würde, die 100 ‰ über dem natürlichen Level liegt, ergäbe dies eine zusätzliche jährliche Dosis von 1 bis 2 µSv . Dies fällt nicht ins Gewicht, insbesondere nicht gegenüber den Dosen wegen Radon- Folgeprodukten und den Variationen der übrigen natürlichen Dosiskomponenten. Die Bedeutung der ^{14}C - Messungen in der Umgebung der Kernanlagen und der Verbrennungsöfen von Industriebetrieben liegt also nicht primär in den zusätzlich zu erwartenden Dosen sondern darin, dass mit diesem Nuklid Umweltprozesse untersucht, besser verstanden und modelliert werden können. Ueberdies sind künstlich erzeugte ^{14}C - Erhöhungen feststellbar und gehören schon deshalb in ein Ueberwachungsprogramm.

7.1.7. ^{85}Kr - Aktivität in Troposphärenluft

^{85}Kr ist eines der wenigen Radionuklide, deren Konzentration in der Atmosphäre gegenwärtig noch ansteigt. Schon deshalb ist es nötig, dieses Nuklid in ein Ueberwachungsprogramm aufzunehmen. Zudem erlauben die ^{85}Kr -Messresultate Rückschlüsse auf Verdünnungsprozesse, die in der Atmosphäre ablaufen, und die Daten werden auch für Anwendungen in der Hydrologie und Ozeanographie verwendet.

In Figur 9 sind Resultate, wie sie im Institut für atmosphärische Radioaktivität in Freiburg im Breisgau für Wochenproben gemessen wurden, dargestellt. Die Probenahme auf dem Jungfraujoch erfolgte durch die Herren F. Baertschi, P. Kuster und H.R. Staub, denen herzlich gedankt sei für ihre sorgfältige Mithilfe. Man sieht im oberen Teil der Figur den langsamen Anstieg der Aktivität, die sogar auf dem Jungfraujoch 1997 zu einem Basislevel von ca. 1,2 Bq/m^3 und einem Durchschnittswert von ca. 1,3 Bq/ m^3 geführt hat. In Freiburg im Breisgau hat dieser Gleichgewichtswert bereits ca. 1,4 Bq/m^3 erreicht. Diesem Gleichgewichtswert sind an beiden Stationen kurzfristige Erhöhungen überlagert, die seit 1995 häufiger beobachtet wurden als früher und die dann auftreten, wenn die Station in eine noch schlecht verdünnte Abluftfahnen von La Hague oder Sellafield gerät. Die häufigeren Spikes und der troposphärische Anstieg beruhen wohl auf einer intensiveren Aufarbeitung von Brennelementen in diesen beiden Anlagen. Für Sellafield beispielsweise ist eine ^{85}Kr - Emission von ca. 1 x 10^{17} Bq für die Jahre 1995 bis 1997 publiziert [D. Jackson et al., 1998], während sie 1993 und 1994 nur etwa halb so gross war. Für La Hague beträgt die Emission im Jahre 1997 ca. 3 x 10^{17} Bq (MAGNUC). Die vorliegenden Messresultate erlauben, die globalen Emissionen abzuschätzen: pro Jahr zerfallen ca. 6 % des globalen Inventars, was durch die Emissionen von E_1 kompensiert wird:

$$E_1 = 0{,}06/\text{Jahr} \times 1{,}1\ \text{Bq/m}^3 \times 4 \times 10^{18}\text{m}^3 = 2{,}6 \times 10^{17}\ \text{Bq/Jahr}$$

Die Erhöhung des Inventars kann aus dem oberen Teil der Figur 9 abgeschätzt werden und beträgt jährlich ca. 0,06 Bq/m^3, was durch eine Emission E_2 erreicht wird:

$E_2 = 0{,}06\ Bq/m^3 \times 4 \times 10^{18}\ m^3 = 2{,}4 \times 10^{17}\ Bq/Jahr$

Die globalen jährlichen Emissionen müssen also ca. 5×10^{17} Bq betragen, was durch die Emissionen von Sellafield und La Hague bereits zu 80% erklärt ist.
In 12 Stichproben wurde auch aus Berner Luft Krypton abgetrennt und die ^{85}Kr - Aktivität gemessen. In folgender Tabelle sind diejenigen Resultate aufgeführt, die an einer Kryptonmenge grösser als ca. 4 µl bestimmt wurden:

Probenahmedaten	**Aktivität**	
	dpm/cc Kr	**Bq/m³ Luft**
17. März 1997	260 + 17	4,9 + 0,3
27. März 1997	84 + 5	1,6 + 0,1
2. April 1997	73 + 5	1,4 + 0,1
22. Mai 1997	86 + 6	1,65 + 0,1
4. August 1997	62 + 6	1,2 + 0,1
30. Oktober 1997	55 + 4	1,05 + 0,1

Diese Aktivitäten stimmen mit denjenigen der anderen europäischen Stationen in etwa überein.

Die durch ^{85}Kr bewirkte zusätzliche Dosis fällt nicht ins Gewicht, obschon ^{85}Kr das künstliche Nuklid mit der höchsten Aktivität in der Luft ist: die effektive jährliche Dosis wegen der Hautbestrahlung durch die β - Teilchen beträgt ca. 0,02 µSv , und diejenige durch den γ-Anteil von 0,4 % aller Zerfälle ist etwa gleich gross (D. Jackson et al., 1998).

7 1.8. Tritium in Niederschlägen und in Flusswasser

Tritium in Niederschlägen:

Die gewichteten Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen sind 1997 gegenüber dem Vorjahr leicht gesunken. Einzige Ausnahme ist die von Industrie- Tritium beeinflusste Station Bern, deren Werte sich fast verdoppelten. Ob dies auf erhöhte Emissionen oder auf veränderte Niederschlagsverteilung (und damit eventuell effizienteres Ausregnen) zurückzuführen ist, lässt sich im Moment noch nicht beantworten.

Die Inbetriebnahme des grossvolumigen Aloka- Messgerätes, das die Nachweisgrenze für Tritium auf unter 0,1 Bq/l (und damit in den Bereich der natürlichen Produktion) bringt, erlaubt es nun, auch tiefere Winterkonzentrationen mit der erforderlichen Genauigkeit zu messen. Das Gerät arbeitet nun sehr zufriedenstellend im Routinebetrieb.

Tritium in Flusswasser:

In der Aare bei Brugg blieben die Tritiumwerte gegenüber dem Vorjahr unverändert. Dieses Jahr wurde eine starke Erhöhung der Tritiumkonzentration im April beobachtet; das Jahr zuvor geschah dies im Mai. Die Ursache für die Erhöhung ist nicht bekannt.

Literatur

HSK- Richtlinie R- 41: Berechnung der Strahlenexposition in der Umgebung aufgrund von Emissionen radioaktiver Stoffe aus Kernanlagen.

D. Jackson, C. H. Zimmermann and J. Gray: Discharges of Krypton from Sellafield 1951 - 1997 and the resultant doses to members of the public, J. Radiol. Prot. 18 (1998) 111 - 118.

Joss F.: persönliche Angabe, 1998

Levin I. and Kromer B.: Twenty years of atmospheric $^{14}CO_2$ observations at Schauinsland Station, Germany, Radiocarbon 39, 2 (1997) 205 - 218.

NAGRA Technischer Bericht 96 - 01: Geosynthese Wellenberg 1996 (September 1997)

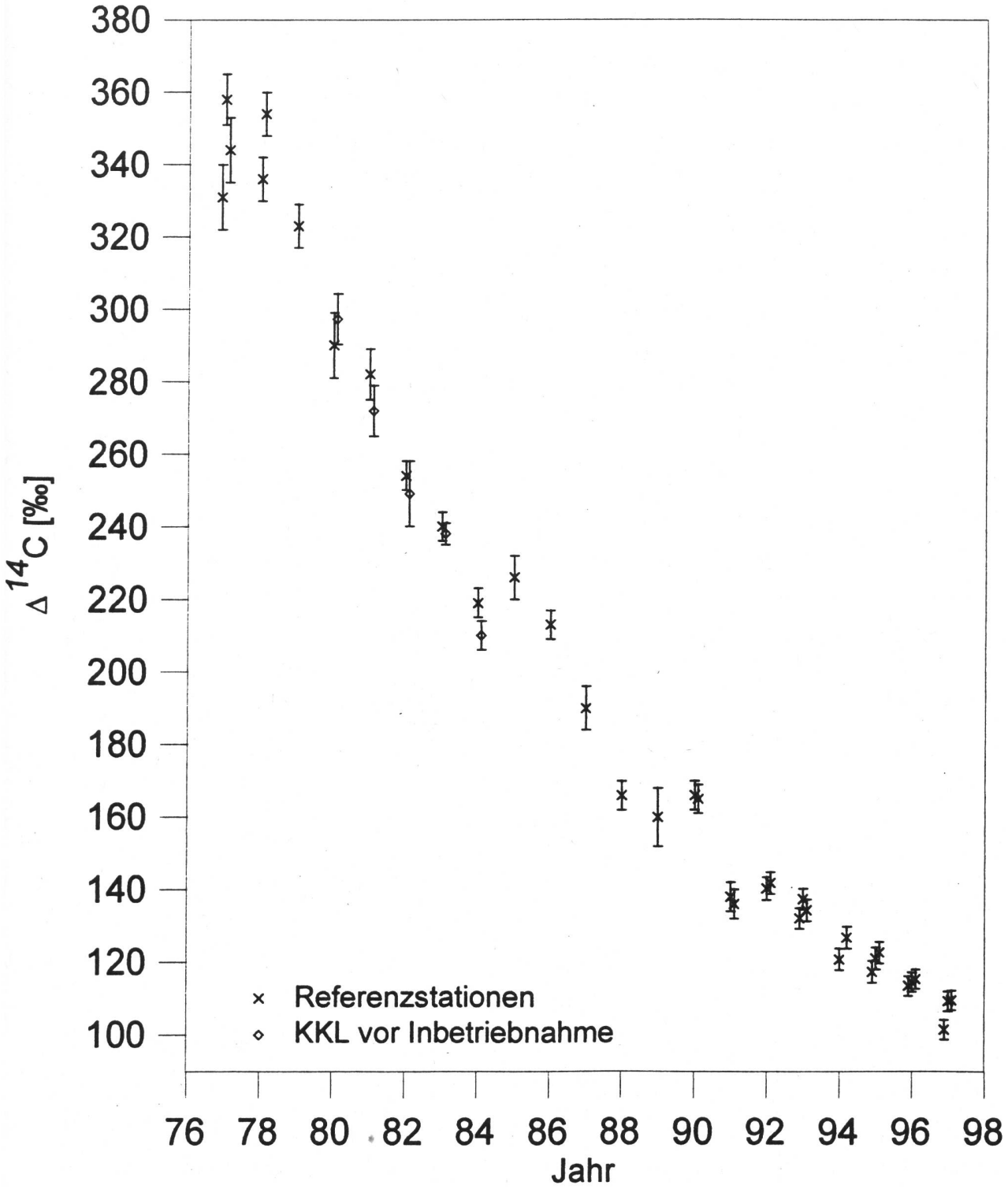
Stuiver, M. and Polach, H. A.: Discussion reporting of ^{14}C data, Radiocarbon 19, 3, 1977, 335 - 363

UNSCEAR 1988: Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, Vienna 1988

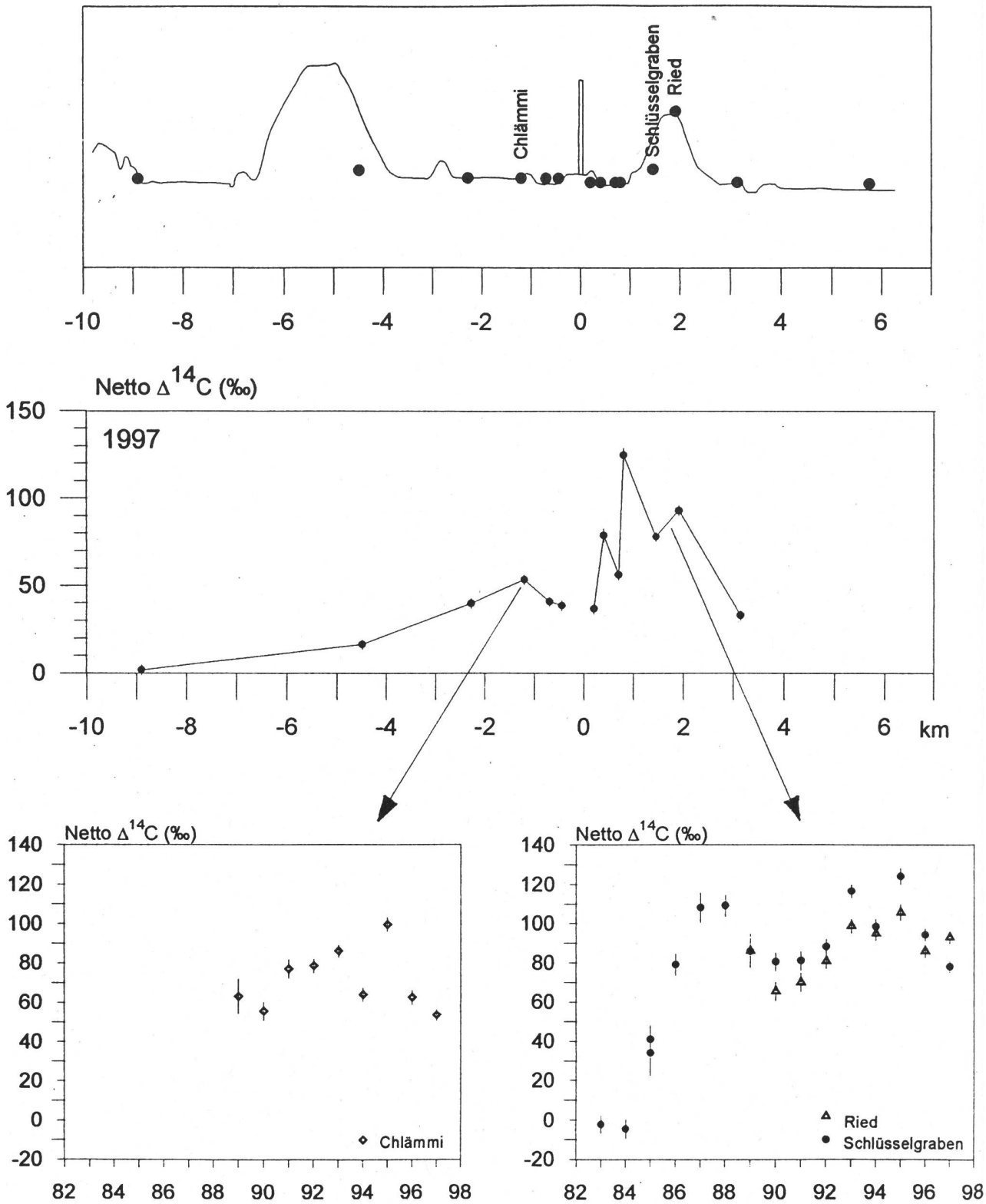
Tabelle 1: $\Delta^{14}C$ Werte an der Referenzstation und in der Umgebung der Schweizer Kernanlagen

