Messungen von Spezialnukliden

Objekttyp: **Group**

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**

Band (Jahr): **- (1999)**

PDF erstellt am: **01.06.2024**

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.
Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.
Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Ein Dienst der *ETH-Bibliothek*
ETH Zürich, Rämistrasse 101, 8092 Zürich, Schweiz, www.library.ethz.ch

http://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 und das radioaktive Edelgas ^{85}Kr. Deren Nachweis erfordert spezielle Anreichungs- und Trenn- wie auch Nachweisverfahren. Eine weitere Kategorie sind die Alphastrahler $^{239+240}Pu$, ^{238}Pu und ^{241}Am.

Tritium in der Biosphäre (Niederschläge, Gewässer und Pflanzen) war in der 60er-Jahren in der Schweiz durch die Kernwaffenversuche bis gegen 800 Bq/l angestiegen war 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 dem Flüssen im Alpenraum bei 2.2, im der Rhone unterhalb Genf bei 3.3 und in der Aare bei Brugg bei 5.3 Bq/l. Die Tritium-Messungen in Flüssen und Niederschlägen von 1993-1999 sind auf den Seiten B.7.1.11–12 graphisch dargestellt. Geringfügig erhöht sind die Werte in den Niederschlägen von Bern, verursacht durch die Abgaben eines Tritium-verarbeitenden Betriebes in der Region. Die Erhöhungen in der Aare bei Brugg jeweils im Frühjahr werden durch Abgaben des KKW Gösgen verursacht. Im Doubs sind die Werte in den letzten Jahren deutlich zurückgegangen. Der Toleranzwert für Tritium im Trinkwasser beträgt 1000 Bq/l, der Immissionsgrenzwert für öffentliche Gewasser 12'000 Bq/l [Kap. 7.1.].

Beim ^{14}C führten die Kernwaffenversuche Mitte der 60er-Jahre ebenfalls zu einer Verdoppelung gegenüber dem naturlichen Gehalt von 227 Bq/kg Kohlenstoff. Heute liegt der künstliche Anteil noch bei 99 Promille des natürlichen Gehaltes. In der Nahumgebung der Kernanlagen ist er durch deren Emissionen um bis zu 225 Promille erhöht, in der Umgebung des PSI bis zu 40 Promille. Das vor allem bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoff freigesetzte ^{85}Kr zeigt eine ansteigende Tendenz und beträgt 1.3 Bq/m^{3} [Kap. 7.1].

Die Alpha-Strahler $^{234+240}Pu$ sowie ^{241}Am stammt im wesentlichen von der Kernwaffenversuchen während ^{238}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 [Kap. 7.2].

7.1. Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85

H. Loosli, U. Schotterer und H. Bürki — Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut, 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

Zusammenfassung

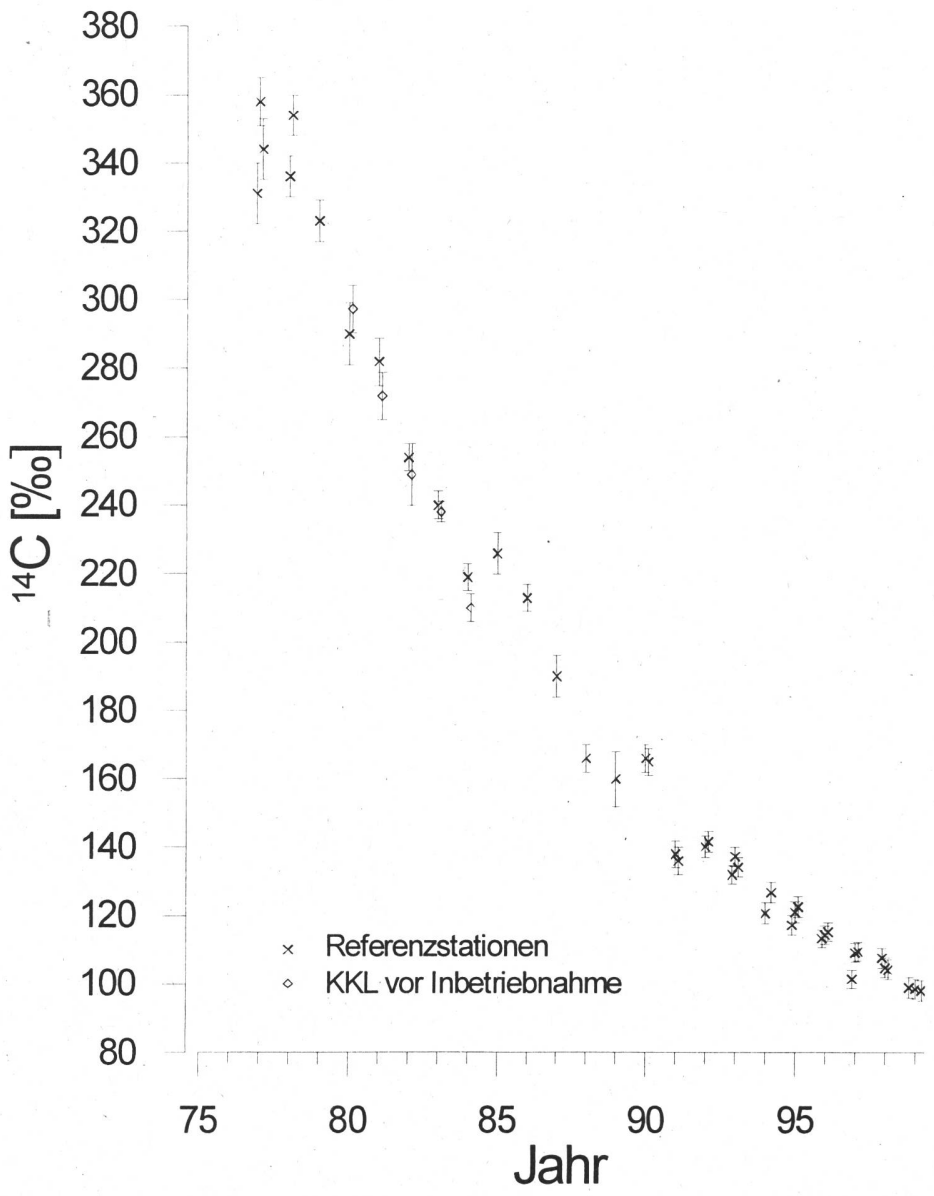
Die ^{14}C-Messungen in Baumblättern ergaben 1999 an der Referenzstation einen Wert von $\Delta^{14}C = 99 \pm 3$ ‰. Verglichen mit diesem Wert wurden wie in früheren Jahren Nettoerhöhungen in Baumblättern aus der Umgebung der Kernkraftwerke Leibstadt (KKL), Gösgen (KKG) und Mühleberg (KKM) festgestellt. Die beim KKL gefundene maximale Erhöhung betrug 225 ‰. Die Erhöhungen stimmen gut mit denjenigen früherer Jahre überein und deuten auf relative konstante Emissionen und Verdünnungsvorgänge in den Hauptwindrichtungen hin. Die maximale Erhöhung beim KKG betrug 85 ‰ und bestätigt den letzten Jahr gezogenen Schluss, dass die $^{14}CO_2$ Emissionen jetzt höher sind als in früheren Jahren. Ein umfangreicheres Ueberwachungsprogramm als früher wurde in der Umgebung des KKM durchgeführt, um die Modellrechnungen in hügeligem Gelände mit Messwerten zu vergleichen. Aus den Resultaten kann auf eine gute Uebereinstimmung zwischen Modell und Messung für die Immissionsorte geschlossen werden; die von der HSK angenommenen Emissionswerte sind aber vermutlich um einen Faktor 2-4 überschätzt.

In der Umgebung des PSI resp. des ZWILAG wurden zur Beweissicherung elf ^{14}C-Proben genommen und gemessen. Wie in früheren Jahren wurde eine recht gleichmässige Erhöhung bis maximal 40 ‰ gefunden. Die Quellen der relativ geringen Erhöhungen sind unklar.

In Basel sind die Erhöhungen in der Nahumgebung des Verbrennungsofens der Firma NOVARTIS praktisch verschwunden. Das wird darauf zurückgeführt, dass nur nachts ^{14}C-haltige Abfälle verbrannt werden. Erhöhungen sind aber nach wie vor am Volta-Platz und in der Umgebung der Firma ROCHE gemessen worden, was auf zwei weitere Emissionsquellen deutet.

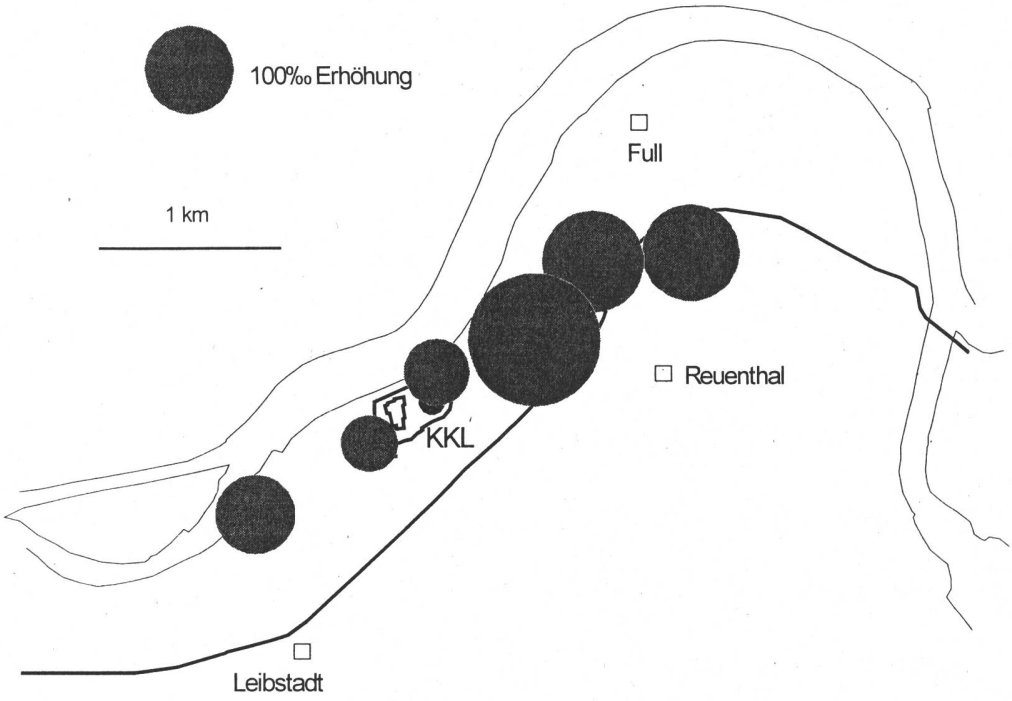
Alle gemessenen ^{14}C-Erhöhungen führen zu hypothetischen zusätzlichen Dosen, die in der Grössenordnung von μSv pro Jahr liegen; sie fallen also nicht ins Gewicht. Die Bedeutung der ^{14}C-Messungen liegt also nicht primär bei den zusätzlichen zu erwartenden Dosen d.h. beim Strahlenschutz, sondern darin, dass mit diesem Nuklid Umweltprozesse untersucht, besser verstanden und modelliert werden können.

^{85}Krypton ist eines der wenigen Radionuklide, deren Aktivität in der Atmosphäre noch ansteigt. Der heutige Grundlevel beträgt ca. 1.3 Bq/m^3. Dieser Anstieg lässt darauf schliessen, dass in Wiederaufbereitungsanlagen vermehrt Kernbrennstoff verarbeitet wird, was zu ansteigenden Emissionen führt. Die Messresultate lassen diese Emmision für das Jahr 1999 zu ca. 5 x 10^{17} Bq abschätzen. Erhöhte Wochenwerte bis ca. 3 Bq/m^3 Luft wurden auch 1999 in Luftproben vom Jungfraujoch und von Bodenstationen (z.B. Freiburg im Breisgau) beobachtet. Die Strahlendosis durch ^{85}Kr (β-Dosis der Haut und γ-Dosis) ist kleiner als 1μSv/Jahr (effektive Dosis) und deshalb vernachlässigbar.



