Zeitschrift: Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz = Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse = Radioattività dell'ambiente e dosi d'irradiazione in Svizzera

Herausgeber: Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz

Band: - (2002)

Rubrik: Messungen von Spezialnukliden

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 29.09.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

7. Messungen von Spezialnukliden

7.1. Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85

Th. Stocker, H. Loosli, R. Fischer, M. Möll, 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 der Kernanlagen, 5232 VILLIGEN-HSK

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

J. Eikenberg
Paul Scherrer Institut, 5232 VILLINGEN-PSI

Zusammenfassung

Die $\Delta^{14}C$-Bestimmungen in Baumblättern aus der Umgebung der Kernanlagen ergaben in den beiden Berichtsjahren 2001 und 2002 ähnliche Erhöhungen wie in früheren Jahren: relativ zur Referenzstation waren die $\Delta^{14}C$-Werte [1)] in der Umgebung der beiden Siedewasserreaktoren um 40 bis 240 ‰ erhöht. In der Umgebung von KKB und PSI/ZWILAG stimmen die $\Delta^{14}C$-Werte innerhalb der Messunsicherheit mit denjenigen der Referenzstation überein. Auch in der Umgebung des Verbrennungsofens RSMVA der Firma VALOREC AG zeigten sich keine erhöhten $\Delta^{14}C$-Werte, weil die ^{14}C-haltigen Abfälle nur noch nachts verbrannt werden. Dagegen deuten erhöhte ^{14}C-Werte im ehemaligen SANDOZ Areal und im Bereich der ROCHE je auf eine lokale Emissionsquelle hin (Maximalwert:330 ‰). Eine zusätzliche ^{14}C-Aktivität von 100 ‰ führt zu einer hypothetischen maximalen (effektiven) Dosis von ca. 1µSv/Jahr. Dies fällt gegenüber den Variationen der natürlichen Strahlendosen, und insbesondere denjenigen verursacht durch Radon, nicht ins Gewicht. Die ^{85}Kr-Aktivität in der Troposphäre zeigt in den beiden Berichtsjahren immer noch eine steigende Tendenz, wie Wochenproben aus Luft vom Jungfraujoch ergaben.

[1)] Die Δ-Notation korrigiert mit Hilfe der gemessenen $\delta^{13}C$-Werte die Isotopenfraktionierung durch die Pflanzen und gibt die relative ^{14}C-Aktivität der Probe (in ‰) an als Differenz zu einem zerfallskorrigierten Standard-Wert (Radiocarbon 19 (1977) 355).

7.1. Kohlenstoff-14

7.1.1 Referenzstation

Die $\Delta^{14}C$-Konzentration in Buchenblättern an der Referenzstation auf dem Belpberg betrug im Jahr 2001 noch 85±3 ‰ (Fig.1). Eine Stichprobe von jungen Weisstannennadeln von der Referenzstation ergab 2001 ebenfalls eine $\Delta^{14}C$-Konzentration von 85±3 ‰. Um nachzuweisen, dass beim Abwaschen (siehe Fig.14) keine ^{14}C-Aktivität eingeschleppt wird, wurden 4 Blattproben von der Referenzstation dem gleichen Waschvorgang unterzogen; sie ergaben im Mittel 84 ‰. Die $\delta^{13}C$-Messung aller Blattproben ergab Werte zwischen -32.4 und -33.3 ‰, während die Tannadeln -28.1 ‰ ergaben, je mit einem Messfehler von 0.2 ‰. Innerhalb 2 Standard-Abweichungen stimmen die niedrigsten $\Delta^{14}C$ Werte in der Umgebung des KKW Gösgen und der NOVARTIS in Basel (12 Proben) mit dem Wert der Referenzstation überein, was auf die gute Reproduzierbarkeit unserer ^{14}C-Messungen hinweist.

Im Jahre 2002 betrug die $\Delta^{14}C$-Konzentration an der Referenzstation noch 80±1.3 ‰ (Mittelwert aus 4 Messungen). Innerhalb von 2 Standard-Abweichungen stimmen 8 Proben aus der Umgebung KKB und PSI und 9 Proben aus Basel damit überein. Die Abwaschprobe ergab 2002 einen $\Delta^{14}C$-Wert von 74±1.8 ‰.

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 pro-

duzierte zusätzliche ^{14}C-Aktivität langsam in die Ozeane verschwindet.

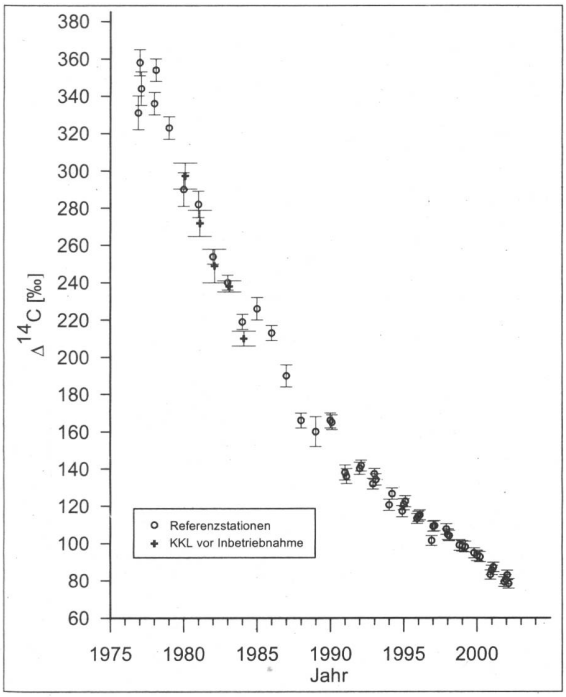

Fig. 1: $\Delta^{14}C$-Konzentrationen in Buchenblättern von den Referenzstationen

Die in den Figuren 2 bis 16 dargestellten Netto-Erhöhungen sind die Abweichungen zu den oben erwähnten +85 ‰ (2001) resp. +80 ‰ (2002) an der Referenzstation.

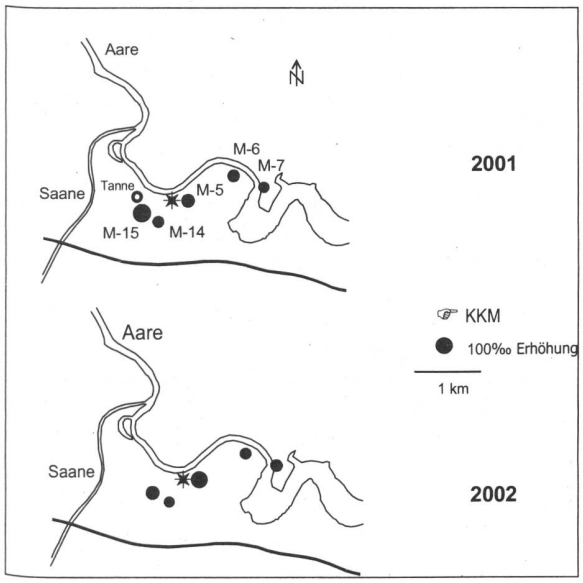

Fig. 2: Netto $\Delta^{14}C$ in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg. (Die Kreisflächen sind proportional zur gemessenen Netto-Erhöhung)

7.1.2 KKM

Das Langzeit-Überwachungsprogramm wurde in den beiden Hauptwindrichtungen an 5 Standorten fortgesetzt. Ufem Horn (ca. 75m nördlich vom Standort M-15) zeigten Rottannennadeln im Jahr 2001 eine $\Delta^{14}C$-Netto Erhöhung von 33 ‰, während die Buchenblätter am Standort M-15 113 ‰ ergaben. Am Standort M-7 stimmt die Erhöhung in Eichen- mit derjenigen in Hainbuchenblättern gut überein (41 resp. 43 ‰). Die Messfehler der Netto Erhöhung betragen je 3 bis 4 ‰.

Die Netto $\Delta^{14}C$-Erhöhungen waren in den beiden Berichtsjahren etwa gleich gross wie in früheren Jahren. Die von der HSK schon früher getroffenen Annahmen über Emissionsrate (6000 Bq/s) und Verdünnungsfaktor (10^{-6} s/m^3) sind damit innerhalb der Unsicherheiten bestätigt (vergl. BAG-Berichte 1999 und 2000). Diese Übereinstimmung der Messwerte mit den Modellwerten innerhalb etwa eines Faktors 2 ist für das verwendete einfache Gaussmodell und das hügelige Gelände um das KKW Mühleberg resp. bei der Unsicherheit der Emissionsrate zufriedenstellend.

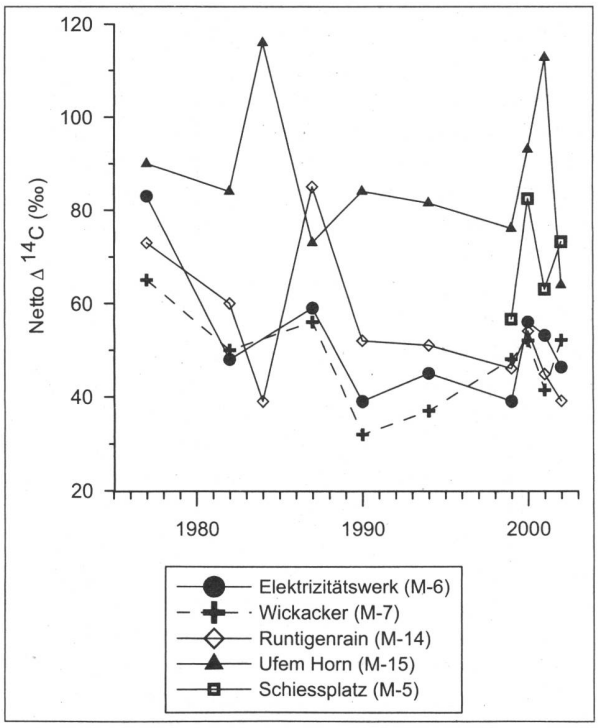

Fig. 3: Langzeitreihen an einigen Stichproben-Standorten in der Umgebung des KKM (Standorte: siehe Fig. 2)

duzierte zusätzliche ^{14}C-Aktivität langsam in die Ozeane verschwindet.