Probename	$\delta^{13}C$	$\Delta^{14}C$ ‰	σ $\Delta^{14}C$ ‰	Netto $\Delta^{14}C$ ‰	Netto σ	Umgebung
Wiler (9.9.)	-34.0	109.5	2.7			Referenzstation
Wiler (9.9.)	-33.9	109.2	2.7			Referenzstation
Wiler (9.9.)	-33.5	101.5	2.7			Referenzstation
Standard 1997		106.7	1.6			**Referenzstation**
Saphir A (5)	-31.4	115.4	2.7	8.7	3.1	Saphir und PSI
Saphir B (2)	-30.8	128.7	2.7	22.0	3.1	Saphir und PSI
Saphir C (3)	-27.6	133.4	2.7	26.7	3.1	Saphir und PSI
Saphir E (4)	-29.7	133.6	2.7	26.9	3.1	Saphir und PSI
EIR Süd	-33.2	110.1	3.6	3.4	3.9	PSI
EIR Ost	-31.3	113.1	2.7	6.4	3.1	PSI
Ischlaghau	-31.2	112.8	2.7	6.1	3.1	PSI
Laufen Picknickplatz	-34.3	123.9	2.7	17.2	3.1	PSI
SIN West	-28.3	108.4	2.7	1.7	3.1	PSI
Bank	-30.9	116.0	2.7	9.3	3.1	PSI
SIN Nord	-27.5	115.3	3.5	8.6	3.8	PSI
Abfallgrube	-26.7	111.2	2.6	4.5	3.0	PSI
Au	-30.6	116.4	2.6	9.7	3.0	PSI
Wasserkraftwerk	-29.3	106.6	3.5	-0.1	3.8	KKB
Strick	-31.0	114.2	2.7	7.5	3.1	KKL
Büel	-31.0	119.6	2.7	12.9	3.1	KKL
Gischberg Schiessplatz	-31.9	115.7	3.6	9.0	3.9	KKL
Finstergraben	-30.3	135.6	3.6	28.9	3.9	KKL
Ried	-30.6	199.8	2.8	93.1	3.2	KKL
Schiebenacker	-31.3	139.7	2.7	33.0	3.1	KKL
Full (Rüttistr. 383)	-30.4	137.3	2.7	30.6	3.1	KKL
Fullerfeld	-32.8	127.2	3.6	20.5	3.9	KKL
Schlüsselgraben	-31.6	184.8	2.7	78.1	3.1	KKL
Meteostation "319"	-28.4	163.1	2.8	56.4	3.2	KKL
Seel	-32.7	143.6	2.7	36.9	3.1	KKL
Feld Schiessplatz	-30.2	231.4	3.8	124.7	4.1	KKL
Matschmulde	-33.4	185.5	3.7	78.8	4.0	KKL
Unterem Tal	-33.7	163.4	2.7	56.7	3.1	KKL
Chlämmi	-29.6	160.2	2.7	53.5	3.1	KKL
KKWL Schiessplatz	-28.1	145.3	2.7	38.6	3.1	KKL
Wermet	-29.3	147.5	2.8	40.8	3.2	KKL
Station Leibstadt	-31.1	146.5	2.7	39.8	3.1	KKL
Weidhof	-33.5	123.1	2.7	16.4	3.1	KKL
Laufenburg	-32.7	108.6	2.7	1.9	3.1	KKL
Lagerholzli	-30.4	122.8	3.6	16.1	3.9	KKL
Birrhalden	-31.4	119.9	2.7	13.2	3.1	KKL
Linden grosser Kirschbaum	-29.1	121.1	3.6	14.4	3.9	KKL

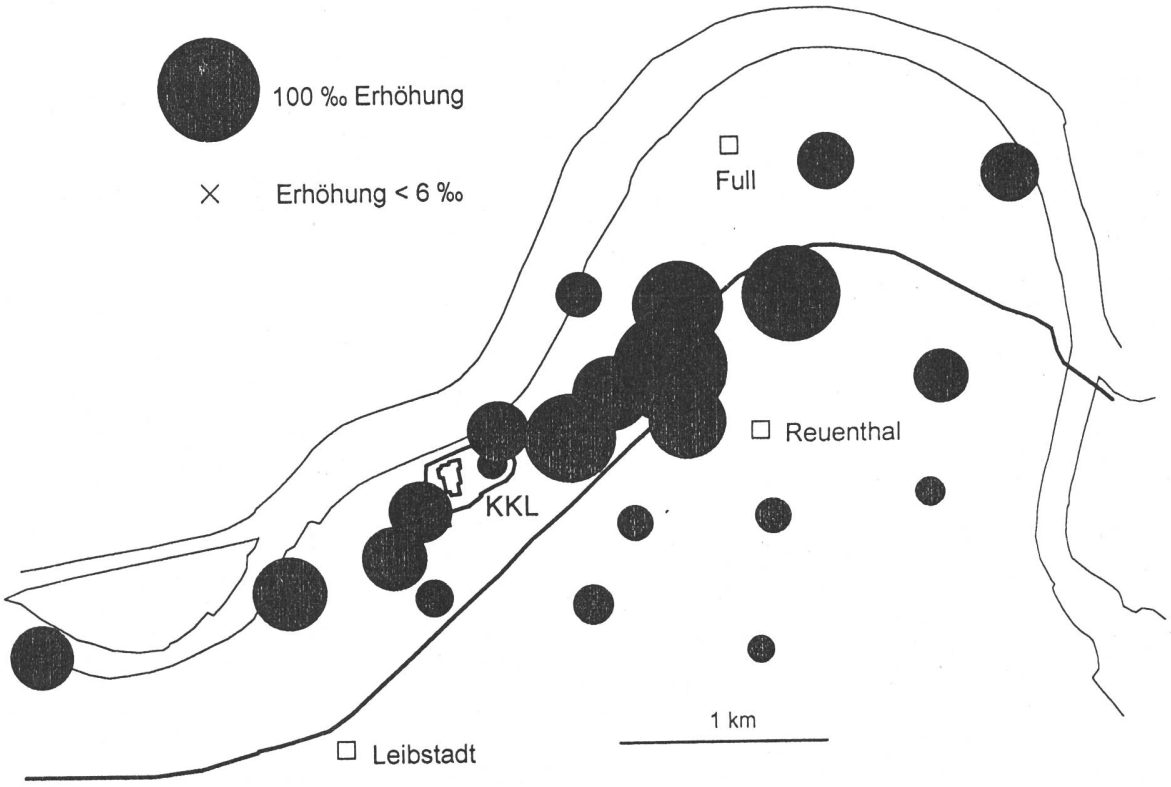
Figur 1: $\Delta^{14}C$-Konzentrationen in Buchenblättern von den Referenzstationen

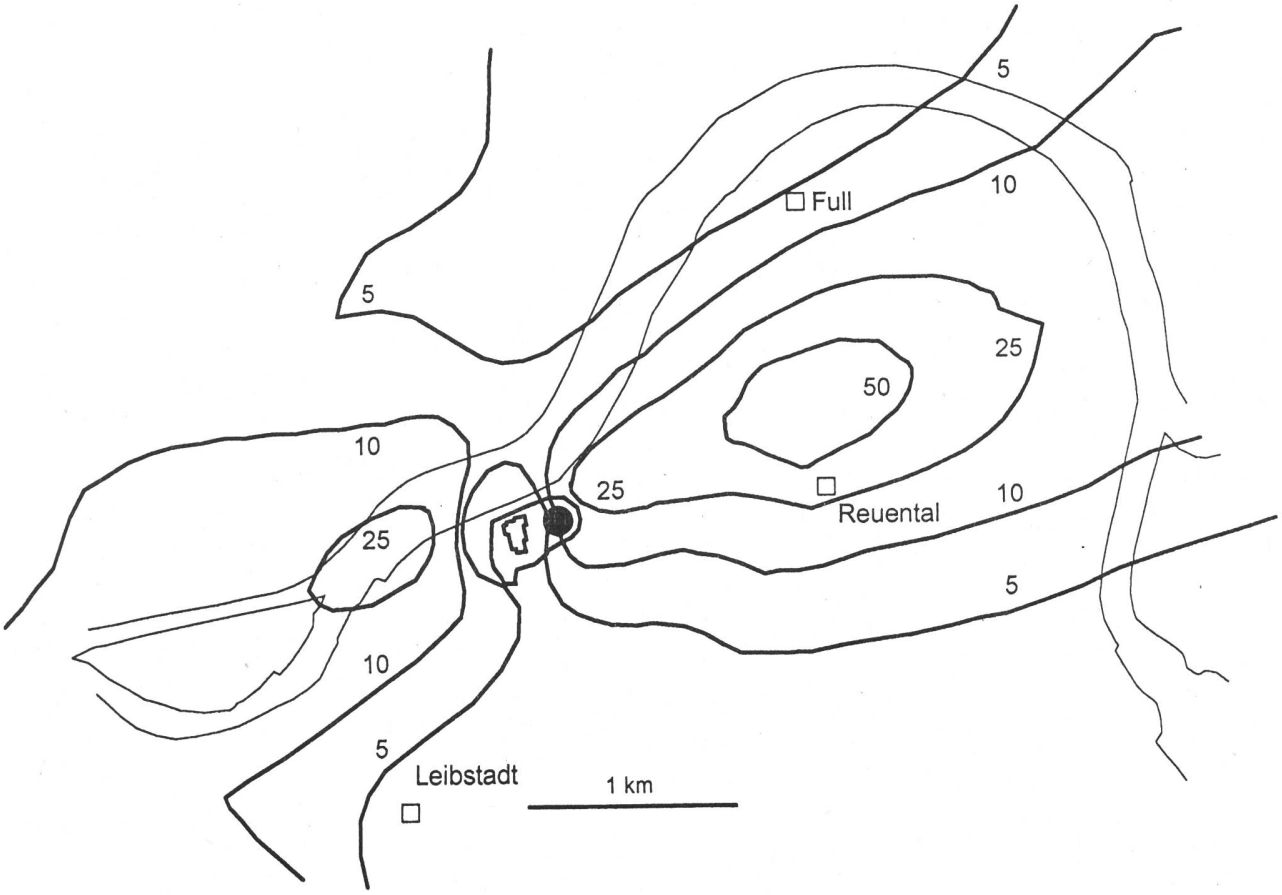


Figur 2: Ausbreitung der ^{14}C-Aktivität in der Umgebung des KKL in den beiden Hauptwindrichtungen

