

<b>Zeitschrift:</b>	Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz = Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse = Radioattività dell'ambiente e dosi d'irradiazione in Svizzera
<b>Herausgeber:</b>	Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz
<b>Band:</b>	- (1998)
<b>Rubrik:</b>	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:** 16.02.2026

**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 ( $^3\text{H}$ ), sowie  $^{14}\text{C}$  und das radioaktive Edelgas  $^{85}\text{Kr}$ . Deren Nachweis erfordert spezielle Anreichungs- und Trenn- wie auch Nachweisverfahren. Eine weitere Kategorie sind die Alphastrahler  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$ .

Tritium in der Biosphäre (Niederschläge, Gewässer und Pflanzen) war in den 60er-Jahren in der Schweiz durch die Kernwaffenversuche bis gegen 800 Bq/l angestiegen und hat seither stetig abgenommen und liegt heute mit wenigen Bq/l nur noch knapp über den natürlichen Pegel. Im Mittel der letzten sechs Jahre liegt der Tritium-Gehalt in den Flüssen im Alpenraum bei 2.3, im Rhone unterhalb Genf bei 3.5 und in der Aare bei Brugg bei 5.3 Bq/l. Beim  $^{14}\text{C}$  führten die Kernwaffenversuche Mitte der 60er-Jahre ebenfalls zu einer Verdopplung gegenüber dem natürlichen Gehalt von 227 Bq/kg Kohlenstoff. Heute liegt der künstliche Anteil noch bei 106 Promille des natürlichen Gehaltes. In der Nahumgebung der Kernanlagen ist er durch deren Emissionen um bis zu 191 Promille erhöht, in der Umgebung der Kehrichtverbrennungsanlage von Basel bis zu 171 Promille. Das vor allem bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoff freigesetzte  $^{85}\text{Kr}$  zeigt eine ansteigende Tendenz und beträgt 1.3 Bq/m<sup>3</sup> (Jungfraujoch) bzw. 1.5 Bq/m<sup>3</sup> im Rheintal bei Freiburg im Breisgau [Kap. 7.1].  $^{37}\text{Ar}$ -Messungen in der Luft nach den indischen und pakistanischen Kernwaffentests im Mai 1998 ergaben bis 1.9 mBq/m<sup>3</sup>.

Die Alpha-Strahler  $^{234+240}\text{Pu}$  sowie  $^{241}\text{Am}$  stammt im wesentlichen von der Kernwaffenversuchen während  $^{238}\text{Pu}$  von einem Satelliten mit Thermonuklearbatterie (SNAP 9A) stammt, der 1964 in der Atmosphäre verglühte. Ein Einfluss der Emissionen von Kernanlagen oder des Reaktorunfalles in Tschernobyl ist nicht erkennbar. Die Beiträge dieser Radionuklide zur Strahlenexposition der Bevölkerung ist vernachlässigbar gering.

Probe	Einheit	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
Erboden (0-5 cm)	Bq/kg	0.1 - 2.8	0.1 - 0.74	0.039 ± 0.01	0.44 ± 0.10
Flusssedimente	Bq/kg	0.10 - 0.17	0.042 - 0.064		
Luftfilter	nBq/m <sup>3</sup>	2.2 - 3.5	2.1 - 2.2		
Regenwasser	micro-Bq/l	9.0	bis 37 <sup>1)</sup>		
Flusswasser	micro-Bq/l	3.0 - 4.8	2.0 - 42 <sup>1)</sup>		

1) diese leicht erhöhten Werte in der Rhone und im Regen von Fribourg konnten bisher nicht erklärt werden.

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

**H. Loosli, U. Schotterer  
H. Bürki**

Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut und  
Universität Bern, Sidlerstrasse 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  $^{14}\text{C}$ -Messungen in Baumblättern ergaben 1998 an den Referenzstationen einen Wert von  $\Delta^{14}\text{C} = 106 \pm 2\%$ . Verglichen mit diesem Wert wurden wie in früheren Jahren Nettoerhöhungen in Baumblättern aus der Umgebung der Kernkraftwerke Leibstadt und Gösgen und aus der Umgebung des Verbrennungsofens der Firma NOVARTIS in Basel festgestellt. Die beim KKL gefundene maximale Erhöhung betrug 191 % und stimmt gut mit Ausbreitungsrechnungen der HSK für die Wachstumsperiode der Blätter überein. Die maximale Erhöhung der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität betrug in der Umgebung des KKG 92 % und war damit ungefähr einen Faktor 2 höher als in früheren Jahren.

In der Umgebung des PSI resp. des im Aufbau befindlichen Zwischenlagers wurden zur Beweissicherung zehn Proben genommen und gemessen. Der maximale Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert betrug in der Nahumgebung des ehemaligen Forschungsreaktors SAPHIR 47 % und war damit etwas höher als in den beiden Vorjahren.

In Basel traten auch 1998 noch erhöhte  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte auf; allerdings war die Erhöhung an einigen Stationen geringer als in früheren Jahren. Dies wird darauf zurückgeführt, dass NOVARTIS  $^{14}\text{C}$ -haltige Abfälle nur noch nachts verbrannte. Weitere Quellen sind wahrscheinlich, z.B. in der Nähe des Volta-Platzes oder im Areal der Firma ROCHE.

Alle gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen führen zu hypothetischen zusätzlichen Dosen, die in der Größenordnungen von  $\mu\text{Sv}$  pro Jahr liegen; sie fallen also nicht ins Gewicht.

$^{85}\text{Kr}$ -Messungen in Wochenproben vom Jungfraujoch und in Stichproben aus Bern ergeben Basiswerte von ca.  $1.3 \text{ Bq}/\text{m}^3$  Luft. Zeitreihen zeigen einen langsamen Anstieg der atmosphärischen  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität, was auf eine vermehrte Aufbereitung von Kernbrennstoff in den Wiederaufbereitungsanlagen schliessen lässt. Damit stimmt überein, dass an mehreren europäischen Stationen häufiger kurzfristig erhöhte Werte (1998 bis  $3 \text{ Bq}/\text{m}^3$ ) auftreten als früher. Die Strahlendosis durch  $^{85}\text{Kr}$  ( $\beta$ -Dosis der Haut und  $\gamma$ -Dosis) ist vernachlässigbar.

In einigen Stichproben wurde im Juni und Juli die  $^{37}\text{Ar}$ -Aktivität gemessen. Sie zeigte keinen Einfluss der im Mai 98 in Indien und Pakistan gezündeten A-Waffen.

Die  $^3\text{H}$ -Aktivität in gewichteten Niederschlägen an ungestörten Stationen der Schweiz (z. B. Grimsel, Guttannen, Meiringen, Nyon, La Brévine und Locarno) betrugen 1998 im Mittel bis  $2 \text{ Bq/l}$ . Dank einem empfindlicheren Liquid-Szintillationszählern 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

Nur wenige künstliche Radionuklide können heute in der Luft oder der Biosphäre leicht nachgewiesen werden. Zu ihnen gehören  $^{14}\text{C}$  und  $^{85}\text{Kr}$ , die Schlüsse über ihre Produktion und beteiligte Umweltprozesse zulassen.

$^{14}\text{C}$  wurde durch die atmosphärischen Bombentests in den 60er Jahren in der Atmosphäre produziert. Damals verdoppelte sich die atmosphärische Aktivität ungefähr; heute liegt die  $^{14}\text{C}$ -Konzentration noch ca. 100 %o über dem natürlichen Level, wie er 1850 (nach Definition) geherrscht hat. Die Verbrennung fossiler Brennstoffe hätte allerdings seither die atmosphärische Konzentration verdünnt. Man schätzt, dass dieser sog. Suess-Effekt heute zu einer atmosphärischen Konzentration von  $\Delta^{14}\text{C} = -50\text{ \%o}$  geführt hätte. Somit ist heute den Bombenversuchen eine Netto-Erhöhung von rund 150 %o zuzuordnen. Diese Erhöhung führt nach UNSCEAR 1988 zu einer zusätzlichen effektiven Dosis von ca. 2  $\mu\text{Sv}$ , falls angenommen wird, dass unser Körper auch eine Netto-Erhöhung von 150 %o aufweist. Für alle  $^{14}\text{C}$ -Resultate wird die  $\Delta$ -Notation verwendet, die bedeutet, dass alle  $^{14}\text{C}$ -Werte auf einen  $\delta^{13}\text{C}$ -Wert von -25 %o bezogen werden (Stuiver und Polach 1977). Im Folgenden werden  $^{14}\text{C}$ -Resultate in Laubblättern angegeben; Experimente haben gezeigt, dass Baumblätter bis auf wenige Promille dieselbe  $^{14}\text{C}$ -Konzentration aufweisen, wie sie im atmosphärischen  $\text{CO}_2$  herrscht. Die oben erwähnte  $\delta^{13}\text{C}$ -Korrektur berücksichtigt die Fraktionierung der Isotope ( $^{13}\text{C}$  und  $^{14}\text{C}$ ) beim Übergang von gasförmigem  $\text{CO}_2$  in organisches Material. Im Folgenden werden zuerst die  $^{14}\text{C}$ -Messwerte angegeben; die zusätzlichen Strahlendosen sind in einem späteren Kapitel zusammengefasst.

$^{85}\text{Kr}$  ist dasjenige künstliche Nuklid mit der höchsten Aktivität in der Luft. Sie beträgt heute in der Troposphäre ca. 1.3  $\text{Bq}/\text{m}^3$ .  $^{85}\text{Kr}$  stammt praktisch ausschliesslich aus den Wiederaufbereitungsanlagen; weil diese ihre Kapazität in den letzten Jahren gesteigert haben, steigt die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität in der Luft an.

### 7.1.3. $^{14}\text{C}$ an den Referenzstationen

Die Referenzstationen Wiler und Imihubel liegen ca. 15 km südlich von Bern auf dem Belpberg resp. auf dem Längenberg. Sie wurden so gewählt, dass keine Beeinflussung der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration durch künstliche Emissionen zu befürchten ist, weder durch Verbrennung fossiler Brennstoffe noch durch künstliche  $^{14}\text{C}$ -Emissionen.

Die  $^{14}\text{C}$ -Aktivität in Buchenblättern von den Referenzstationen wurde 1998 dreimal gemessen und ergab  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte von  $108 \pm 3$ ,  $105 \pm 3$ ,  $104 \pm 3\text{ \%o}$  (1  $\sigma$  statistischer Fehler). Damit stimmen die tiefsten gemessenen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des KKL und in Basel überein ( $110 \pm 3$ ,  $100 \pm 3$ ,  $109 \pm 3\text{ \%o}$ ). Diese Übereinstimmung zeigt, dass die Referenzstation gut ausgewählt ist und dass die Probenaufbereitung zu reproduzierbaren Resultaten führt. Dieser Schluss kann auch aus einer Mehrfachbestimmung der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte an einer Probe aus dem Südwesten des KKG gezogen werden: die Nettoerhöhungen betrugen  $42 \pm 3$ ,  $42 \pm 6$  und  $49 \pm 9\text{ \%o}$ .

Im Folgenden werden die  $^{14}\text{C}$ -Resultate als Nettoerhöhungen gegenüber dem gemessenen Referenzwert von 106 %o angegeben.

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

Das Schwerpunkt der Überwachung lag 1998 nochmals in der Umgebung des Kernkraftwerks Leibstadt (KKL); daneben wurde die Beweissicherung in der Umgebung des ZWILAG fortgesetzt und es wurden drei Stichproben aus der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) erhoben.

Der mittlere Teil der Figur 1 zeigt die radiale Abhängigkeit der Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in den beiden Hauptwindrichtungen. Wie schon in früheren Jahren kommen die höchsten Netto-werte ungefähr in einem Kilometer Entfernung vom Abluftkamin vor; in geringeren und in grösseren Entfernungen sind die Erhöhungen kleiner. An sich sagen die Ausbreitungsmodelle voraus, dass vom Emissionspunkt aus die Konzentrationen bis in die kritische Distanz mit den höchsten Werten zunehmen; aber für die Langzeitausbreitung könnten wegen den variablen Windverhältnissen grössere Schwankungen auftreten. Die untersten beiden Teilstücke zeigen, dass in den letzten Jahren die Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ -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.

Figur 2 zeigt, dass die grössten Erhöhungen in den Hauptwindrichtungen, d.h. im Rheintal, vorkommen und dass die Erhöhungen quer dazu geringer sind. Die dargestellten Kreisflächen sind proportional zu den Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten.

Die gemessenen Werte wurden wiederum mit den Berechnungen der HSK verglichen. Die durch das Modell berechneten Werte basieren auf vier im April und Mai 1998 gemessenen Abgabekonzentrationen von im Mittel 60 Bq/m<sup>3</sup>. Nimmt man an, dass die Emissionen während etwa einem Monat (Wachstumsperiode) konstant waren und berücksichtigt man den Luftausstoss von  $8 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{h}$  ergibt sich eine Emissionsrate von ca.  $1.3 \times 10^4 \text{ Bq/s}$ . Mit einem für die Periode vom 20.4. bis 20.5.1998 bestimmten Verdünnungsfaktor von  $\chi = 5.6 \times 10^{-7} \text{ s/m}^3$  ergibt sich am kritischen Punkt eine zusätzliche Konzentration von ca. 7 mBq/m<sup>3</sup>. Dies entspricht einer Erhöhung um ca. 160 % (natürlich befinden sich in der Luft 0.042 Bq/m<sup>3</sup>, was als 1000 % definiert werden kann). Gemessen wurde in ca. 800 m Entfernung vom Emissionspunkt in nordöstlicher Richtung ein Maximalwert von  $\Delta^{14}\text{C} = 191 \text{ \%}$ , was mit obigem Modellwert sehr gut übereinstimmt.

Abbildung 3 zeigt die Messwerte in der Umgebung des PSI, wobei die Fläche der Kreise wiederum den Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ -Erhöhungen entspricht. Einige der Messpunkte sind Glied von langjährigen Messserien, wie sie in Abbildung 4 dargestellt sind.