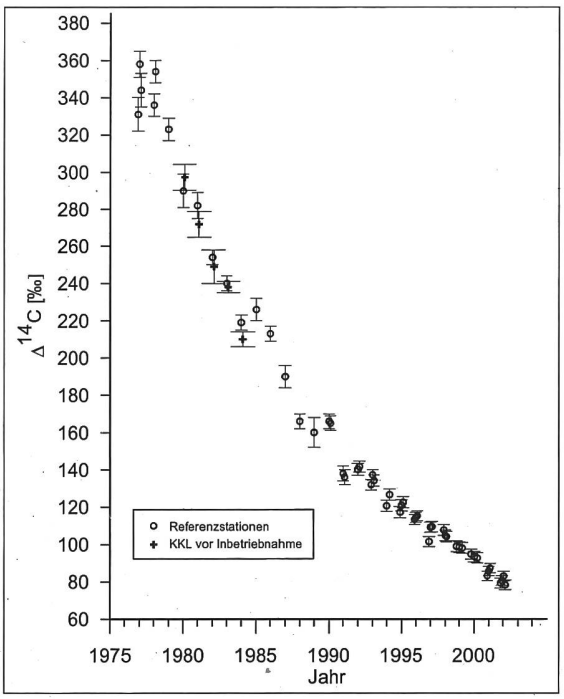

Fig. 1: $\Delta^{14}C$-Konzentrationen in Buchenblättern von den Referenzstationen

Die in den Figuren 2 bis 16 dargestellten Netto-Erhöhungen sind die Abweichungen zu den oben erwähnten +85 ‰ (2001) resp. +80 ‰ (2002) an der Referenzstation.

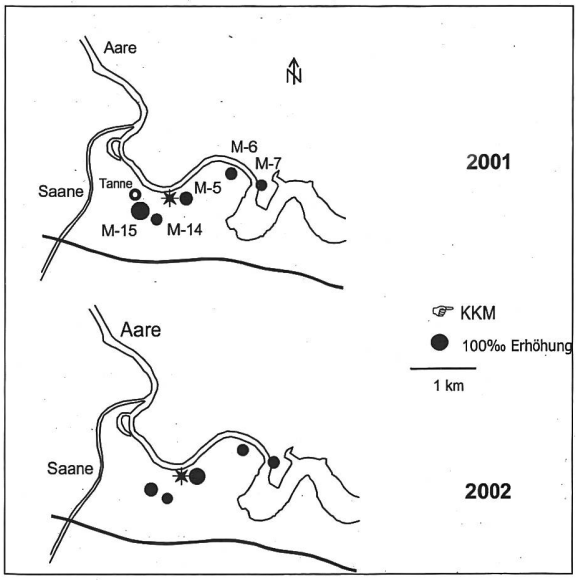

Fig. 2: Netto $\Delta^{14}C$ in der Umgebung des Siedewassereaktors Mühleberg. (Die Kreisflächen sind proportional zur gemessenen Netto-Erhöhung)

7.1.2 KKM

Das Langzeit-Überwachungsprogramm wurde in den beiden Hauptwindrichtungen an 5 Standorten fortgesetzt. Ufem Horn (ca. 75m nördlich vom Standort M-15) zeigten Rottannennadeln im Jahr 2001 eine $\Delta^{14}C$-Netto Erhöhung von 33 ‰, während die Buchenblätter am Standort M-15 113 ‰ ergaben. Am Standort M-7 stimmt die Erhöhung in Eichen- mit derjenigen in Hainbuchenblättern gut überein (41 resp. 43 ‰). Die Messfehler der Netto Erhöhung betragen je 3 bis 4 ‰.

Die Netto $\Delta^{14}C$-Erhöhungen waren in den beiden Berichtsjahren etwa gleich gross wie in früheren Jahren. Die von der HSK schon früher getroffenen Annahmen über Emissionsrate (6000 Bq/s) und Verdünnungsfaktor (10^{-6} s/m^3) sind damit innerhalb der Unsicherheiten bestätigt (vergl. BAG-Berichte 1999 und 2000). Diese Übereinstimmung der Messwerte mit den Modellwerten innerhalb etwa eines Faktors 2 ist für das verwendete einfache Gaussmodell und das hügelige Gelände um das KKW Mühleberg resp. bei der Unsicherheit der Emissionsrate zufriedenstellend.

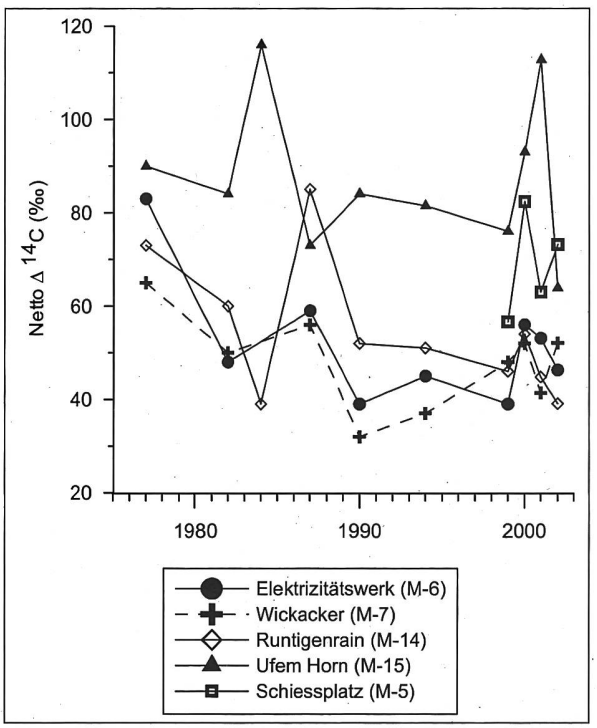

Fig. 3: Langzeitreihen an einigen Stichproben-Standorten in der Umgebung des KKM (Standorte: siehe Fig. 2)

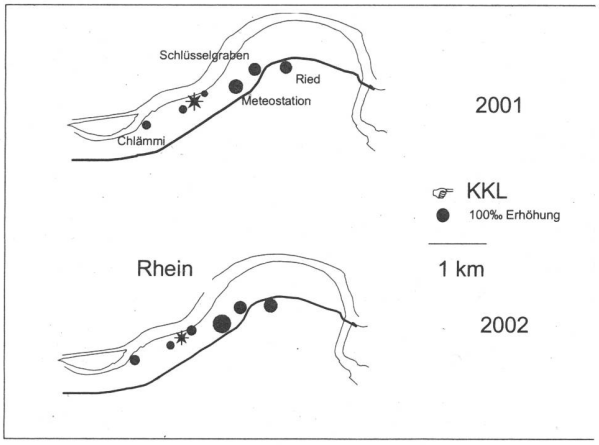

Fig. 4: Netto $\Delta^{14}C$ in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt. (Die Kreisflächen sind proportional zur gemessenen Netto-Erhöhung)

7.1.3 KKL

Das Langzeit-Überwachungsprogramm wurde in den beiden Hauptwindrichtungen an 6 Standorten fortgesetzt. Maximale Erhöhungen wurden in beiden Jahren in ca. 700 m in Nord-Östlicher Richtung am Standort „Meteostation" festgestellt. Sie betrugen im Jahre 2001 95 ‰ und im Jahre 2002 238 ‰ je mit einer statistischen Messunsicherheit von ca. 4 ‰. Bei der Interpretation der Netto $\Delta^{14}C$-Werte muss beachtet werden, dass vermutlich die zufälligen, lokalen Windverhältnisse während der Wachstumsperiode der Blätter für die grössten örtlichen und zeitlichen Variationen der Immissionen von Jahr zu Jahr verantwortlich sind.

Am höchsten waren die Netto $\Delta^{14}C$-Werte in den letzten Jahren immer in ca. 1 km Entfernung vom Emissionsort, wie dies von den Ausbreitungsmodellen auch vorausgesagt wird. Die höchsten Netto-Werte traten am Standort „Meteostation" auf und betrugen z.B. von 1998 bis 2002: 191 ‰, 225 ‰, 133 ‰, 95 ‰ und 238 ‰. In kleinerer Entfernung (z.B. am Standort Seel) waren die Erhöhungen geringer. Die relativ hohen Werte am Standort Meteostation in den Jahren 1999 und 2002 müssen kein Hinweis auf höhere Emissionen sein, sondern können auch mit kleinerer Verdünnung während der Wachstumsperiode erklärt werden. Die gemessenen Erhöhungen ergeben für Emissionsraten von 10^4 Bq/s während der Wachstumszeit einen Verdünnungsfaktor von $5x10^{-7}$ s/m^3 (vergl. BAG Bericht 1998).

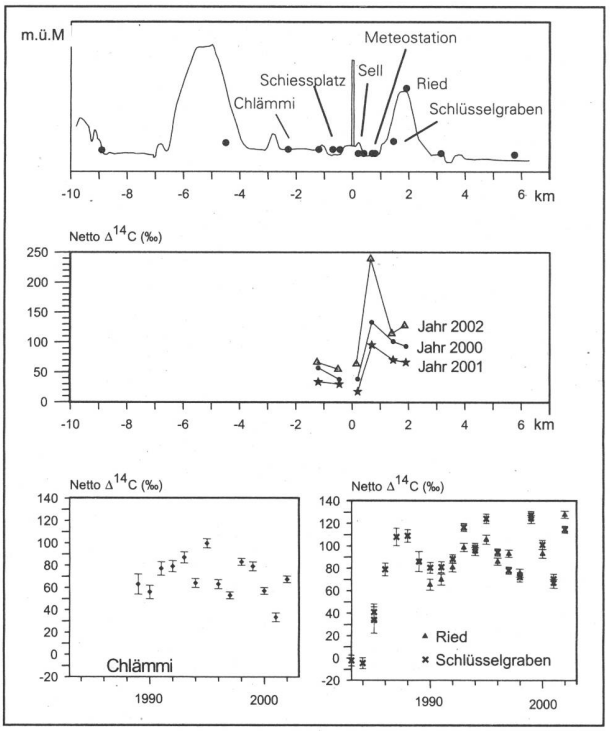

Fig. 5: Örtliche und zeitliche Abhängigkeit der Netto $\Delta^{14}C$-Werte in den beiden Hauptwindrichtungen des KKL

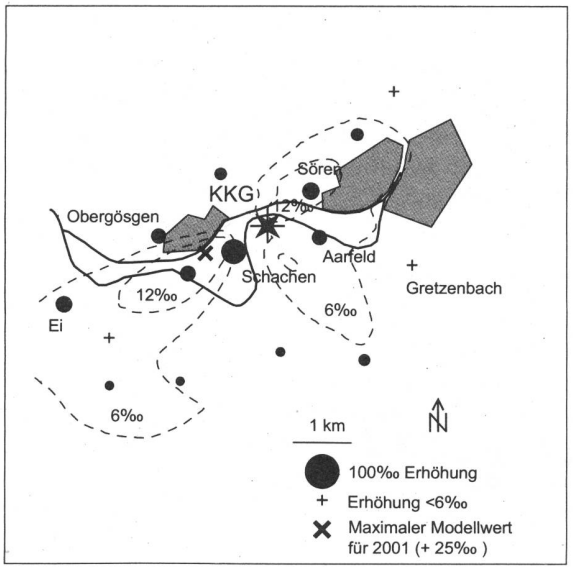

Fig. 6: Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen im Jahr 2001 und Vergleich mit Modellrechnungen der HSK

7.1.4 KKG

Da Stichproben von Baumblättern aus der Umgebung des KKG in den Jahren 1998 bis 2000 Netto-Erhöhungen von 50 bis 100 ‰ ergaben, d.h. von der gleichen Grössenordnung waren wie in der Umgebung der Siedewasserreaktoren KKM und

KKL, wurde im Jahr 2001 eine umfangreichere Messkampanie mit 15 Proben durchgeführt.
Der Vergleich der oben dargestellten Resultate mit den Konturen des Gaussmodells, das die Wachstumszeit vom 16.4. bis 14.5.2001 abdeckt, ergibt folgende Schlüsse:

Auch 2001 lag der grösste gemessene Netto-Wert bei 50 ‰ (Schachen).