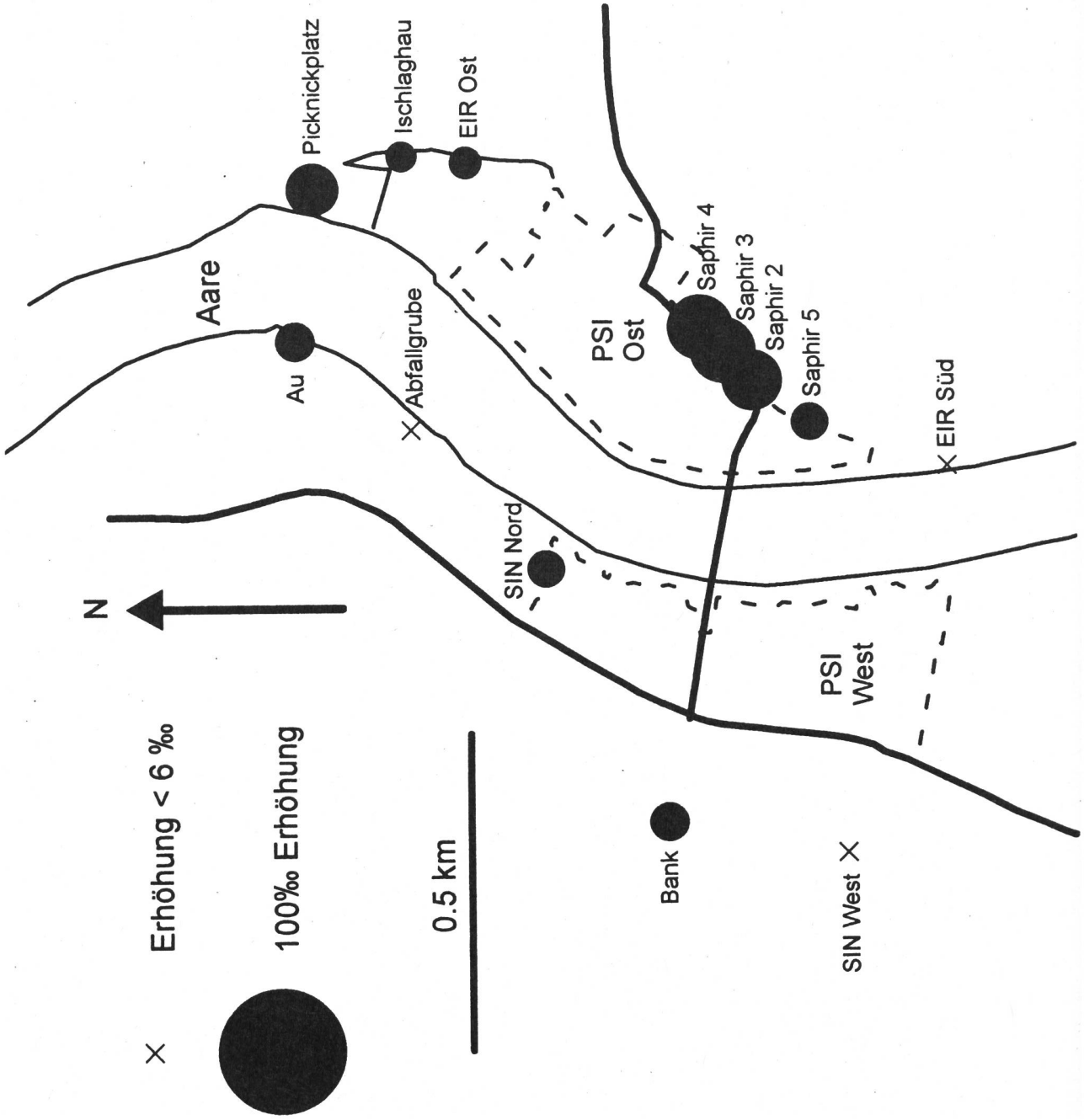


Figur 3: oben: Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung vom KKW Leibstadt (1997)
unten: zum Vergleich: Netto $\Delta^{14}C$-Werte aus Modellberechnungen der HSK

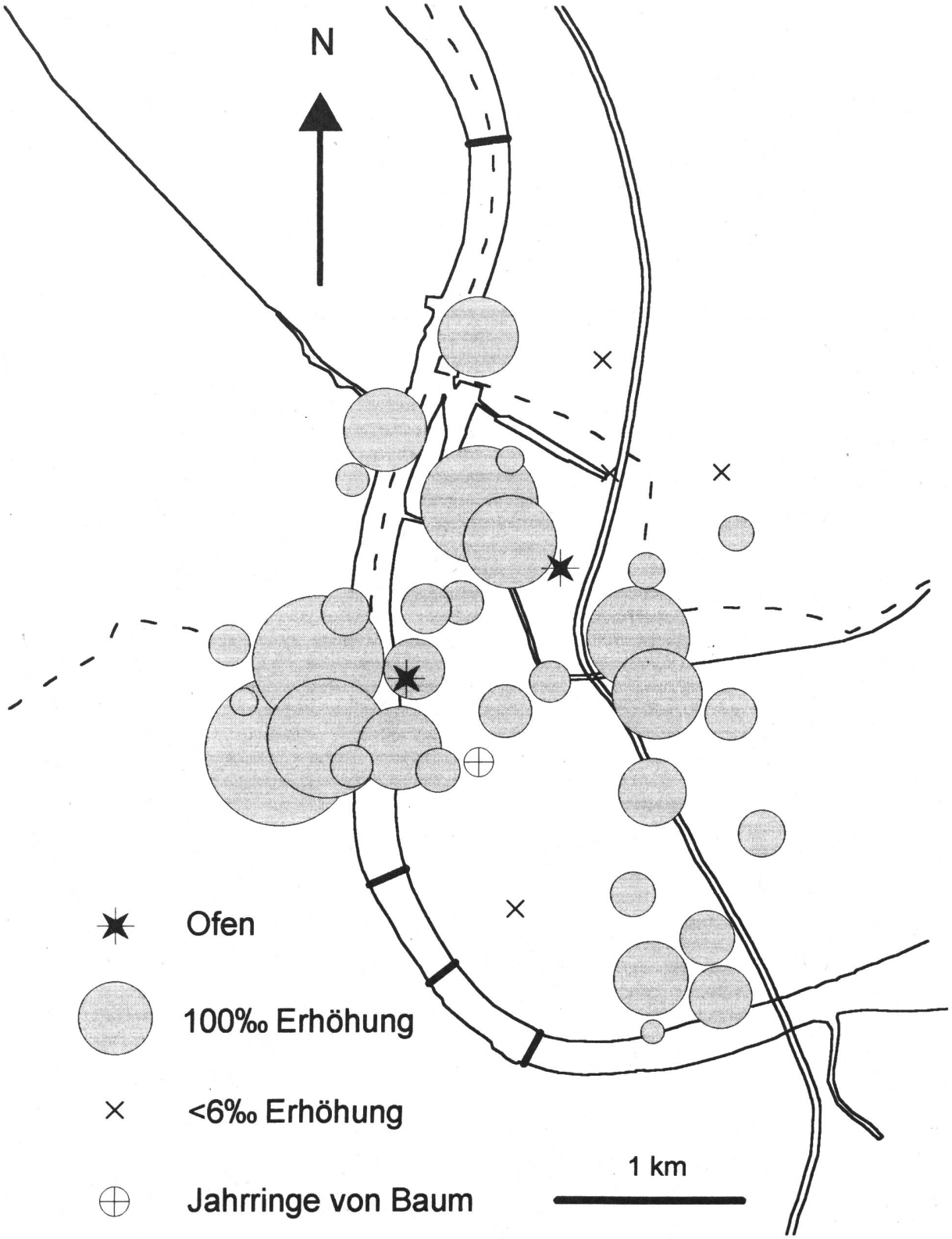




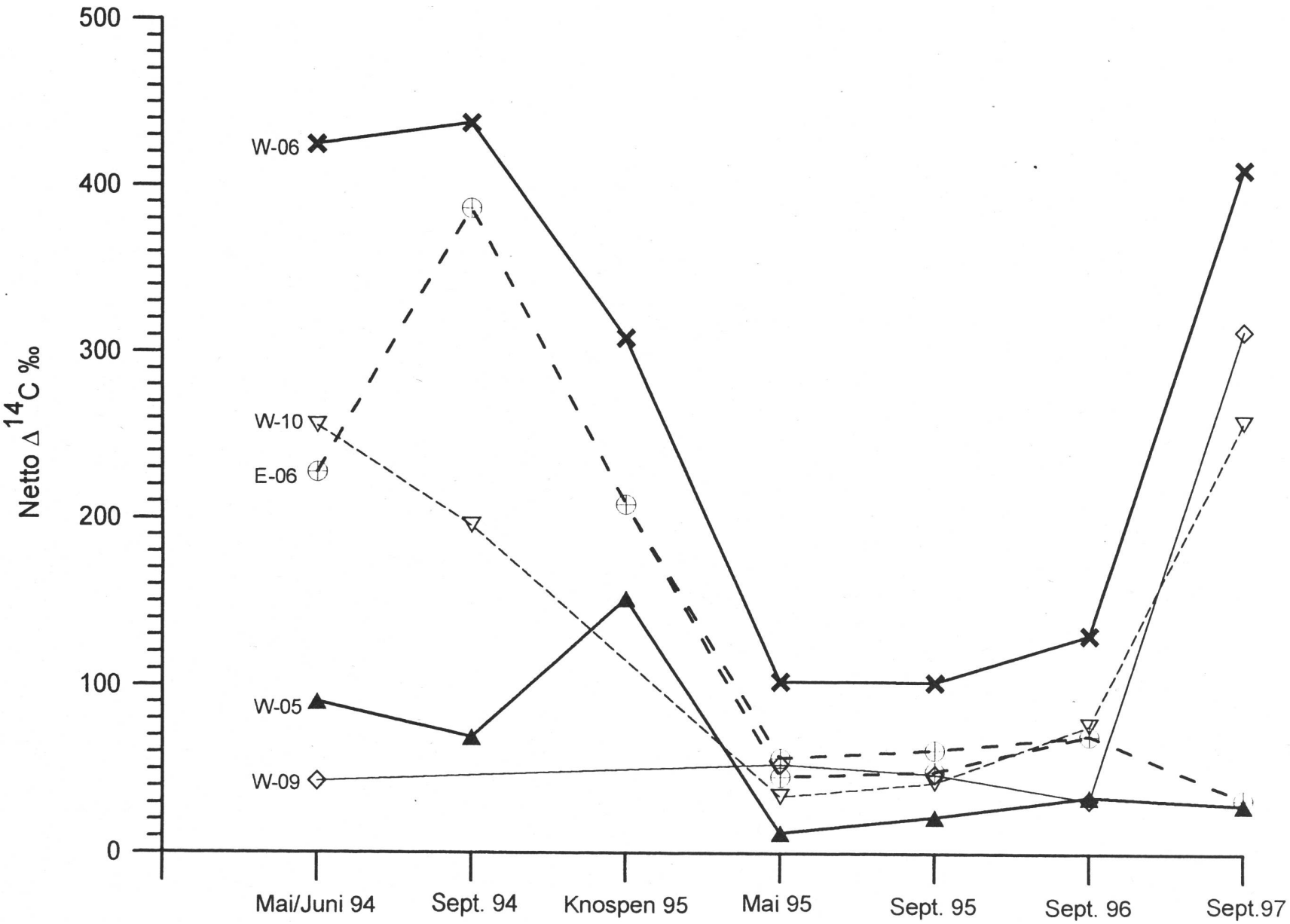
Figur 4: Netto $\Delta^{14}C$-Aktivität in der Umgebung des PSI, 1997