Auffällig ist, dass alle Nettowerte höher ausfallen als in den beiden Vorjahren. Dies gilt beispielsweise auch für den Messpunkt in der unmittelbaren Umgebung des ehemaligen Forschungsreaktors Saphir. Die in der Umgebung des Saphir gemessenen Werte betragen im Maximum 202 % (1994), 131 % (1995), 66 % (1996), 27 % (1997) und 47 % (1998). Die in der Umgebung des PSI gemessenen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Erhöhungen liegen 1998 zwischen 20 und 47 % mit je einem statistischen Fehler von ca 4 %. Die früher geäusserte Vermutung, dass der in der ganzen Umgebung des PSI beobachtete Rückgang der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Erhöhungen primär dem Reaktor Saphir zuzuordnen sei, trifft offenbar nur für dessen unmittelbare Umgebung und den Messpunkt Au zu. Die Quelle der 1998 (und früher) beobachteten Erhöhungen ist unklar; es sind möglicherweise auch mehrere Quellen in Betracht zu ziehen, die gesamthaft zu der 1998 beobachteten recht homogenen Erhöhung beitragen. In Frage kommen die Verbrennung  $^{14}\text{C}$ -haltiger Abfälle im PSI, die im PSI-SIN durchgeföhrten Expe-

rimente und/oder das KKB. Die Beweissicherung in der Umgebung des ZWILAG wird fortgesetzt.

1998 wurden wie 1984, 1989, 1992 und 1995 in der Umgebung des KKG drei Stichproben genommen. Die Wahl der Standorte basierte auf den Ausbreitungsrechnungen der HSK für die Periode vom 20.4. bis 20.5.1998, d.h. während der Wachstumsperiode der Blätter. Die drei Standorte lagen im Gebiet mit (maximalen) Ausbreitungsfaktoren zwischen  $1.5 \times 10^{-7}$  und  $3 \times 10^{-7} \text{ s/m}^3$ . Während die gemessenen Nettoerhöhungen in den früheren Jahren höchstens 45 %o betragen, zeigte ein Baum im Jahre 1998 eine Erhöhung von 92 %o (siehe Figur 5). Diese Erhöhung entspricht in Luft einer zusätzlichen Konzentration von ca. 4 mBq/m<sup>3</sup>. Benutzt man einen mittleren Ausbreitungsfaktor von  $2 \times 10^{-7} \text{ s/m}^3$  erhält man eine geschätzte Emission von  $2 \times 10^4 \text{ Bq/s}$  von <sup>14</sup>C in CO<sub>2</sub>-Form. Nach den oben getroffenen Annahmen könnte diese Emission während dem Blattwachstum vorgekommen sein.

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

Im Auftrag der Firma NOVARTIS wurden auch 1998 die <sup>14</sup>C-Messungen in der Stadt Basel fortgesetzt. Die Probenahme erfolgte unter verdankenswerter Mithilfe des kantonalen Laboratoriums und der Stadtgärtnerei. Zielsetzungen waren, den Verlauf der  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivität in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens K-930 zu verfolgen und insbesondere herauszufinden, wo die früher gemessenen Erhöhungen zurückgingen, weil die NOVARTIS 1998 <sup>14</sup>C-haltige Abfälle nur noch nachts verbrannte. Um das erwähnte Ziel der Zeitreihen besser zu erreichen, wurden zwei Probenahmekampagnen durchgeführt, eine im Juni und eine im September.

Figuren 6 und 7 zeigen die räumliche Verteilung der in Basel gemessenen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Erhöhungen, Figuren 8 und 9 deren zeitliche Entwicklung. Die Figuren zeigen, dass immer noch erhöhte  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte auftreten, insbesondere in nordwestlicher Richtung vom neuen Verbrennungsofen (E – 08, E – 10 und W – 16), in der Nahumgebung der ROCHE (E – 34 und E – 36) und im Herbst im ehemaligen SANDOZ-Areal (W – 06 und W – 10). Einige Standorte zeigen allerdings 1998 deutlich kleinere Erhöhungen als im Herbst 97 (W – 06, W – 09, W – 10, E – 10, E – 13 E – 18, E – 24 und E – 26). Früher gemessene Maximalwerte von +400 %o werden nicht mehr erreicht; der höchste gemessene Netto-Wert beträgt 171 %o und befindet sich am Standort W – 10. Dieser Rückgang an vielen Standorten ist vermutlich die Folge der Nur-Nachtverbrennung. Der Wert an der Stelle W – 16 ist vom Herbst 97 bis Herbst 98 ziemlich konstant geblieben, obschon die näher am Ofen liegenden Standorte E – 08 und E – 10 einen deutlichen Rückgang aufweisen. Unklar ist der Wiederanstieg der Proben vom Juni bis September W – 10, W – 06 und W – 07 auf Werte, wie sie 1995 und 1996 vorkamen. Als Ursache kann eine (bisher unbekannte) Quelle im ehemaligen SANDOZ-Areal vermutet werden.

Mögliche Erklärungen für die beobachteten Erhöhungen lauten:

- Die Bäume bauen, insbesondere unter Stresssituationen, auch bewegliches organisches Material aus dem Holz ins Blatt ein, welches aus früheren Jahren grössere Erhöhungen bewahrt hat.
- Die Tagverbrennungen setzen doch einige <sup>14</sup>C-Aktivität frei, obschon diese Abfälle als <sup>14</sup>C-frei deklariert werden.
- Links vom Rhein befinden sich ein oder mehrere zusätzliche Emittenten von <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>.
- Das Physikinstitut mit dem kleinen Forschungsreaktor und die KVA St. Johann scheiden als relevante Quelle aus, weil die früher schon beprobten Standorte W – 01, W – 02 und W – 04 und der neue Standort W – 19 nur geringe Erhöhungen um 7 bis 24 %o zeigen.

- Auffällig ist, dass in der Nahumgebung der Firma ROCHE schon zum dritten Mal erhöhte Werte auftreten, die grösser sind als an Stationen, die näher am NOVARTIS-Ofen liegen. Dies ist ein Hinweis, dass im ROCHE-Areal  $^{14}\text{CO}_2$  abgegeben wird; der NOVARTIS-Ofen scheidet für diese Erhöhungen vermutlich aus, weil es unwahrscheinlich ist, dass in drei aufeinanderfolgenden Jahren eine Aktivitätsabnahme bis ca. 1.5 km Entfernung und dann wieder eine Zunahme auftritt. Abbildung 10 zeigt, dass die Gesamtaktivität an den vier gewählten Standorten in den letzten drei Jahren etwa konstant geblieben ist.

### 7.1.6. Zusätzliche Strahlendosen wegen $^{14}\text{C}$

Nach UNSCEAR 88 führt der natürliche  $^{14}\text{C}$ -Gehalt in Nahrungsmitteln zu einer internen Dosis von ca. 13  $\mu\text{Sv}$  pro Jahr. Die in der Umgebung von Siedewasserreaktoren und auch in Basel gemessenen Erhöhungen der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration gegenüber dem Referenzwert liegt in der Größenordnung von 100 %. Unter der konservativen Annahme, dass eine Person im Körper eine  $^{14}\text{C}$ -Konzentration aufbauen würde, die 100 % über dem natürlichen Level liegt, ergäbe dies eine zusätzliche jährliche Dosis von 1 bis 2  $\mu\text{Sv}$ . Dies fällt nicht ins Gewicht, insbesondere nicht gegenüber den Dosen wegen Radon-Folgeprodukten und den Variationen der übrigen natürlichen Dosiskomponenten. Die Bedeutung der  $^{14}\text{C}$ -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.

### 7.1.7. $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität in Troposphärenluft

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

In Figur 11 sind Resultate dargestellt, wie sie im Institut für atmosphärische Radioaktivität in Freiburg im Breisgau für Wochenproben gemessen wurden. Die Probenahme auf dem Jungfraujoch (3500 m) erfolgte durch die Herren P. Kuster und H.R. Staub, denen herzlich gedankt sei für ihre sorgfältige Mithilfe. Man sieht im oberen Teil der Figur den langsam ansteigende Aktivität, die sogar auf dem Jungfraujoch 1998 zu einem Basislevel von ca. 1.2  $\text{Bq}/\text{m}^3$  und einem Durchschnittswert von ca. 1.3  $\text{Bq}/\text{m}^3$  geführt hat. Auf dem Schauinsland (1000 m) hat dieser Gleichgewichtswert bereits ca. 1.5  $\text{Bq}/\text{m}^3$  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 Abluftfahne 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.

Die vorliegenden Messresultate erlauben, die globalen Emissionen abzuschätzen: pro Jahr zerfallen ca. 6 % des globalen Inventars, was durch die Emissionen von E1 kompensiert wird:

$$\text{E1} = 0,06/\text{Jahr} \times 1,1 \text{ Bq}/\text{m}^3 \times 4 \times 10^{18} \text{ m}^3 = 2,6 \times 10^{17} \text{ Bq}/\text{Jahr}$$

Die Erhöhung des Inventars kann aus dem oberen Teil der Figur 11 abgeschätzt werden und beträgt jährlich ca. 0,06  $\text{Bq}/\text{m}^3$ , was durch eine Emission E2 erreicht wird:

$$\text{E2} = 0,06 \text{ Bq}/\text{m}^3 \times 4 \times 10^{18} \text{ m}^3 = 2,4 \times 10^{17} \text{ Bq}/\text{Jahr}$$

Die globalen jährlichen Emissionen müssen also ca.  $5 \times 10^{17}$  Bq betragen, was mit den Angaben über die Emissionen von Sellafield und La Hague bereits grossenteils erklärt ist.

In drei Stichproben wurde auch aus Berner Luft Krypton abgetrennt und die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität gemessen. Da die Kryptomenge nur ca.  $5 - 10 \mu\text{l}$  betrug, war ihre Bestimmung relativ ungenau.

Probenahmedaten	Aktivität	
	dpm/cc Kr	Bq/m <sup>3</sup> Luft
10.06.98	$56 \pm 3$	$1.1 \pm 0.06$
30.07.98	$56 \pm 3$	$1.1 \pm 0.06$
08.12.98	$85 \pm 8$	$1.62 \pm 0.15$

Trotzdem stimmen die in Bern bestimmten Aktivitäten mit denjenigen anderer europäischer Stationen gut überein.

Die durch  $^{85}\text{Kr}$  bewirkte zusätzliche Dosis fällt nicht ins Gewicht, obschon  $^{85}\text{Kr}$  das künstliche Nuklid mit der höchsten Aktivität in der Luft ist: die effektive jährliche Dosis wegen der Hautbestrahlung durch die  $\beta$ -Teilchen beträgt ca.  $0.02 \mu\text{Sv}$  und diejenige durch den  $\gamma$ -Anteil von 0,4 % aller Zerfälle ist etwa gleich gross (D. Jackson et al., 1998).

### 7.1.8. $^{37}\text{Ar}$ -Aktivität in der Troposphäre

Nach den fünf indischen Kernwaffentests am 11. und 13. Mai 1998 und den sechs pakistanschen Tests am 28. und 30. Mai wurden einige  $^{37}\text{Ar}$ -Messungen an kommerziellem Argon durchgeführt. Das Argon wurde in verdankenswerter Weise von der Firma Carbagas Liebefeld in Wiler bei Utzenstorf aus der Luft abgetrennt. Die Aktivitäten betrugen:

Produktionsdatum von Ar	$^{37}\text{Ar}$ -Aktivität in mBq/m <sup>3</sup> Luft
05.06.98	$0.6 \pm 50 \%$
11.06.98	$1.9 \pm 20 \%$
24.06.98	$0.5 \pm 30 \%$
01.07.98	$0.3 \pm 83 \%$

Die gefundenen Aktivitäten sind etwa gleich gross wie in früheren Argon-Proben (siehe z.B. BAG Bericht 1992, Seite B.3.2.9). Eine massive Freisetzung von Radioaktivität durch die gezündeten A-Waffen kann deshalb ausgeschlossen werden. Immerhin zeigen die Messungen, dass unser Labor in der Lage ist, kurzfristig  $^{37}\text{Ar}$ -Messungen durchzuführen. Dieses Nuklid ist bei normalem Gesteinsuntergrund nämlich ein guter Tracer für entgasende Tests, weil die  $^{40}\text{Ca}$  ( $n, \alpha$ )-Reaktion selektiv zu  $^{37}\text{Ar}$  führt.