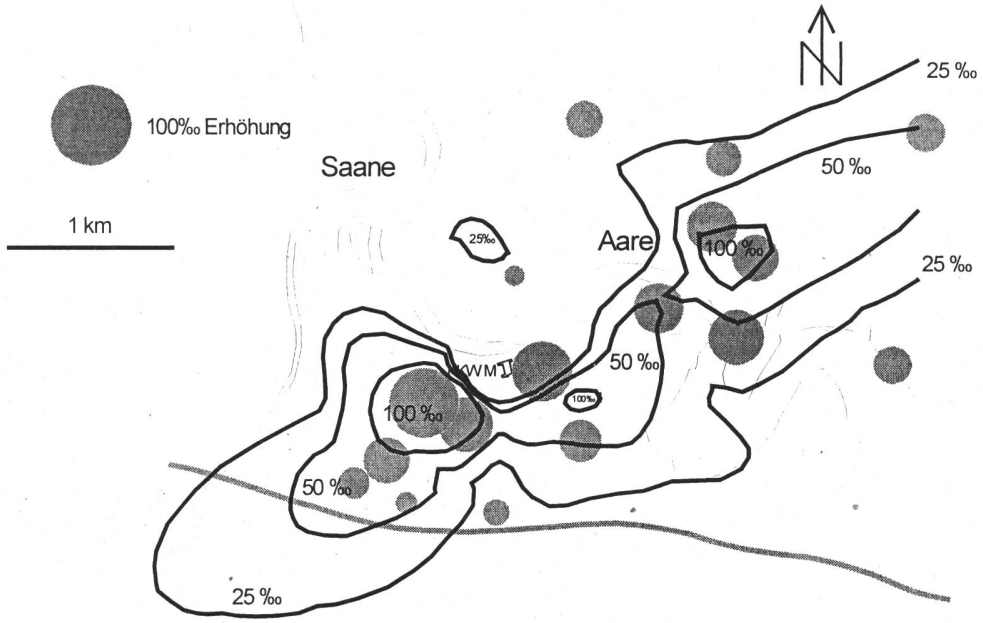
Figur 1: $\Delta^{14}C$ Konzentrationen in Buchenblättern von den Referenzstationen

Die $\Delta^{14}C$ Konzentration in Buchenblättern an der Referenzstation auf dem Belpberg betrug in 1999 noch 99 ± 3 ‰. Die kontinuierliche Abnahme des atmosphärischen $^{14}CO_2$-Gehaltes ist darauf zurückzuführen, dass das atmosphärische CO_2 ständig mit dem CO_2 des globalen Ozeans im Austausch ist, so dass die durch die Kernwaffentests in den 60er Jahren produzierte zusätzliche ^{14}C-Aktivität langsam in die Ozeane verschwindet. Innerhalb 3 Standard-Abweichungen stimmen die niedrigsten Werte in der Umgebung der Kernanlagen (KKG, KKM, PSI) und der Verbrennungsanlage der NOVARTIS in Basel mit dem Wert der Referenzstation überein, was auf die Reproduzierbarkeit unserer ^{14}C-Messungen hinweist. Die in den Figuren 2 bis 8 dargestellten Netto-Erhöhungen sind die Abweichungen zu den oben erwähnten +99 ‰ an der Referenzstation.



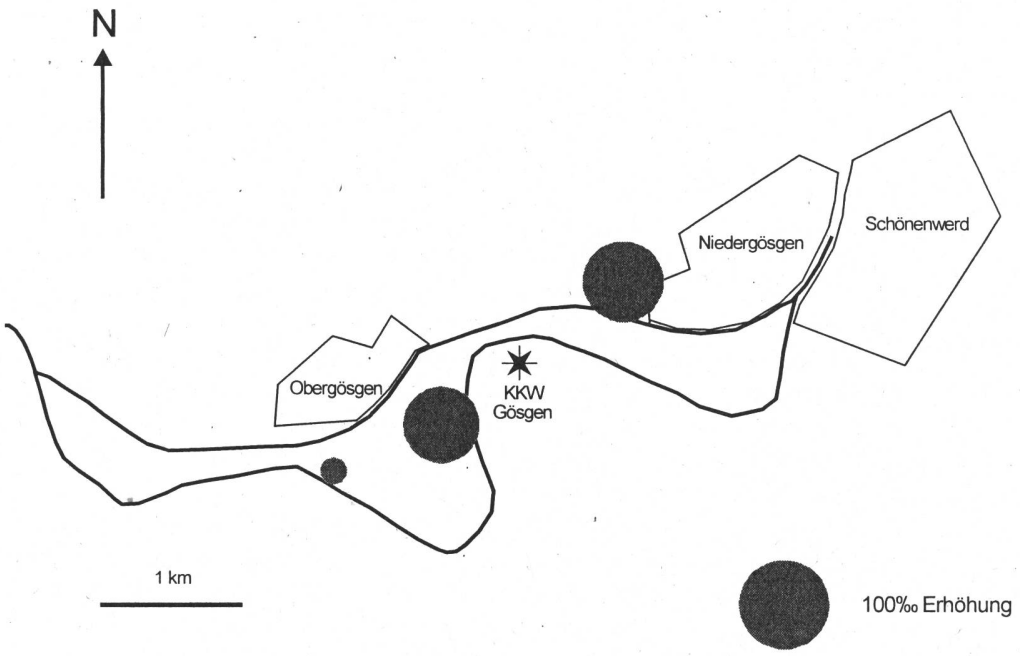
Figur 2: Netto $\Delta^{14}C$ in der Umgebung vom KKW Leibstadt, 1999

Das Ueberwachungsprogramm in der Umgebung des KKL wurde als Langzeitreihen für einige Standorte weitergeführt. Die dargestellten Kreisflächen sind proportional zu den Netto- $\Delta^{14}C$-Werten. Die grössten Erhöhungen der ^{14}C-Aktivität in Buchenblättern traten wie früher in einer Entfernung von ca. 1 km vom Abluftkamin in den beiden Hauptwindrichtungen auf. In grösserer und kleinerer Entfernung sind in nordöstlicher Richtung die gemessenen Erhöhungen kleiner, was mit den Ausbreitungsmodellen übereinstimmt. Die gemessenen Erhöhungen sind im Laufe der Jahre bemerkenswert konstant geblieben, was auf ähnliche Emissionensraten (ca 10^4 Bq/s) in der Wachstumsperiode und auf relativ konstante Langzeitverdünnungfaktoren ($x \approx 5 \times 10^{-7}$ s/m^3) schliessen lässt. Eine zusätzliche ^{14}C-Aktivität von 100 ‰ führt zu einer hypothetischen maximalen (effektiven) Dosis von ca. 1 µSv/Jahr. Dies fällt gegenüber den Variationen der natürlichen Strahlungsdosen und insbesondere denjenigen wegen Radon nicht ins Gewicht.



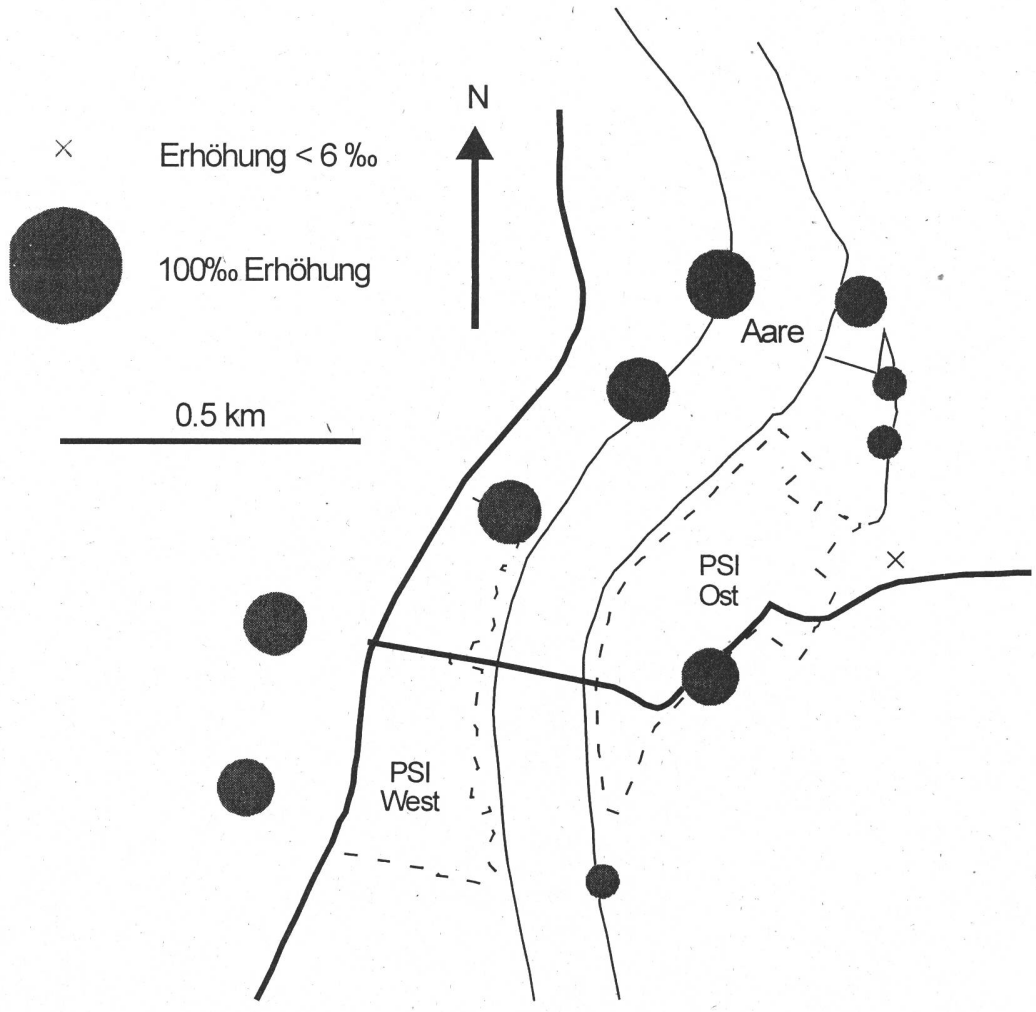
Figur 3: Netto $\Delta^{14}C$ in der Umgebung vom Kernkraftwerk Mühleberg, 1999

Die in Buchenblättern aus der Umgebung des KKM gemessen Netto- $\Delta^{14}C$-Werte sind vergleichbar mit Erhöhungen früherer Jahre (vergl. BAG Bericht 1994) und betragen maximal 75 ‰ Ufem Horn. Hauptziel dieser Messungen ist aber der Vergleich mit Modellrechnungen. Benutzt man die Annahme der HSK über Emissionen (6000 Bq/s) und Langzeitverdünnung (2 x 10^{-6} s/m3), erwartet man am Aufschlagpunkt eine Erhöhung von ca. 300 ‰, d.h. ca. 4x mehr als gemessen. Auch in Salvisberg in NE Richtung sind die Messwerte kleiner als die Modellwerte. Wahrscheinlich ist also die Emissionsrate überschätzt. Allerdings stimmt die räumliche Verteilung der gemessenen Aktivität mit der Modell-Verteilung gut überein, was für die hügelige Umgebung und das verwendete einfache Gauss-Modell nicht selbstverständlich ist. Ob das Modell in NE-Richtung eine zu enge seitliche Verbreitung voraussagt, soll im nächsten Jahr nochmals untersucht werden.