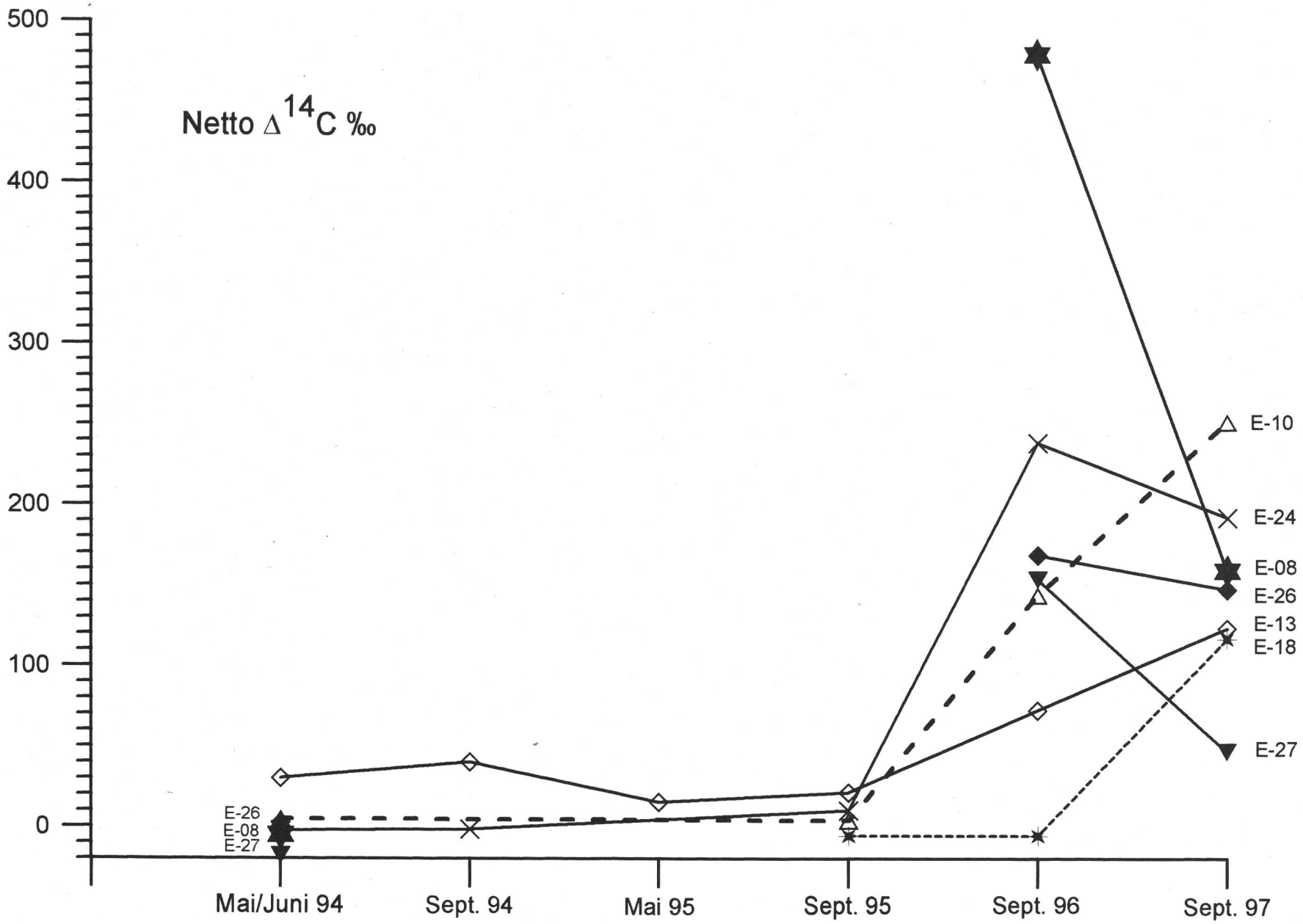


Figur 5: Netto $\Delta^{14}C$-Werte, Herbst 1997

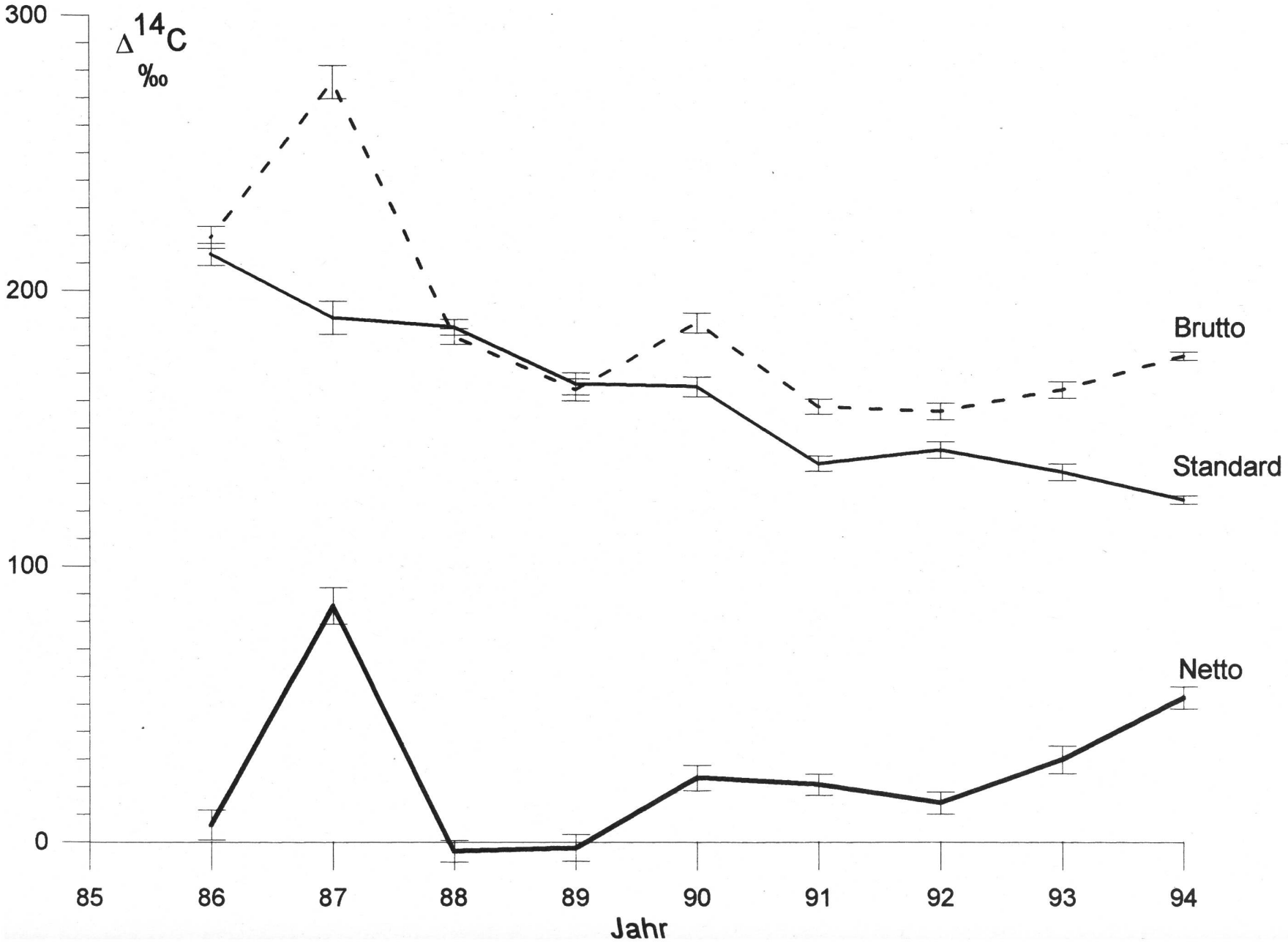


Figur 6: Netto $\Delta^{14}C$-Werte in Basel



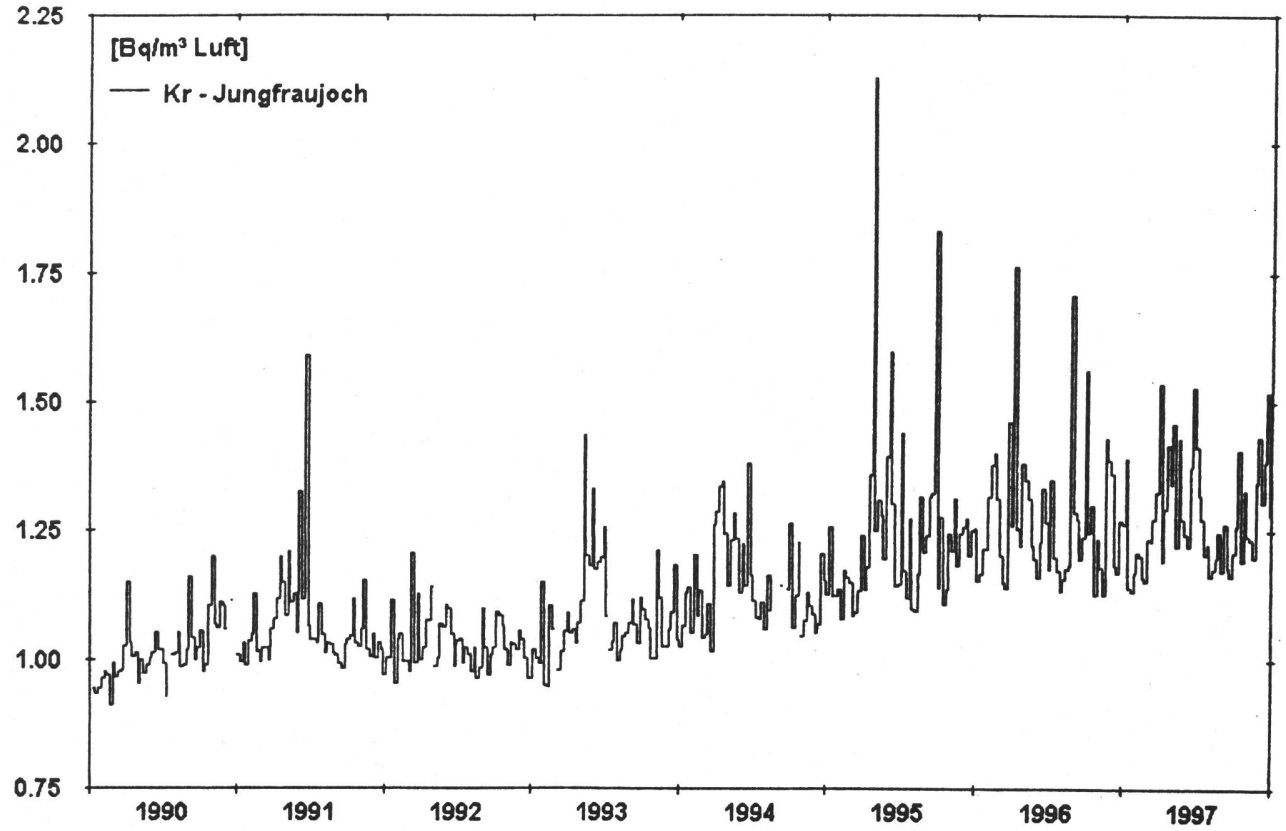


Figur 7: Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens Basel



Figur 8: Baumring ^{14}C-Aktivität - Müllheimerstrasse

Figur 9: ^{85}Kr in der Bodenluft Freiburg / Breisgau und Jungfraujoch: 1990-1997 (oben) und 1997 (unten)



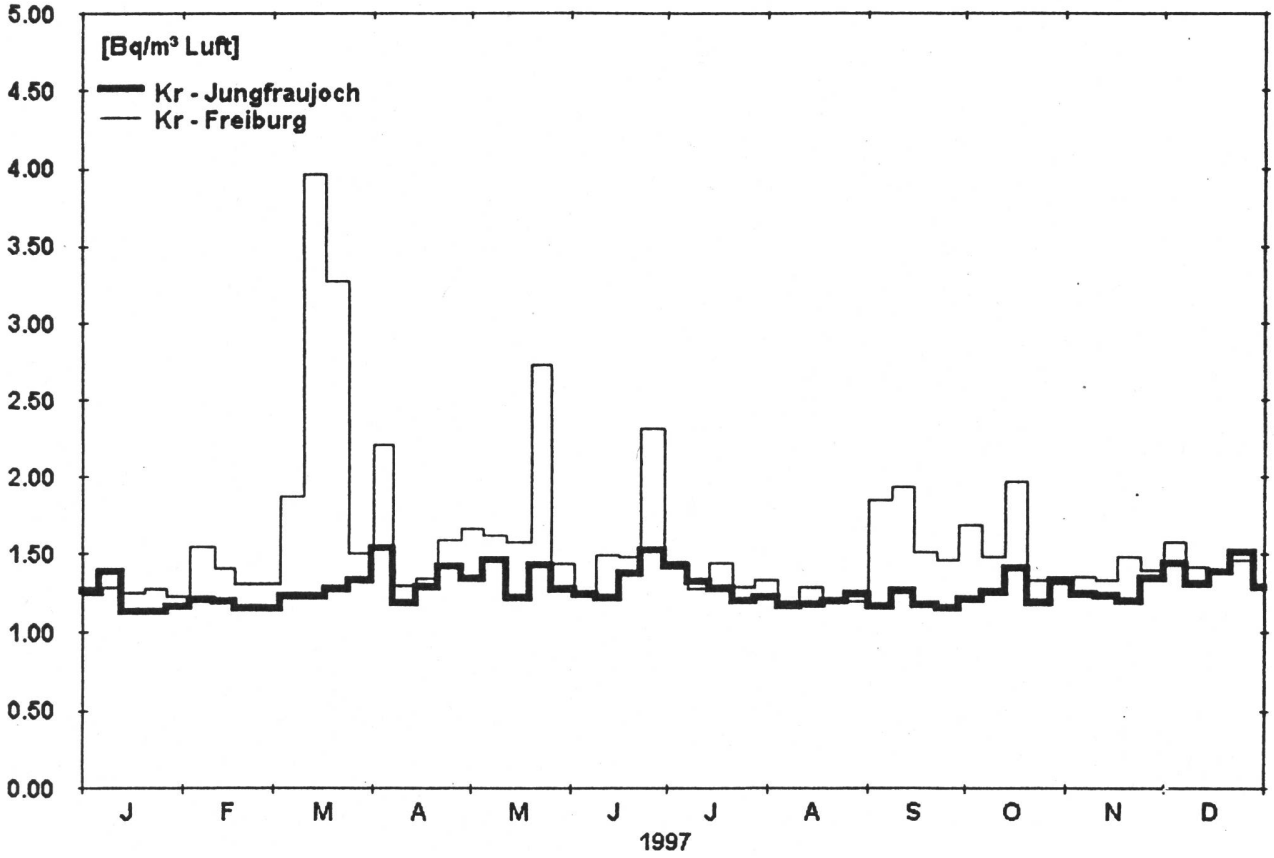
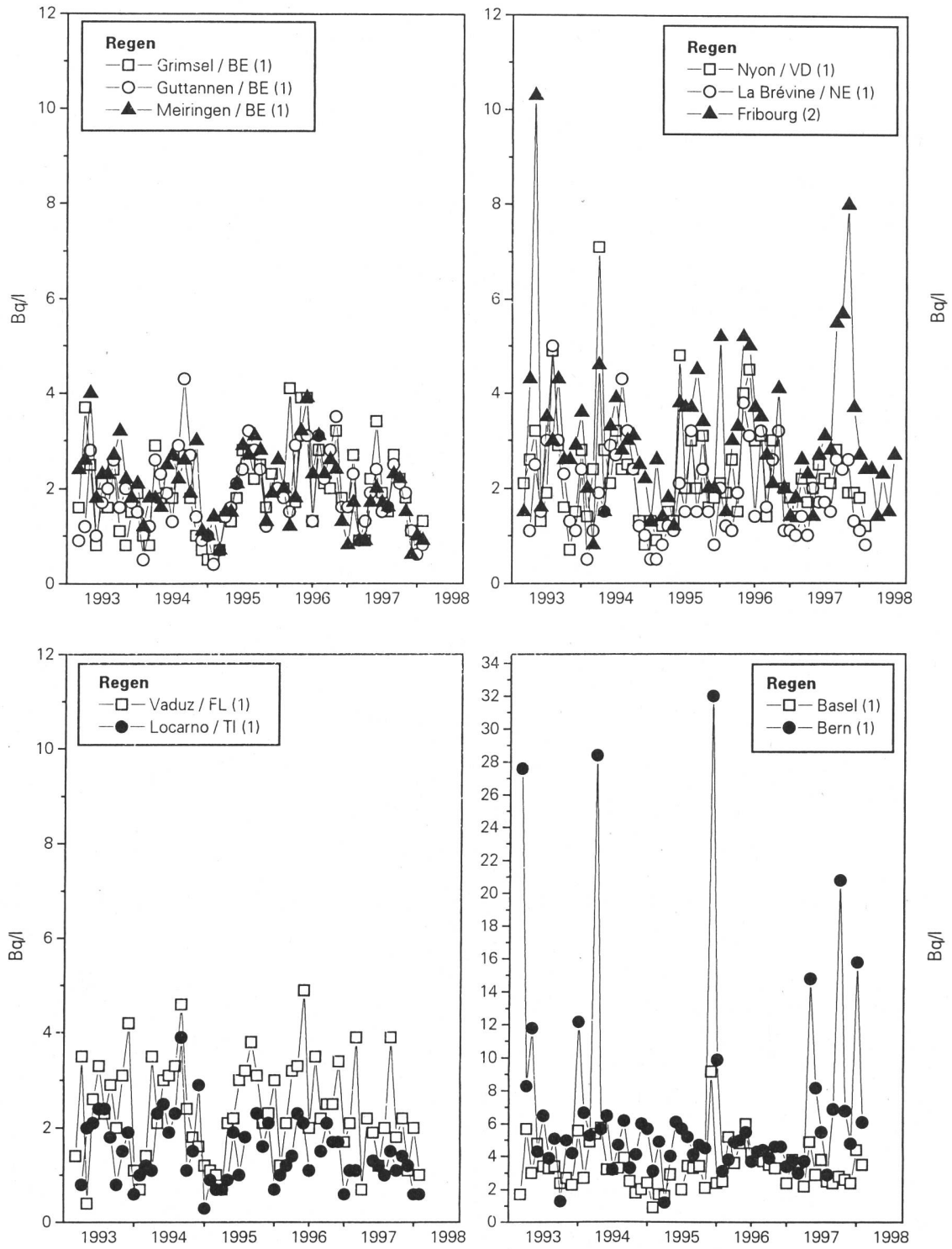
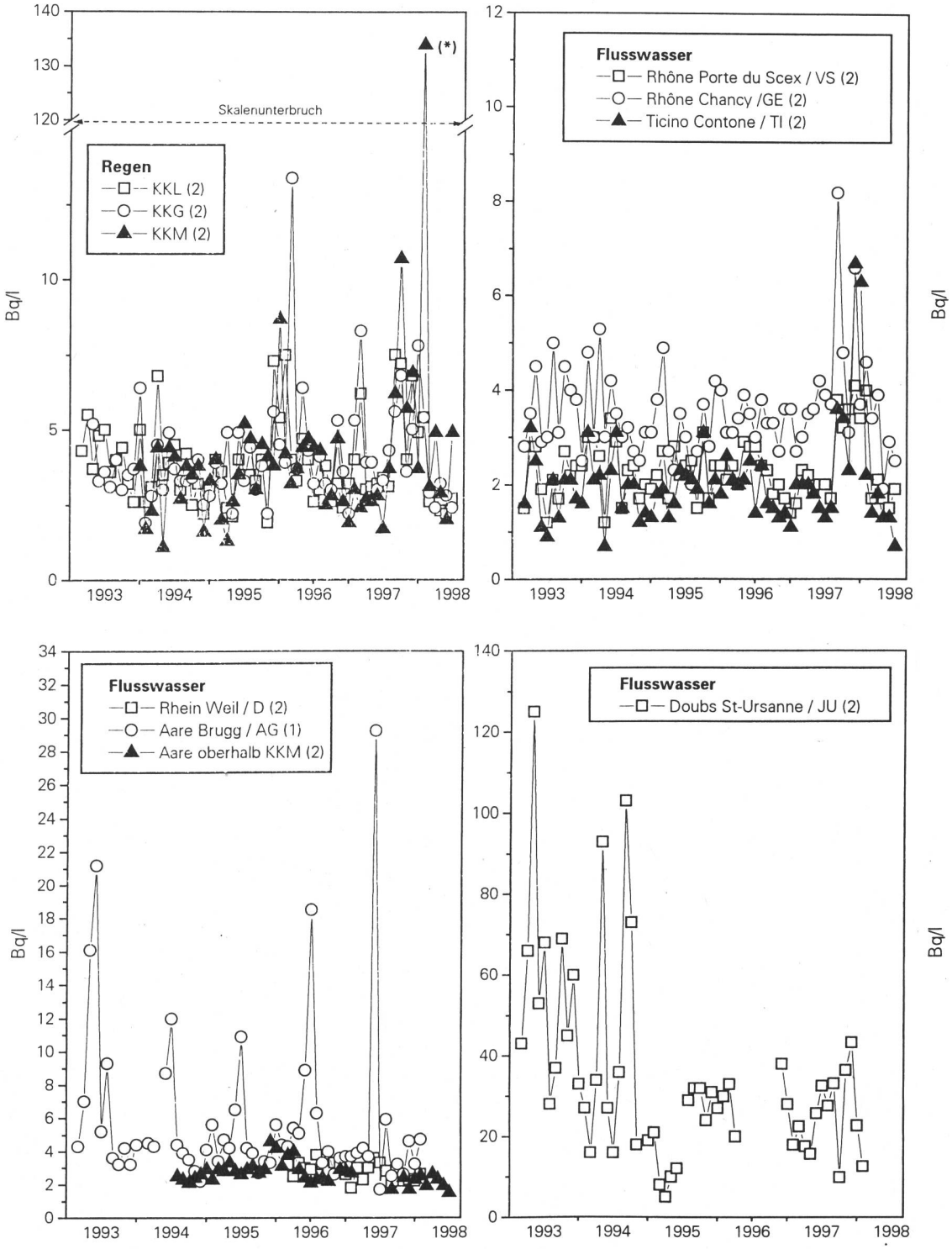