### 7.1.9. Tritium in Niederschlägen und in Flusswasser (siehe Fig. 12)

#### Tritium in Niederschlägen:

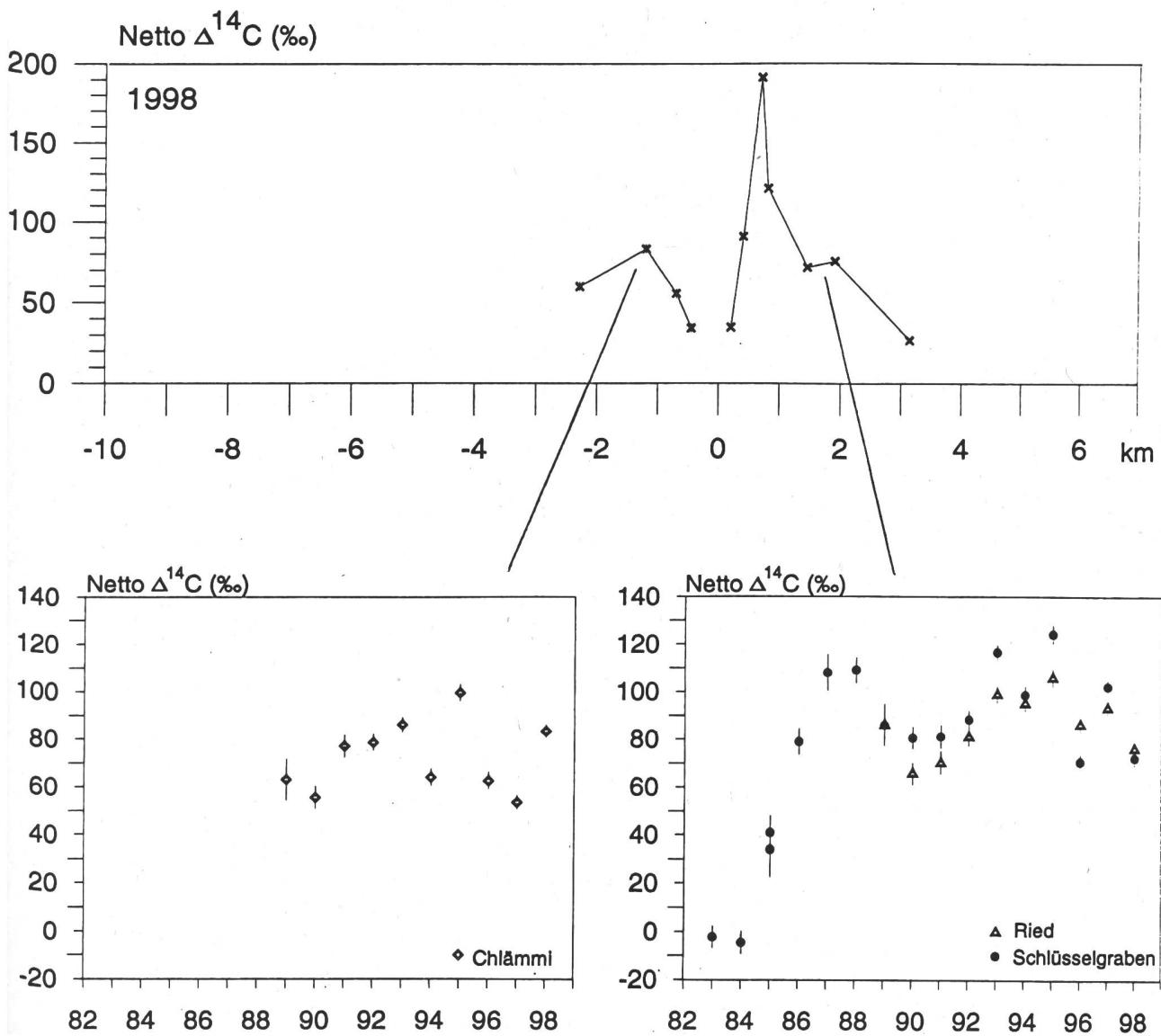
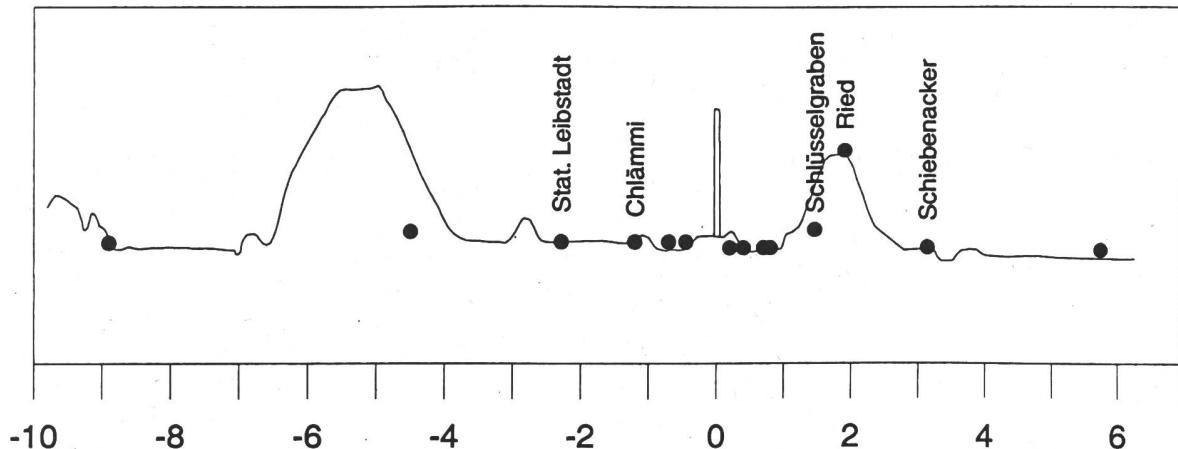
Die gewichteten Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen sind auch 1998 gegenüber dem Vorjahr leicht gesunken. Dies trifft auch auf die von Industrie-Tritium beeinflusste Station Bern zu, deren Werte sich halbierten. Die tiefsten Durchschnittswerte wurden wiederum auf der Alpensüdseite beobachtet. Das grossvolumige Aloka-Messgerät arbeitet im Routinenbetrieb sehr zuverlässig. Die Nachweisgrenze für Tritium liegt (bei sehr langen Messzeiten) deutlich unter 0.1 Bq/l. Damit wären auch Tritiumschwankungen im Bereich der natürli-

chen Produktion messbar. Zusätzlich werden dadurch die sehr arbeitsintensiven Gascountermessungen entlastet, die allerdings weiterhin als cross-check und für Spezialaufgaben (kleine Probenmengen, hohe Messgenauigkeit) unerlässlich sind.

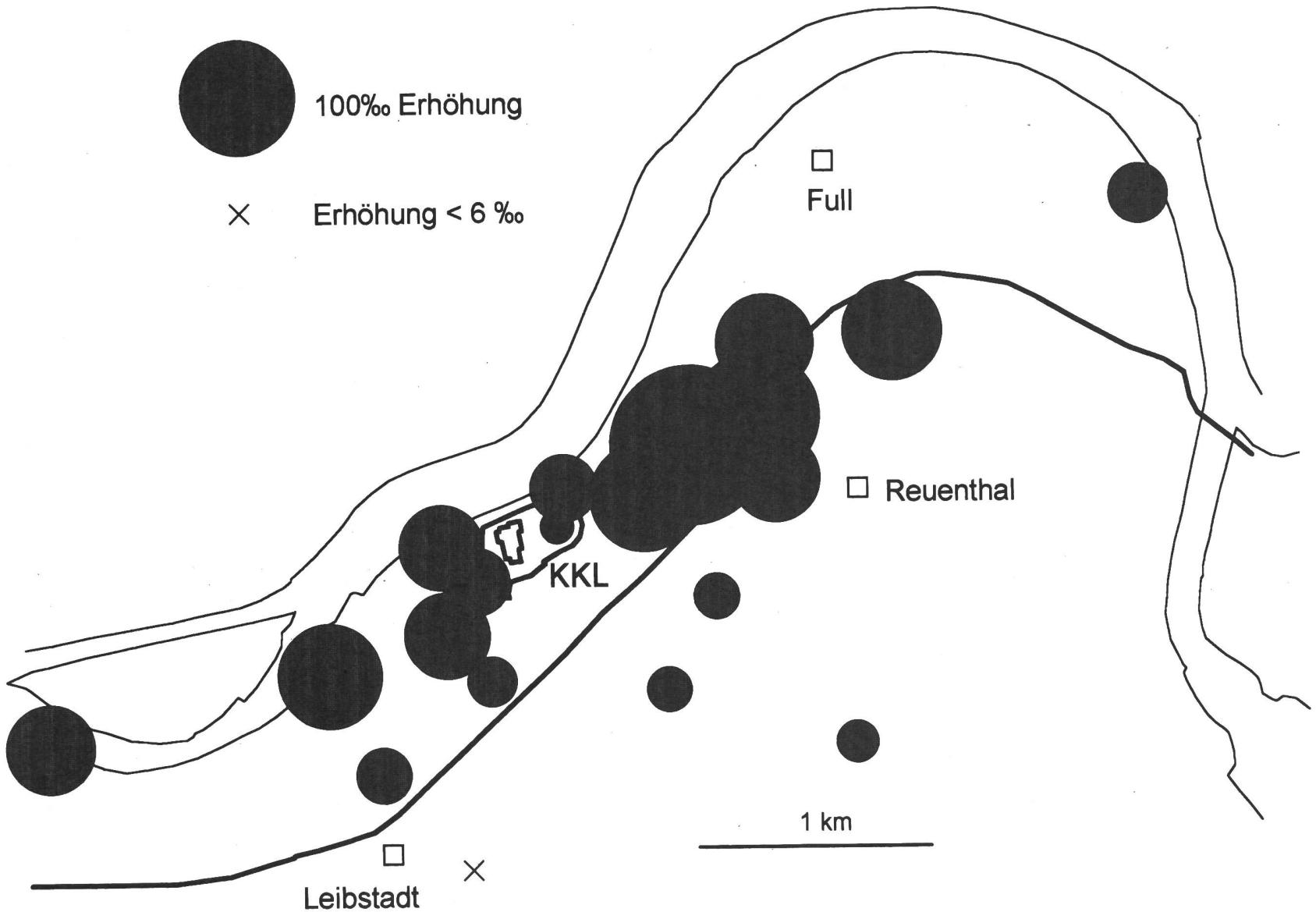
**Tritium in Flusswasser:**

Auch in der Aare bei Brugg waren die Tritiumwerte im Vergleich zum Vorjahr tiefer. Eine starke Erhöhung der Tritium-Konzentration wurde wiederum im April beobachtet. Die Ursache für die Erhöhung ist nicht bekannt.

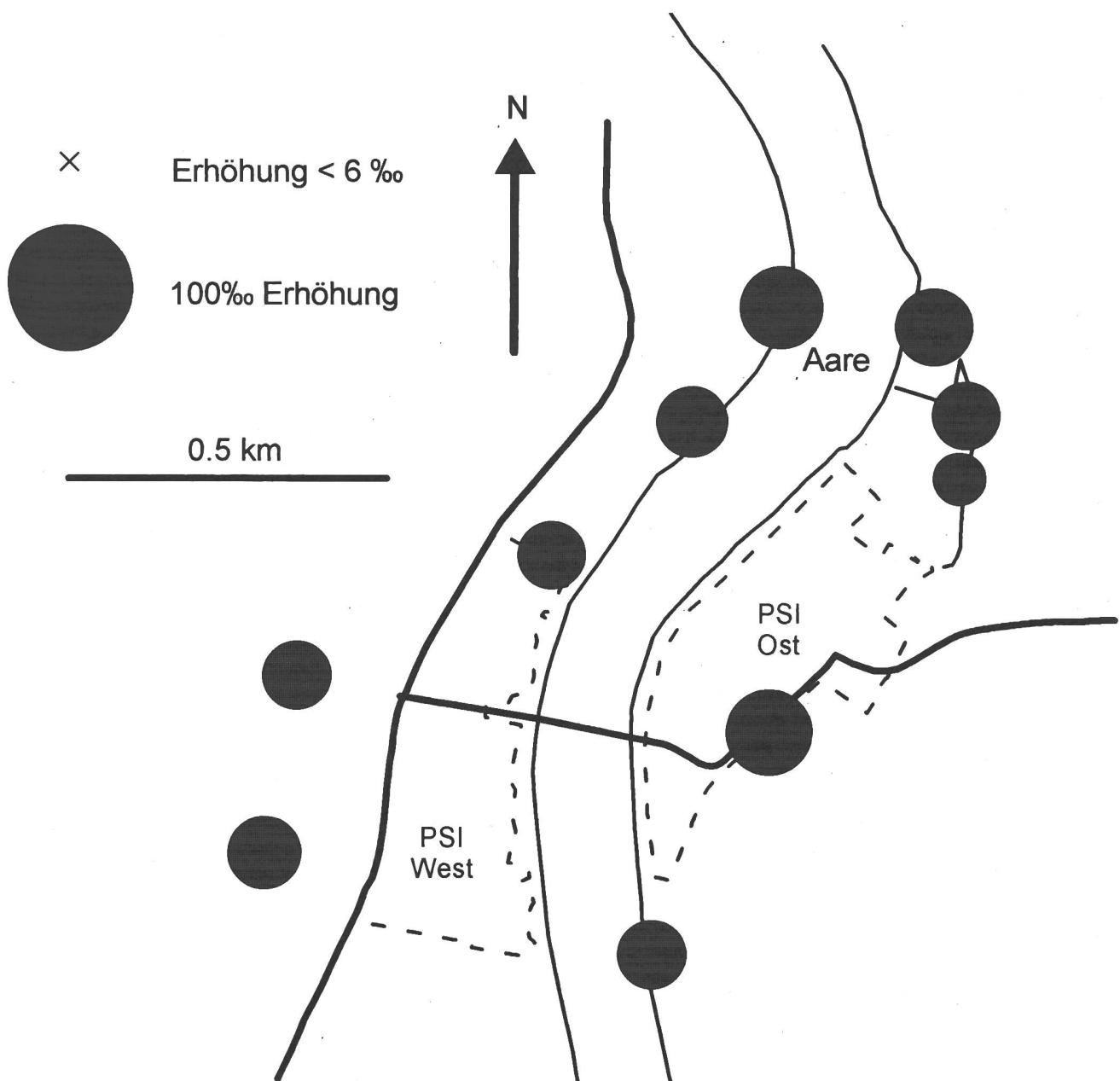
**Figur 1 Ausbreitung der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität in der Umgebung des KKL in den beiden Hauptwindrichtungen**