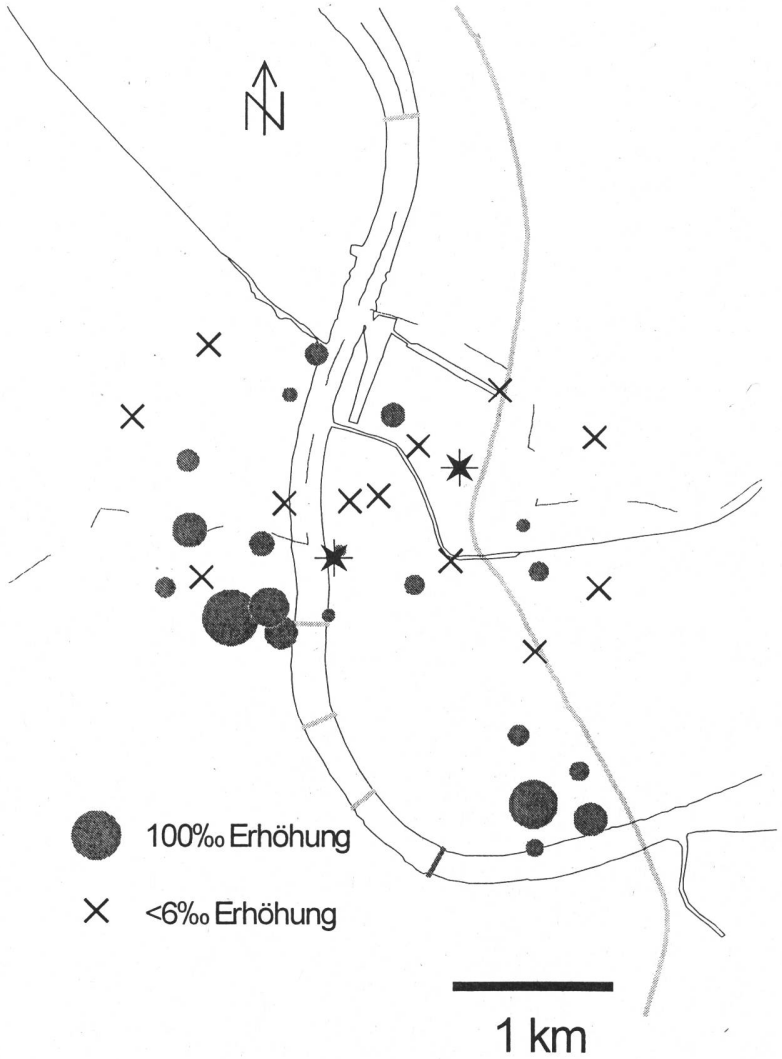
Figur 4: Netto $\Delta^{14}C$ in der Gegend vom Kernkraftwerk Gösgen, 1999

Es ist bekannt, dass ein Druckwasserreaktor ^{14}C vorwiegend in CH_4-Form abgibt, d.h. für Pflanzen nicht assimilierbar. Deshalb waren die bis 1995 periodisch gefundenen Erhöhungen bis (nur) 45 ‰ keine Ueberraschung. Erstaunlicher war aber eine Erhöhung um 92 ‰ in NE Richtung, die im letzten Jahr gemessen wurde und aus der eine Emissionsrate von $^{14}CO_2$ von 2 x 10^4 Bq/s während der Wachstumsphase abgeschätzt werden konnte. Die Messungen im Jahre 1999 haben in NE und SW Richtung Erhöhungen zwischen 70 und 85 ‰ gebracht; eine Nachmessung hat aber auch den Wert des Jahres 1998 bestätigt. Damit ist der Verdacht erhärtet, dass die $^{14}CO_2$-Abgaben aus dem KKG in den letzten Jahren grösser waren als früher.



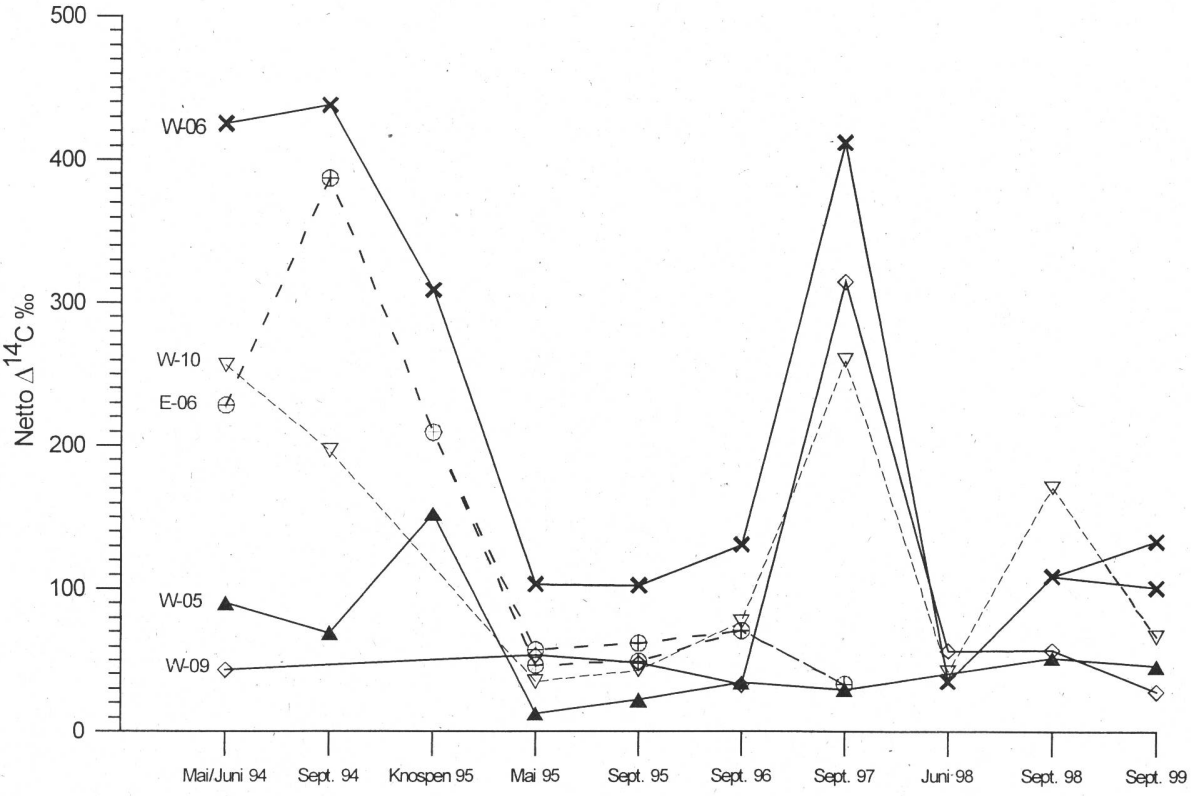
Figur 5: Netto $\Delta^{14}C$ Aktivität in der Umgebung des PSI, 1999

Auch 1999 wurden in der Umgebung des PSI resp. des ZWILAG in Baumblättern ziemlich gleichmässig erhöhte $\Delta^{14}C$-Werte gemessen; die Erhöhungen 1999 waren ähnlich wie 1998, d.h. etwas grösser als früher. Die früher geäusserte Vermutung, dass die Erhöhungen dem im Dezember 1993 stillgelegten Forschungsreaktor Saphir zuzuordnen seien, trifft offenbar heute nicht zu, weil kein systematischer Rückgang mehr zu beobachten ist. Die Quelle der heutigen Erhöhungen ist unklar; in Frage kommen die Verbrennung ^{14}C-haltiger Abfälle im PSI, die am SIN durchgeführten Experimente oder/und das KKB. Die Beweissicherung in der Umgebung PSI/ZWILAG soll weitergeführt werden.



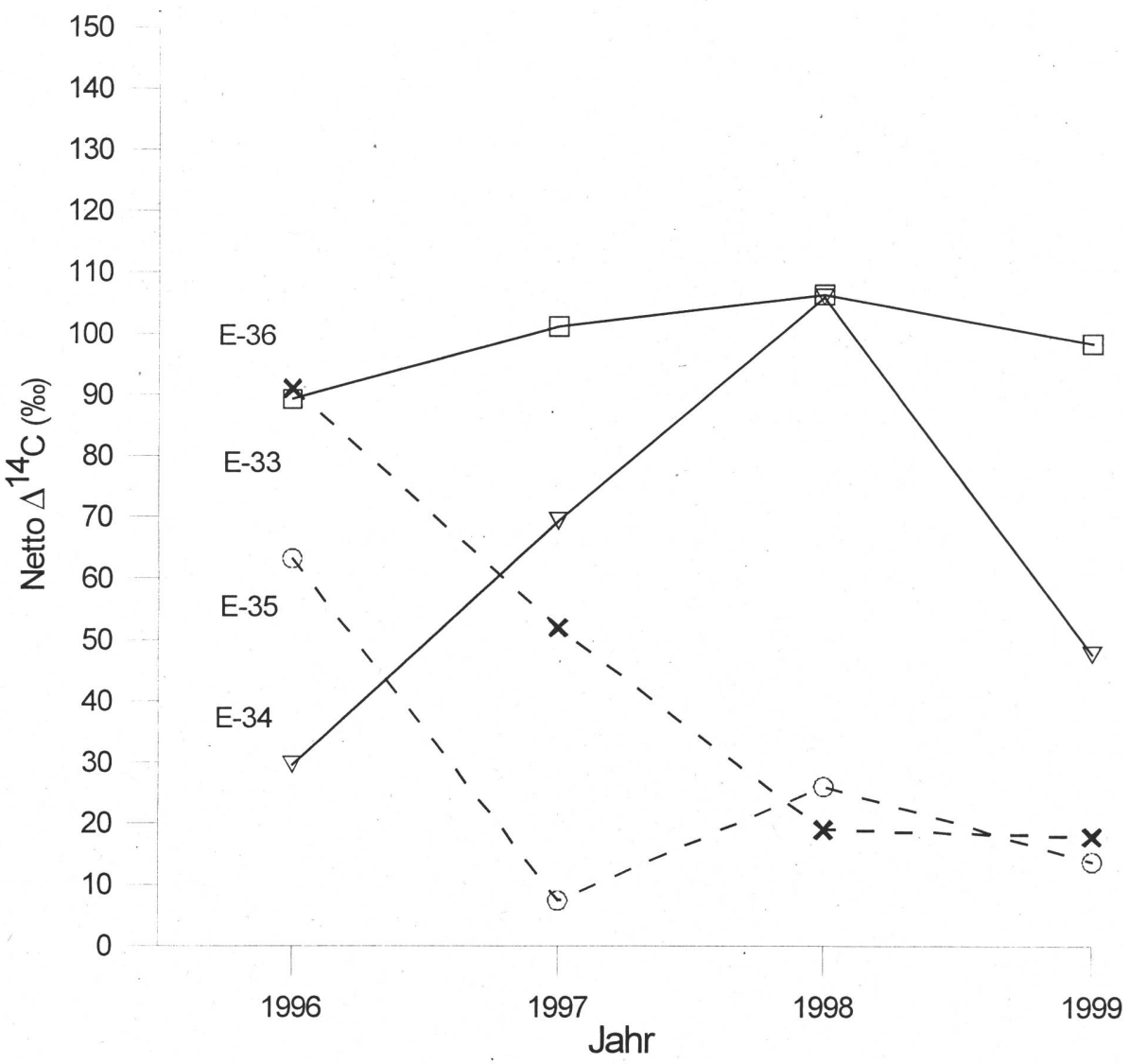
Figur 6: Netto $\Delta^{14}C$ Werte in Basel, Herbst 1999

Die $\Delta^{14}C$-Resultate von Laubblatt-Proben in der Stadt Basel zeigten für 1999 in der Nahumgebung des neuen Verbrennungsofens praktisch keine Erhöhungen mehr. Insbesondere sind die Netto-Erhöhungen in nord-westlicher und in süd-östlicher Richtung vom Ofen, wie sie im Sommer und Herbst 98 noch beobachtet wurden, weitgehend verschwunden. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die NOVARTIS ^{14}C-haltige Abfälle nur noch nachts verbrennt. Dagegen sind weiterhin erhöhte Werte westlich von Rhein am Voltaplatz, d.h. beim ehemaligen SANDOZ Areal, und in der Umgebung der Firma ROCHE gemessen worden (siehe Fig. 7 und 8).