Fig.10a Tritium in Niederschlägen 1993 – 1997



1) Messung: Physikalisches Institut, Universität Bern (U. Schotterer und H. Bürki)
2) Messung: Sektion Überwachung der Radioaktivität, Fribourg (H. Völkle und A. Gurtner)
(Nachgrenzweise: Uni Bern : 0.1...0.3 Bq/l; SUER: 0.5 Bq/l)

Fig.10b Tritium in Niederschlägen und Flüssen 1993 – 1997



1) Messung: Physikalisches Institut, Universität Bern (U. Schotterer und H. Bürki)
2) Messung: Sektion Überwachung der Radioaktivität, Fribourg (H. Völkle und A. Gurtner)
(*) vermutete Tritium-Angabe eines Betriebes in der Region Bern (s. B4.1)
(Nachgrenzweise: Uni Bern : 0.1...0.3 Bq/l; SUER: 0.5 Bq/l)

7.2. Mesures de strontium-90 dans le sol, l'herbe, le lait et le froment

J.-J. Geering, P. Froidevaux, J.-F. Valley Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

M. Burger, R. Holzer AC-Laboratorium Spiez
Gruppe Rüstung, VBS, 3700 SPIEZ

V. Figueiredo, A. Herrmann Kantonales Laboratorium BS, 4012 BASEL

Résumé

En 1997, les déterminations de ^{90}Sr dans des échantillons de sol, d'herbe, de lait et de froment ont été effectuées selon le plan de prélèvement réduit établi en accord avec la Section surveillance de la radioactivité de l'OFSP. Les résultats restent comparables à ceux des années précédentes. Aucune augmentation de l'activité du ^{90}Sr n'a pu être mise en évidence aux alentours des centrales nucléaires. En plaine, on a mesuré, en 1997, 1,3 à 9,2 Bq/kg de ^{90}Sr dans le sol, 0,9 à 8,3 Bq/kg dans l'herbe, 0,03 à 0,4 Bq/l dans le lait et 0,35 à 0,84 Bq/kg dans le blé.

7.2.1. Introduction

Le ^{90}Sr présent actuellement dans l'environnement provient essentiellement des retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante. Comme ce nuclide se fixe préférentiellement dans les tissus calcifiés, chez l'homme, il est important de connaître la concentration de ce radioélément depuis le sol jusque dans la chaîne alimentaire et de définir son comportement dans l'environnement [1,2].

Le plan d'analyses de ^{90}Sr, établi en 1987 à la suite de l'accident de Tchernobyl, a été grandement simplifié, en accord avec l'OFSP, de manière à pouvoir surveiller l'ensemble du territoire Suisse par l'analyse d'un minimum d'échantillons représentatifs. Les déterminations de ^{90}Sr ont porté, en 1997, principalement sur des échantillons de sol (couche de 0 à 5 cm de profondeur), d'herbe et de lait provenant des environs des centrales nucléaires (Beznau, Mühleberg, Gösgen et Leibstadt). De plus, des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été collectés sur les sites de plaine suivants, éloignés de toute source de contamination: Arenenberg (TG), Grangeneuve (FR), Fahrni (BE), Diesse (BE), Rodi (TI), Sessa (TI), Sissach (BL) et aux points d'altitude suivants: Davos (GR), ainsi que Gimmelwald et Allmendhubel près de Mürren (BE). Des échantillons de lait ont été collectés à Rasa (TI), Saignelégier (JU), Vendlincourt (JU) et Beurnevésin (JU). Des déterminations de ^{90}Sr ont également été faites sur des mélanges de blés représentatifs de l'ensemble des régions de production de Suisse et des environs des centrales nucléaires.

La mise en solution des échantillons de sol et d'herbe, effectuée jusqu'en 1996 par une fusion alcaline [3] permettant la dissolution complète de l'échantillon, a été remplacée à l'IRA par une désorption par micro-ondes, sous pression, dans une autoclave Ecoclav 350.

Cette méthode de mise en solution, plus rapide, donne des résultats comparables à la fusion alcaline.

7.2.2. Résultats de la surveillance

Les déterminations de ^{90}Sr dans le sol, l'herbe et le lait des sites de Fahrni, Diesse et de la région de Mürren (Gimmelwald et Allmendhubel) ont été effectuées par le laboratoire AC de Spiez. L'analyse dans le lait de Mühleberg a été faite par le laboratoire cantonal de Berne. Les résultats de mesure du ^{90}Sr des laits de Sissach, Rasa, Rodi, Sessa, Saignelégier, Vendlincourt et Beurnevésin ont été fournis par le laboratoire cantonal de Bâle-Ville.

Les marges d'erreur sur les résultats individuels indiquent l'écart-type (comptage et séparation chimique).

Sol

Les activités en ^{90}Sr mesurées en 1996 et 1997 dans le sol sont reportées dans le tableau 1.

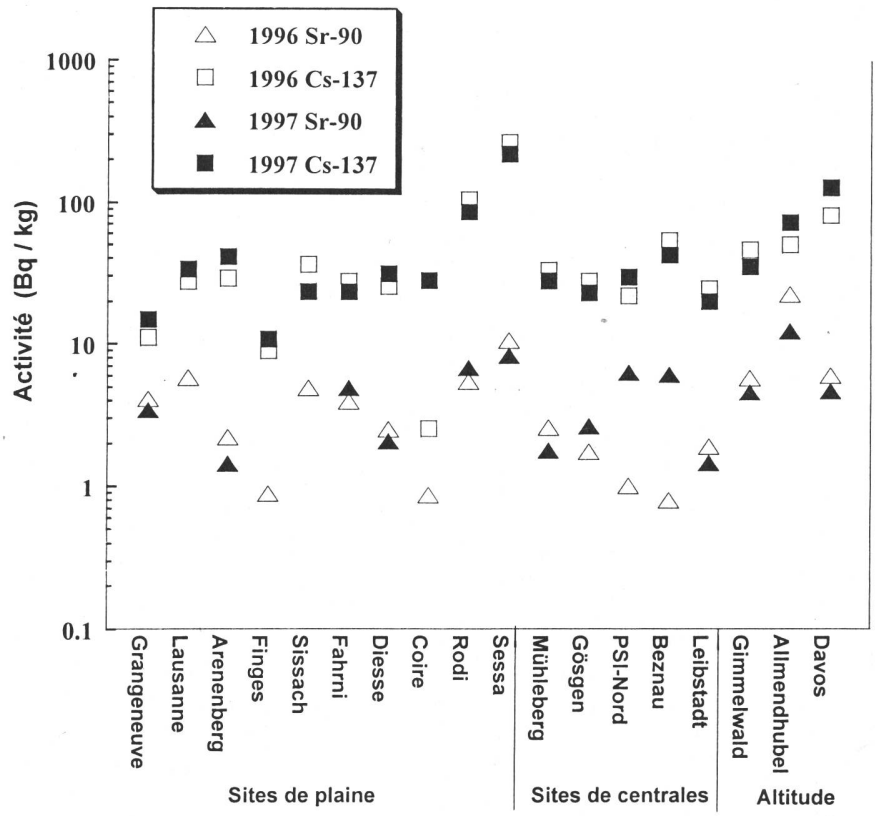
Au voisinage des centrales nucléaires, les activités en ^{90}Sr ne diffèrent pas des valeurs mesurées sur les sites de référence et se situent dans la même fourchette. Ces activités sont comparables aux valeurs obtenues les années précédentes. Les sites en altitude présentent des activités plus élevées qu'en plaine. L'effet de l'altitude est particulièrement frappant pour les prélèvements de sol, d'herbe et de lait à Allmendhubel et à Davos, mais moins prononcé à Gimmelwald. A Davos, la forte teneur en matières organiques du sol contribue, en plus de l'altitude, à l'activité élevée en ^{90}Sr. Comme les déterminations dans le sol se limitent à la couche de 0 à 5 cm de profondeur, la vitesse de migration du ^{90}Sr dans les couches plus profondes du sol a également une influence sur l'activité de ce nuclide

Tableau 1: Concentration en ^{90}Sr dans le sol (Bq/kg MS*)

	1996	1997
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	1,0 - 2,6	1,4 - 6,3
Sites de plaine	0,8 - 9,7	1,3 - 9,2
Sites en altitude		
Davos (GR)	6,1±0,3	4,7±0,3
Gimmelwald	5,3±0,5	5,1±0,2
Allmendhubel (BE)	22.7±3,4	12.4±0,6

* matière sèche

Figure 1: Concentration radioactive du ^{90}Sr et du ^{137}Cs dans les sols en 1996 et 1997



La figure 1, qui présente les activités en ^{90}Sr et en ^{137}Cs des sols individuels, montre qu'à quelques exceptions près (Coire, Beznau et PSI), inexpliquées à ce jour, les activités en ^{90}Sr et en ^{137}Cs ne varient que peu d'une année à l'autre, et que, pour un même site, les activités de ces deux nuclides sont corrélées avec un rapport ^{137}Cs / ^{90}Sr en moyenne proche de 10. Dans les retombées des années soixante, ce rapport est estimé à 1,6 [4], ces deux nucléides ne subissant pas de fractionnement au moment de l'explosion. Les valeurs plus élevées de ce rapport mesurées actuellement dans le sol s'expliquent par la vitesse de migration dans les sols du strontium plus grande que celle du césium, ainsi que par l'apport dû à l'accident de Tchernobyl. Comme le montre la figure 1, l'activité en ^{90}Sr et du ^{137}Cs du sol au voisinage des sites de centrales nucléaires ne diffère pas des autres sites de plaine.