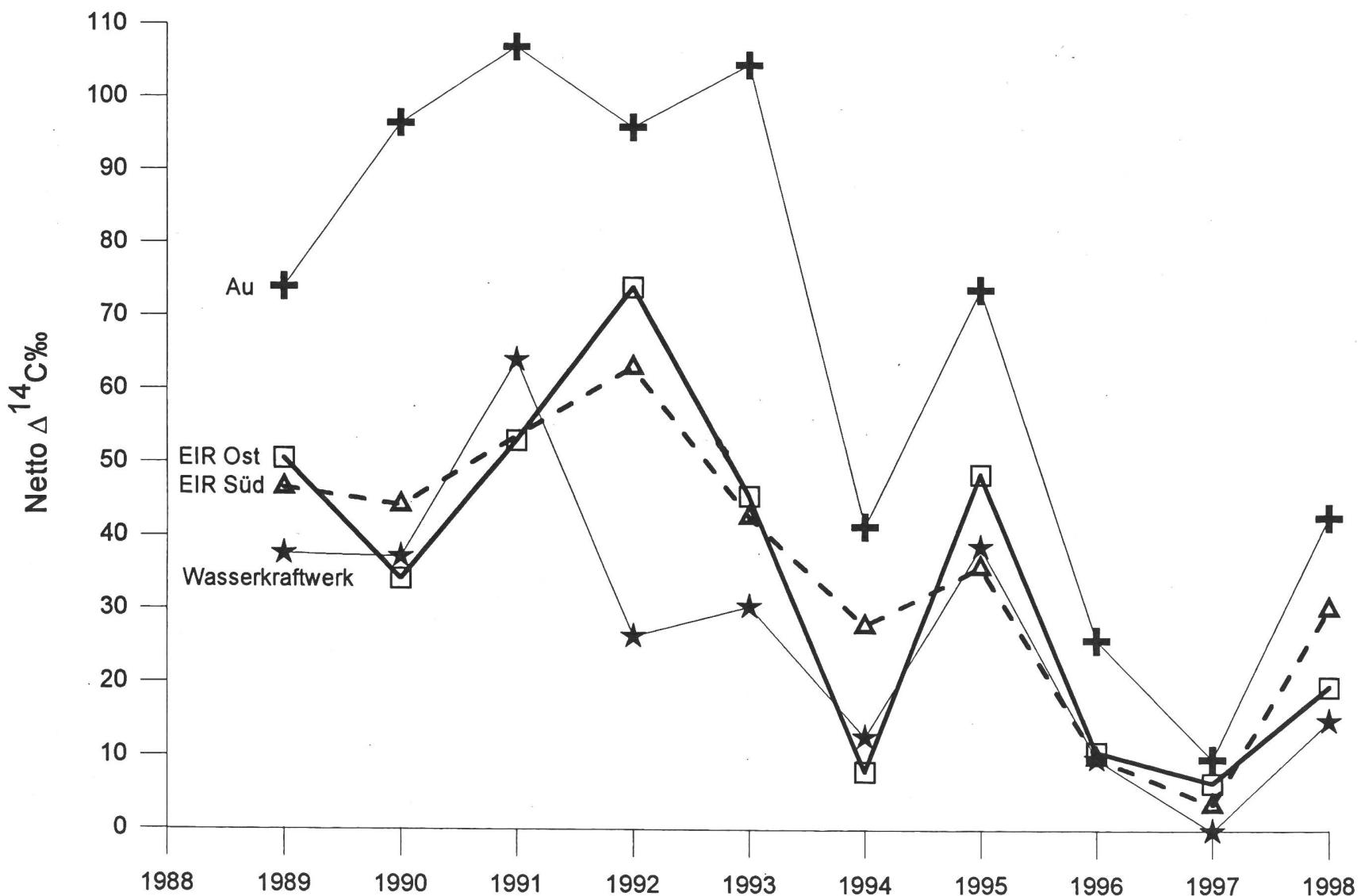
Figur 2 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  in der Umgebung vom KKW Leibstadt (1998)



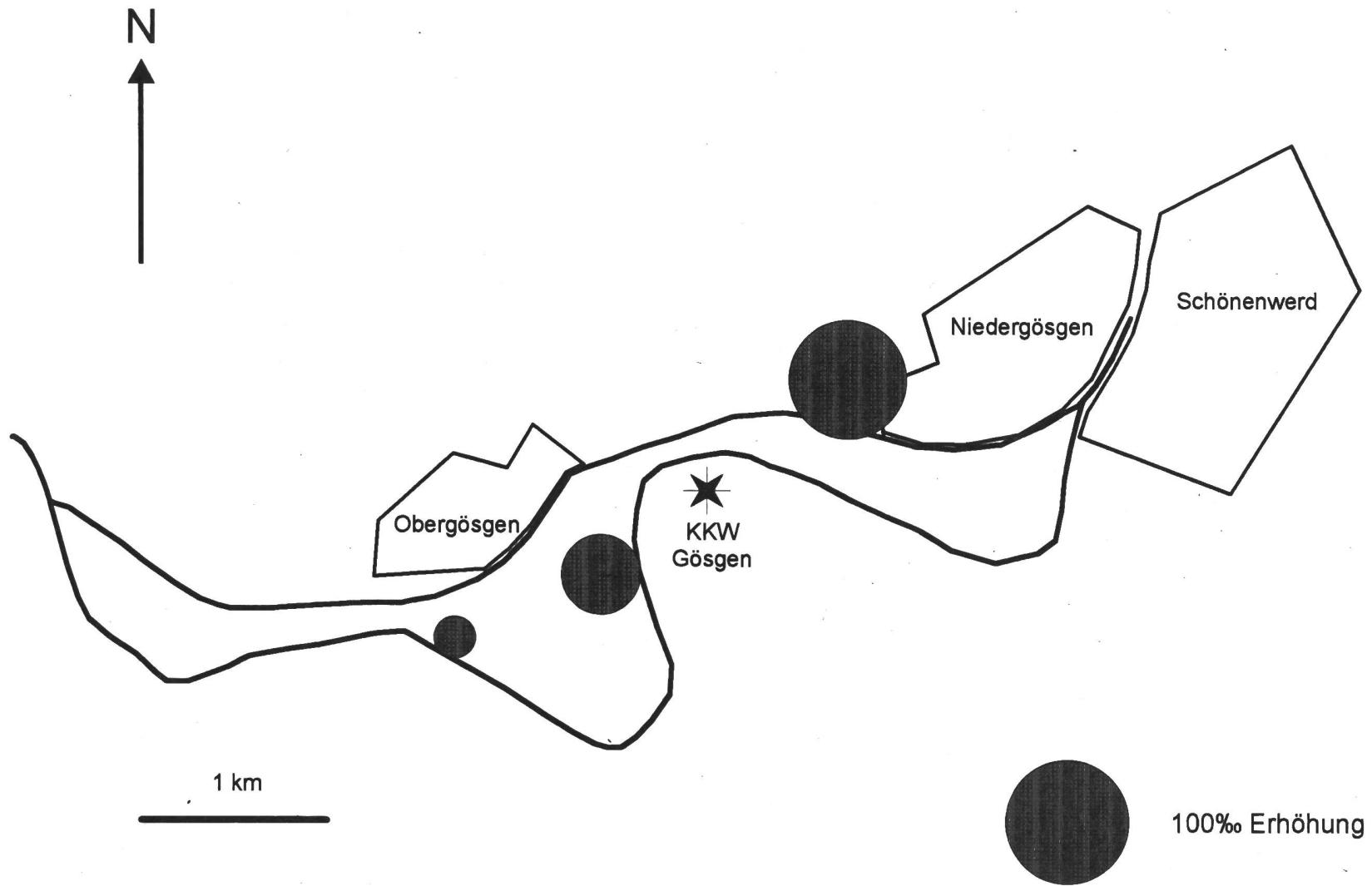
Figur 3 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivität in der Umgebung des PSI (1998)



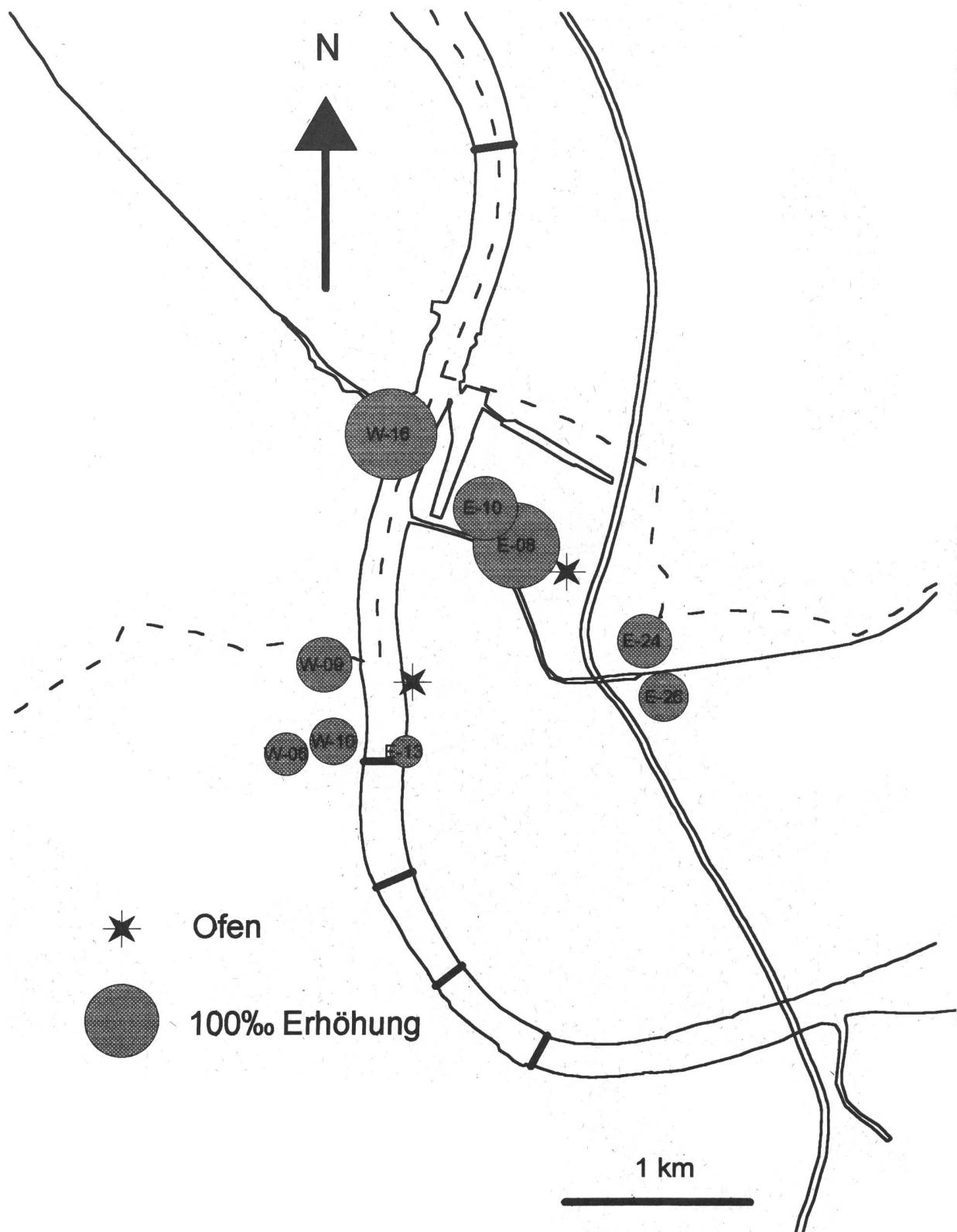
Figur 4 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  um KKB und PSI



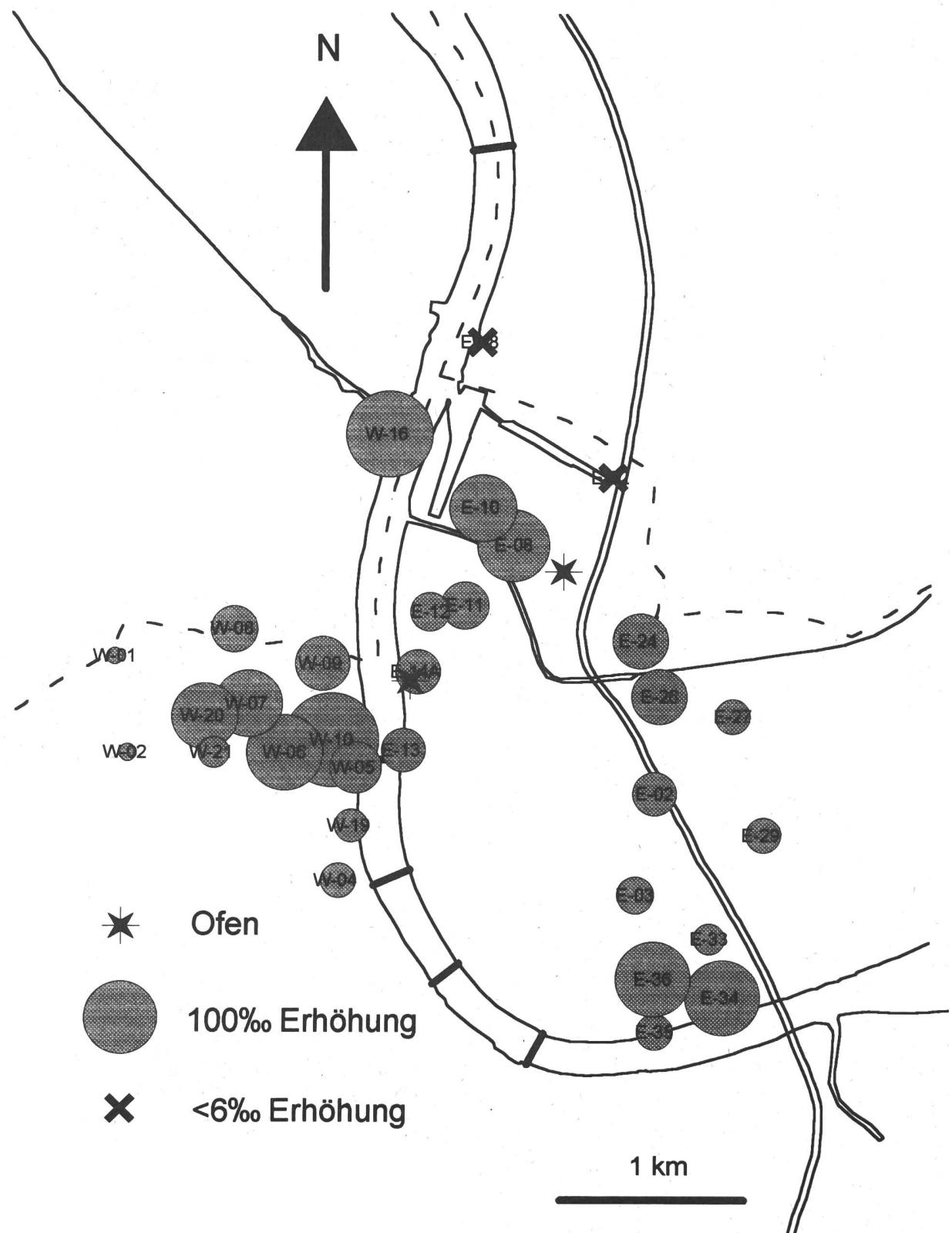
Figur 5 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  in der Gegend von Kernkraftwerk Gösgen (1998)