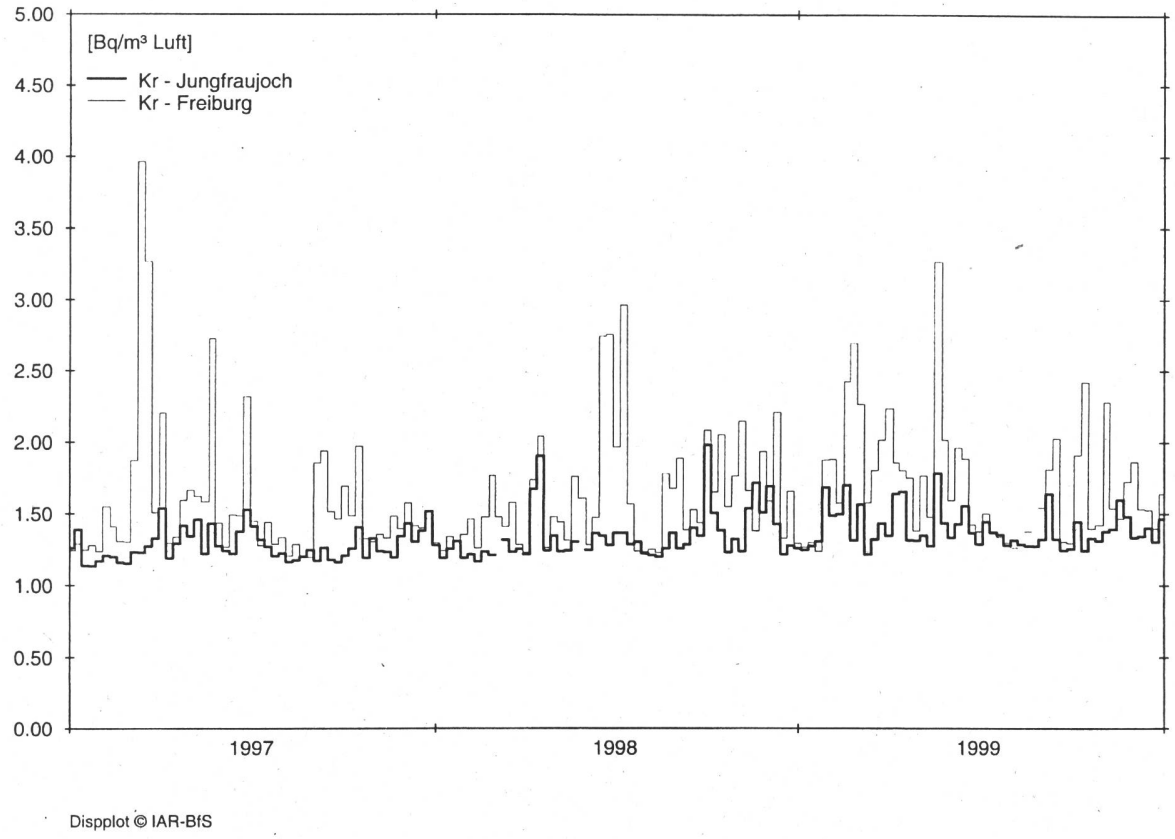
Figur 7: Netto $\Delta^{14}C$ Werte in Basel, Herbst 1999

Die Zeitreihen von Netto- $D^{14}C$-Werten wurden 1999 für 4 Standorte westlich des Rheins fortgesetzt. Es ergaben sich ähnliche Werte wie im Herbst des Vorjahres und der Jahre 1995 und 1996. Daraus muss auf eine oder mehrere lokale Quellen geschlossen werden. An einer Probe am Voltaplatz wurde untersucht, ob sich ^{14}C-Aktivität auf der Blattoberfläche befindet und sich abwaschen lässt. Die Nettoerhöhung sank dabei von 133 ± 4 auf 101 ± 4 ‰, was noch nicht eindeutig genug ist. Abwaschversuche sollen 2000 intensiviert werden.



Figur 8: Netto $\Delta^{14}C$ Aktivität Herbst 1999, Umgebung ROCHE

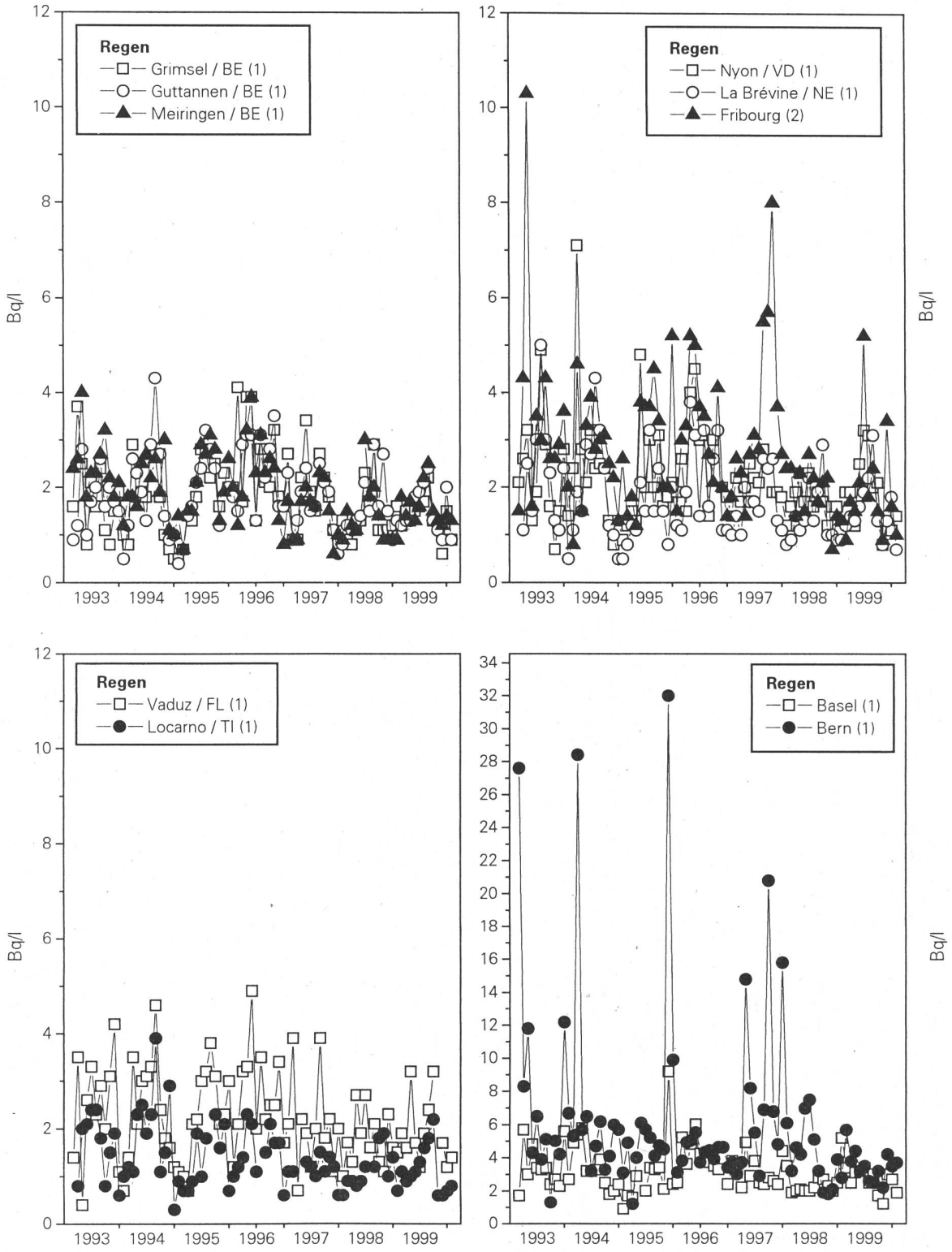
Auch in der Nahumgebung der Firma ROCHE wurden 1999 ähnlich erhöhte Netto- $\Delta^{14}C$-Werte gemessen wie in früheren Jahren . Emissionen aus dem NOVARTIS Verbrennungsofen scheiden als Ursache mit grosser Wahrscheinlichkeit aus, weil der Aufschlagpunkt einer Abluftfahne aus dem Kamin in etwa 1 km und nicht in 2 km Entfernung erwartet wird. Dasselbe Argument gegen den NOVARTIS Ofen als Ursache kann übrigens auch für die Erhöhungen am Voltaplatz aufgeführt werden. $^{14}CO_2$-Emission aus dem ROCHE Areal und ihre Auswirkungen sollen auch im Jahre 2000 weiter untersucht werden.



Figur 9: ^{85}Kr Aktivität in Bodenluft vom Jungfraujoch und von Freiburg i. B. (Messresultate vom Institut für atmosphärische Radioaktivität, Freiburg i. B.)

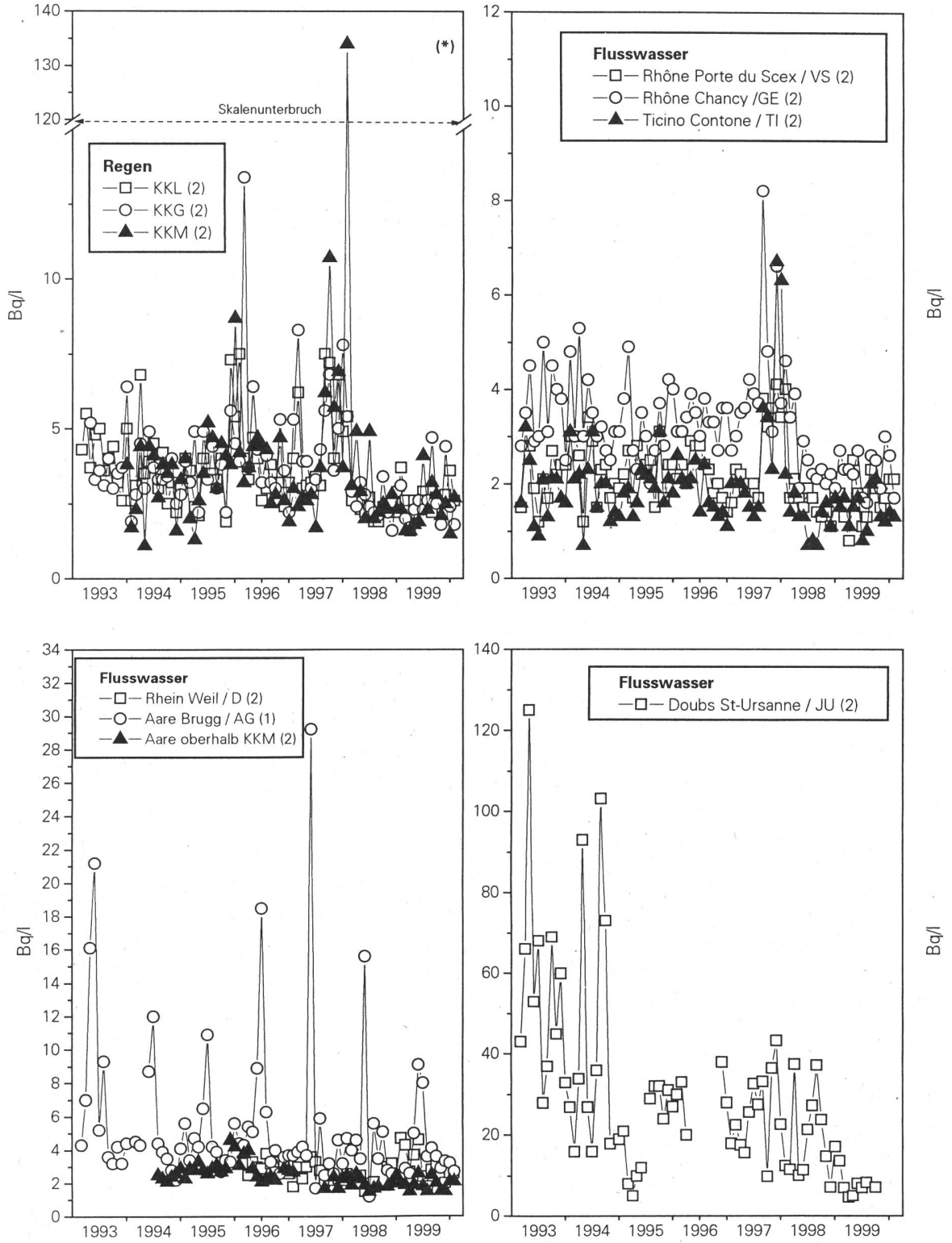
Die ^{85}Kr-Aktivitäten in den Wochenproben zeigen 1999 einen ähnlichen Verlauf wie in früheren Jahren: der Grundlevel ist auf dem Jungfraujoch auf ca. 1.3 Bq/m^3 Luft angestiegen, der Grundlevel und auch einige Wochenwerte im Freiburg sind oft höher als auf dem Joch und die kurzfristigen Erhöhungen können Werte bis 3 Bq/m^3 annehmen. Damit stimmen die zwei Stichprobenwerte an Luftproben überein, die in Bern abgetrennt und gemessen wurden: die Probe vom 16.8.99 ergab 2.2 ± 0.2 Bq/m^3 und diejenige vom 20.10.1999 1.6 ± 0.15 Bq/m^3.