Maximale Erhöhungen wurden wie in den früheren 3 Jahren an den Standorten Schachen und Sören gemessen, d.h. in ca. 1 km Entfernung vom Emissionsort.

Die früher als Zeitreihen beprobten Standorte Gretzenbach, Aarfeld und Obergösgen liegen offenbar ca. 30° neben der Hauptwindrichtung. Möglicherweise betrug die maximale Erhöhung auch schon vor 1998 50 bis 100 ‰ .

Der Vergleich der gemessenen Netto-Erhöhungen mit den Modellwerten bestätigt die frühere Vermutung, dass die Emissionen von ^{14}C in $^{14}CO_2$-Form grösser ist als die bisher angenommenen Schätzwerte. Beispielsweise führen die von der HSK angenommenen Emissionen von 3 kBq/s und der Verdünnungsfaktor von $3x10^{-7}$ s/m^3 auf eine maximale Erhöhung von nur 25 ‰. Auch an andern Standorten liegen die Netto-Messwerte ca. einen Faktor 2 über den Modellwerten.

Provisorische Messungen der ^{14}C-Emissionen im KKG bestätigen, dass die Emissionen grösser sind als 3 kBq/s; allerdings liegen vorerst nur Emissionsmessungen der totalen Aktivität vor, welche die CO_2- und CH_4-Form summieren (H. Weitze, persönliche Mitteilung).

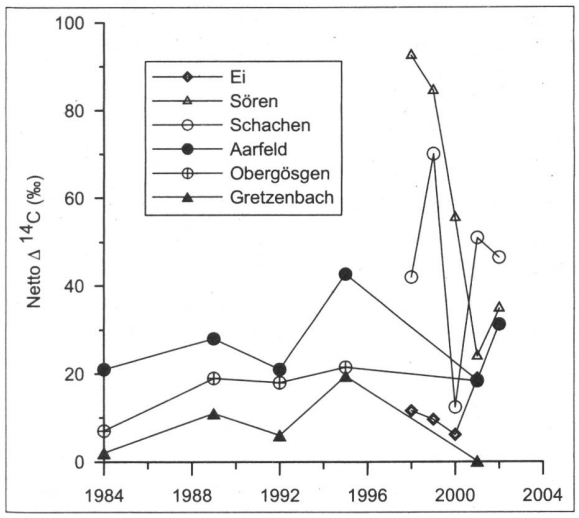

Fig. 7: Langzeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des KKG (Standorte siehe Figur 6)

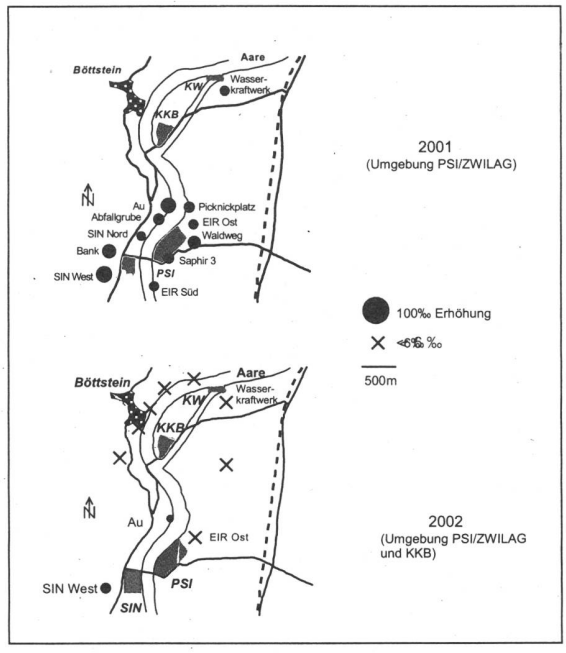

Fig. 8: Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des PSI/ZWILAG im Jahr 2001 und zusätzlich in der Umgebung des KKB im Jahre 2002

Die Messwerte der im Jahre 2002 genommenen Proben liegen in der gleichen Grössenordnung wie in den Vorjahren. Die Langzeitreihen stützen die Schlussfolgerung, dass die ^{14}C-Emissionsraten vom KKG zeitlich recht konstant waren.

7.1.5 PSI und KKB

Die im Jahre 2001 gemessenen Netto-Erhöhungen in Baumblättern aus der Umgebung des PSI/ZWILAG lagen im gleichen Wertebereich wie in den vergangenen 7 Jahren (10 bis 33 ‰); im Jahre 2002 waren die Werte von 3 Stichproben tiefer (Maximum: 15 ‰), ähnlich wie im Jahre 1997.

Um die Ursache der seit einigen Jahren gemessenen Erhöhungen zu finden, wurden im Jahre 2002 zusätzlich 6 Proben aus der Umgebung des KKB erhoben. Weil alle Messwerte aus der Umgebung des KKB innerhalb der statistischen Messunsicherheit (2 Sigma) gleiche ^{14}C-Werte ergaben wie an der Referenzstation, scheidet das Kernkraftwerk als Quelle aus, falls 2002 die Emissionen etwa gleich waren wie in den früheren Jahren.

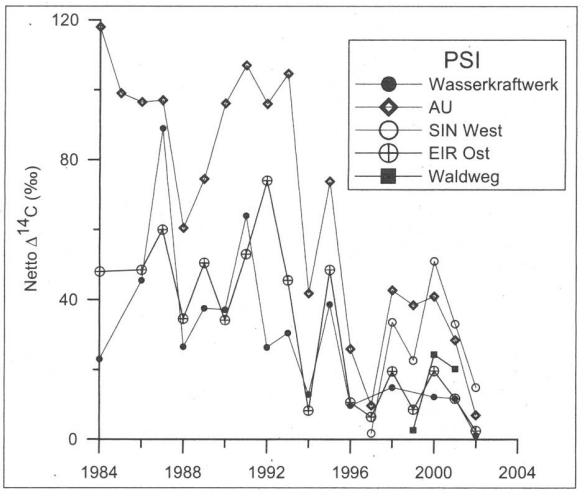

Fig. 9: Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte aus der Umgebung PSI/ZWILAG. (Standorte siehe Figur 8)

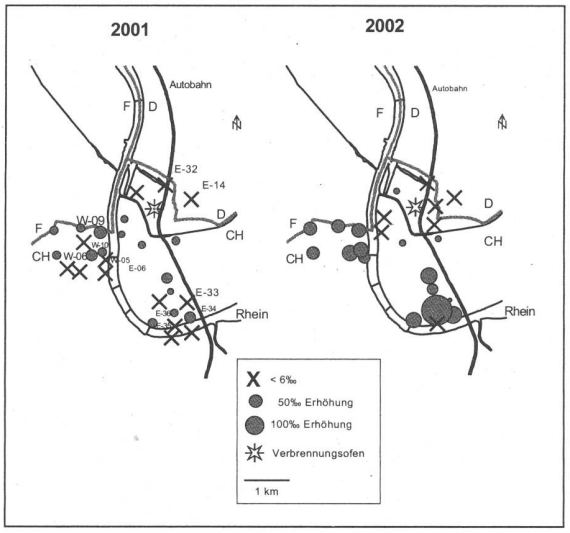

Fig. 10: Netto $\Delta^{14}C$-Werte in Basel, Herbst 2001 und 2002

Die höheren Messwerte insbesondere am Standort Au in den Jahren 1993 und früher sind den Emissionen aus dem Forschungsreaktor Saphir zuzuschreiben. Die Quelle(n) der geringeren Erhöhungen seit 1994 ist (sind) nicht klar; in Frage kommen die Verbrennung ^{14}C-haltiger Abfälle am PSI und die am SIN durchgeführten Experimente.

Bevor feststand, dass 2002 die Netto $\Delta^{14}C$-Werte aus der Umgebung des PSI/ZWILAG so tief waren, wurden diese Proben ausgewählt um die Abwaschversuche fortzusetzen; da die zusätzliche ^{14}C-Aktivität sehr gering war, liess sich praktisch auch nichts abwaschen (siehe Fig.14).

Parallelproben wurden im Jahre 2002 vom PSI (mit Liquid Scintillation Counting) und der Universität Bern gemessen und ergaben gute Übereinstimmung (für die Berechnung der $\Delta^{14}C$-Werte wurden die von der Universität Bern gemessenen $\delta^{13}C$-Werte verwendet):

Tabelle 1: Vergleich der an Parallelproben vom Labor PSI und KUP (Uni Bern) gemessenen $\Delta^{14}C$-Aktivitäten

	$\delta^{13}C$ (‰)	$\Delta^{14}C$ (‰) PSI	$\Delta^{14}C$ (‰) UNI Bern
Referenz	***-33.3±0.2***	***89±5***	***80.3±1.3***
SIN-West	-32.8±0.2	106±5	95.2±3.4
AU	-30.9±0.2	98±5	87.2±2.7
EIR Ost	-29.3±0.2	105±5	82.7±2.6
Wasserkraftwerk	-31.1±0.2	95±5	81.4±2.6

7.1.6 Region Basel

Es sind deutlich drei Gebiete unterscheidbar: Die (kreisförmig beprobte) Umgebung des Verbrennungsofens RSMVA[2)] der Firma VALOREC AG, das westlich vom Rhein liegende Gebiet der ehemaligen Firma SANDOZ (Voltaplatz) und das Gebiet der Firma ROCHE.