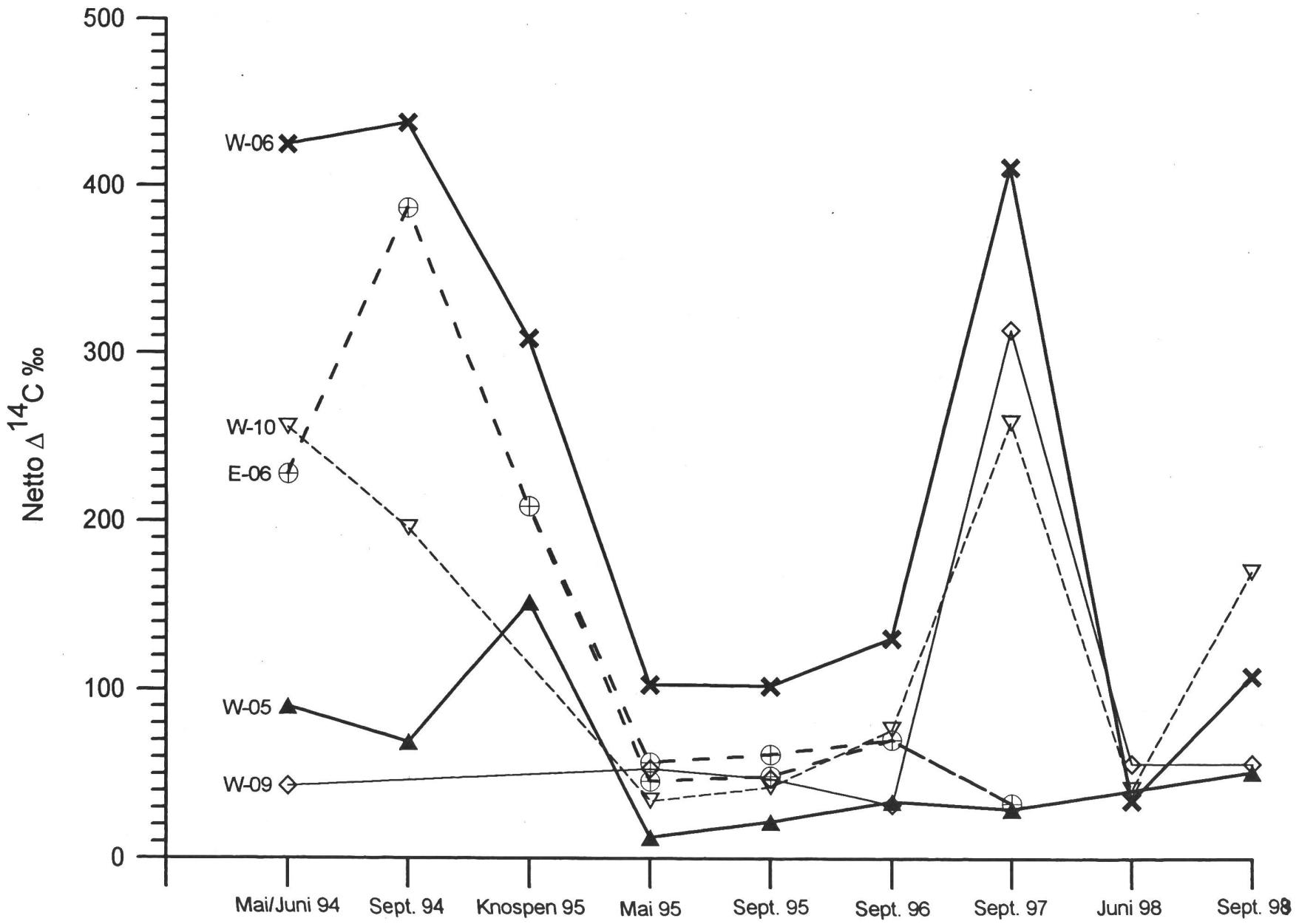


Figur 6 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte, Frühling 1998 in Basel



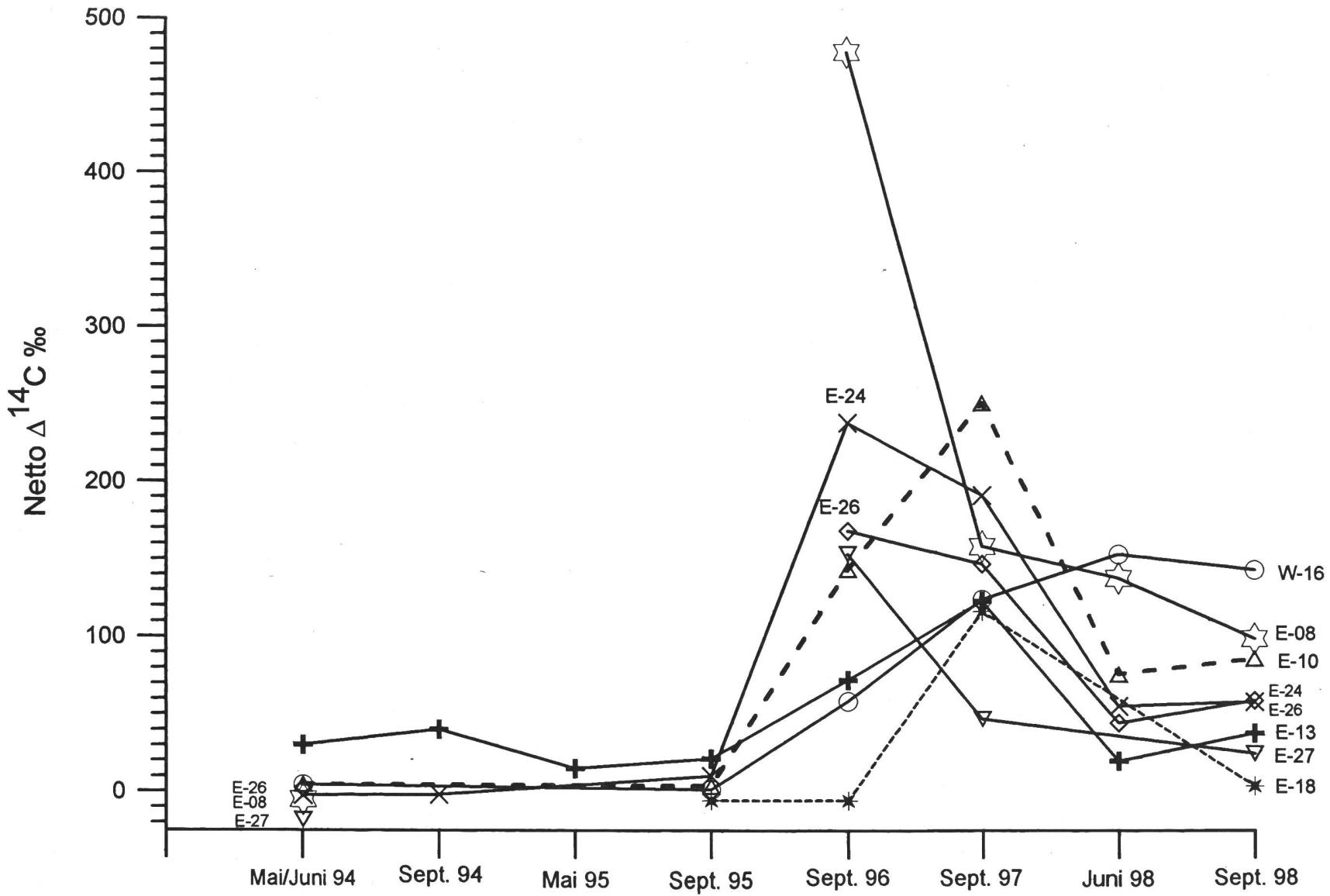
## **Figur 7 Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte, Herbst 1998 in Basel**