Die kurzfristigen Erhöhungen treten dann auf, wenn die Probenahmestation in eine noch schlecht verdünnte Abluftfahne von La Hague oder Sellafeld gerät. Der langsame weltweite Anstieg des Grundlevels hängt damit zusammen, dass in diesen Anlagen intensiver Brennelemente aus Kernkraftwerke aufgearbeitet werden als früher und sich die Emissionen vergrössern. Die Emissionen von 1999 können aus den Troposphären-Messwerten zu ca. 5x10^{17} Bq abgeschätzt werden.



Figur10a: Tritium in Niederschlägen 1993 – 1999

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)



Figur 10b: Tritium in Niederschlägen und Flüssen 1993 – 1999

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. Schmittler, T. Buchillier, J.-F. Valley

Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

Résumé

Les mesures de $^{239/240}$Pu et de ^{238}Pu ont porté en 1999 sur des échantillons de sols, de sédiments, d'eaux et de filtres aérosol. L' activité en ^{241}Am a également été déterminée sur la plupart de ces échantillons. Deux sites représentant la chaine du Jura ont été ajoutés au plan annuel de mesure. L'activité en $^{239/240}$Pu est comprise entre 0.1 et 3.2 Bq/kg dans le sol et entre 0.12 et 0.19 Bq/kg dans les sédiments. Pour ^{241}Am, elle est comprise entre 0.05 et 1.2 Bq/kg dans les sols et entre 0.03 et 0.08 Bq/kg dans les sédiments. Sur l'ensemble de la Suisse, le rapport ^{238}Pu/ $^{239/240}$Pu est de 0.030±0.008 et le rapport ^{241}Am/ $^{239/240}$Pu est de 0.40±0.04, soit des valeurs très proches de celles déterminées en 1998. Ces rapports correspondent à une contamination provenant des retombées des essais d'armes atomiques réalisés en atmosphère dans les années soixante. Dans l'air prélevé au moyen d'un filtre aérosol, on a mesuré 4.1 nBq/m^3 (Weissfluhjoch) et 1.5 nBq/m^3 (Fribourg) de $^{239/240}$Pu. Ces valeurs sont très représentatives du phénomène de resuspension de particules de sol dans l'air. Les activités en $^{239/240}$Pu mesurées dans les eaux de rivières (Aare, Rhin et Rhône) dans l'eau de pluie de Fribourg et du robinet (Lausanne-IRA) sont comprises entre 2 et 10 mBq/m^3 et sont comparables à celles mesurées les années précédentes. Elles reflètent l'activité des particules en suspension dans l'eau et dans l'air. Une méthode de mesure de plutonium et d'américium dans de grands volumes d'eau a toutefois été développée afin de mieux interpréter certaines valeurs de ^{241}Am mesurées en 1998. Pour toutes ces mesures, aucune contribution ultérieure aux retombées des essais d'armes atomiques n'a été décelée.

7.2.1 Introduction

Les radioéléments de longue période tels que ^{239}Pu, ^{240}Pu et ^{241}Am ont été déposés à la surface des sols en Suisse lors des retombées des essais d'armes atomiques réalisés en atmosphère dans les années soixante. En général, l'activité des sols est reportée en Bq/kg de matière sèche, dans la couche 0-5 cm. En Suisse, ces activités sont très variables et on observe une forte corrélation entre le taux de précipitation de pluie et de neige et l'activité mesurée. De plus, le type et l'épaisseur de la couverture végétale ont une influence directe sur la migration des radioéléments dans les couches profondes du sol.

La surveillance de l'environnement en Suisse implique donc l'utilisation de facteurs moins sensibles aux conditions locales afin de déterminer une éventuelle augmentation de l'activité due à l'utilisation industrielle de la fission nucléaire et de certains radioéléments. Dans ce travail, les rapports des isotopes ^{238}Pu et $^{239/240}$Pu ainsi qu' entre ^{241}Am et $^{239/240}$Pu seront utilisés comme indicateur de contamination ultérieure à la déposition atmosphérique des années soixante.

7.2.2 Méthode

La méthode de séparation chimique utilisée en 1998 a été développée à partir de la méthode de EML [1]. Elle consiste à séparer séquentiellement le plutonium et l'américium sur des résines Dowex AG 1x8 , TRU® et TEVA® [2]. Les sources électrodéposées sont ensuite mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst de douze chambres munies de détecteurs PIPS.

La méthode a été testée sur l'échantillon de sédiments IAEA-300 (^{241}Am : -1.4% ; $^{239/240}$Pu : -2%) et a fait l'objet de l'exercice d'intercomparaison IAEA-384 (^{238}Pu :+0.1% ; $^{239/240}$Pu : + 1.8% ; ^{241}Am : + 8%).

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

Introduction

L' ^{241}Am (période de 445 ans) est un produit de filiation du ^{241}Pu (période de 14.4 ans). Dans l'environnement en Suisse, on le trouve associé au plutonium dans un rapport d'environ 0.40 [3, 4, 5]. Ce rapport est typique de la déposition atmosphérique due aux essais d'armes atomiques réalisés dans les années soixante. La présence de ^{238}Pu dans l'environnement provient essentiellement de la désintégration dans l'atmosphère du satellite SNAP-9A en 1964 et le rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu est proche de 0.030 [6]. Lors de contaminations industrielles, ces rapports se modifient de manière significative [7, 8, 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 1999 sont très comparables à celles de 1998, dans l'intervalle d'erreur des mesures, à l'exception des sites de Grangeneuve, de Davos et d'Intragna. Toutefois, les rapports isotopiques indicatifs des retombées des années soixante sont obtenus et la mesure de ^{90}Sr confirme que ces différences sont dues à des variations dans les endroits de prélèvement et à des inhomogénéités des sols [10]. Les valeurs mesurées au Mont-Tendre (Jura-VD), sites introduits pour la première fois dans le plan de prélèvement, sont les plus élevées de Suisse, avec une valeur dépassant 3 Bq/kg dans la couche 0-5 cm. Pour un prélèvement effectué à la Dôle (Jura-VD), l'activité de la couche 5-10 cm est plus élevée que celle déterminée dans la couche 0-5 cm, ce qui indique que le plutonium et l'américium ont migré plus rapidement dans le sol de la Dôle que dans le sol du Mont-Tendre. L'explication réside dans le rôle de fixateur que joue l'horizon organique Oh [4,5], bien plus étendu dans le site du Mont-Tendre que dans celui de la Dôle. Ces valeurs plutôt élevées confirment que les sites les plus exposés aux précipitations,

notamment sous forme de neige, ont subit une déposition atmosphérique nettement plus importante que les sites situés sur le plateau suisse.

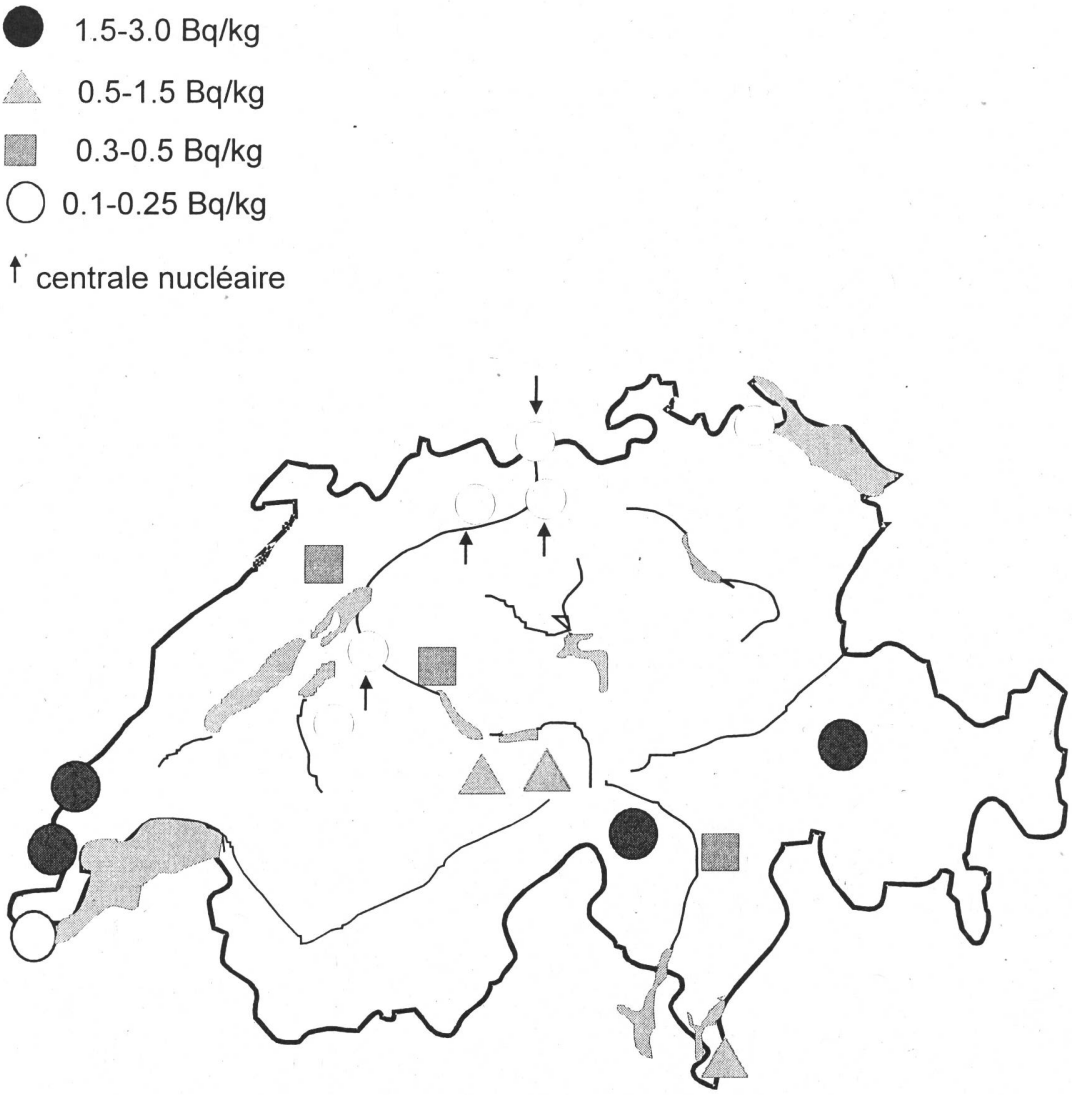


Figure 1 : Carte de la Suisse montrant la position des quatre centrales nucléaires ainsi que les sites de prélèvement du plan de surveillance annuel, avec les intervalles de concentration en plutonium.