Herbe

Les résultats sont présentés dans le tableau 2. Comme les années précédentes, les activités en ^{90}Sr et en ^{137}Cs dans l'herbe des sites de montagne sont plus élevées, et reflètent les activités mesurées dans les sols correspondants. La situation est la même pour le ^{137}Cs (voir chapitre B5.1.). La fixation du ^{90}Sr du sol par la plante dépend plus de la teneur en calcium du sol que de celle en strontium [5]. Elle dépend aussi des espèces végétales, pouvant grandement varier d'une saison à l'autre. Le stade de croissance au moment de la coupe joue aussi un rôle.

Alors que dans l'herbe l'activité du ^{137}Cs, mesurée par spectrométrie γ (voir chapitre B.5.1.), reste en général en-dessous de la limite de détection (env. 1,3 Bq/kg), celle du ^{90}Sr, mesurée au compteur proportionnel, est actuellement encore supérieure à la limite de détection (env. 0,1 Bq/kg).

Tableau 2: Concentration en ^{90}Sr dans l'herbe (Bq/kg MS)

		1996	1997
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI		1,2 - 8,0	1,4 - 4,6
Sites de plaine		0,5 - 22,3	0,8 - 8,3
Sites en altitude			
Davos (GR)	été	7,7 ±0,4	12,0 ±0,7
	automne	17,9 ±0,9	11,9 ±0,7
Gimmelwald (BE)		2,2 ±0,2	3,4 ±0,2
Allmendhubel (BE)		28,3 ±2,3	42,6 ±2,1

Froment

Les activités en ^{90}Sr mesurées en 1997 dans des mélanges de blés représentatifs du voisinage des centrales nucléaires et des 8 zones de production du territoire suisse, confirment les résultats mesurés les années précédentes. Les activités sont comprises entre 0,35 et 0,84 Bq/kg (0,37 et 0,80 Bq/kg en 1996).

Lait

Le tableau 3 présente les résultats des analyses de ^{90}Sr dans le lait, comparés aux résultats de 1996. Dans les sites de plaine, l'activité en ^{90}Sr du lait est restée très stable et inférieure à 0,13 Bq/litre, sauf à Rodi et à Sessa où elle atteint environ 0,3 Bq/litre. Les activités mesurées dans les laits de montagne sont plus élevées et présentent de grandes fluctuations d'une année à l'autre, et même entre saisons, qui s'expliquent en partie par les différentes conditions d'affourragement du bétail et de l'altitude. L'ensemble de ces résultats confirme ceux des années précédentes et reflète les activités mesurées dans le sol et l'herbe.

Tableau 3: Concentration en ^{90}Sr dans le lait (Bq/l)

		1996	1997
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI		0,07 -0,09	0,05 -0,10
	moyenne	0,08±0,01	0,08±0,01
Sites de plaine		0,02 -0,16	0,03 -0,13
	moyenne	0,07±0,03	0,07±0,03
Exceptions:	Rodi (TI)	0,18±0,03	0,26±0,04
	Sessa (TI)	0,26±0,07	0,28±0,03
Sites en altitude			
Davos (GR)	été	0,12±0,01	0,45±0,03
	automne	0,37±0,02	0,26±0,02
Gimmelwald (BE)	été	0,12±0,01	0,15±0,01
Allmendhubel (BE)	été	0,54±0,05	0,57±0,03
Rasa (TI)	été	0,38±0,03	0,27±0,03
	automne	0,33±0,01	0,15±0,01

7.2.3. Facteurs de transfert

Les facteurs de transfert sol-herbe et herbe-lait ont été déterminés depuis 1990 sur les sites où des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été prélevés simultanément. Les moyennes de ces facteurs, mesurés de 1990 à 1998, sont reportées dans le tableau 4.

Tableau 4: Facteurs de transfert . Moyennes pour 1990-1998

	Sol-herbe $(Bq/kg\ MS)_{herbe}/(Bq/kg\ MS)_{sol}$ **Rapportés à la masse**	**Herbe-lait** $(Bq/g\ Ca)_{lait}/(Bq/g\ Ca)_{herbe}$ **Rapportés au calcium**
Arenenberg	0,9 ± 0,2	0,13 ± 0,04
Grangeneuve	1,4 ± 0,4	0,16 ± 0,06
Lausanne	2,4 ± 1,2	0,13 ± 0,05
Finges	2,4 ± 0,7	0,17 ± 0,09
Coire	1,4 ± 0,7	0,44 ± 0,20
Davos	1,4 ± 0,5	0,16 ± 0,09

Les marges d'erreur indiquent la fluctuation statistique entre les mesures au niveau de confiance de 95 %.

Les fluctuations des facteurs de transfert observées entre points de prélèvement résultent de l'interaction de nombreux paramètres locaux: caractéristiques physicochimiques du sol

(pH, potentiel redox, capacité d'échange, teneur en calcium, et en matières organiques, etc.), espèces végétales, stade et vitesse de croissance, conditions météorologiques, topographie [6]. Certains de ces paramètres peuvent même varier à l'intérieur d'un même domaine agricole. Si l'on ne tient pas compte de la valeur particulièrement élevée et encore inexpliquée mesurée à Coire (0,44±0,20), on constate que la dispersion des facteurs de transfert herbe-lait, rapportés au calcium, est remarquablement plus faible (0,13 à 0,17) que pour les facteurs sol-herbe rapportés à la masse (0,9 à 2,4), car le strontium et le calcium ont un comportement analogue, mais non identique, dans la chaîne alimentaire.

7.2.4. Conclusions

Les déterminations de ^{90}Sr effectuées en Suisse en 1997 dans le sol, l'herbe, le lait et le blé confirment les résultats obtenus les années précédentes. Dans aucun des échantillons analysés on n'a observé une augmentation de l'activité de ce nucléide, en particulier aux alentours des centrales nucléaires. Les activités en ^{90}Sr dans le sol, l'herbe et le lait les plus élevées ont été mesurées en montagne (Mürren, Davos), ainsi qu'à Sessa qui constitue une exception pour les sites de plaine. Dans les sols, les activités en ^{90}Sr sont environ 10 fois plus faibles que celles du ^{137}Cs. Comme pour le ^{90}Sr, l'activité en ^{137}Cs des sols de montagne est plus élevée qu'en plaine. Dans la plupart des autres échantillons (herbe, lait, etc), l'activité en ^{137}Cs est inférieure à la limite de détection. Les facteurs de transfert mesurés de 1990 à 1997 sont compris entre 0,9 et 2,4 pour le transfert sol-herbe, entre 0,13 et 0,17 pour le transfert herbe-lait, sauf à Coire, où ce facteur est de 0,44.

Remerciements

Nous tenons à remercier toutes les personnes qui ont contribué à ce travail en fournissant les échantillons, en particulier la section de surveillance de la radioactivité à Fribourg et les laboratoires cantonaux.

Bibliographie

[1] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1982.

[2] Some Aspects of Strontium Radiobiology, NCRP Report N0. 110, Bethesda, 1991, p. 38-48.

[3] J.-J. Geering, C. Friedli, P. Lerch, Method of Determination of Strontium-90 in the Environment, J. Trace and Microprobe Techniques, 8, 211-230 (1990).

[4] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1969.

[5] Radioecology, Lectures in Environmental Radioactivity, Ed. E. Holm, Wold Scientific, London 1994.

[6] W. Steffens, W. Mittelstädt, F. Führ, The Transfer of Sr-90, Cs-137, Co-60 and Mn-54 from Soils to Plants. Results from Lysimeter Experiments, Pergamon Press, Oxford (1980), p.1139.

7.3. Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

J.-J. Geering, P. Froidevaux, T. Buchillier, M. Kosinski, J.-F. Valley

Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

Résumé

Les déterminations de $^{239/240}Pu$ et de ^{238}Pu effectuées en 1997 ont porté sur des échantillons de sols, de sédiments, d'eaux et de filtres aérosol. L'activité en $^{239/240}Pu$ est comprise entre 0.1 et 1.6 Bq/kg dans le sol et entre 0.13 et 0.25 Bq/kg dans les sédiments ; dans l'air prélevé au moyen d'un filtre aérosol, on a mesuré 4.0 nBq/m^3 au Weissfluhjoch et 1.8 nBq/m^3 à Fribourg . Les détermination de ^{241}Am, pour lequel une méthode d'analyse a été développée, ont porté sur des échantillons de sols et de sédiments. La seule contamination décelable en plutonium et en américium provient des retombées des essais d'armes nucléaires en atmosphère. Des rapports moyens de $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ de 0.03 et de $^{241}Am/^{239/240}Pu$ de 0.45 ont été déterminés. Ces rapports sont indicatifs de la déposition atmosphérique des années soixante. Deux mesures d'américium à des profondeurs différentes dans un sol de Mühleberg ont montré que l'américium a migré en même temps que le plutonium. Les activités en plutonium mesurées sur les sédiments prélevés au printemps (1997) sont systématiquement plus élevées que les valeurs obtenues sur des sédiments prélevés en été (1994 à 1996). Des effets de sédimentation dépendants des saisons sont sans doute à la source de cette différence mais cela doit encore être confirmé par des mesures complémentaires.

7.3.1 Introduction

Depuis quelques années, nous avons entrepris la détermination du plutonium dans le sol, les sédiments, l'eau et l'air de Suisse. En 1997, une méthode permettant la détermination de l'américium sur ces mêmes échantillons a été développée. Les résultats préliminaires obtenus pour l'américium dans quelques sols et sédiments sont présentés en deuxième partie de ce rapport. La méthode séquentielle utilisée pour déterminer ces deux radionucléides est brièvement présentée ci-dessous.

7.3.2 Méthode

La méthode de séparation chimique utilisée en 1997 a été développée à partir de la méthode de EML (1995). Elle comprend les étapes suivantes :

1. L'échantillon de sol calciné à 550°C et broyé finement est marqué par ^{242}Pu et ^{243}Am puis les actinides sont désorbés 2 fois en milieu nitrique 8 M.

2. La solution est passée sur une colonne de résine anionique sur laquelle le plutonium est retenu. L'américium se trouve dans les éluats.

3. Le plutonium est élué, purifié une seconde fois sur colonne de résine anionique, électrodéposé sur disque d'acier et mesuré par spectrométrie α.

4. L'américium est coprécipité sous forme d'oxalate de calcium.

5. Après destruction de l'oxalate par HNO_3 conc. la fraction américium est passée sur résine spécifique TRU de Eichrom pour séparer l'américium des actinides encore présents.

6. La fraction contenant l'américium est purifiée des lanthanides sur résine TEVA de Eichrom.

7. L'américium est électrodéposé sur disque d'acier et mesuré par spéctrométrie α.

7.3.3 Mesures du plutonium dans le sol, les sédiments, l'eau et l'air

Introduction

La surveillance des divers isotopes de plutonium (principalement $^{239/240}Pu$ et ^{238}Pu) dans l'environnement est nécessaire à cause de leur radiotoxicité élevée. Afin d'estimer la dose due à la radioactivité de ce radionucléide artificiel, une connaissance détaillée de son comportement dans la biosphère est indispensable [1]. Depuis 1994 nous avons entrepris une campagne annuelle de détermination du $^{239/240}Pu$ ainsi que du ^{238}Pu dans l'air, l'eau de pluie (Fribourg) et de rivières (Rhône et Rhin) et principalement dans divers sols et sédiments.

En Suisse, et d'une manière générale dans l'hémisphère nord, le plutonium provient principalement des retombées des essais d'armes atomiques atmosphériques entre 1944 et 1963. La présence de ^{238}Pu est essentiellement le résultat de la désintégration de satellites dans la haute atmosphère, notamment du satellite SNAP-9A en 1964 [2].

Résultats de la surveillance

Concentration de plutonium dans les sols

Les points de prélèvements pour la mesure du plutonium dans le sol représentent tant l'environnement des centrales nucléaires que des régions de plaine et d'altitude.

Les résultats, rapportés au sol sec, sont présentés dans le Tableau 1. On ne constate pas de différence significative de l'activité en $^{239/240}Pu$ dans le sol entre les sites au voisinage des centrales nucléaires et les autres points de mesure situés en plaine. Pour les deux sites de prélèvement situés au Tessin, les activités mesurées sont supérieures d'un facteur deux aux valeurs obtenues pour les sites de plaine. La situation géographique du Tessin, sur le bassin versant sud des Alpes permet d'expliquer en partie cette augmentation d'activité par un apport latéral venant des Alpes. De plus, les conditions météorologiques sont très inégales sur l'ensemble de la Suisse ce qui rend particulièrement difficile la détermination d'un flux atmosphérique représentatif pour les retombées radioactives maximales du début des années soixante [3]. La figure permet de comparer les activités en ^{90}Sr, ^{137}Cs et $^{239/240}Pu$. On constate d'emblée que d'une manière générale, les activités se trouvent dans un rapport constant.