In der Umgebung des Verbrennungsofens RSMVA sind praktisch keine ^{14}C-Erhöhungen feststellbar. Die Netto $\Delta^{14}C$-Werte sind dort auch in den beiden Berichtsjahren viel kleiner als früher, weil ^{14}C-haltige Abfälle seit 1998 nur noch nachts verbrannt werden. In beiden Jahren ergaben die Messungen für mehrere Standorte $\Delta^{14}C$-Werte, die innerhalb von 2 Sigma mit dem Wert der Referenzstation übereinstimmen; im Nord-Osten des Verbrennungsofens zeigen die Standorte E-14 und E-32 nahe der Autobahn tiefe und zum Teil negative Werte, was mit der Verdünnung durch fossiles CO_2 erklärbar ist (siehe Figur 12).

Die Netto $\Delta^{14}C$-Werte von Stichproben am Voltaplatz und in seiner Umgebung (westlich vom Rhein) betrugen im Jahre 2001 maximal 45 ‰ (W-09) und lagen im Jahre 2002 zwischen 35 und 80 ‰ (Zeitreihe: siehe Figur 11; Abwaschversuche: Figur 14).

Erhöhte ^{14}C-Werte wurden in den beiden Berichtsjahren in der Nahumgebung der Firma ROCHE festgestellt, mit einem Maximalwert für die Netto $\Delta^{14}C$-Aktivität von 330 ‰ am Standort E-36 im Jahre 2002. Eine lokale ^{14}C-Quelle ist als Ursache an-

2) RSMVA = Regionale Sondermüll-Verbrennungsanlage

zunehmen, insbesondere auch deshalb, weil in unmittelbarer Nähe von E-36 auch tiefe ^{14}C-Aktivitäten wie an der Referenzstation gemessen wurden (E-33 und E-35). Im Jahre 2001 wurde eine Probe doppelt gemessen; die Netto-Werte stimmen mit 28 und 29 ‰ sehr gut überein. (Zeitreihen und Abwaschproben: siehe Figuren 13 und 14).

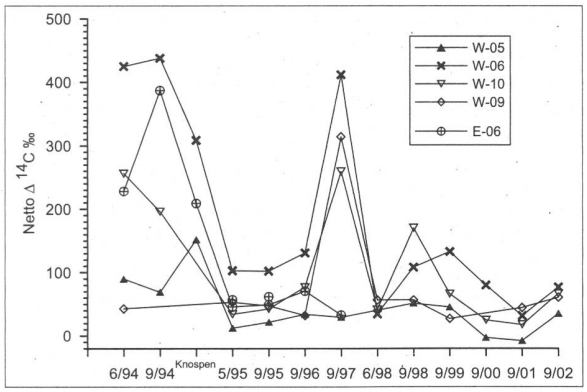

Fig. 11: Netto $\Delta^{14}C$-Werte am Voltaplatz (Standorte: siehe Figur 10)

Als Quelle für die seit 1994 gemessenen ^{14}C-Erhöhungen sind in Betracht zu ziehen:

a) Der alte Verbrennungsofen K-224 (in der Nähe der Dreirosenbrücke), der bis 1994 in Betrieb war.

b) Der neue Verbrennungsofen RSMVA, in dem in den Jahren 1996 und 1997 auch tagsüber ^{14}C-haltige Abfälle verbrannt wurden.

c) Eine lokale Quelle, die ^{14}C teilweise in assimilierbarer Form abgibt (vergl. Figur 14).

Die starken Erhöhungen (1994,1995 Knospen, 1997) können also mit Hilfe der Quellen a) und b) verstanden werden. Eine lokale Quelle muss zur permanenten, kleineren Erhöhung in den Jahren 1995 und 1998 bis 2002 angenommen werden. Variationen dieser gemessenen Netto $\Delta^{14}C$-Werte können mit unterschiedlicher Ausbreitung und Verdünnung oder/und mit variablen Emissionsraten dieser lokalen Quellen während der Wachstumsperiode der Blätter erklärt werden.

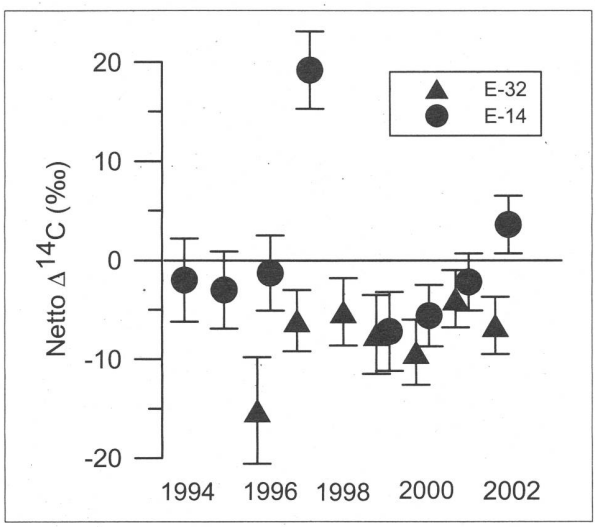

Fig. 12: Netto $\Delta^{14}C$-Werte im Bereich der Autobahn in Basel (Standorte: siehe Figur 10)

Es fällt auf, dass die $\Delta^{14}C$-Werte an der Station östlich vom Verbrennungsofen (E-14) seit dem Beginn der Überwachung in Basel meistens innerhalb der Messunsicherheit gleich hoch waren wie diejenigen an den Referenzstationen. Die Station E-32 (nördlich vom Ofen) zeigte tendenziell sogar leicht tiefere Werte. Diese ^{14}C-Erniedrigung ist vermutlich auf die nahegelegene Autobahn zurückzuführen: Die ^{14}C-Aktivität wird mit ^{14}C-freiem CO_2 aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe verdünnt.

Auch in der Nahumgebung der Firma ROCHE wurden die Zeitreihen fortgesetzt. Im Jahr 2001 wurde ein Maximalwert von netto 35 ‰ gemessen; an 6 Standorten lagen die Messwerte aber innerhalb von 2 Sigma (ca. 6 ‰) gleich hoch, oder sogar tiefer, als die Aktivität an den Referenzstationen (siehe Figur 10). Im Jahre 2002 jedoch wurde an der Station E-36, die mitten im Areal liegt, ein unerwartet hoher Netto $\Delta^{14}C$-Wert von 330 ‰ gemessen. Dieser plötzliche Anstieg deutet auf eine rezente Emissionsquelle hin, die sich vermutlich nahe am Probenahmestandort E-36 befindet. Falls man frühere Abwaschversuche extrapolieren darf, könnte ein Teil dieser Aktivität von Chemikalien stammen, die auf den Blättern abgelagert wurden (Figur 14). Vor der Trocknung der Blätter wurde aber diesmal leider keine Doppelprobe zu Waschversuchen abgezweigt.

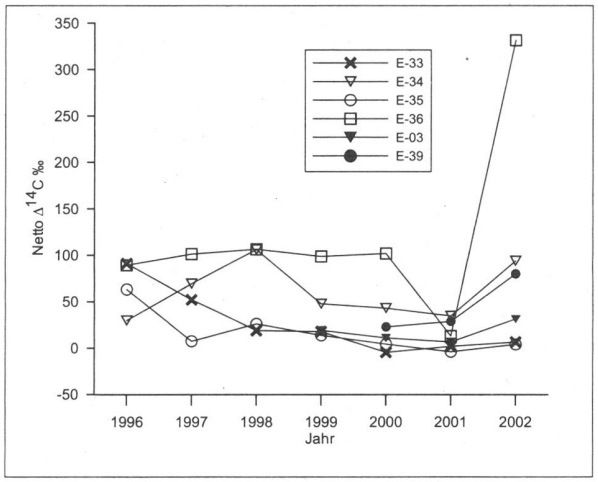

Fig. 13: Netto $\Delta^{14}C$-Werte an Blattproben aus der Umgebung der Firma ROCHE (Standorte: siehe Figur 10)

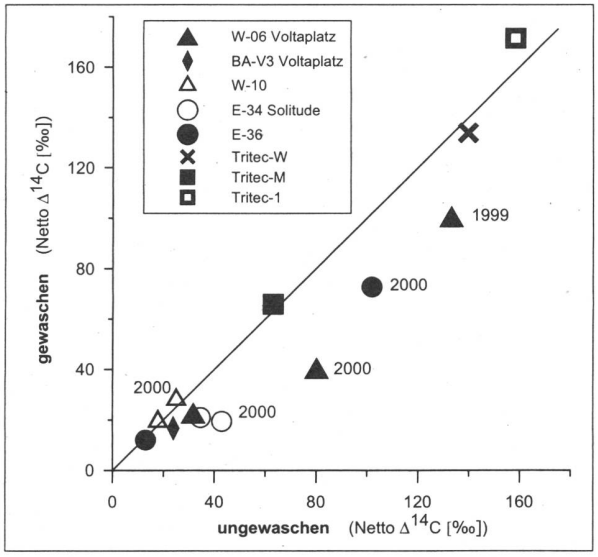

Fig. 14: Resultate bisheriger Abwaschversuche von Blättern aus Basel und Teufen

7.1.7 Kommentar

Die Frage soll beantwortet werden, ob die in Basel und Teufen (siehe Figur 16) gemessene zusätzliche ^{14}C-Aktivität in CO_2 Form (d.h. durch Assimilation) oder durch Ablagerung von vermutlich meist organischen Stoffen in resp. auf die Blätter gelangte. Deshalb wurden Doppelproben von Blättern vor dem Trocknen mit Ethanol (30%) sowie destilliertem Wasser oder nacheinander mit destilliertem Wasser, dann mit Dioxan und zuletzt mit Hexan gereinigt. Die gemessenen Netto $\Delta^{14}C$-Aktivitäten von Proben - gewaschenen und ungewaschenen - sind in obiger Figur verglichen, wobei Messpunkte ohne Jahrzahl im Jahr 2001 erhalten wurden. Die Messunsicherheit der Netto-Aktivitäten betragen je 3 bis 4 ‰. Die Standorte E-34 und E-36 befinden sich im ROCHE-Areal, die Standorte W-06, BA-V3 und W-10 am Voltaplatz d.h. westlich der Dreirosenbrücke. Die Standorte TRITEC sind in Teufen (siehe Figur 16).

Die Ergebnisse zeigen, dass sich in Proben aus Basel die gemessene zusätzliche ^{14}C-Aktivität wenigstens zum Teil entfernen lässt, dass also mindestens ein Teil der lokalen Quellen nicht CO_2 Emittenten sind. Dagegen lassen die drei Proben aus Teufen den Schluss zu, dass der wesentliche Anteil der zusätzlichen ^{14}C-Aktivität in CO_2-Form emittiert wurde, d.h. durch Assimilation in die Biosphäre gelangte.