Tableau 1: Concentration en plutonium et américium dans le sol en 1999 (couche de 0 à 5 cm)

Lieu	$^{239/240}Pu$	^{241}Am	Rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$	Rapport $^{241}Am/^{239/240}Pu$
Centrales nucléaires :				
Mühleberg (BE)	0.20±0.02	0.08±0.01	0.023±0.02	0.40±0.09
Gösgen (SO)	0.37±0.03	0.16±0.03	0.025±0.01	0.4±0.1
Leibstadt (AG)	0.22±0.02	0.09±0.01	0.023±0.01	0.41±0.08
Beznau (AG)	0.13±0.02	0.05±0.01	0.020±0.01	0.4±0.1
Sites en plaine :				
Grangeneuve (FR)	0.61±0.04	0.27±0.03	0.030±0.009	0.44±0.09
Valeur de contrôle	0.66±0.03	0.27±0.03	0.027±0.009	0.41±0.06
Arenenberg (TG)	0.22±0.02	0.06±0.02	0.034±0.02	0.3±0.1
Fahrni (BE)	0.60±0.04	0.24±0.02	0.040±0.008	0.40±0.06
Rodi (TI)	0.22±0.02	0.10±0.01	0.04±0.02	0.45±0.08
Sessa (TI)	0.55±0.04	0.23±0.02	0.029±0.01	0.42±0.07
Sites en altitude :				
Diesse (BE)	0.47±0.03	0.20±0.03	0.033±0.01	0.43±0.09
Allmendhubel (BE)	1.35±0.07	0.56±0.05	0.23±0.006	0.41±0.06
Gimmelwald (BE)	0.78±0.04	0.31±0.03	0.03±0.008	0.40±0.06
Intragna (TI)	0.45±0.03	0.18±0.02	0.027±0.02	0.40±0.07
Valeur de contrôle		0.19±0.02		
Davos (GR)	0.38±0.03	0.12±0.02	0.05±0.01	0.32±0.08
Valeur de contrôle	0.46±0.03	0.18±0.03	0.08±0.01	0.39±0.09
Dôle (Jura)	1.24±0.07	0.45±0.08	0.032±0.008	0.36±0.08
Valeur de contrôle	1.33±0.07	0.52±0.05	0.034±0.009	0.39±0.06
Dôle (Jura) 5-10 cm	1.29±0.07	0.54±0.05	0.027±0.007	0.42±0.06
Mt-Tendre (Jura)	3.22±0.2	1.23±0.1	0.02±0.01	0.38±0.05
Mt-Tendre 5-10 cm	0.58±0.04		0.043±0.1	

$^{241}Am/^{239/240}Pu$ = 0.40±0.04 (moyenne suisse) $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ = 0.030±0.008 (moyenne suisse)

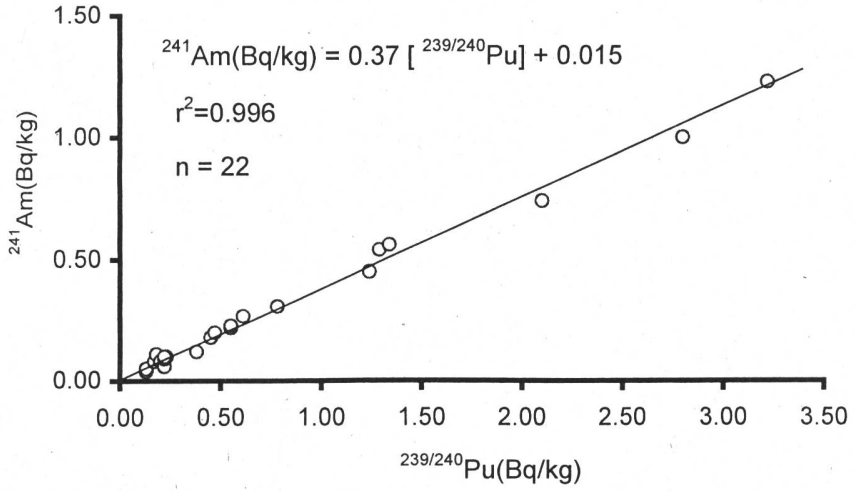


Figure 2: Activité en ^{241}Am d'un échantillon en fonction de son activité en $^{239/240}Pu$

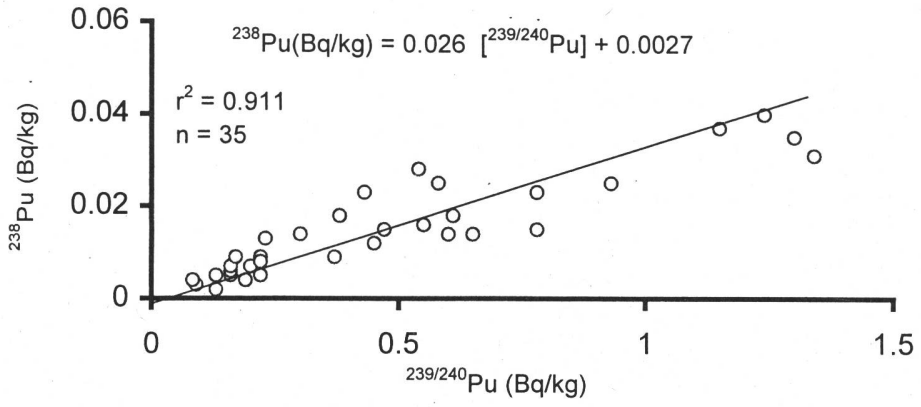


Figure 3: Activité en ^{238}Pu d'un échantillon en fonction de son activité en $^{239/240}Pu$

Afin d'établir une surveillance de l'environnement optimale en Suisse les activités de ^{241}Am et ^{238}Pu ont été exprimées en fonction de l'activité en $^{239/240}Pu$ (Figures 2 et 3).

Les équations obtenues sont :

$$[^{238}Pu] = 0.026\ [^{239/240}Pu] + 0.0027$$
$$[^{241}Am] = 0.37\ [^{239/240}Pu] + 0.015.$$

Elles se comparent très bien avec celles publiées par Testa et al. [11] dans une étude des sols de la région de l'Italie Centrale :

$$[^{238}Pu] = 0.026\ [^{239/240}Pu] + 0.0044$$
$$[^{241}Am] = 0.38\ [^{239/240}Pu] - 0.014.$$

Les paramètres de ces droites de régression indiquent que la contribution du plutonium originaire de Chernobyl est négligeable en Suisse et en Italie et que l'activité en ^{238}Pu provient essentiellement de la chute en 1964 du satellite SNAP-9A [12] équipé d'une batterie isotopique.

Concentration en plutonium et américium 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 [13] 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}Co) dans les rejets des centrales nucléaires. Dans les centrales nucléaires, une petite fraction des radionucléides peuvent être transférés du circuit primaire aux eaux usées lors de la révision annuelle [13]. 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}Co mesurée par spectrométrie gamma a été maximale (période de rejets). 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, à Hagneck sur l'Aar pour le contrôle de la centrale de Mühleberg, à Klingnau pour le contrôle des centrales de Gösgen et de Beznau et à Pratteln, sur le Rhin, pour la centrale de Leibstadt.

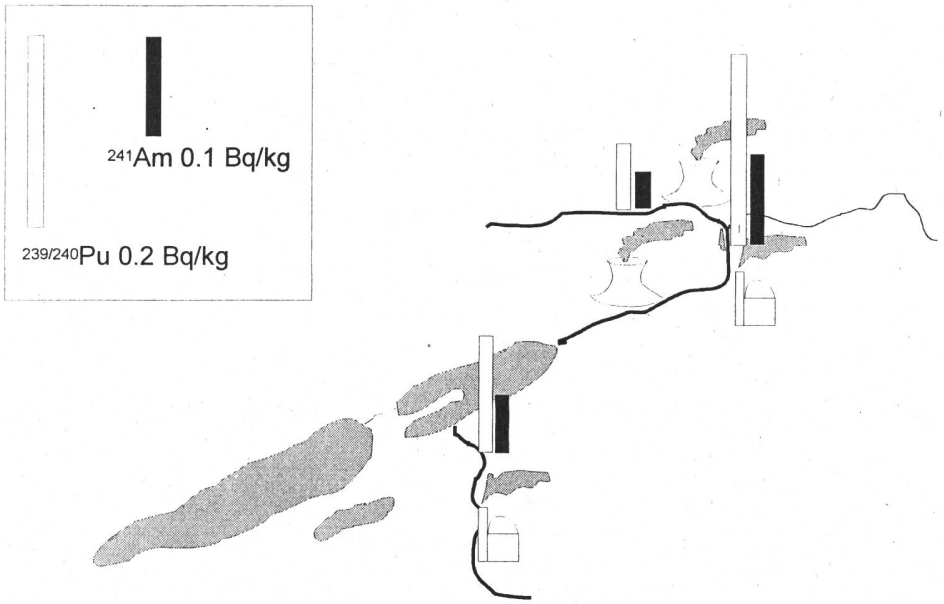


Figure 4: Emplacement des réacteurs nucléaires et des sites de prélèvement des sédiments, avec leur concentration en plutonium et en américium (1999).

Les valeurs mesurées en 1999 sont très proches des valeurs de 1998. 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 américium. 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 1999

Centrales nucléaires	**Période de prélèvement**	**$^{239/240}$Pu**	**Rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu**	**^{241}Am**	**Rapport ^{241}Am/$^{239/240}$Pu**
Aval de Mühleberg Hagneck	07.01-03.02.99	0.12±0.03	0.05±0.04	0.05±0.01	0.4±0.2
Aval de Gösgen et de Beznau Lac de Klingnau	07.01-03.02.99	0.19±0.04	0.04±0.03	0.08±0.02	0.4±0.2
Aval de Leibstadt Pratteln	07.01-03.02.99	0.05±0.01	0.06±0.05	0.03±0.02	0.06±0.05

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

L'activité en plutonium 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 [14].

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 1999, $RF_{obs}(Pu)$ est situé entre 2.7×10^{-11} m^{-1} et 3.0×10^{-11} m^{-1} (1997 : $2.7\text{-}3.6 \times 10^{-11}$ m^{-1}, 1998 : $2.3\text{-}4.4 \times 10^{-11}$). 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.

Tableau 3: Concentration en plutonium dans l'air.

Emplacement	Année	Activité (nBq/m^3)		
		$^{239/240}Pu$	^{238}Pu	^{241}Am
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	
Fribourg	1998	2.2±1	< 0.5	2.1±0.5
Fribourg	1999	1.5±0.3	0.4±0.1	
Weissfluhjoch	1996	1.9±0.8	1.1±0.2	
Weissfluhjoch	1997	4.0±0.5	<0.3	2.2±0.4
Weissflujoch	1998	3.5±1	1.3±0.5	
Weissflujoch	1999	4.1±.1	1.5± 0.4	

La Figure 5 montre bien que l'activité en $^{239/240}Pu$ mesurée au Weissfluhjoch est toujours supérieure à celle mesurée à Fribourg car la déposition atmosphérique surfacique (Bq/m^2) est supérieure en montagne. Elle confirme que l'activité des filtres à air provient du phénomène de resuspension.