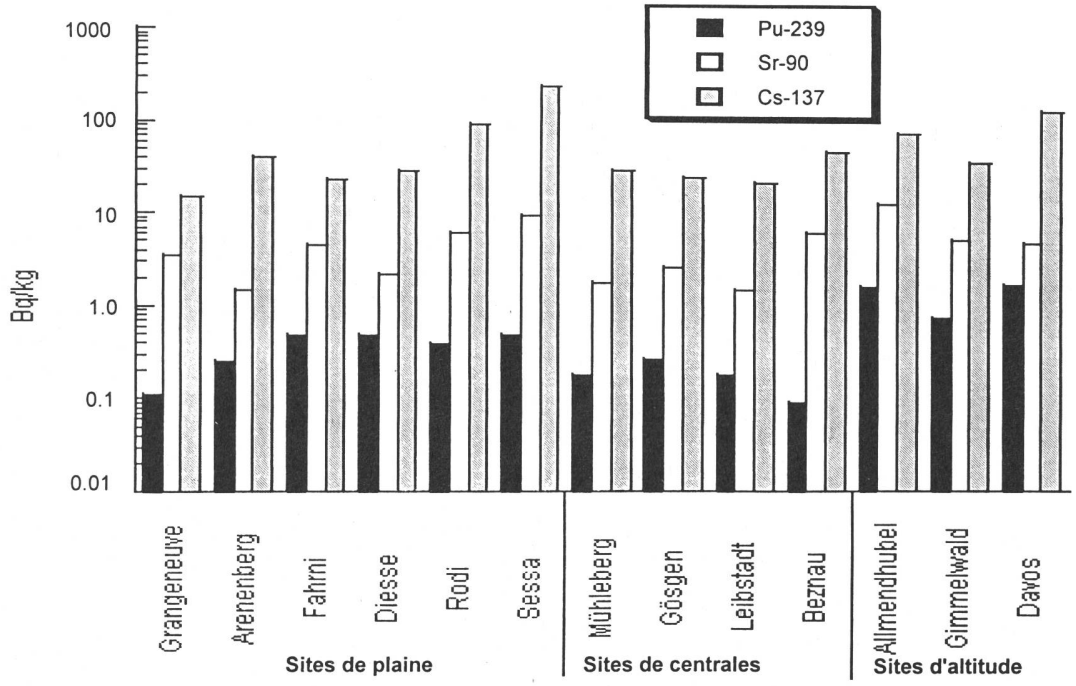
L'inventaire global dans les sols du ^{238}Pu et du $^{239/240}Pu$ ces vingt dernières années montre un rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ environ constant dans l'hémisphère nord et proche de 0.03, très significatif de la déposition radioactive des années soixante. Plus que la concentration en plutonium, qui est très dépendante des types de sols, de l'activité biologique et des conditions météorologiques, une variation significative de ce rapport est indicative de contaminations postérieures à ces événements. Ainsi un rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ de 25 a été déterminé dans l'air en octobre 1982 à Paris, indiquant très nettement une contamination industrielle [4]. Malheureusement, en absence de recoupements avec d'autres stations de mesures européennes, il n'a pas été possible d'en déterminer la cause.

En général, les activités mesurées sont variables d'un site de prélèvement à l'autre (voir Tableau 1) et souvent proches de la limite de détection. Le rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ mérite donc une attention particulière. Dans les sols étudiés ce dernier est remarquablement constant, malgré la difficulté à estimer l'activité du ^{238}Pu, et proche de la valeur de référence de 0.03. On conclut donc à l'absence de contamination ultérieure de l'environnement à un niveau décelable par les isotopes du plutonium.

Tableau 1 : Concentration en plutonium dans le sol en 1997 (couche de 0 à 5 cm)

	Concentration (Bq $^{239/240}Pu$/kg)	**Rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$**	**Rapport $^{239/240}Pu/^{90}Sr$**
Centrales nucléaire :			
Mühleberg (BE)	0.18±0.02	0.027±0.013	0.10±0.02
Gösgen (SO)	0.26±0.03	0.025±0.011	0.10±0.02
Leibstadt (AG)	0.18±0.02	0.027±0.010	0.12±0.02
Beznau (AG)	0.09±0.01	0.025±0.012	0.015±0.003
Sites en plaine :			
Grangeneuve (FR)	0.11±0.02	0.054±0.023	0.032±0.009
Arenenberg (TG)	0.25±0.03	0.034±0.015	0.17±0.04
Fahrni (BE)	0.49±0.06	0.014±0.005	0.11±0.02
Rodi (TI)	0.39±0.04	0.035±0.011	0.06±0.01
Sessa (TI)	0.47±0.06	0.038±0.016	0.05±0.01
Sites en altitude :			
Diesse (BE)	0.49±0.05	0.028±0.008	0.22±0.04
Allmendhubel (BE)	1.58±0.15	0.025±0.006	0.13±0.02
Gimmelwald (BE)	0.75±0.003	0.028±0.007	0.15±0.008
Davos (GR)	1.65±0.15	0.027±0.006	0.35±0.05

Figure 1 : Concentration en $^{239/240}Pu$, en ^{90}Sr et en ^{137}Cs dans le sol en 1997, en Bq/kg



Concentration en plutonium dans les sédiments

Les lacs et les fleuves servent souvent au refroidissement des réacteurs de centrales nucléaires. Une partie de la contamination de l'environnement due à l'exploitation d'un site nucléaire se retrouve dans les sédiments de ces écosystèmes aquatiques [5].

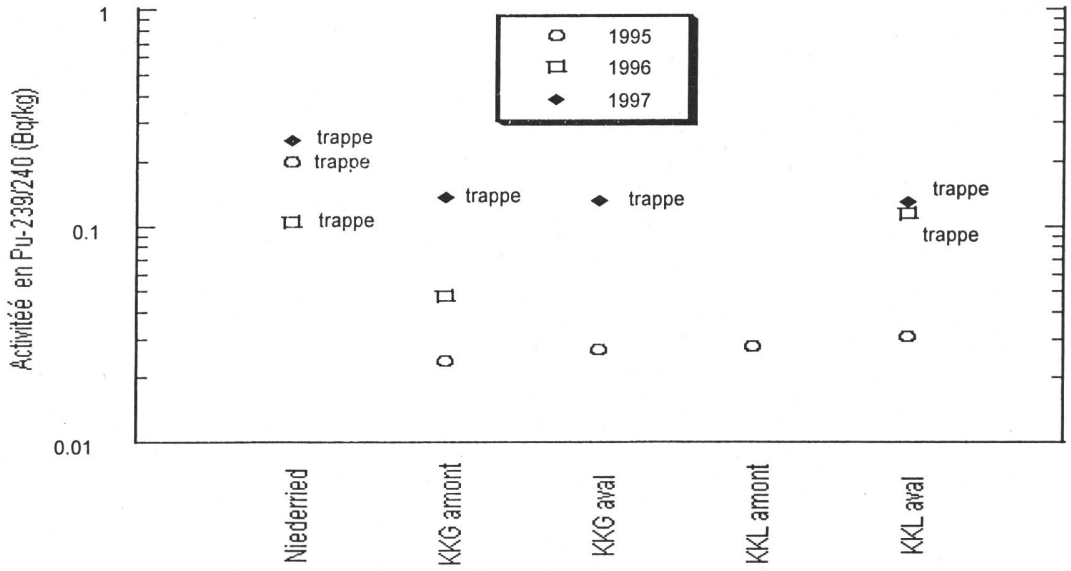
Sous certaines conditions, un comportement dynamique des radionucléides associés aux sédiments a pu être observé, conduisant à la mobilisation de petites fractions de contaminants [6]. Par exemple ^{137}Cs peut être désorbé hors des sédiments par les ions ammonium produits par la décomposition anaérobique de la matière organique durant la période d'été [6, 7].

En 1997, les analyses du plutonium ont porté sur des sédiments prélevés en aval des centrales nucléaires au moyen de trappes immergées à environ 30 cm sous le niveau de l'eau. Ce moyen a été préféré au prélèvement à la surface du sédiment car il est plus représentatif de l'activité ponctuelle de l'écosystème étudié. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2 et comparés à la Figure 2 aux résultats des années précédentes.

Tableau 2 : Concentration en plutonium dans des sédiments en 1997

Centrales nucléaires	Période de prélèvement	Concentration en $^{239/240}Pu$ (Bq/kg)	Rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$
Aval de Mühleberg			
Lac de Niederried	03.03-02.04.97	0.25±0.026	0.043±0.013
Aval de Gösgen et de Beznau			
Lac de Klingnau Sup.	03.03-03.04.97	0.135±0.015	0.009±0.004
Inf.		0.132±0.016	0.036±0.015
Aval de Leibstadt			
Rhin près d'Augst	03.03-03.04.97	0.128±0.016	0.031±0.016

Figure 2 : Concentration en $^{239/240}Pu$ dans les sédiments de 1995 à 1997



Les valeurs mesurées en 1997 sont systématiquement plus élevées, d'un facteur deux environ, que les valeurs obtenues en 1996 où la période de prélèvement était l'été (juillet). Pour les analyses de 1997, la période de prélèvement s'est effectuée au printemps (avril). Les activités plus élevées mesurées pour une période de prélèvement « froide » laissent supposer que le plutonium est mobilisé hors sédiments en période d'anoxie à la surface sédiments/eau correspondant à l'été.

La faculté des petits lacs à subir une stratification très importante devrait également être prise en compte lors de prélèvements de sédiments en surface à l'aide de trappes. Albrecht et al.[8] ont montré que la stratification du lac de Bienne en période chaude empêchait les eaux de l'Aar de se mélanger à celles du lac. Le prélèvement en surface n'est donc pas forcément représentatif de l'activité des sédiments sur une année.

Pour les analyses de sédiments, le rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ est à nouveau très proche de la valeur indicative des retombées atmosphériques des années soixante (0.03), qui restent la seule contamination de l'environnement par le plutonium actuellement mesurable.

Concentration en ^{238}Pu et $^{239/240}Pu$ dans l'air

L'activité en plutonium dans l'air provient essentiellement de la resuspension [9]. Cette dernière dépend, pour un emplacement donné, de nombreux facteurs tels que le régime des vents, la nature du sol, le coefficient de friction (friction entre une masse d'air et le sol) ainsi que de la vitesse de redéposition. La taille des particules associées au radionucléide est un élément particulièrement important du facteur de resuspension. La vitesse de resuspension croît avec la sécheresse du sol, spécialement pour des sols à faible couverture végétale. Elle croît également en situations de haute instabilité atmosphérique. D'un autre côté, la vitesse de redéposition croît brusquement pour des particules plus grandes que 1 μm [10].

Le facteur de resuspension, RF_{obs}, peut être estimé à partir du rapport entre la concentration mesurée dans l'air, C_a, et la concentration dans le sol par unité de surface C_s.
$RF_{obs} \cong [C_a]/[C_s]$

Pour la Suisse, l'intervalle de valeur de déposition atmosphérique du plutonium a été estimé entre 50 (sites de plaine) et 150 (sites d'altitude) Bqm^{-2} [3]. En introduisant ces valeurs ainsi que les valeurs de Fribourg et du Weissfluhjoch du Tableau 3 dans la formule précédente on calcule un facteur de resuspension RF_{obs} pour 1997 situé entre 2.7 10^{-11} et 3.6 10^{-11} m^{-1}.

Tableau 3 : Concentration en plutonium dans l'air

Emplacement	Année	Activité (nBq/m^3)	
		$^{239/240}Pu$	^{238}Pu
Fribourg	1994	1.36±0.25	1.47±0.25
Fribourg	1995	1.23±0.16	0.36±0.07
Fribourg	1996	<1.6	<0.6
Fribourg	1997	1.8±0.3	0.21±0.07
Weissfluhjoch	1996	1.9±0.8	1.1±0.2
Weissfluhjoch	1997	4.0±0.5	<0.3

Pour chaque déposition radioactive, le facteur de resuspension est dépendant du temps [11]. Les données disponibles après l'accident de Tchernobyl (1986) permettent d'évaluer un RF moyen d'environ 5 10^{-8} m^{-1} cent jours après l'accident et de 1 10^{-9} m^{-1} 1000 jours après l'accident [10]. Pour la catastrophe de Palomares, plus ancienne (1966), RF est estimé à environ 10^{-10} m^{-1} [9]. Le facteur moyen que nous venons de déterminer pour la Suisse, RF $\cong$ 3 10^{-11} m^{-1}, s'inscrit parfaitement dans les modèles de dépendance du temps de RF comme issu d'un événement s'étant produit 35-40 ans auparavant, soit au moment des retombées radioactives des essais d'armes atomiques en atmosphère des années soixante. L'estimation de RF_{obs}, bien que grossière, nous permet toutefois de conclure à l'absence de contamination significative au plutonium postérieure à ces événements.

Concentration de plutonium dans les eaux

La détermination du plutonium dans les eaux du Rhône est obtenue après évaporation de fractions prélevées chaque semaine pendant toute l'année. Le résidu obtenu est très riche en sédiments et l'activité mesurée reflète l'activité des sédiments en suspension, contrairement aux eaux du Rhin dans lesquelles les actinides sont coprécipités sur hydroxyde de fer. Ces deux démarches différentes donnent toutefois des résultats très semblables comme l'attestent les résultats présentés dans le Tableau 4. Les activités de ^{238}Pu sont situées en dessous de la limite de détection.

L'activité du plutonium dans l'eau de pluie recueillie dans le pluviomètre de l'Institut de physique de l'Université de Fribourg est comparable aux résultats obtenus de 1994 à 1996. L'activité en ^{238}Pu reste en dessous du seuil de détection. Comme dans les filtres à air, la mesure du plutonium dans les eaux de pluie rend compte de l'activité de ce radionucléide dans les particules en suspension dans l'air susceptibles de se déposer lors de précipitations.