Die Abwaschversuche wurden 2002 mit Proben aus der Umgebung des PSI/ZWILAG fortgesetzt. Alle Resultate lagen nahe am Wert der Referenzstation, was gut verständlich ist: da 2002 praktisch keine Erhöhung in der Umgebung PSI/ZWILAG festzustellen war, liess sich auch nichts abwaschen.

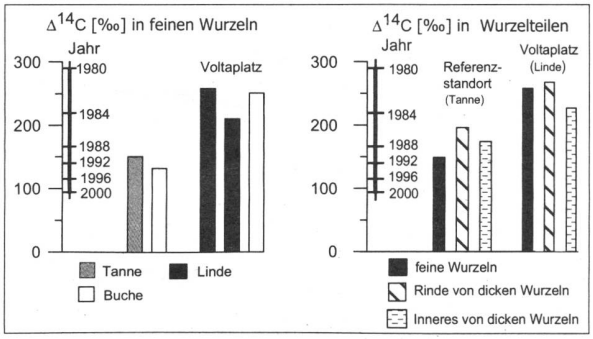

Fig. 15: $\Delta^{14}C$-Aktivität in Wurzeln von Bäumen aus Basel und von der Referenzstation (Belpberg). Die zeitliche Abnahme der ^{14}C-Aktivität von Blättern an der Referenzstation ist durch eine zusätzliche vertikale Achse angegeben.

Bei der Diskussion der ^{14}C-Erhöhungen in Baumblättern vom Voltaplatz in Basel wurde die Frage gestellt, ob ein Baum durch die Wurzeln CO_2 aus dem Bodengas aufnehmen und in die Blätter transportieren könnte. Deshalb wurden im Jahr 2001 in Basel und an der Referenzstation einige Wurzelproben parallel zu den zugehörigen Blattproben erhoben; die gemessenen ^{14}C-Aktivitäten sind in Figur 15 dargestellt.

Gegenüber den Blattproben zeigen alle Wurzelproben deutlich erhöhte $\Delta^{14}C$-Werte; z.B: Gegenüber +85 ‰ in den Blättern und Tannennadeln von der Referenzstation ergaben die zugehörigen Wurzelproben Werte zwischen +131 und +196 ‰. Gegenüber +92 bis +122 ‰ in Blattproben vom Voltaplatz ergaben die Wurzelproben Werte zwischen +210 und +268 ‰. Um erste Hinweise über die

Verteilung der ^{14}C-Aktivität in den Wurzeln zu erhalten, wurden Grössenfraktionen einzeln gemessen (Fig.15 rechts).

Für die Interpretation dieser Resultate ist zu beachten, dass frühere Messungen an Referenzstationen bis auf die (korrigierbare) Isotopenfraktionierung Übereinstimmung zwischen der ^{14}C-Aktivität im organischen Material der Blätter und im atmosphärischen CO_2 ergaben. Ein Transport von erhöhten ^{14}C-Aktivitäten aus dem Bodengas in die Blätter kann also aus den Messungen an der Referenzstation ausgeschlossen werden; dieser Mechanismus kann deshalb am Voltaplatz nicht zu den gemessenen Erhöhungen geführt haben. Somit bleiben zur Erklärung der hohen Aktivitäten in den Wurzeln zwei Möglichkeiten:

a) Das organische Material in den Wurzeln stammt aus den Blättern früherer Jahre. Beispielsweise könnte für feine Wurzeln mit einem Durchmesser von weniger als 1mm eine Einlagerungsperiode von 1990 bis 1994 abgelesen werden (Skala links in den Figuren). Am Voltaplatz wäre die Aktivität vor ca. 10 Jahren also ca. 100 ‰ höher gewesen als an den Referenzstationen. Dieses mittlere Alter der dünnen Wurzeln von ca. 10 Jahren scheint aus biologischer Sicht allerdings zu hoch.

b) Zwischen Wurzeln und Bodengas mit (von früheren Jahren) erhöhten ^{14}C-Aktivitäten im CO_2 findet ein Austausch statt, so dass insbesondere in feinen Wurzeln die heutige ^{14}C-Aktivität der Atmosphäre resp. der heutigen Blätter zu ^{14}C-Werten früherer Jahre verschoben ist.

Weitere Messungen sollen zeigen, welche dieser Möglichkeiten die wahrscheinlichere ist.

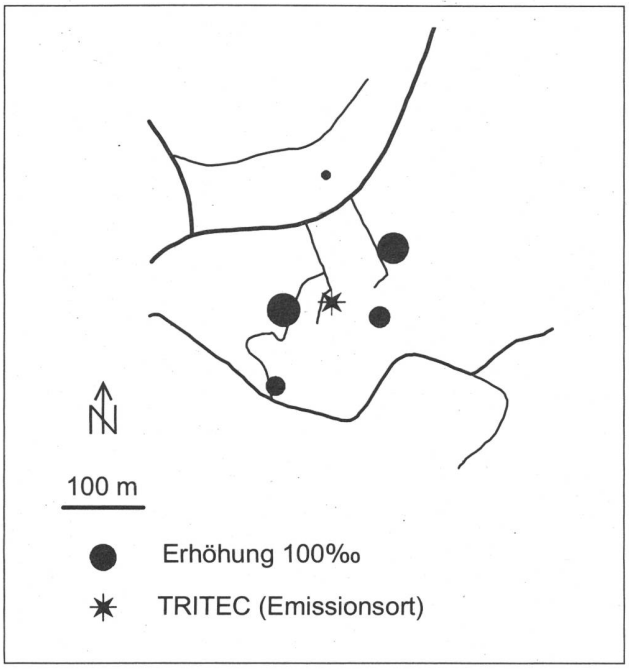

Fig. 16: Netto $\Delta^{14}C$-Werte im Jahr 2001 in der Umgebung der Firma TRITEC, Teufen

7.1.8 Teufen/AR

Die ^{14}C-Immissionen in der Umgebung der Firma TRITEC, Teufen, wurden im Jahr 2001 mit Hilfe von fünf Stichproben untersucht. Die Netto $\Delta^{14}C$-Erhöhungen erreichten Werte zwischen 12 und 158 ‰. Um abzuklären, ob die Erhöhungen auf Substanzen zurückzuführen sind, die auf den Blättern abgelagert waren, sind drei Proben mit Ethanol (30%) und Wasser oder nacheinander mit Wasser, Dioxan und Hexan vor der Trocknung und Verbrennung gewaschen worden. Die Aktivität der Abwaschproben stimmt aber jeweils innerhalb von 2 Sigma (Messfehler) mit derjenigen der unbehandelten Probe überein (Figur 14), woraus geschlossen werden muss, dass die ^{14}C-Emissionen in CO_2–Form erfolgten. Das heisst aber auch, dass die zusätzliche ^{14}C-Aktivität nur über die Assimilation grüner Pflanzen in den Biokreislauf gelangen konnte.

Die gemessenen Aktivitäten sind vorwiegend in den (angenommenen) Hauptwindrichtungen gegen West und Ost erhöht, während quer dazu und insbesondere gegen Norden die Erhöhungen geringer sind. Zur Berechnung der Emissionsraten müssen Annahmen über die Emissionshöhe und die daraus abschätzbaren Verdünnungsfaktoren getroffen werden. Die Emissionen können nach Angabe der TRITEC über den Kamin aus 25 m Höhe (inkl. Überhöhung) oder aus ca. 10 m Höhe erfolgt sein. Dies führt zu Langzeit-Verdünnungsfaktoren von ca. 10^{-5} s/m^3 resp. 10^{-4} s/m^3 (Bonka, 1982). Daraus können mittlere Emissionsraten von ca. 700 resp.

70 Bq/s während der Wachstumszeit der Blätter berechnet werden. Die Emissionsraten würden etwa um den Faktor 5 geringer ausfallen, wenn Kurzzeit-Verdünnungsfaktoren angenommen würden.

Nach Angaben der TRITEC ist zu vermuten, dass die Emissionen im Frühling 2002 geringer waren als im Jahr zuvor. Die Stichprobe am Standort westlich von der Firma bestätigte diese Annahme, indem der Netto $\Delta^{14}C$-Werte von 158 ‰ im Jahre 2001 auf 56 ‰ im Jahre 2002 sank (je mit einem Messfehler von 4 ‰).

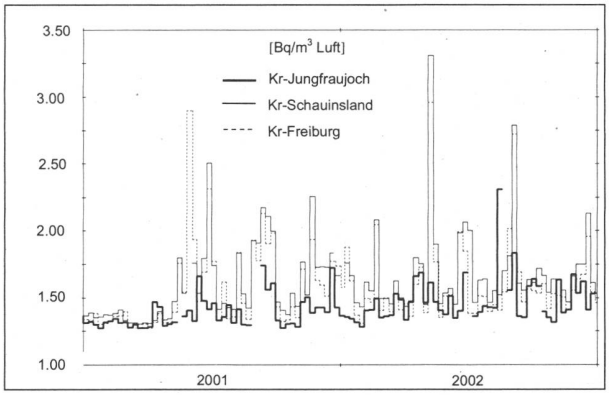

Fig. 17: ^{85}Kr-Aktivität in Troposphärenluft, gemessen am Institut für atmosphärische Radioaktivität, Freiburg im Breisgau

7.2. Krypton-85

Auch in den Jahren 2001 und 2002 wurde die ^{85}Kr-Aktivität in Krypton-Proben (2-5 ml) gemessen, die während einer Woche gesammelt wurden. In obiger Figur sind die Resultate für drei Probenahme-Orte auf verschiedenen Höhen über Meer dargestellt. Der Grundwert der ^{85}Kr-Aktivität beträgt 1.3 bis 1.4 Bq/m^3 Luft und zeigt eine steigende Tendenz. Die tiefsten Werte werden in Proben vom Jungfraujoch gemessen, was etwa dem weltweiten Niveau der Troposphärenluft auf der Nordhalbkugel entspricht.

Die ^{85}Kr-Aktivität ist in der Luft dann deutlich höher als der Grundwert, wenn die Probenahmestation in eine noch schlechter verdünnte Abluftfahne von La Hague/F oder Sellafield/GB gerät. Es ist verständlich, dass die Spikes in Freiburg (Brsg.) häufiger und höher auftreten als auf dem Schauinsland (ca.1000 m) oder auf dem Jungfraujoch, weil in 3500 m Höhe die Verdünnung von Abluft stärker ausfällt. Das unregelmässige Auftreten der Spikes hängt mit den variablen Emissionsraten und den wechselnden Windverhältnissen in Europa zusammen. Der Wert von 2.3 Bq/m^3 (±0.2%) vom Jungfraujoch für die Woche vom 12. Bis 19. August 2002 konnte durch Rückwärts-Trajektorien auf Emissionen in England zurückgeführt werden.