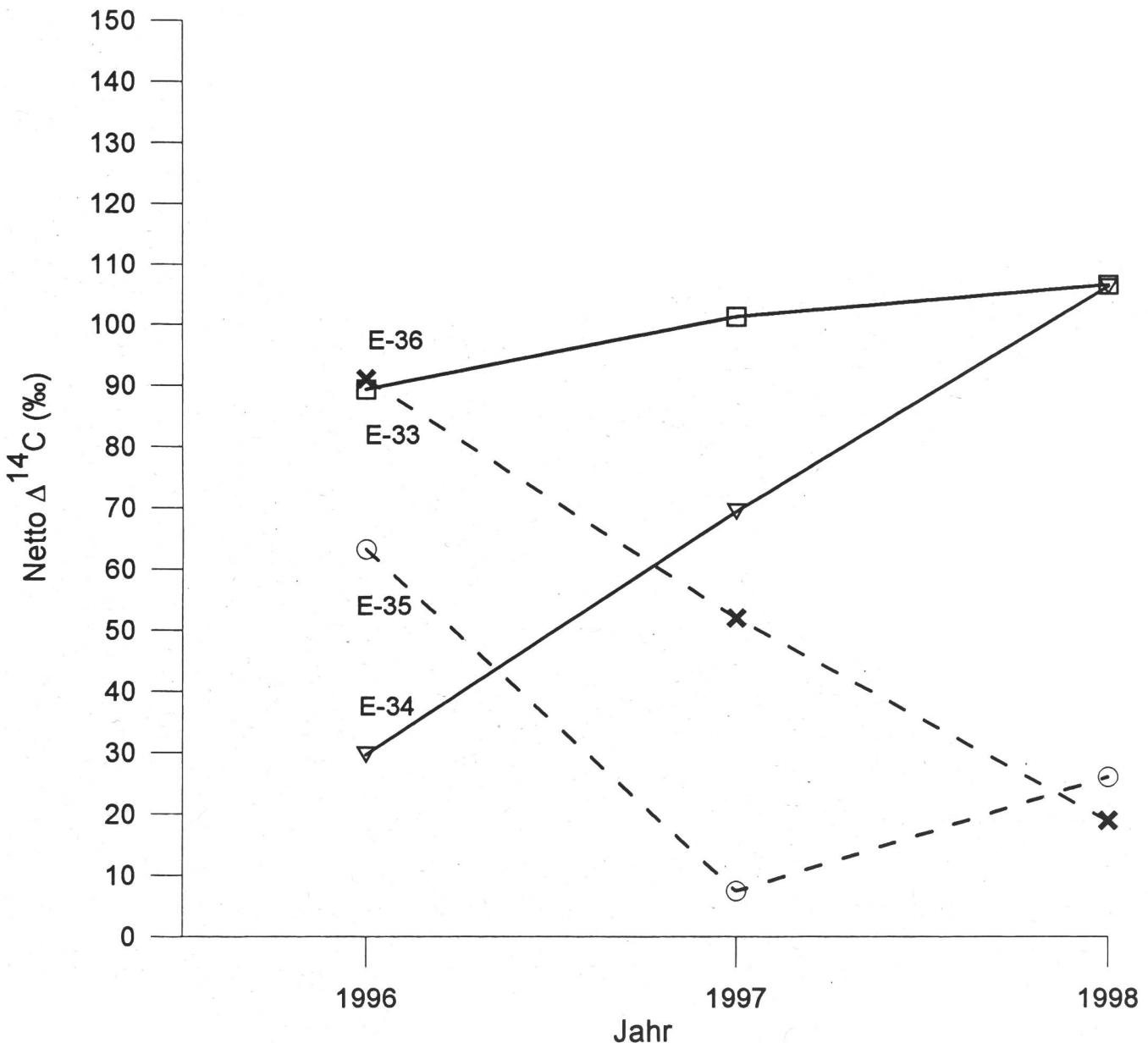


Figur 8 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Basel

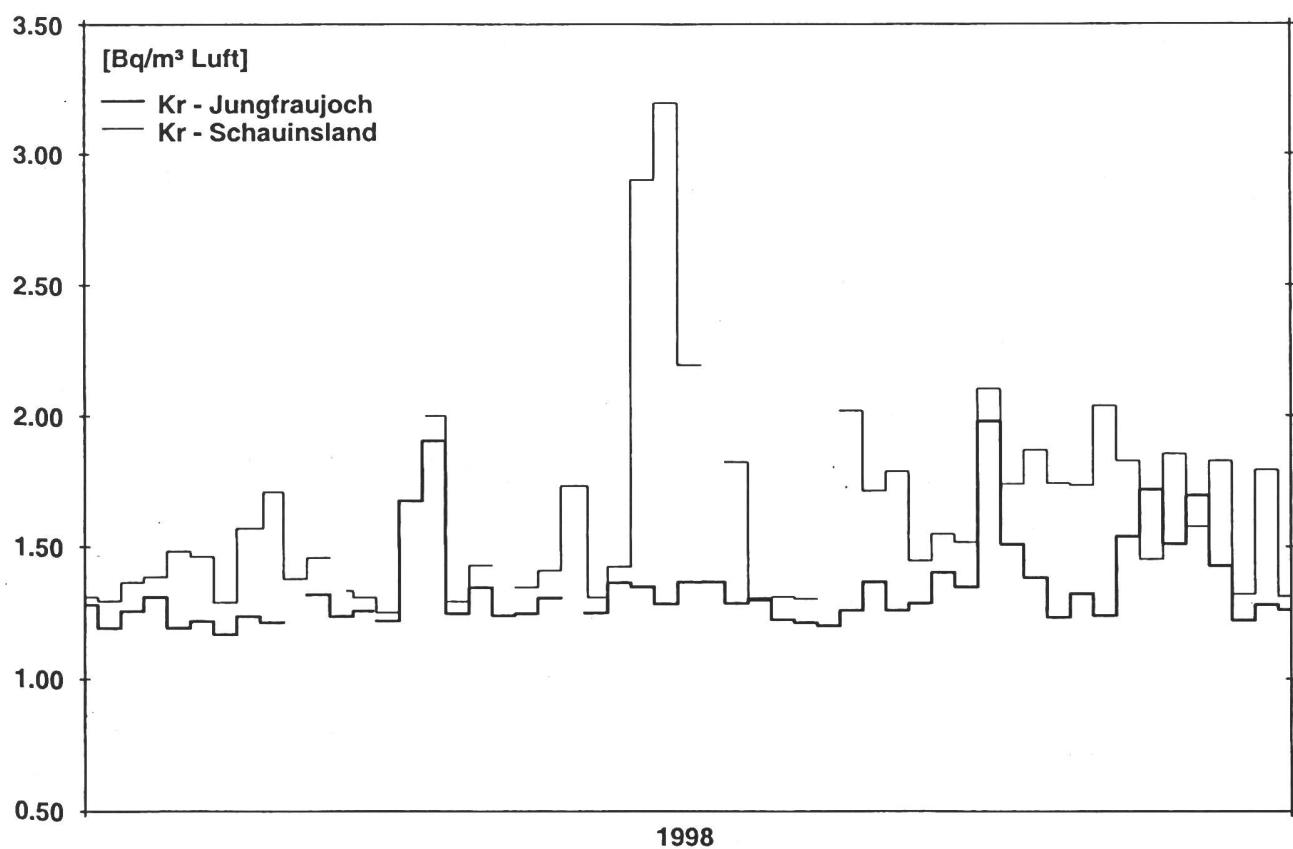
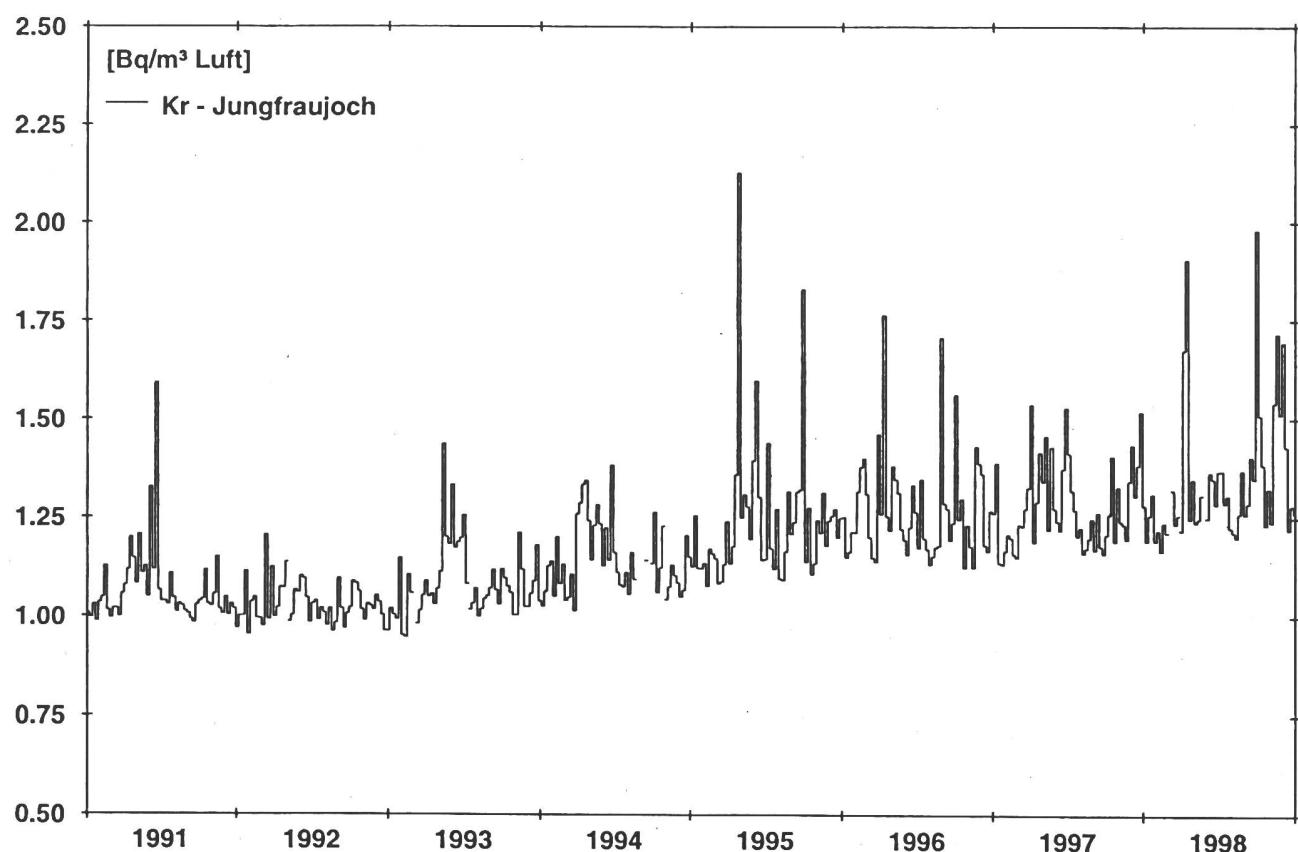
Figur 9 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des neuen Verbrennungsofens Basel



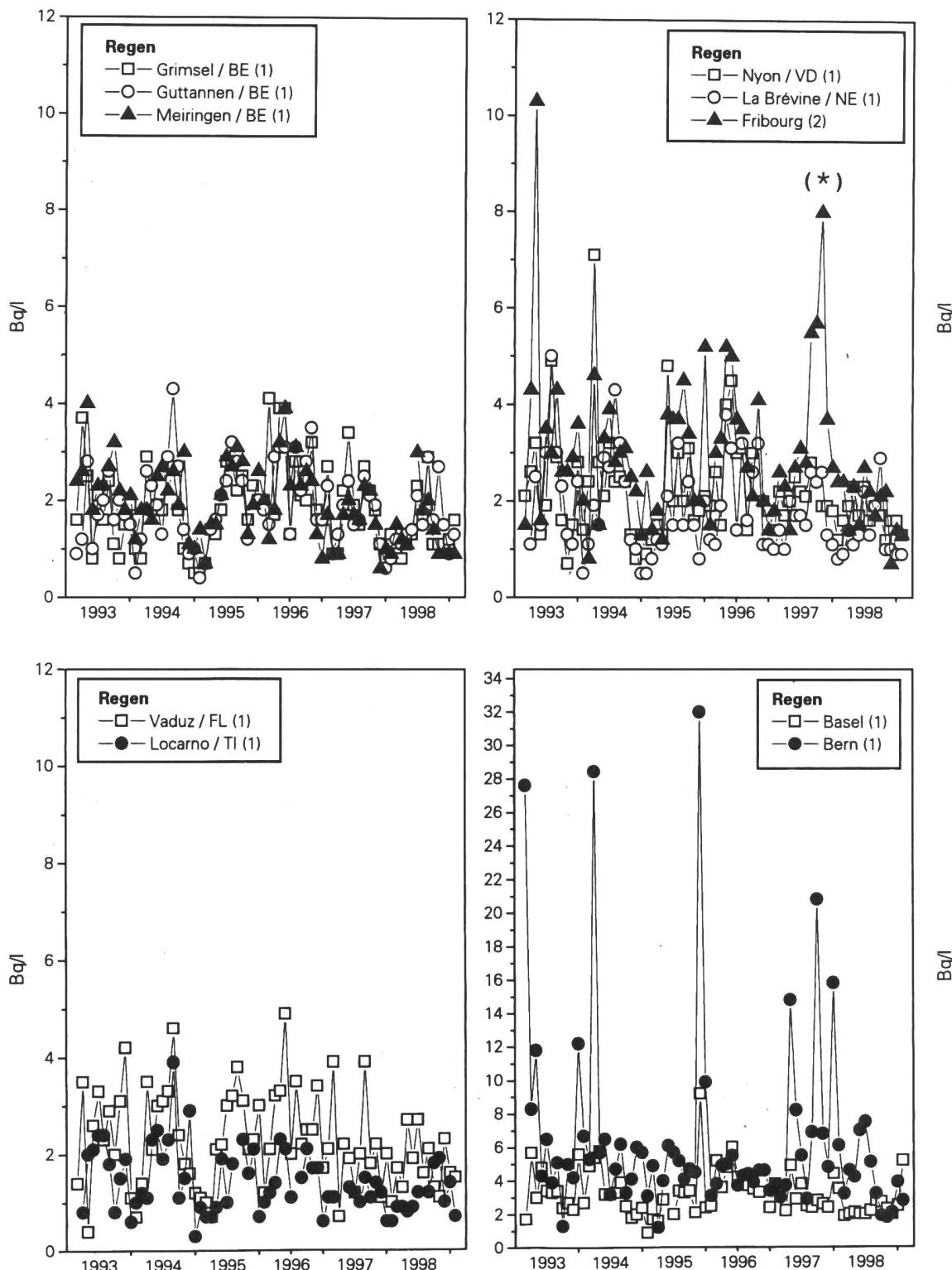
Figur 10 Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivität, Herbst, Umgebung Roche



**Figur 11  $^{85}\text{Kr}$  in der Bodenluft Freiburg / Breisgau (Schauinsland) und Jungfraujoch:  
1991-1998 (oben) und 1998 (unten)**

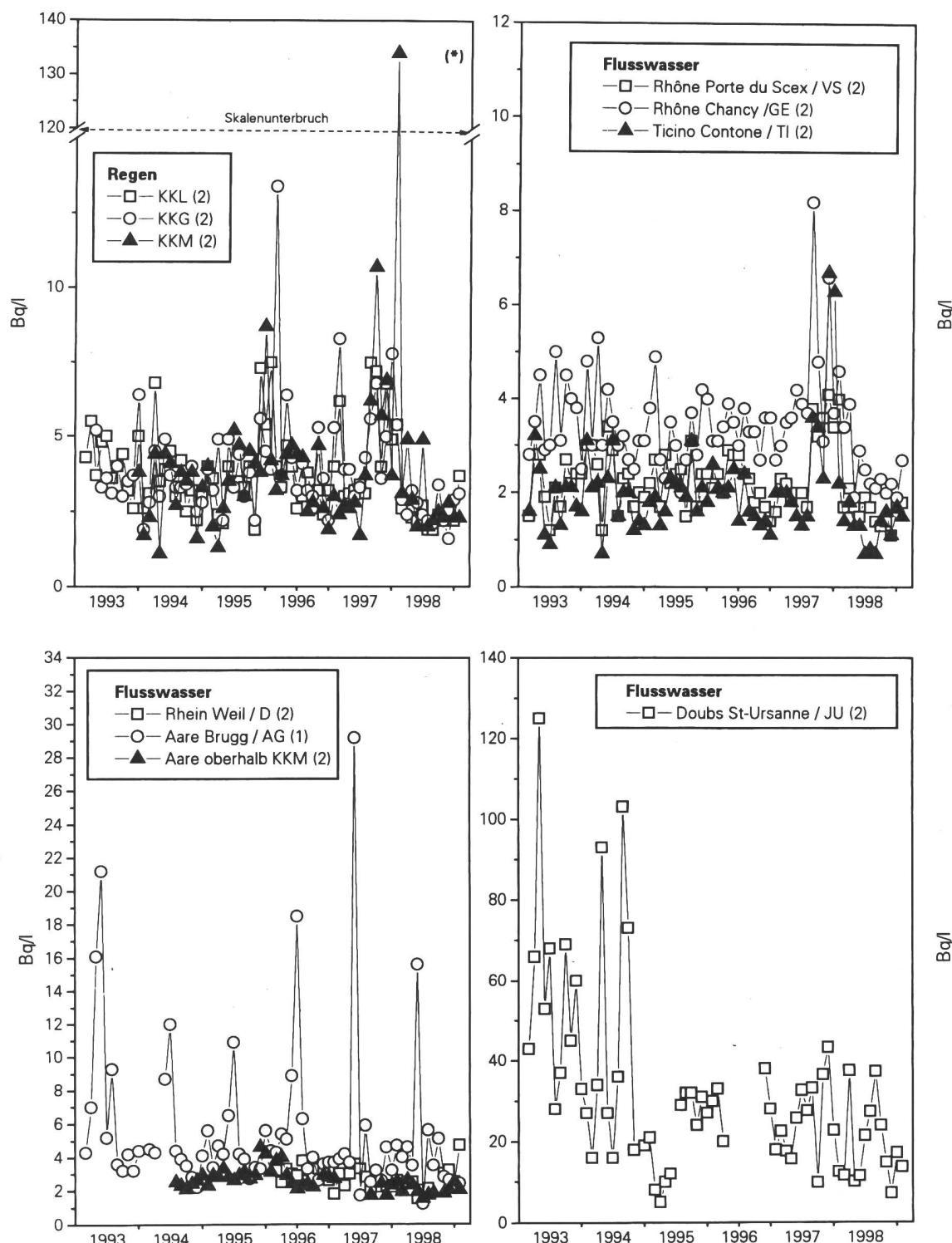


**Figur12a Tritium in Niederschlägen 1993 – 1998**



- 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. 1997 B.4.1)
- (Nachgrenzwerte: Uni Bern : 0.1...0.3 Bq/l; SUER: 0.5 Bq/l)

**Figur 12b Tritium in Niederschlägen und Flüssen 1993 – 1998**



- 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. 1997 B.4.1)  
(Nachgrenzweise: Uni Bern : 0.1...0.3 Bq/l; SUER: 0.5 Bq/l)

## 7.2. 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 mesures de  $^{239/240}\text{Pu}$  et de  $^{238}\text{Pu}$  ont porté en 1998 sur des échantillons de sols, de sédiments, d'eaux et de filtres aérosol. L'activité en  $^{241}\text{Am}$  a également été déterminée sur la plupart de ces échantillons. L'activité en  $^{239/240}\text{Pu}$  est comprise entre 0.1 et 2.8 Bq/kg dans le sol et entre 0.10 et 0.17 Bq/kg dans les sédiments. Pour  $^{241}\text{Am}$ , elle est comprise entre 0.3 et 0.64 Bq/kg dans les sols et entre 0.042 et 0.064 Bq/kg dans les sédiments. Sur l'ensemble de la Suisse, le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$  est de  $0.039 \pm 0.01$  et le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  est de  $0.44 \pm 0.10$ , soit des valeurs très proches de celles déterminées en 1997. Ces rapports correspondent à une contamination provenant des retombées des essais d'armes atomiques réalisée en atmosphère dans les années soixante. Dans l'air prélevé au moyen d'un filtre aérosol, on a mesuré  $3.5 \text{ nBq/m}^3$  de  $^{239/240}\text{Pu}$  et  $2.2 \text{ nBq/m}^3$  de  $^{241}\text{Am}$  au Weissfluhjoch. A Fribourg, ces valeurs sont de  $2.2 \text{ nBq/m}^3$  de  $^{239/240}\text{Pu}$  et  $2.1 \text{ nBq/m}^3$  de  $^{241}\text{Am}$ , très représentatives du phénomène de resuspension de particules de sol dans l'air. Les activités en  $^{239/240}\text{Pu}$  mesurées dans les eaux du Rhône ( $4.8 \text{ mBq/m}^3$ ), du Rhin ( $3.0 \text{ mBq/m}^3$ ) et dans l'eau de pluie de Fribourg ( $9.2 \text{ mBq/m}^3$ ) sont comparables à celles déterminées les années précédentes et reflètent l'activité des particules en suspension dans l'eau et dans l'air. Par contre les activités en  $^{241}\text{Am}$  mesurées dans le Rhône ( $42 \text{ mBq/m}^3$ ) et l'eau de pluie de Fribourg ( $37 \text{ mBq/m}^3$ ) sont au dessus des valeurs attendues si on considère un rapport  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  de  $0.44$ . L'activité en  $^{241}\text{Am}$  de l'eau du Rhin ( $2.0 \text{ mBq/m}^3$ ) ne présente pas cette anomalie.