Tableau 4 : Concentration en plutonium dans l'eau de pluie (Fribourg) et les eaux du Rhône et du Rhin

Type d'eaux	Lieu de prélèvement	Activité en $^{239/240}$Pu en mBq/m^3		
		1995	1996	1997
eaux de fleuve	Weil-am-Rhein	-	12 ± 3	11.9 ± 1.8
eaux de fleuve	Chancy	6.6 ± 0.8	4.8 ± 0.8	11.8 ± 1.4
eaux de pluie	Fribourg	2.5 ± 0.8	10.0 ± 1.3	4.8 ± 0.8

Conclusion

Les résultats obtenus pour les sols, les sédiments, l'air et l'eau en Suisse indiquent très clairement, par un rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu proche de 0.03, qu'il n'y a pas de contamination en plutonium mesurable autre que celle provenant des retombées des essais d'armes atomiques en atmosphère du début des années soixante. La valeur estimée du coefficient de resuspension tend à confirmer ces résultats. Aucune incidence de l'accident du réacteur de Chernobyl (rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu d'env. 0.5 [2]) n'a été mise en évidence. Pour les sédiments, la période de prélèvement semble influencer les résultats. Une étude sur un cycle annuel devrait permettre de mieux saisir les mécanismes de sorption-désorption du plutonium à l'interface eau/sédiments.

Les résultats de ce travail montrent l'importance et l'utilité d'évaluer et de caractériser le comportement du plutonium dans divers compartiments de l'environnement afin de déceler à son premier stade une éventuelle contamination. L'utilisation de paramètres régionaux permet ainsi une estimation plus réaliste de l'exposition du public à ce radionucléide en cas d'accident.

7.3.4 Mesures préliminaires de l'américium dans le sol et les sédiments

Introduction

L'américium présent dans les sols et les sédiments en Suisse provient essentiellement des retombées d' essais d'armes atomiques pendant les années soixante. C'est un produit de filiation du ^{241}Pu et a donc été produit durant le passage de ce dernier à travers le sol plutôt que par déposition directe à la surface du sol. Le ^{241}Pu, un émetteur β, a une période de 14.4 ans et décroît en ^{241}Am. Ce dernier est principalement un émetteur α (mais également émetteur γ, 59.54 keV, 36%). Son énergie α est de 5485 keV et sa période est de 433 ans.

L'activité maximale pour l'américium est atteinte des dizaines d'années après la déposition du plutonium. La quantité d'américium-241 a doublé entre 1972 et 1990 et elle augmentera encore de 25 % (relativement à la valeur de 1990) jusqu'à l'année 2037 [12]. Au niveau de la radioprotection, l'américium est donc un problème postérieur à la déposition de matériaux radioactifs. Son traitement nécessite de connaître d'une part le comportement de son précurseur dans l'environnement et d'autre part celui de l'américium, ce dernier ayant des propriétés chimiques différentes du plutonium. Ces différences sont susceptible d'influencer très fortement les facteurs de transfert de l'américium dans les différents compartiments de l'environnement.

Résultats de la surveillance

L'américium-241 dans les sols et les sédiments

Pour tous les échantillons analysés, des activités significatives d'américium ont pu être mesurées. Pour les sols et les sédiments, le rapport ^{241}Am/$^{239/240}$Pu est remarquablement constant et proche de 0.45 (Tableau 1). La figure 3 permet de comparer les activités en $^{239/240}$Pu et ^{241}Am. On remarque que les activités se trouvent dans un rapport constant. Bunzl et al.[13] indiquent une valeur d'environ 0.3 pour ce rapport dans des sols de forêts au sud de l'Allemagne. Des valeurs entre 0.35 et 0.42 ont été mesurées dans des sols et des sédiments du continent Antarctique [14]. Bien que le rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu soit très différent dans cet hémisphère (0.21 comparé à la valeur de 0.03 mesurée dans l'hémisphère nord) à cause de l'apport en ^{238}Pu lors de l'explosion du satellite SNAP-9A, la quantité de $^{239/240}$Pu est comparable à celle de l'hémisphère nord et la comparaison du rapport ^{241}Am/$^{239/240}$Pu reste valable. La Figure 3 montre que l'activité en américium suit celle du plutonium dans un rapport constant et que, pour deux profondeurs de sol à Mühleberg, l'américium a migré en même temps que le plutonium.

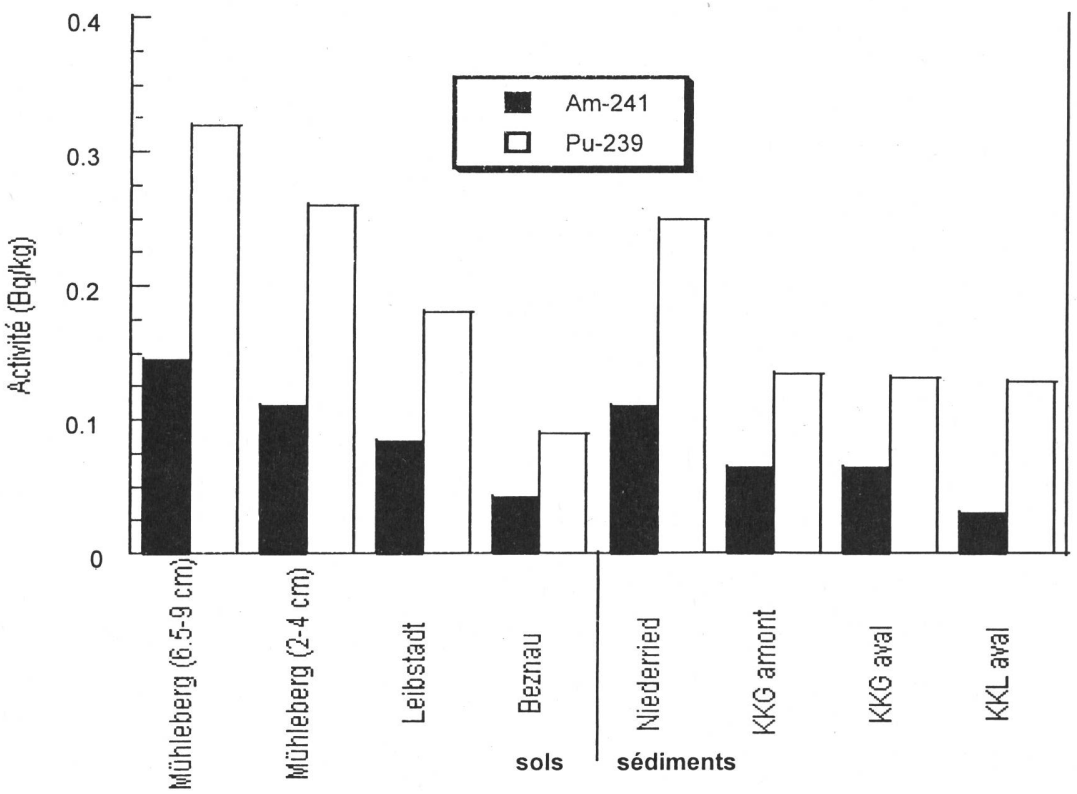
Il existe peu de données sur le rapport ^{241}Am/$^{239/240}$Pu des retombées des essais d'armes atomiques, dû principalement au fait que ce rapport dépend de la croissance de l'américium au cours du temps, donc du moment des mesures. Par contre, les décharges d'américium dans l'environnement provenant des installations nucléaires sont assez bien documentées, notamment pour le site de Sellafield (Angleterre). Eakins et al. [15] ont déterminé un rapport cumulatif moyen ^{241}Am/$^{239/240}$Pu de 1.5 (valeur en 1990) correspondant aux décharges de Sellafield dans le sable sur les côtes de la mer l'Irlande. Ce rapport, tout comme le rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu, est donc indicatif de pollutions industrielles. Cependant, plusieurs auteurs [16, 17] relèvent le risque d'utiliser sans autre ce rapport comme indicateur de pollution de l'environnement. En effet, les coefficients de distribution (K_d) de l'américium sont plus

élevés que ceux du plutonium. De plus, il est connu que les coefficients de distribution sont fortement affectés par la taille des grains auxquels le radionucléide est associé. Pentreah et al. [18] ont mis en évidence deux formes d'américium différentes dans les eaux de mer de la région de Sellafield, dont l'une est une forme oxydée représentant 5% du total de l'américium présent.

Tableau 1 : Concentration en américium dans les sols et les sédiments en 1997

Centrales nucléaires :	Type d'échantillon	Concentration(Bq ^{241}Am/kg)	Rapport ^{241}Am/$^{239/240}$Pu
Mühleberg	sol (2-4 cm)	0.110±0.01	0.42±0.07
Mühleberg	sol (6.5-9 cm)	0.145±0.02	0.45±0.09
Leibstadt	sol (0-5 cm)	0.083±0.01	0.46±0.1
Beznau	sol (0-5 cm)	0.042±0.006	0.47±0.1
Aval de Mühleberg			
Lac de Niederried	sédiments	0.110±0.01	0.44±0.08
Aval de Gösgen et de Beznau			
Lac de klingnau sup.	sédiments	0.065±0.008	0.48±0.1
Lac de Klingnau inf.		0.065±0.009	0.49±0.1
Aval de Leibstadt			
Rhin près d'Augst	sédiments	0.030±0.005	0.23±0.07

Figure 3 : Concentration en ^{241}Am et $^{239/240}$Pu dans les sols et les sédiments en 1997, en Bq/kg



Degueldre et al.[19] ont déterminé des mécanismes d'absorption très différents de l'américium sur des particules de silice amorphe et de colloïdes de quartz. Toutes ces études suggèrent que la spéciation de l'américium dans l'environnement doit préluder à toute interprétation et détermination de coefficients de transfert dans les différents compartiments de l'environnement.

Conclusion

L'activité en américium a été déterminée dans quatre sols et quatre sédiments aux environs des centrales nucléaires de Suisse. Le rapport $^{241}Am/^{239/240}Pu$ indique que la contamination provient essentiellement des retombées des essais d'armes atomiques des années soixante. Pour deux profondeurs différentes dans un sol de Mühleberg, on observe que l'américium a migré en même temps que le plutonium.

Des mesures sur des sites de référence, éloignés des centrales nucléaires, sont encore nécessaire afin de déterminer un bruit de fond en américium provenant des essais nucléaires des années soixante. Les études réalisées sur le site de Sellafield [20] ont montré que le l'américium pose un réel problème de radioprotection dont le traitement est complexe, dû à la plus grande mobilité de l'américium par rapport au plutonium. La bio-disponibilité de ce radionucléide notamment en association avec les acides humiques [21] est ainsi plus importante et mérite une attention soutenue.

Bibliographie

[1] Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W., *J. Environ. Radioactivity, 28*, **1995**, 17-34.

[2] Hölge, Z., Filgas, R., *J. Environ. Radioactivity, 27*, **1995**, 181-189.

[3] Rapport OFSP, Division de la radioprotection, 1996, ch. 7.3.

[4] Martin, J.M., Thomas, A.J., *J. Environ. Radioactivity*, **1988**, 1-16.

[5] Whicker, F.W., Niquette, D.S., Hinton, T.G., in « Environmental Health Physics », 1993, 473-485, eds R.L. Kathren, D.H. Denhan and K. Salomon, 200 Logston Blvd, Richland, WA 99352.

[6] Evans, D.W., Alberts, J.J., Clark, R.A., *Geochimica et Cosmochimica Acta, 47*, **1983**.

[7] Stephens, J.A., Whicker, F.W., Ibrahim, S.A., *J. Environ. Radioactivity, 38*, **1998**, 293-315.

[8] Albrecht, A. ; Goudsmit, G. ; Quian, J. ; Sigg, L. ; Xue, H. ; Kobler, D. ; Luck, A. ; Weidmann, Y. ; EAWAG **news**, 43F, Novembre 1997, p21-24.

[9] Garcia-olivares, A., Iranzo, C.E., *J. Environ. Radioactivity, 37*, **1997**, 101-114.

[10] Sehmel, G.A., *Atmos. Environ., 14*, **1980**, 983-1011.

[11] Garland, J.A., Pettenden, N.J., Playford, K., in « Resuspension and Crop Contamination », VIIth Report of the Working Group soil-to-Plant transfer Factors, p. 6-26, International Union of Radioecologists, upsala Meeting, Sweden, 27-29 sept. 1990, RIVM, Bitthoven, The Netherlands.

[12] Appleby, P.G. ; Richardson, N. ; Nolan, P.J. ; *Hydrobiologia 214*, **1991**, 35-42.

[13] Bunzl, K. ; Kracke, W. ; J.Environ. Radioactivity, 28, 1995, 17-33.

[14] Roos, P. ; Holm, E. ; Persson, R.B.R. *; J.Environ.Radioactivity, 24*, **1994**, 235-251.

[15] Eakins, J.D. ; Morgan, A. ; Baston, G.M.N. ; Pratley, F.W. ; Strange, L.P. ; Burton, P.J. ; *J.Environ.Radioactivity, 11*, **1990**, 37-54.

[16] Pentreath, R.J., Jeffries, D.F. ; lovett, M.B. ; Nelson, D.M. ; In *Marine Radioecology,* OECD, **1980**, 209-220.

[17] Burton, P.J. ; *Sci. Total Environ.* ; **1986**, 52, 123-145.

[18] Pentreath, R.J. ; Harvey, B.R. ; Lovett, M.B. ; In *Speciation of Fission and Activation Products in the Environment*, ed. R.A. Bulman and J.R. Cooper. Elsevier Applied Science, London, **1986**, pp. 312-325.

[19] Delguedre, C. ; Wernli, B. ; *J.Environ.Radioactivity, 20*, **1993**, 151-167.

[20] Smith, J.T. ; Appleby, P.G., Hilton, J. ; Richardson, N. ; *J.Environ.Radioactivity, 37*, **1997**, 127-142.

[21] Choppin, G.R. ; *Radiochim. Acta., 44/45*, **1988**, 23-8.