Im Labor der Abteilung KUP (Abt. Klima- und Umweltphysik) wurden an Stichproben von Bern die ^{85}Kr-Aktivität gemessen, wobei das Krypton aus 10-20 l Luft abgetrennt wurde (ca. 5µl Krypton). Die Resultate stimmen innerhalb der statistischen Messunsicherheit und der Unsicherheit bei der Bestimmung der Krypton-Menge mit den Messungen in Freiburg (Brsg.) überein.

Tabelle 2: Gemessene ^{85}Kr-Aktivitäten in 10 Liter Luft von Bern

Datum	Bq/m^3	Datum	Bq/m^3
20.3.01	1.35±0.13	13.3.02	1.56±0.20
17.7.01	1.2 ±0.12	2.4.02	1.56±0.20
13.12.01	1.84±0.20	2.4.02	1.45±0.27
20.12.01	1.29±0.11	29.7.02	1.34±0.09
		9.8.02	1.44±0.06
		21.8.02	1.37±0.11

7.3. Interpretation

Eine zusätzliche $\Delta^{14}C$-Aktivität von 100 ‰ in Lebensmitteln führt nach UNSCEAR 1988 zu einer hypothetischen, maximalen, effektiven Dosis von ca. 1.5 µSv pro Jahr. Alle in der Umgebung der Schweizer Kernkraftwerke und der Emissionsquellen in Basel und Teufen gemessenen Netto $\Delta^{14}C$-Aktivitäten betragen höchstens 350 ‰ und führen also zu zusätzlichen Dosen im µSv-Bereich. Dies fällt im Vergleich mit der natürlichen Strahlenexposition der Bevölkerung nicht ins Gewicht (ca. 3 mSv/a). Auch die Strahlendosis von ^{85}Kr (β-Dosis der Haut und γ-Dosis) ist vernachlässigbar, weil sie geringer als 1 µSv pro Jahr (effektive Dosis) ist. Die Bedeutung von ^{14}C-und ^{85}Kr-Messungen liegt also neben dem Strahlenschutz resp. der Überwachung primär darin, dass mit diesen Nukliden Umweltprozesse untersucht und besser verstanden werden können. Darunter fallen 3.1.) Bilanzen und Gleichgewichte, 3.2.) Ausbreitung und Verdünnung und 3.3.) Vergleiche zwischen Messungen und Modellrechnungen.

7.3.1 Bilanzen und Gleichgewichte

Seit 1990 nimmt die atmosphärische $\Delta^{14}C$-Aktivität regelmässig um ca. 6 ‰ pro Jahr ab. Dieser globale Rückgang der Bomben ^{14}C-Aktivität aus den 60er-Jahren wegen dem CO_2-Austausch zwischen Atmosphäre und den Weltmeeren zeigt sich konsistent im atmosphärischen CO_2 und in der Biosphäre frisch eingebauten organischen Substanz.

Diesem globalen Trend sind zusätzliche Effekte überlagert, die auf die Verbrennung von ^{14}C-freiem, fossilen Brennstoffen, auf den Austausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre und auf breitenabhängige Austauschraten zwischen Atmosphäre und Ozean zurückgehen. Ein Beitrag von 3-6 ppm (resp.0-3 ppm) ^{14}C-freiem CO_2 aus der Verbrennung von fossilem Brennstoff konnte beispielsweise für Schauinsland (resp. für Jungfraujoch) an Monatsproben von I. Levin und B.Kromer bestimmt werden [Proceedings des Workshops „Atmospheric Research at the Jungfraujoch and in the Alps", Davos 2002, pp. 19-20]

Zum besseren Verständnis der Zusammenhänge in unserer Umwelt dienen auch unsere Messungen der ^{14}C-Aktivität in der Prozesskette Blätter/Nadeln - Holz/Wurzeln – Boden.

^{85}Kr ist eines der wenigen Radionuklide, dessen Aktivität in der Atmosphäre noch ansteigt. Das Reservoir dieses Edelgasisotops ist die Atmosphäre, aus der pro Jahr ca. 6.5% durch radioaktiven Zerfall verschwinden. Zur Kompensation davon braucht es also eine jährliche Emission von

$$E_1 = 0.065 \times 1.4\ Bq/m^3 \times 4\times10^{18}\ m^3 = 3.6\times10^{17}\ Bq$$

Liest man aus Figur 17 eine Zunahme von ca. 1.35 auf 1.4 Bq/m^3 in den 2 letzten Jahren heraus, braucht es dafür eine Emission von

$$E_2 = 0.05\ Bq/m^3 \times 1/2a \times 4\times10^{18}\ m^3 = 1\times10^{17}\ Bq$$

Aus den Messungen kann also eine totale, jährliche, weltweite ^{85}Kr-Emission von ca. 5×10^{17} Bq abgeschätzt werden.

7.3.2 Ausbreitung und Verdünnung

Mit ^{14}C wird lokale, mit ^{85}Kr wird regionale Verdünnung untersucht. Die gemessenen ^{14}C-Aktivitäten in Blattproben aus der Umgebung eines Emittenten hängen von den ^{14}C-Emissionen in CO_2-Form, von einer allfälligen Verdünnung mit fossilem CO_2, von der Wettersituation während der Wachstumsperiode und von Topographie, Bewuchs und Bebauung ab. Die ^{14}C-Emissionen von Kernkraftwerken und von den überwachten Industriebetrieben sind oft nur abgeschätzt und bis etwa einen Faktor 2 genau bekannt. Die Bestimmung der Wetterkategorien für die Ausbreitungsmodelle ist mit Vereinfachungen verknüpft, die zur Ungenauigkeit der Modelle beitragen. Für die Ausbreitung gibt wohl ein Kompromiss zwischen Kurz- und Langzeit-Verdünnungsfaktor die beste Annäherung an die wirklichen Vorgänge, obschon zeitliche und örtliche Schwankungen der Ausbreitung zu lokalen und raschen Detail-Variationen in der Aktivität führen müssen. So sind Langzeitreihen am selben Standort oder das gesamte Bild einer ringförmigen Beprobung um den Emittenten oder in den Hauptwindrichtungen aussagekräftiger als Einzelmesswerte. Deshalb werden zur Interpretation der Modellwerte alle vorhandenen zeit- und ortsabhängigen Resultate kombiniert. So können die gegenüber ungewaschenen Proben um bis 15 ‰ grösseren Netto $\Delta\ ^{14}C$-Werte gewaschener Proben von reellen Unterschieden innerhalb eines Baumes stammen (Beispiel 2002, Umgebung PSI/ZWILAG bezw. Blattproben von der Referenzstation). Einzelne Blattproben sind weniger aussagekräftig als eine Mischung von einem ganzen Ast oder von benachbarten Bäumen im Wald. Immerhin ist auffällig, dass bei allen Kernkraftwerken und andern Emissionsquellen die höchsten Netto ^{14}C-Werte über mehrere Jahre meist an denselben Standorten gefunden werden (Ufem Horn beim KKM, Meteostation beim KKL, Sören und Schachen beim KKG, Au beim PSI, W-06 in Basel), was auf relativ konstante Emissionen und Verdünnungen schliessen lässt.

7.3.3 Vergleich zwischen Messungen und Modellen

Gemäss den oben gegebenen Begründungen sind orts- und zeitabhängige Variationen der ^{14}C-Aktivitäten in Blättern zu erwarten. Auch die verwendeten vereinfachenden Ausbreitungsmodelle weisen Ungenauigkeiten auf. So ist die mehrfach gefundene Übereinstimmung zwischen Modell- und Messwerten innerhalb etwa eines Faktors 2 als befriedigend zu werten (siehe BAG-Berichte 1996 und 1997 für das KKL, 1999 und 2000 für das KKM und 2001 für das KKG).

Wir bedanken uns bei folgenden Stellen für die Mithilfe bei der Probenahme: NOVARTIS, Kantonales Labor Basel, Hauswart Jungfraujoch und TRITEC, Teufen.

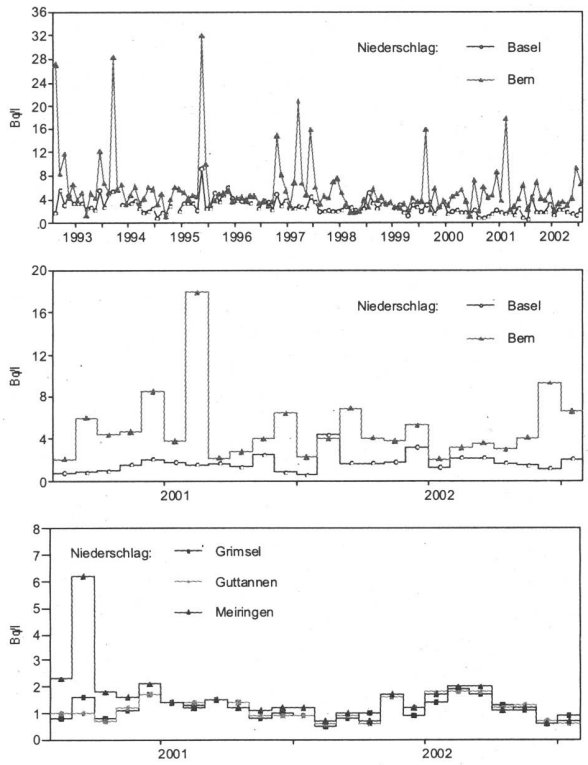

Fig. 18: ^{3}H-Aktivität im Niederschlag Nordschweiz, Mittel- und Berner Oberland

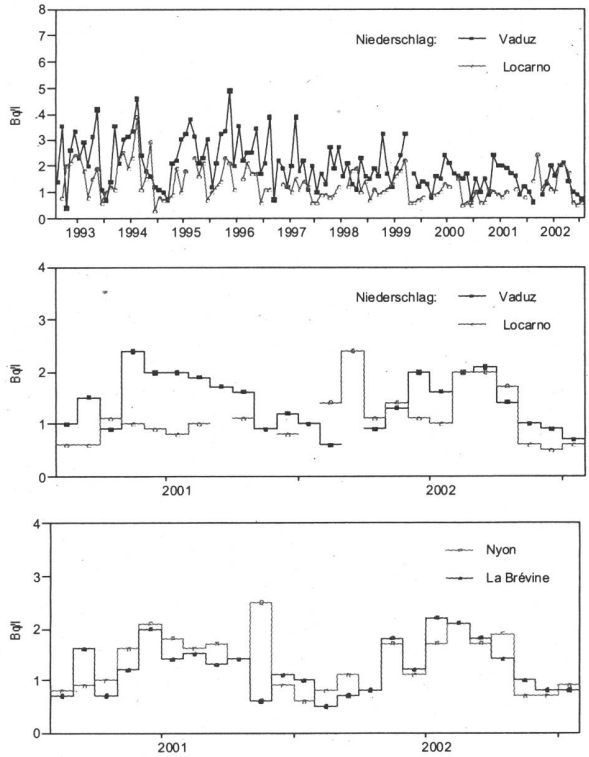

Fig. 19: ^{3}H-Aktivität im Niederschlag Westschweiz, Lichtenstein, und Tessin

7.4. Tritium

Die Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen von Bern und (weniger stark) in Basel zeigen weiterhin Unregelmässigkeiten im Jahresgang. Im Mittel (siehe Tabelle 2) sind die Werte in Bern etwas tiefer und in Basel etwas höher als im Vorjahr. Der Jahresverlauf im Berner Oberland war 2002 sehr regelmässig mit tiefen Tritiumwerten im Winterhalbjahr und höheren im Sommer. Lokale Kontaminationsfahnen durch Industrietritium wie im Februar 2001 in Meiringen und Grimsel traten nicht auf.