### 7.3.1 Introduction

Le plutonium et l'américium sont tous les deux des radionucléides qui peuvent être accidentellement relâchés dans l'environnement. Ils sont potentiellement très radiotoxiques et s'accumulent dans le squelette et le foie lors d'une incorporation. L'utilisation de la fission nucléaire comme source d'énergie rend indispensable le développement d'une méthode d'analyse fiable et sensible afin de déterminer une éventuelle contamination de l'environnement. Pour compléter les mesures de plutonium effectuées depuis quelques années, notre laboratoire a développé en 1998 une méthode analytique afin de déterminer séquentiellement le plutonium et l'américium dans des échantillons de sols et de sédiments.

Dans ce travail, nous présentons pour la première fois les résultats des mesures séquentielles d'américium et de plutonium réalisées selon le plan de surveillance de l'environnement de l'Office Fédéral de la Santé Publique.

### 7.3.2 Méthode

La méthode de séparation chimique utilisée en 1998 a été développée à partir de la méthode de EML [1]. Pour pouvoir analyser séquentiellement le plutonium et l'américium, la méthode proposée en 1997 a été modifiée de la manière suivante [2] :

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

1. Le plutonium et l'américium sont co-précipités sur oxalate de calcium à pH 1.5.
2. Le plutonium est purifié par chromatographie d'échange sur résine anionique Bio-Rad® AG 1x8, électrodéposé sur disque d'acier et mesuré par spectrométrie  $\alpha$ .
3. L'américium, contenu dans les éluats, est purifié par chromatographie d'extraction sur résines Eichrom® TRU et TEVA.
4. L'américium est électrodéposé sur disque d'acier et mesuré par spectrométrie  $\alpha$ .

La méthode a été testée sur l'échantillon de sédiments IAEA-300 ( $^{241}\text{Am}$  : -1.4% ;  $^{239}/^{240}\text{Pu}$  : -2%).

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

#### Introduction

L' $^{241}\text{Am}$  (période de 445 ans) est un produit de filiation du  $^{241}\text{Pu}$  (période de 14.4 ans). Dans l'environnement en Suisse, on le trouve associé au plutonium dans un rapport d'environ 0.45 [3]. Ce rapport est typique de la déposition atmosphérique due aux essais d'armes atomiques réalisés dans les années soixante. Bunzl et al [4, 5] indiquent des rapports  $^{241}\text{Am}/^{239}/^{240}\text{Pu}$  entre 0.3 et 0.4 et proches de 0.03 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239}/^{240}\text{Pu}$  dans une étude de sols en Allemagne. La présence de  $^{238}\text{Pu}$  dans l'environnement provient essentiellement de la désintégration dans l'atmosphère du satellite SNAP-9A en 1964 [6]. Lors de contaminations industrielles, ces rapports se modifient de manière significative. Par exemple, suite à l'accident de Chernobyl, l'inventaire du plutonium relâché dans l'environnement dans un rayon de 10 km autour de la centrale indique un rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239}/^{240}\text{Pu}$  de 0.5 [7]. Aux abords du site de l'usine de retraitement de Sellafield, le rapport cumulatif moyen de  $^{241}\text{Am}/^{239}/^{240}\text{Pu}$  est de 1.5 [8]. Dans l'analyse de sols et de sédiments prélevés dans un rayon de 10 km autour de la centrale de retraitement de la Hague, des rapports  $^{241}\text{Am}/^{239}/^{240}\text{Pu}$  et  $^{238}\text{Pu}/^{239}/^{240}\text{Pu}$  très variables ont été mesurés. Ils montrent l'influence de l'usine de retraitement sur la contamination de l'environnement, malgré des concentrations en plutonium et américain en dessous des valeurs obtenues dans l'environnement en Suisse [9].

On constate donc que l'analyse détaillée des rapports des différents isotopes de plutonium et d'américium est très importante dans l'établissement de l'origine d'une contamination de l'environnement par ces radionucléides, c'est pourquoi les analyses effectuées seront toujours commentées selon ce critère.

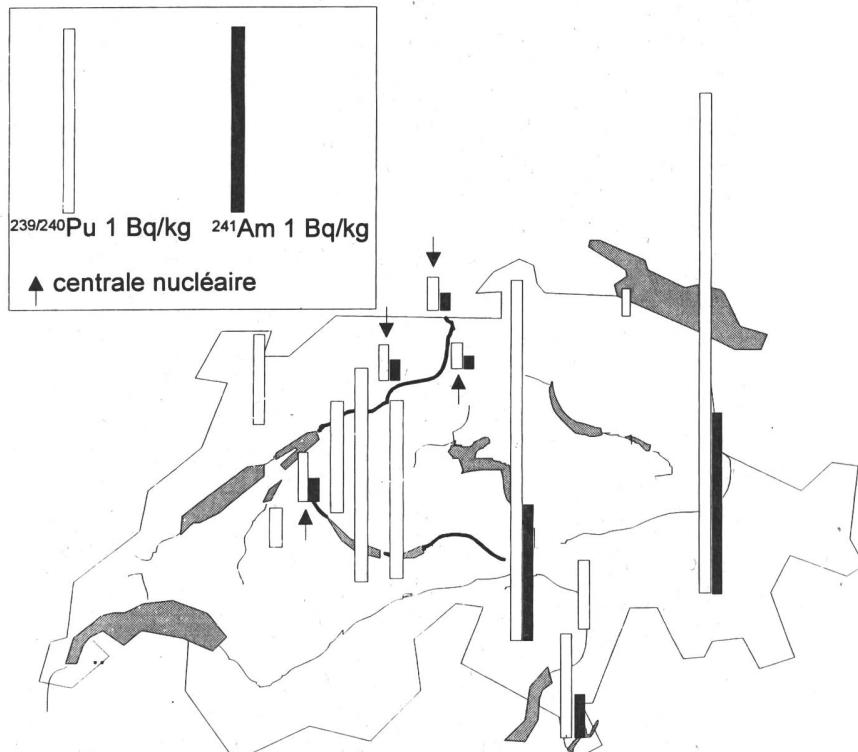
## Résultats de la surveillance

### Concentration de plutonium et d'américium dans les sols

Tous les échantillons ont été analysés pour en déterminer la concentration en plutonium et en américium, exprimée en Bq/kg de matière sèche. Les résultats sont présentés dans le Tableau 1 et la Figure 1.

Les valeurs obtenues en 1998 sont très comparables à celles de 1997. Intragna (TI) a été introduit dans le plan de surveillance car ce site présente une concentration en  $^{90}\text{Sr}$  importante, indicative des sites de montagne. Les valeurs de plutonium et d'américium mesurées en 1998 pour ce site confirment que dans l'environnement en Suisse, les endroits les plus contaminés par le  $^{90}\text{Sr}$ , dont l'origine est la déposition atmosphérique des années soixante, le sont également en plutonium et en américium. La surveillance aux alentours des centrales nucléaires indique des valeurs similaires à la déposition atmosphérique des années soixante mesurée sur le Plateau Suisse, comme le montre la Figure 1. Les valeurs obtenues dans l'environnement direct des centrales nucléaires sont ainsi parmi les plus faibles relevées sur l'ensemble de la Suisse et ne montrent pas d'incidence de celles-ci.

D'une manière générale les mesures de la concentration en plutonium et en américium dans les sols des sites du plan de surveillance révèlent les tendances de déposition atmosphérique dans l'environnement en Suisse : fortes sur les Alpes et le bassin versant sud des Alpes, faibles sur le Plateau Suisse. Une seule valeur (Diesse) a été mesurée dans la chaîne du Jura. Cette valeur est intermédiaire entre les sites alpins et ceux du Plateau Suisse. Il serait intéressant de mesurer quelques points supplémentaires dans la chaîne du Jura car cela permettrait de compléter la carte des dépositions atmosphériques en Suisse.



**Figure 1 :** Carte de la Suisse montrant la position des quatre centrales nucléaires ainsi que les sites de prélèvement du plan de surveillance annuel, avec les concentrations en plutonium et en américium.

Les moyennes des rapports isotopiques mesurés pour l'ensemble du territoire suisse donnent les valeurs suivantes :  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu} = 0.44 \pm 0.10$  et  $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu} = 0.04 \pm 0.01$ . Ces valeurs sont très proche de celles obtenues en 1997 ( $0.45 \pm 0.02$  et  $0.03 \pm 0.001$ ) et confirment que la contamination en plutonium et en américium de l'environnement en Suisse provient des retombées des essais d'armes nucléaires réalisés en atmosphère durant les années soixante.

**Tableau 1 :** Concentration en plutonium et américain dans le sol en 1998 (couche de 0 à 5 cm)

Lieu	$^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	Rapport $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
<b>Centrales nucléaires :</b>				
Mühleberg (BE)	$0.23 \pm 0.03$	$0.100 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.02$	$0.44 \pm 0.1$
Gösgen (SO)	$0.18 \pm 0.02$	$0.11 \pm 0.01$	$0.05 \pm 0.02$	$0.64 \pm 0.2$
Leibstadt (AG)	$0.17 \pm 0.02$	$0.08 \pm 0.01$	$0.04 \pm 0.01$	$0.49 \pm 0.1$
Beznau (AG)	$0.13 \pm 0.02$	$0.04 \pm 0.007$	$0.04 \pm 0.02$	$0.30 \pm 0.1$
<b>Sites en plaine :</b>				
Grangeneuve (FR)	$0.19 \pm 0.02$		$0.02 \pm 0.09$	
Arenenberg (TG)	$0.08 \pm 0.02$		$0.04 \pm 0.02$	
Fahrni (BE)	$0.64 \pm 0.04$		$0.02 \pm 0.01$	
Rodi (TI)	$0.30 \pm 0.03$		$0.05 \pm 0.01$	
Sessa (TI)	$0.55 \pm 0.05$	$0.23 \pm 0.03$	$0.05 \pm 0.01$	$0.42 \pm 0.08$
<b>Sites en altitude :</b>				
Diesse (BE)	$0.43 \pm 0.03$		$0.05 \pm 0.01$	
Allmendhubel (BE)	$1.15 \pm 0.06$		$0.03 \pm 0.01$	
Gimmelwald (BE)	$0.93 \pm 0.05$		$0.03 \pm 0.007$	
Intragna (TI)	$2.1 \pm 0.1$	$0.74 \pm 0.07$	$0.024 \pm 0.005$	$0.35 \pm 0.05$
Davos (GR)	$2.8 \pm 0.1$	$1.0 \pm 0.1$	$0.024 \pm 0.004$	$0.35 \pm 0.05$

$$^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu} = 0.44 \pm 0.10 \text{ (moyenne suisse)}$$

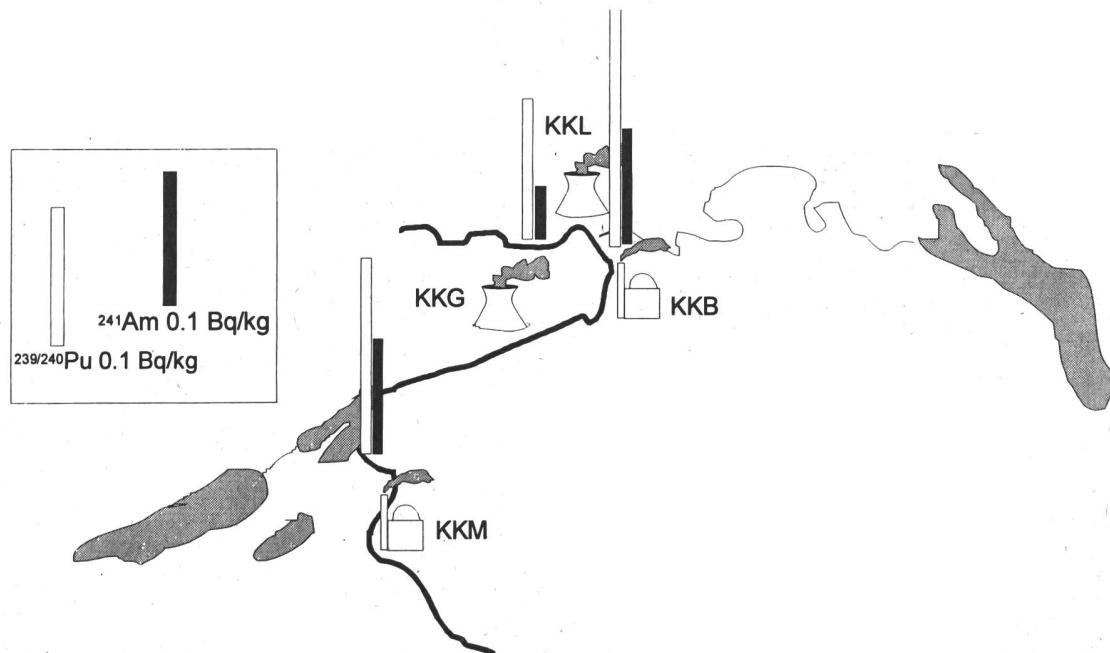
$$^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu} = 0.04 \pm 0.01 \text{ (moyenne suisse)}$$

### Concentration en plutonium et américain dans les sédiments

Les mesures de plutonium et d'américium dans les sédiments de rivières en aval des centrales nucléaires suisses ont pour origine les travaux de Albrecht [10] réalisés lors d'un projet commun entre l'EAWAG et la DSN et destinés à déterminer le comportement de certains produits d'activation (notamment  $^{60}\text{Co}$ ) dans les rejets des centrales nucléaires. Suite à ces travaux, les techniques et les lieux de prélèvements ont été modifiés lors de la campagne d'échantillonnage de 1998, afin de mieux tenir compte des phénomènes de variation de débit des rivières et du mélange des eaux de rejets avec celles des rivières. Ainsi, le lieu de prélèvement des sédiments de Mühleberg a été déplacé à Hagneck (près du lac de Biel) et celui de Leibstadt à Pratteln. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2 et à la Figure 2 et 3.