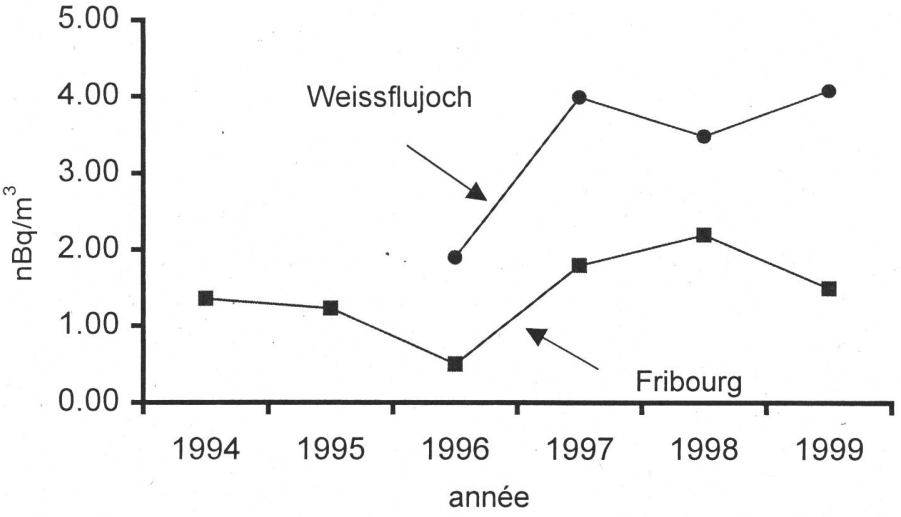


Figure 5: Activité en $^{239/240}Pu$ des filtres à air en plaine et en montagne

Concentration de plutonium et d'américium dans les eaux

Les mesures ont été effectuées sur des eaux de surface (Rhône, Rhin et Aare) et sur des eaux de pluie (Fribourg) et du robinet (Lausanne). 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 et Aare). L'activité de l'eau du robinet de Lausanne a été déterminée par une méthode développée cette année dans notre laboratoire pour la mesure de plutonium et d'américium dans de grands volumes d'eau (220 l). Le développement de cette méthode a été rendu nécessaire par l'incohérence de l'activité de l'américium mesurée dans certains échantillons en 1998.

Les activités en $^{239/240}Pu$ sont comparables à celles des années précédentes (Tableau 4) alors que l'activité en ^{238}Pu reste en dessous de la limite de détection. L'activité en américium est conforme à ce qui est attendu pour une contamination provenant des essais d'armes atomiques.

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^3.

		1996	1997	1998		1999	
Type d'eaux	**Lieu de prélèvement**	**$^{239/240}Pu$**	**$^{239/240}Pu$**	**$^{239/240}Pu$**	**^{241}Am**	**$^{239/240}Pu$**	**^{241}Am**
eaux de fleuve	Weil-am-Rhin	12±3	11.9±1.8	3.0±0.7	2.0±0.8		
eaux de fleuve	Chancy	4.8±0.8	11.8±1.4	4.8±1.0	42±7	4.1±0.7	
eaux de pluie	Fribourg	10.0±1.3	4.8±0.8	9.0±2.0	37±6	1.9±0.5	
eaux de fleuve	Hagneck					9.7±0.5	8.0±0.5
eau du robinet	Lausanne [1]					0.4-3.2	0.8-1.5
eaux de fleuve	Pratteln					4.5±0.3	

1) quatres déterminations

7.2.4 Conclusions

Les mesures des activités en $^{239/240}Pu$, ^{238}Pu et ^{241}Am ont été effectuées sur tous les échantillons présentés dans ce rapport, à l'exception des filtres à air et de certaines eaux 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 $^{241}Am/^{239/240}Pu$ est constant sur l'ensemble du territoire suisse (0.40±0.04) et indique, tout comme le rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$ (0.030±0.008) 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. La représentation des activités de ^{241}Am et ^{238}Pu en fonction de l'activité en $^{239/240}Pu$ est très judicieuse en Suisse car la gamme des activités est large (0.1 à 3.2 Bq/kg dans les sols pour $^{239/240}Pu$). Ces relations devraient permettre de détecter une contamination accidentelle de l'environnement par du plutonium ou de l'américium à son tout premier stade.

7.2.5 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, 7th 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, 1998, ch. 7.2.

[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 et al. in « Radioactivité de l'Environnement et doses de Rayonnements en Suisse », OFSP, Division de la Radioprotection, 1998, ch. 3.1

[10] J.-J- Geering, communication interne, 1999.

[11] Jia, G. ; Testa, C. ; Desideri, D. ; Guerra, F. ; Meli, M. ; Roselli, C. ; Belli, M. ; *Health Phys., 77*, **1999**, 52-61.

[12] Ibrahim, S. ; Webb, S. ; Kattel, A. ; J.Radioanal.Nucl.Chem. ; *230*, **1998**, 21-27.

[13] 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.

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

7.3. ^{129}Iod in der Hydrosphäre und speziell im Niederschlag in Mitteleuropa

C. Schnabel [1,2], J.M. Lopez-Gutierrez [3], S. Szidat [2,4], J. Beer [5] und H.-A. Synal [6]

1) Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, 8093 ZÜRICH
2) Dept. für Chemie und Biochemie, Universität Bern, 3012 BERN
3) Dpto. Fisica Atomica, Universidad de SEVILLA, Spanien
4) ZSR, Universität HANNOVER, Deutschland
5) EAWAG, 8600 DÜBENDORF
6) Paul Scherrer Institut c/o ETH Hönggerberg, 8093 ZÜRICH

Zusammenfassung:

Der ^{129}I-Gehalt im Niederschlag in Mitteleuropa ist gegenüber den natürlichen Konzentrationen seit Ende der 1980er Jahre um einen Faktor 1 Million erhöht. In den 1990er Jahren ist diese Konzentration nicht deutlich weiter angestiegen. Als Quellen für ^{129}I im Niederschlag in der Schweiz und Deutschland werden die marinen und atmosphärischen Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield und La Hague diskutiert. Es wird festgestellt, dass das zeitliche Verhalten der ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag viel besser mit den atmosphärischen als mit den marinen ^{129}I-Freisetzungen aus La Hague korreliert. Die in den 1990er Jahren in Deutschland und der Schweiz im Niederschlag gemessenen ^{129}I/^{127}I-Isotopenverhältnisse gelten als radiologisch unbedenklich. Diese Aussage muss aber lokal in der Nähe der beiden grossen Wiederaufarbeitungsanlagen nicht gelten. Bestimmungen der ^{129}I-Konzentrationen in Umweltproben sind von grosser Bedeutung aufgrund des drastischen Anstiegs der ^{129}I-Gehalte in Umweltproben bis Ende der 1980er-Jahre, aber auch, um die überwiegende Quelle für ^{129}I in der Atmosphäre Mitteleuropas und damit im Niederschlag - atmosphärische oder marine Abgaben der Wiederaufarbeitungsanlagen - ermitteln zu können.

7.3.1 Quellen für ^{129}I

^{129}I ist ein langlebiges ($T_{1/2}$ = 1.57 * 10^7 Jahre) radioaktives Nuklid, das heute vor allem bei der Kernspaltung in kerntechnischen Anlagen entsteht und dessen Konzentrationen in der Umwelt aufgrund von Freisetzungen vor allem aus den Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA) in Sellafield (Grossbritannien) und La Hague (Frankreich) gegenüber den natürlichen Konzentrationen, die vor 1940 vorlagen, drastisch angestiegen sind. Das Interesse an diesem zeitlichen Verlauf beruht auf der Tatsache, dass sich Iod in der Schilddrüse des Menschen anreichert. Der Anstieg der ^{129}I-Konzentrationen in der Umwelt lässt sich am besten verfolgen, indem man das Verhältnis der Konzentrationen des Isotops ^{129}I zu denjenigen des stabilen ^{127}I in den jeweiligen Proben betrachtet. So ausgedrückt wird das pränukleare ^{129}I/^{127}I-Verhältnis in der Hydrosphäre bei etwa 1* 10^{-12} angenommen. Die natürlichen Prozesse, bei denen ^{129}I auf der Erde produziert wird, sind Spontanspaltung und induzierte Spaltung von Uranisotopen in der Lithosphäre sowie die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit Xenon in der Atmosphäre. Die Masse des natürlich produzierten ^{129}I, das auf der Erde mobil in den Kompartimenten Atmosphäre, Biosphäre und Hydrosphäre vorliegt, wird mit etwa 260 kg angenommen [1]. Dieses natürliche globale Reservoir wurde durch

atmosphärische Kernwaffenversuche [2] und den Reaktorunfall von Chernobyl [3] nur um 50 kg bzw. 1,3 kg – und damit nur unwesentlich – erhöht. Im Gegensatz dazu verzehnfachten die marinen Abgaben aus den Wiederaufarbeitungsanlagen von Sellafield (720 kg im Zeitraum 1961-97 [4]) und La Hague (1306 kg ^{129}I im Zeitraum 1966-96 [5]) dieses natürliche mobile Reservoir. Die gasförmigen ^{129}I-Emissionen von La Hague werden für den Zeitraum 1966-96 hingegen nur mit 58 kg ^{129}I angegeben [5]. Entgegen der für totale Durchmischung der anthropogenen und natürlichen mobilen ^{129}I-Reservoire erwarteten ^{129}I/^{127}I-Verhältnisse von etwa $1 * 10^{-11}$ werden jedoch sowohl in den europäischen Meeren als auch im Niederschlag in Mitteleuropa um mehrere Grössenordnungen höhere Isotopenverhältnisse gemessen. Die Ursache für diese Diskrepanz ist, dass der überwältigende Anteil des natürlichen mobilen ^{129}I in der Tiefsee vorliegt und die Tiefsee von den anthropogenen ^{129}I-Einträgen grösstenteils noch nicht erreicht wurde.

7.3.2 Ausbreitung von ^{129}I

Die Ausbreitung der marinen ^{129}I-Emissionen in den Meeren wurde von Raisbeck et al. (z.B. [2] und [4]) untersucht. Sie verfolgten diese Emissionen bis in die Kara-See und schlugen ^{129}I als Tracer für die Tiefenwasserbildung im Nordatlantik vor. In Utsira (Südnorwegen) wurde der starke Anstieg der marinen Emissionen aus La Hague im Zeitraum von 1988 bis 1995 mit einer zeitlichen Auflösung von 1 Jahr ohne Verzögerung in Meerwasserproben festgestellt [4]. Während diese Autoren [2] im Ärmelkanal schon 1984 ^{129}I/^{127}I-Verhältnisse von bis zu $1 * 10^{-6}$ bestimmten, lagen die von ihnen gemessenen Isotopenverhältnisse für Meerwasserproben in der zentralen Nordsee und vor Südnorwegen noch 1991 und 1993 bei $3\text{-}5 * 10^{-8}$. Im Gegensatz zu diesen relativ niedrigen ^{129}I-Konzentrationen fanden Szidat et al. jedoch 1998 in Meerwasser vor Cuxhaven (küstennah in der Deutschen Bucht) ein ^{129}I/^{127}I-Verhältnis von etwa $1{,}5 * 10^{-6}$ [6]. Aufgrund der im Vergleich zu den direkten atmosphärischen Emissionen stark überwiegenden marinen Emissionen der beiden wichtigsten WAA in Europa stellt sich die Frage, ob der Transfer von ^{129}I aus dem Meer in die Atmosphäre für den Niederschlag in Mitteleuropa die überwiegende ^{129}I-Quelle darstellt, oder ob die direkten atmosphärischen Emissionen der WAA den Niederschlag in Mitteleuropa bestimmen. Diese Frage ist für den zu erwartenden Verlauf der ^{129}I-Konzentrationen in der näheren Zukunft von grosser Bedeutung, da sich der zeitliche Verlauf der marinen und atmosphärischen Emissionen stark unterscheidet (s.u.).