Wie ein Langzeit-Vergleich mit Vaduz zeigt, werden die niedrigsten Tritiumwerte im schweizerischen Messnetz nach wie vor an der Station Locarno gemessen. Allerdings traten vor allem im Januar und Februar 2002 leicht erhöhte Werte auf die möglicherweise durch die lang andauernde Inversionslagen verursacht wurden (lokale Kontamination?). Der Jahresgang der Tritiumkonzentrationen an den Stationen Nyon und La Brévine war nahezu identisch.

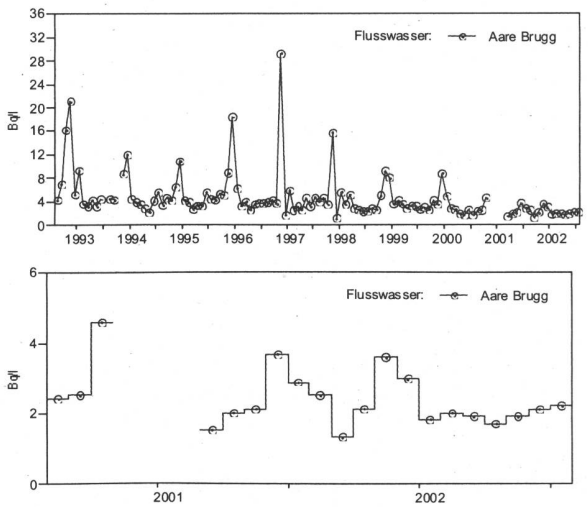

Fig. 20: ^{3}H-Aktivität im Flusswasser der Aare bei Brugg

Die Tritiumkonzentrationen in der Aare bei Brugg waren 2002 etwas niedriger als im Jahr zuvor. Ein Vergleich ist allerdings nur bedingt möglich; wegen des Umbaus der automatischen Station von April bis Juli 2001 war die automatische Probenahme unterbrochen. Die Spitzen in den Frühlingsmonaten sind auf T-Ausgaben des KKG zurückzuführen (im Rahmen der erlaubten Abgaben; siehe Seite B.8.0.1).

Tabelle 3: Vergleich der Jahresmittel an den BAG - Stationen 2001 und 2002

	Basel	Bern	Vaduz
	Bq/l	Bq/l	Bq/l
Mittel 2002*:	1.9	4.7	1.5
Mittel 2001:	1.7	5.2	1.6
	Meiringen	**Guttannen**	**Grimsel**
	Bq/l	Bq/l	Bq/l
Mittel 2002*:	1.3	1.2	1.1
Mittel 2001:	1.7	1.2	1.2

	La Brévine	Nyon	Locarno
	Bq/l	Bq/l	Bq/l
Mittel 2002*:	1.2	1.1	1.2
Mittel 2001:	1.2	1.4	0.9
	Aare Brugg		
	Bq/l		
Mittel 2002*:	2.2		
Mittel 2001*	2.7		

Tabelle 4: Provisorische Tritium-Resultate (Bq/l) BAG - Stationen 2002

	Basel	Bern	Grimsel	Guttannen	Meiringen	Vaduz	Nyon	La Brévine	Locarno	Aare *) Brugg
JAN	4.4±0.1	4.0±0.1	0.5±0.1	0.6±0.1	0.7±0.1	0.6±0.1	0.8±0.1	0.5±0.1	1.4±0.1	2.5±0.1
FEB	1.7±0.1	6.9±0.1	0.8±0.1	0.9±0.1	1.0±0.1		1.1±0.1	0.7±0.1	2.4±0.1	1.3±0.1
MAR	1.7±0.1	4.1±0.1	1.0±0.1	0.6±0.1	0.7±0.1	0.9±0.1	0.8±0.1	0.8±0.1	1.1±0.1	2.1±0.1
APR	1.8±0.3	3.8±0.1	1.6±0.1	1.6±0.1	1.7±0.1	1.3±0.1	1.7±0.1	1.8±0.1	1.4±0.1	3.6±0.3
MAI	3.2±0.3	5.3±0.3	0.9±0.2	1.2±0.1	1.2±0.1	2.0±0.3	1.1±0.1	1.2±0.1	1.1±0.1	3.0±0.3
JUN	1.3±0.3	2.1±0.3	1.4±0.1	1.8±0.1	1.7±0.1	1.6±0.3	1.7±0.3	2.2±0.1	1.0±0.1	1.8±0.1
JUL	2.2±0.1	3.2±0.1	1.9±0.1	1.8±0.1	2.0±0.1	2.0±0.1	2.1±0.1	2.1±0.1	2.0±0.1	2.0±0.1
AUG	2.2±0.1	3.6±0.1	1.7±0.1	1.8±0.1	2.0±0.1	2.1±0.1	1.7±0.1	1.8±0.1	2.0±0.1	1.9±0.1
SEP	1.7±0.1	3.0±0.1	1.3±0.1	1.2±0.1	1.1±0.1	1.4±0.1	1.9±0.1	1.4±0.1	1.7±0.1	1.7±0.1
OKT	1.5±0.1	4.1±0.1	1.1±0.1	1.3±0.1	1.2±0.1	1.0±0.1	0.7±0.1	1.0±0.1	0.6±0.1	1.9±0.1
NOV	1.2±0.1	9.3±0.2	0.6±0.2	0.7±0.1	0.6±0.1	0.9±0.1	0.7±0.1	0.8±0.1	0.5±0.1	2.1±0.1
DEZ	2.1±0.1	6.6±0.1	0.9±0.1	0.6±0.1	0.7±0.1	0.7±0.1	0.9±0.1	0.8±0.1	0.6±0.1	2.2±0.1

*) Zwischen 14.02.02 und 15.07.02 nur zwei monatliche Stichproben, da Probenahmegerät defekt

7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

K. Friedrich-Bénet, P. Froidevaux, T. Schmittler, F.Barraud, J.-F. Valley
Institut universitaire de radiophysique appliquée, Grand Pré 1, 1007 LAUSANNE

Résumé

Pour assurer une surveillance de la radioactivité de l'environnement en Suisse, les activités du plutonium et de l'américium ont été mesurées dans le sol, les filtres à air, dans l'eau et les sédiments. L'activité du sol (0 - 5 cm) en $^{239/240}$Pu est comprise entre 0.2 et 1.8 Bq/kg de masse sèche (MS). L'activité du ^{238}Pu est environ 35 fois plus petite. Les analyses ont déterminé que l'activité en américium est comprise entre 0.08 et 0.72 Bq/kg de masse sèche, ce qui représente environ 0.4 fois l'activité en $^{239/240}$Pu. Ces rapports isotopiques ont clairement identifié l'origine de la présence de ces radioéléments en Suisse. Ils proviennent des retombées des essais d'armes atomiques entrepris dans les années soixante. Afin de décrire le transfert du plutonium et de l'américium dans un sol très calcaire, prélevé dans le Jura, deux profils de sol (St-Cergue et col de Givrine) ont été analysés. Dans ces sols non-cultivés, mais utilisés pour la pâture, les activités en $^{239/240}$Pu et en ^{241}Am décroissent avec la profondeur analysée. Les sédiments collectés en aval des centrales nucléaires suisses montrent un rapport d'activité du ^{238}Pu/ $^{239/249}$Pu d'environ 0.031. Dans les eaux de rivières et de pluie, l'activité en plutonium ne dépasse pas 3.4 mBq/m^3. Les valeurs d'activité en ^{238}Pu déterminées dans les filtres à air de Fribourg et Klingnau sont respectivement de 0.9 et 0.5 nBq/m^3. L'activité en ^{241}Am dans les filtres à air au site de Weissfluhjoch montre une augmentation depuis l'année 2000. Les activités mesurées sont très faibles, mais montrent l'utilisation de plutonium et d'américium dans l'industrie européenne (énergie nucléaire, médecine, industrie de construction, etc...)

7.2.1 Introduction

Le plutonium est un élément artificiel qui a été émis dans l'atmosphère par l'homme. On compte qu'environ 6 t de plutonium artificiel ont été déposés dans l'environnement depuis les années cinquante. L'américium est généré principalement par la désintégration β du ^{241}Pu. Il a été introduit d'une façon non uniforme dans l'hémisphère nord et sud suite aux tests d'armes atomiques, à l'utilisation de l'énergie nucléaire et aux accidents (Sellafield, Mayak, Palomares, Chernobyl). L'importance de la surveillance des ces deux radioéléments dans l'environnement se justifie par leur radiotoxicité et leur longévité dans les systèmes biologiques.

Tableau 1: Caractéristiques physiques du plutonium et de l'américium

Isotope	Période [ans]	émission
^{239}Pu	24131	Particule α
^{240}Pu	6569	Particule α
^{238}Pu	87.8	Particule α
^{241}Pu	14.35	Particule β
^{241}Am	482	Particule α et rayonnement γ

Le but de ce travail est d'évaluer tout d'abord la présence des radioéléments plutonium et américium dans l'environnement en Suisse, d'en attribuer l'origine et d'analyser leur comportement et leur devenir. Pour cela, des sols, des sédiments, de l'eau et des filtres à air ont été analysés. Deux profils de sols ont été déterminés sur un site de St-Cergue (profondeur 40 cm) et au col de la Givrine (profondeur 20 cm).