Dans les centrales nucléaires, une petite fraction des radionucléides peuvent être transférés du circuit primaire aux eaux usées lors de la révision annuelle [10]. Pour cette raison les

mesures de plutonium et d'américium ont été effectuées sur des échantillons de sédiments correspondant au mois pour lequel l'activité des sédiments en  $^{60}\text{Co}$  mesurée par spectrométrie gamma a été maximale (période de rejets). Si les conditions hydrologiques en aval de la centrale jouent un rôle primordial dans la distribution des radionucléides dans les cours d'eau directement après le rejet, l'adsorption de radionucléides à la surface des sédiments en suspension est certainement le facteur qui influence le plus directement le devenir des radionucléides à long terme dans l'environnement aquatique. A ce titre, la vitesse de sédimentation a souvent été déterminée à partir de profils de radiocésium dans les sédiments (maxima en 1963 et 1986). Le plutonium et l'américium présentent des coefficients d'adsorption à la surface des sédiments très élevés. Les sédiments se révèlent donc être d'excellents indicateurs de contamination des milieux aquatiques. L'échantillonnage a été effectué en prélevant les sédiments en suspension dans les rivières.

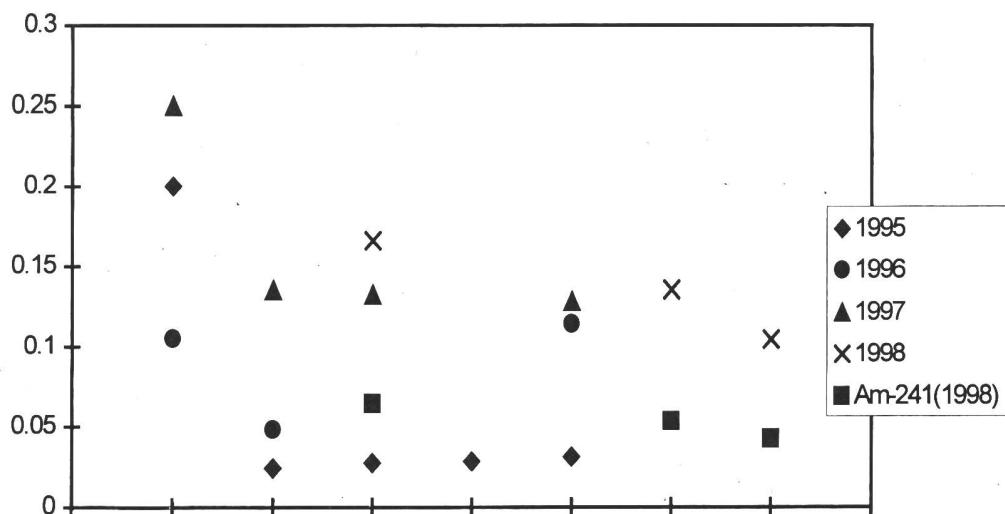


**Figure 2 :** Emplacement des réacteurs nucléaires et des sites de prélèvement des sédiments, avec leur concentration en plutonium et en américium (1998).

Les valeurs mesurées en 1998 sont très proches des valeurs de 1997, bien qu'obtenues sur des échantillons prélevés sur d'autres segments de l'Aar et du Rhin. Le niveau de contamination et les rapports isotopiques indiquent que la contamination des sédiments s'est effectuée par érosion du bassin versant de l'Aar et du Rhin. Par rapport aux sols correspondants, la contamination des sédiments des rivières est légèrement inférieure et peut s'expliquer par un enrichissement en carbonate de calcium, au détriment des particules de fer moins solubles mais plus riches en plutonium et en américain. Les résultats ne montrent pas d'influence des centrales nucléaires sur le niveau de contamination des sédiments.

**Tableau 2 :** Concentration (Bq/kg) en plutonium et en américium dans des sédiments en 1998

Centrales nucléaires	Période de prélèvement	$^{239/240}\text{Pu}$	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	Rapport $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
<b>Aval de Mühlberg</b> Hagneck	29.01-25.02.98	0.14±0.02	0.08±0.04	0.053±0.008	0.51±0.10
<b>Aval de Gösgen et de Beznau</b> Lac de Klingnau	02.06-30.06.98	0.17±0.02	0.06±0.02	0.064±0.01	0.47±0.10
<b>Aval de Leibstadt</b> Pratteln	30.04-02.06.98	0.10±0.02	0.03±0.02	0.042±0.008	0.33±0.10



**Figure 3 :** Concentration en  $^{239/240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  dans les sédiments de 1995 à 1998

#### Concentration en $^{238}\text{Pu}$ , $^{239/240}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}$ dans l'air

L'activité en plutonium et en américium a été déterminée sur des filtres à air pour un site en plaine (Fribourg) et l'autre en montagne (Weissflujoch). La durée du prélèvement s'étend sur une année car l'activité de ces deux radionucléides dans l'air est très faible et provient essentiellement de la resuspension [11]. Cette dernière dépend, pour un emplacement donné, de nombreux facteurs tels que l'âge de la déposition, 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, qui dépend de la taille des particules associées au radionucléide [12].

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 1998,  $RF_{obs}(Pu)$  est situé entre  $2.3 \times 10^{-11} \text{ m}^{-1}$  et  $4.4 \times 10^{-11} \text{ m}^{-1}$  (1997 :  $2.7-3.6 \times 10^{-11} \text{ m}^{-1}$ ). La resuspension de particules de sol dans l'atmosphère est la seule contribution à l'activité des filtres à air mise en évidence dans ces mesures, bien que le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  dans l'air soit légèrement supérieur à celui mesuré dans le sol.

**Tableau 3 :** Concentration en plutonium dans l'air

Emplacement	Année	Activité ( $\text{nBq/m}^3$ )		
		$^{239/240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
Fribourg	1994	$1.36 \pm 0.25$	$1.47 \pm 0.25$	
Fribourg	1995	$1.23 \pm 0.16$	$0.36 \pm 0.07$	
Fribourg	1996	$< 1.6$	$< 0.6$	
Fribourg	1997	$1.8 \pm 0.3$	$0.21 \pm 0.07$	
Fribourg	1998	$2.2 \pm 1$	$< 0.5$	$2.1 \pm 0.5$
Weissfluhjoch	1996	$1.9 \pm 0.8$	$1.1 \pm 0.2$	
Weissfluhjoch	1997	$4.0 \pm 0.5$	$< 0.3$	
Weissfluhjoch	1998	$3.5 \pm 1$	$1.3 \pm 0.5$	$2.2 \pm 0.4$

Ce facteur moyen de resuspension 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 et d'américium dans les eaux

Les mesures ont été effectuées sur des eaux de surface (Rhône et Rhin) et sur des eaux de pluie (Fribourg). La méthode de préconcentration est l'évaporation de fractions prélevées chaque semaine sur toute l'année (Chancy et Fribourg) et par la précipitation d'hydroxydes de fer sur des prélèvements mensuels (Rhin).

Les activités en  $^{239/240}\text{Pu}$  sont comparables à celles des années précédentes (Tableau 4) alors que l'activité en  $^{238}\text{Pu}$  reste en dessous de la limite de détection. Pour la première fois en 1998, des mesures d'américium ont été effectuées sur ces échantillons. Si la mesure de  $^{241}\text{Am}$  dans les eaux du Rhin corrobore l'hypothèse selon laquelle la mesure de l'activité de l'eau de surface s'apparente à la mesure de l'activité des sédiments et des colloïdes en suspension par un rapport isotopique  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  proche de celui mesuré sur les sédiments, il n'en va pas de même pour les activités mesurées sur les échantillons de Chancy et de Fribourg. Lors de la mesure sur les échantillons prélevés de janvier à octobre 1998, l'activité en américium a été supérieure à la valeur attendue si l'on considère un rapport  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  de 0.45. Deux mesures de contrôle ont alors été effectuées sur les prélèvements de novembre-décembre 1998, qui ont confirmé les résultats précédents.

Dans les eaux naturelles, un tel enrichissement en américium à partir de la source (sol) est hautement improbable et ne peut être expliqué ni par la formation de colloïdes et par la solubilité de l'américium [13], ni par la participation éventuelle du plutonium et de l'américium au cycle du fer et du manganèse dans les milieux aquatiques [14, 15]. En absence de mesures sur une plus longue période, l'explication la plus plausible réside dans une faible augmentation de l'activité de certaines eaux due à la présence de  $^{241}\text{Am}$  d'origine industrielle, par exemple lors de l'incinération accidentelle de détecteurs d'incendie contenant ce radioélément. Cette augmentation d'activité est très faible mais décelable grâce à une limite de détection des émetteurs alpha très basse (0.05 mBq).

**Tableau 4 :** Concentration en plutonium et en américium dans l'eau de pluie (Fribourg) et les eaux du Rhône et du Rhin, en mBq/m<sup>3</sup>.

Type d'eaux	Lieu de prélèvement	1996	1997	1998 <sup>a)</sup>	
		$^{239/240}\text{Pu}$	$^{239/240}\text{Pu}$	$^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
eaux de fleuve	Weil-am-Rhin	12±3	11.9±1.8	3.0±0.7 <sup>b)</sup>	2.0±0.8 <sup>b)</sup>
eaux de fleuve	Chancy	4.8±0.8	11.8±1.4	4.8±1.0	42±7 (87±15)
eaux de pluie	Fribourg	10.0±1.3	4.8±0.8	9.0±2.0	37±6 (20±4)

a) la période de prélèvement est janvier-octobre 1998. Entre parenthèse figurent les valeurs de contrôle pour la période novembre-décembre 1998.

b) Prélèvement effectué à Pratteln, mai-juin 1998.

### 7.3.4 Conclusions

Les mesures des activités en  $^{239/240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  ont été effectuées sur tous les échantillons présentés dans ce rapport, à l'exception de quelques sols où seul le plutonium a été déterminé. La mesure de l'activité de l'américium dans ces échantillons introduit un paramètre supplémentaire de contrôle de la contamination de l'environnement en Suisse. En effet le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  est constant sur l'ensemble du territoire suisse ( $0.44\pm0.10$ ) et indique, tout comme le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$  ( $0.04\pm0.01$ ) que la contamination de l'environnement par le plutonium et l'américium provient des retombées des essais d'armes atomiques réalisés dans l'atmosphère durant les années soixante. Une faible augmentation de l'activité en  $^{241}\text{Am}$  a été décelée dans deux eaux, dont l'origine est peut-être l'utilisation industrielle de  $^{241}\text{Am}$ , dans les détecteurs d'incendie par exemple. Cette activité n'introduit pas de dose supplémentaire au public.

### 7.3.5 Bibliographie

- [1] Berne, A. ; in « Americium in soil », Environmental Laboratory Methods, March 1996, 201 Varick St. ; N.Y. USA.
- [2] Froidevaux, P., Geering, J.-J., Vallley, J.-F., Plutonium and Americium in the Swiss Environment, Eichrom's users group meeting, Paris, 7<sup>th</sup> December 1998.
- [3] Geering, J.-J., Froidevaux, P., Buchillier, T., Kosinski, M., Valley, J.-F., in « Radioactivité de l'Environnement et doses de Rayonnements en Suisse », OFSP, Division de la Radioprotection, 1997, ch. 7.3.

- [4] Bunzl, K. ; Kracke, W. ; *J. Environ. Radioactivity*, 8, 1988, 1-14.
- [5] Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W., *J. Environ. Radioactivity*, 28, **1995**, 17-34.
- [6] Hölge, Z., Filgas, R., *J. Environ. Radioactivity*, 27, **1995**, 181-189.
- [7] Krivokhatsky, A.S., Dubasov, Yu.V., Smirnova, E.A., Skovorodkin, N.V., Savonenko, V.G., Alexandrov, B.M., Lebedev, E.L., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 147, **1991**, 141-151.
- [8] 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.
- [9] Murith, C., Froidevaux, P., Geering, J.-J., Valley, J.-F., Communication interne, 1999.
- [10] Albrecht, A., in « The Behavior of Nuclear Reactor Derived Metallic Radionuclides in the Aquatic System of Switzerland », Schriftenreihe der EAWAG, NR.13, 1998, Swiss Federal Institute for Environmental Science and Technology, EAWAG-ETH, CH-8600 Dübendorf.
- [11] Garcia-Olivares, A., Iranzo, C.E., *J. Environ. Radioactivity*, 37, **1997**, 101-114.
- [12] Sehmel, G.A., *Atmos. Environ.*, 14, **1980**, 983-1011.
- [13] Kim, J.I., in »Chemical Behaviour of Transuranic Elements in Natural Aquatic Systems », Elsevier Science Publ., 1986, pp 413-455.
- [14] Vangenechten, J.H.D., Chughtai, N.A., Vanderborght, O.L.J., Bierkens, J., *J. Environ. Radioactivity*, **1986**, 275-287.
- [15] Alberts, J.J., Pinder, J.E., Bowling, J.W., Nelson, D.M., Orlandini, K.A., *J. Environ. Radioactivity*, 4, **1986**, 167-176.