Zur Beantwortung dieser Frage können folgende Betrachtungen dienen:

1. Reichen die ^{129}I/^{127}I-Verhältnisse in der Nordsee und im Ärmelkanal aus, um ^{129}I im Niederschlag in Mitteleuropa zu erklären?
2. Reicht die aus diesen Meeren transferierte ^{129}I-Stoffmenge, die ein ausreichendes Isotopenverhältnis aufweist, für den Niederschlag aus?
3. Korreliert der zeitliche Verlauf der ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag in Europa besser mit den marinen oder mit den atmosphärischen Emissionen der WAA?

Bevor diese Fragen diskutiert werden können, sollen zunächst kurz ohne Berücksichtigung der zugrunde liegenden Mechanismen der Transfer von Iod aus den Meeren in die Atmosphäre sowie der zeitliche Verlauf und die absoluten Konzentration von ^{129}I im Niederschlag in Mitteleuropa betrachtet werden. Die Iod-Stoffmenge, die jährlich global aus dem Meer in die Atmosphäre transferiert wird, ist nur ungenau bekannt. Reifenhäuser und Heumann [7] geben etwa $8 * 10^{8}$ kg I an, das als Methyliodid in die Atmosphäre gelangt. Der zeitliche Verlauf der ^{129}I-Konzentrationen in Mitteleuropa zeigt seit etwa 1988 einen Verlauf, der nahezu konstant ist [6, 8]. Die absoluten Konzentrationen an ^{129}I im Niederschlag betragen in

Mitteleuropa seit Ende der 1980er Jahre zwischen 1 * 10^9 und 1 * 10^{10} Atome ^{129}I / kg Niederschlag. Dies entspricht ^{129}I/^{127}I-Isotopenverhältnissen von etwa 1 * 10^{-7} bis 1 *10^{-6}.

Die erste Frage lässt sich nicht eindeutig beantworten. Wenn man die von Raisbeck et al. [2] noch 1991 bis 1993 in der zentralen Nordsee und vor Südnorwegen ermittelten Isotopenverhältnisse als repräsentativ annimmt, dann würde dieses bedeuten, dass die Nordsee als ^{129}I-Quelle für den Niederschlag in Mitteleuropa nicht ausreicht und zumindest ein deutlicher direkter atmosphärischer Eintrag zusätzlich vorliegen muss. Wenn zu Beginn der 1990er Jahre jedoch schon Isotopenverhältnisse in der Nordsee vorgelegen hätten, wie sie in der neueren Messung vor Cuxhaven [6] bestimmt wurden, könnten die ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag erklärt werden.

Basierend auf den Messungen von Raisbeck et al. [2] im Ärmelkanal und in der Nordsee lässt sich auch durch Beimischung von Meeresflächen niedrigeren Isotopenverhältnisses nur eine Meeresoberfläche von etwa 60.000 km^2 berechnen, die das notwendige Isotopenverhältnis von etwa 5 * 10^{-7} zu Beginn der 1990er Jahre aufwies. Mit dieser Angabe und unter Verwendung des oben genannten Transferfaktors [7] folgt 70 g ^{129}I als jährlich vom Meer in die Atmosphäre transferierte Masse. Benötigt werden für den Niederschlag in Mitteleuropa etwa 800 g ^{129}I jährlich. Obgleich ein Faktor 10 zu fehlen scheint, kann die zweite Frage nicht eindeutig mit nein beantwortet werden, da der Transfer von Iod in die Atmosphäre nur unzureichend bekannt ist. Dennoch können zunächst 3,5 kg ^{129}I, die im Zeitraum 1991-96 gemittelt pro Jahr aus La Hague in die Atmosphäre emittiert wurden [5], mit diesen 70 g verglichen werden. Es wird ersichtlich, dass es sehr unwahrscheinlich scheint, dass die atmosphärischen Emissionen der WAA nicht auch signifikant zum Niederschlag in Mitteleuropa beitragen. Eine genauere Klärung dieser Frage setzt jedoch wohl auch eine Neubestimmung des Transfers von Iod aus dem Meer in die Atmosphäre voraus.

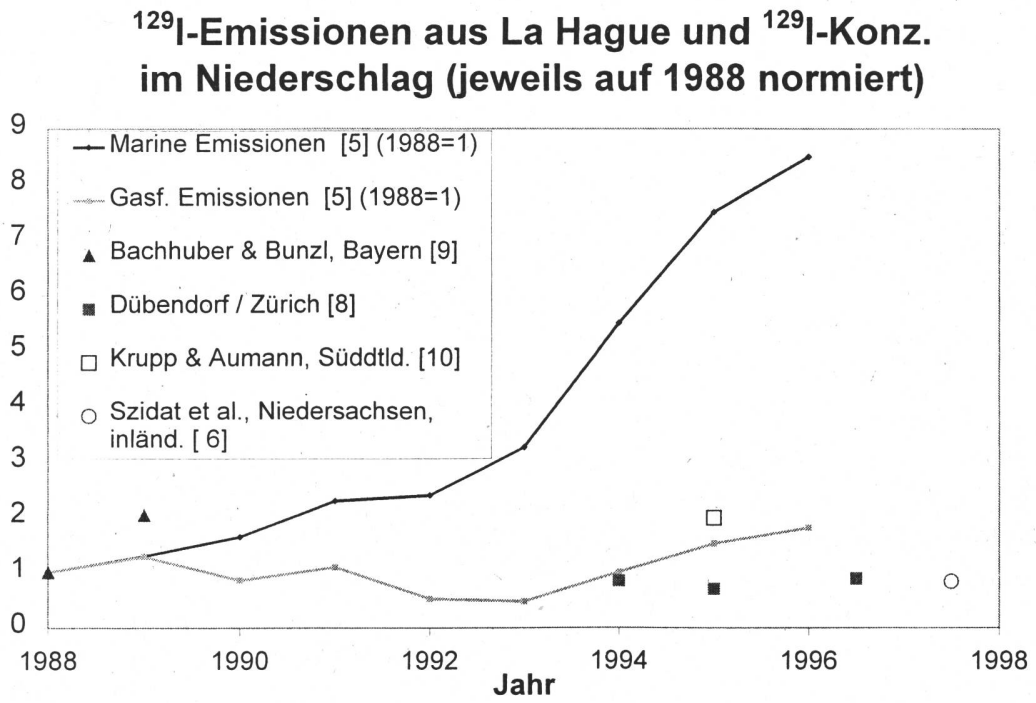


Abb. 1: Auf 1988 normierte marine und gasförmige ^{129}I-Emissionen von La Hague sowie ebenfalls auf 1988 normierte ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag in Mitteleuropa. Für die marinen Emissionen entspricht eine Skaleneinheit 30,60 kg ^{129}I, für die gasförmigen Abgaben 3,21 kg ^{129}I, für die ^{129}I-Konzentrationen 3,75 * 10^9 Atome ^{129}I /kg Niederschlag.

Zur Beantwortung der dritten Frage sei schliesslich auf Abbildung 1 verwiesen. Dort werden die ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag sowie die marinen und atmosphärischen ^{129}I-Emissionen von La Hague dargestellt und die jeweiligen Werte auf das Jahr 1988 normiert. Von 1988 bis 1996 steigen die marinen Emissionen um einen Faktor 8,5 an. Dieser Anstieg ist, wie oben bereits erwähnt, in Meerwasserproben sogar vor Südnorwegen [4] auch beobachtet worden. Hingegen bleiben die atmosphärischen Emissionen aus La Hague im beobachteten Zeitraum in etwa konstant und weisen im Jahr 1996 einen um nur 1,8 gegenüber 1988 erhöhten Wert auf. Die im Niederschlag in Mitteleuropa seit 1988 ermittelten ^{129}I-Konzentrationen sind mit einem zeitlich konstanten Verlauf verträglich. Der zeitliche Verlauf der ^{129}I-Konzentrationen in Mitteleuropa seit 1988 ist folglich sehr viel besser mit der Zeitabhängigkeit der atmosphärischen als mit derjenigen der marinen Emissionen von La Hague vereinbar.

7.3.3 Radiologische Betrachtung

Der Anstieg des ^{129}I/^{127}I-Verhältnisses um einen Faktor von 1 Million gegenüber pränuklearen Werten im Niederschlag in Mitteleuropa lässt natürlich die Frage nach der radiologischen Bedenklichkeit aufkommen. Schmidt [11] berechnet aufgrund eines spezifischen Aktivitätsmodells ein ^{129}I/^{127}I-Verhältnis von $1{,}2 * 10^{-3}$ in der Schilddrüse Erwachsener, das eine jährliche Strahlendosis in diesem Organ bewirkt, die den nach der Deutschen Strahlenschutzverordnung zulässigen Grenzwert von 0,9 mSv übersteigt. Folglich liegen auch die jetzigen Isotopenverhältnisse in Deutschland und der Schweiz noch etwa einen Faktor 1000 unter denjenigen, die als radiologisch bedenklich gelten. Lokal in der Nähe von La Hague gibt es jedoch Hinweise auf wesentlich höhere Konzentrationen (z.B. [12]), so dass in der Nähe der Wiederaufarbeitungsanlagen nicht unbedingt von radiologischer Unbedenklichkeit ausgegangen werden kann.

7.3.4 Methoden zur ^{129}I-Analyse

Zur Bestimmung des ^{129}I-Gehaltes von Umweltproben werden vor allem zwei Methoden angewandt: radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) und Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS). Die erste Methode ist aufgrund höherer Nachweisgrenzen nur für die Bestimmung von ^{129}I in modernen Umweltproben geeignet, während die AMS auch in der Lage ist, die Frage nach dem pränuklearen Isotopenverhältnis in der Hydrosphäre zu untersuchen. Zur genaueren Beschreibung der beiden Methoden sei auf die Fachliteratur verwiesen (z.B. [10] für RNAA], [13] für AMS).

7.3.5 Schlussfolgerungen

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass heutige ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag in Deutschland und der Schweiz gegenüber pränuklearen Werten um einen Faktor $1 * 10^{6}$ erhöht, aber radiologisch unbedenklich sind. Diese Konzentrationen sind seit 1988 nicht mehr merklich angestiegen, was mit den atmosphärischen Emissionen der WAA viel besser in Einklang zu bringen ist als mit dem zeitlichen Verlauf der marinen Freisetzungen. Falls die atmosphärischen Emissionen der WAA massgeblich zu den ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag beitragen und diese atmosphärischen Emissionen konstant gehalten werden, wird für die nähere Zukunft eine weitere Konstanz der ^{129}I-Konzentrationen im Niederschlag in Deutschland und der Schweiz erwartet.

Literatur:

[1] J. Fabryka-Martin, M.Sc. thesis, Univ. of Arizona 1984.

[2] G.M. Raisbeck et al., Journal of Marine Systems 6 (1995) 561.

[3] M. Paul et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B29 (1987) 341.

[4] G.M. Raisbeck, F. Yiou, Sci. Tot. Environment 237/238 (1999) 31.

[5] Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires, Groupe Radioecologie Nord Contentin, Vol. 1 (1999).

[6] S. Szidat et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B (2000), in press.

[7] W. Reifenhäuser, K.G. Heumann, J. Environ. Radioactivity 46 (1999) 287.

[8] C. Schnabel et al., Extended Abstracts of NRC5 conference, Pontresina Sept. 2000, p.585.

[9] H. Bachhuber, K. Bunzl, J. Environ. Radioactivity 16 (1992) 77.

[10] G. Krupp, D.C. Aumann, J. Environ. Radioactivity 46 (1999) 287.

[11] A. Schmidt, Doktorarbeit Universität Hannover, 1998.

[12] D. B., Nature 387 (1997) 839.

[13] J.M. Lopez-Gutierrez et al., Applied Radiation and Isotopes 53 (2000) 81.