7.2.2 Méthode

La méthode de séparation chimique utilisée en 2002 a été développée à partir de la méthode de EML (Environmental Mesurement Laboratory, DOE, USA) et adaptée à l'utilisation de la digestion micro-onde d'échantillons. Elle consiste à séparer séquentiellement le plutonium et l'américium sur résines Dowex AG 1x2, TRU et TEVA et à électrodéposer les actinides sur disque d'acier [1]. Les sources sont ensuite mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS. La méthode a été testée lors d'intercomparaisons organisées par l'AIEA et PROCORAD [2].

7.2.3 Plutonium et américium dans le sol, les sédiments, l'eau et l'air

Plutonium et américium dans les sols

Les échantillons de sols ont été analysés selon le plan de prélèvement 2002 de l'OFSP pour déterminer leur activité en plutonium et en américium, exprimée en Bq/kg de matière sèche. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2.

Tableau 2: Plutonium et américium dans le sol en 2002 en Bq/kg mat. sèche (couche de 0-5 cm ou spécifiée)

Lieu	$^{239/240}Pu$	^{241}Am	Rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$	Rapport $^{241}Am/^{239/240}Pu$
Centrales nucléaires				
Mühleberg (BE)	0.18±0.012	0.082±0.01	0.027±0.01	0.45±0.01
Gösgen (SO)	0.27±0.02	0.13±0.02	^{238}Pu < LD	0.48±0.05
Leibstadt (AG); 0-5 cm	0.21±0.02	0.077±0.008	0.034±0.014	0.37±0.04
Leibstadt (AG); 5-10 cm	0.23±0.02	0.096±0.012	0.046±0.014	0.43±0.06
Beznau (AG); 0-5 cm	0.18±0.04	0.075±0.008	^{238}Pu < LD	0.41±0.06
Beznau (AG); 5-10 cm	0.434±0.004	0.188±0.007	0.027±0.01	0.43±0.04
Sites en plaines:				
Fahrni (BE)	0.523±0.06	0.202±0.024	^{238}Pu < LD	0.37±0.06
Arenenberg (TG)	0.18±0.012	0.075±0.01	0.026±0.01	0.42±0.04
Sessa (TI)	0.53±0.03	0.2±0.02	0.02±0.006	0.38±0.05
Rodi-Fiesso (TI)	0.37±0.03	0.16±0.03	0.023±0.01	0.44±0.01
CERN (GE)	0.19±0.04	0.088±0.02	0.028±0.016	0.46±0.08
PSI OASE (AG)	0.31±0.04	0.141±0.016	0.036±0.012	0.45±0.06
Zwilag ZZL (AG)	0.18±0.05	0.076±0.01	^{238}Pu < LD	0.43±0.08
Coire (GR)	0.48±0.08	0.18±0.02	^{238}Pu < LD	0.39±0.07
Déposition sèche:				
Ferme du Château de l'Isle (poussière sur poutre)	1.76±0.06	0.72±0.05	0.019±0.002	0.41±0.03
Sites en altitude:				
Diesse (BE)	0.462±0.02	0.172±0.02	0.027±0.006	0.37±0.05
Gimmelwald (BE)	0.84±0.04	0.34±0.03	0.029±0.007	0.4±0.04
Allmendhübel (BE)	0.903±0.037	0.34±0.03	0.019±0.004	0.37±0.04
Davos (GR)	1.14±0.08	0.43±0.03	0.03±0.012	0.38±0.04
Studen (SZ)	0.93-2.07	0.33-0.79	0.028±0.006	0.39±0.03
Intragna (TI)	0.98±0.1	0.46±0.02	0.027±0.008	0.47±0.08
Grangeneuve (FR)	0.26±0.02	0.098±0.01	0.032±0.028	0.37±0.05
Profils de sol:				
St-Cergue (VD), 0-5 cm	1.34±0.05	0.57±0.04	0.021±0.004	0.42±0.05
St-Cergue (VD), 5-10 cm	1.39±0.07	0.55±0.06	0.031±0.006	0.4±0.05
St-Cergue (VD), 10-20 cm	0.66±0.03	0.12±0.02	0.027±0.006	0.2±0.04
St-Cergue (VD), 20-30 cm	0.53±0.02	0.16±0.04	0.033±0.006	0.3±0.1
St-Cergue (VD), 30-40 cm	0.174±0.01	0.086±0.012	^{238}Pu < LD	0.49±0.1
Col de Givrine (VD), 0-5 cm	1.5±0.06	0.55±0.07	0.026±0.004	0.37±0.05
Col de Givrine (VD), 5-10 cm	1.4±0.06	0.57±0.04	0.028±0.006	0.42±0.04
Col de Givrine (VD), 10-20 cm	0.64±0.07	0.33±0.02	0.027±0.006	0.51±0.05
Moyennes suisses	–	–	0.028±0.009 (n = 23)	0.41±0.05 (n = 29)

Les intervalles d'incertitude sur les rapports sont reportés en 2σ, correspondant à un intervalle de confiance de 95%
LD = limite de détection.

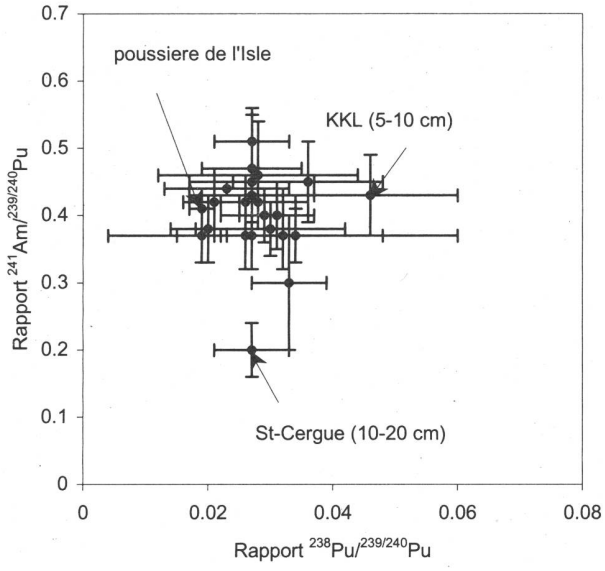

Fig. 1: Analyse multi-variables des échantillons de sol mesurés pour les radioéléments ^{238}Pu, $^{239/240}$Pu et ^{241}Am, en 2002. Les barres d'incertitude sur les rapports sont reportées en 2σ, correspondent à un intervalle de confiance de 95%.

La figure 1 illustre les activités en ^{238}Pu, en $^{239/240}$Pu et en ^{241}Am. L'analyse multi-variables montre que tous les échantillons sont centrés autour d'une valeur (0.41; 0.028). Avec ces données on peut attribuer la contamination du sol suisse aux essais nucléaires réalisés dans les années soixante. Deux mesures (KKL, 5 - 10 cm et St-Cergue, 10 - 20 cm) ont donné des résultats légèrement différents de ceux attendus mais les mesures KKL dans la couche 5 - 10 cm et St-Cergue à d'autres profondeurs ont confirmé qu'une contamination n'était pas présente dans ces échantillons.

En général on peut conclure que les sites en altitude ont été plus touchés par les dépositions radioactives que les sites en plaine. L'Italie centrale montre une déposition massique de radioéléments ($^{239/240}$Pu = 0.72 ± 0.46 Bq/kg, ^{238}Pu = 0.023 ± 0.014 Bq/kg et ^{241}Am = 0.241 ± 0.165 Bq/kg) comparable aux sites suisses d'altitude [3]. Les rapports isotopiques pour le sol suisse correspondent tout a fait aux rapports isotopiques déterminés par Michel et al. [4] pour la région de Cumbria en Angleterre (^{238}Pu/$^{239/240}$Pu = 0.04 et ^{241}Am/$^{239/240}$Pu = 0.37). Dans la même région, mais en aval de la centrale de retraitement de Sellafield, Coppelstone et al. [5] ont déterminé une contamination du sol mille fois plus élevée qu'en Suisse. Dans ce cas là, il s'agit d'une réelle contamination due à la présence d'un site nucléaire.

Poussière de l'Isle

La déposition sèche des radioéléments plutonium et américium a été étudiée en analysant la poussière.

Cette poussière provient d'une poutre de la ferme du château de l'Isle (Canton de Vaud) en profitant de travaux de rénovations sur un endroit non perturbé depuis 250 ans. Elle a été prélevée sur une surface de 20 x 40 cm. L'analyse a été entreprise afin de déterminer l'origine de la déposition sèche sur cette poutre. Aucune précipitation n'a pu perturber la déposition comme c'est le cas pour les échantillons de sol. Le rapport isotopique ^{238}Pu/$^{239/240}$ Pu est inférieur à celui mesuré sur les échantillons de sol (Tableau 2). Ceci indique que les dépositions rapides (quelques jours: Chernobyl ou quelques semaines: satellite SNAP-9A) ne sont pas perceptibles sur cet échantillon. Le rapport ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu de 0.019 ± 0.002 indique que l'origine de cette déposition vient uniquement des bombes atomiques testées dans les années soixante (déposition dans l'atmosphère sur plusieurs années), sans contribution de la déposition du satellite SNAP-9A, qui a presque doublé l'inventaire en ^{238}Pu dans l'hémisphère nord. Le rapport ^{241}Am/$^{239/240}$Pu de 0.41 ± 0.03 confirme la provenance de cette déposition dont la valeur est de 5.4 ± 0.2 Bq/m^2 en $^{239/240}$Pu et de 2.2 ± 0.1 Bq/m^2 en ^{241}Am. On constate donc que la déposition sèche sur les poutres de la ferme de l'Isle ne représente qu'une petite fraction de la déposition totale sur le sol avoisinant (entre 100 et 300 Bq/m^2).

Plutonium et américium dans les sédiments et dans l'eau

Un moyen simple pour déterminer l'impact d'une centrale nucléaire sur l'environnement est l'analyse des sédiments de surface en aval de cette installation, qui nécessite toujours de l'eau pour son refroidissement.

Lors des mesures effectuées en 2002 sur ces sédiments (Tableau 3), aucune contamination n'a pu être détectée. Les activités déterminées sont plus faibles que les valeurs moyennes européennes, qui sont situées autour de 0.5 Bq/kg pour le plutonium et l'américium dans les sédiments [6]. Le rapport moyen suisse des sédiments ^{238}Pu/$^{239/240}$Pu est de 0.032 ± 0.01, une valeur très proche de celle déterminée pour le sol en Suisse. Cette valeur ne reflète aucune contamination due aux centrales nucléaires, mais caractérise des contaminations dues aux tests nucléaires des années soixante.

Tableau 3: Concentration [Bq/kg] en plutonium et en américium dans les sédiments et dans l'eau en 2002

Emplacement	Période de prélèvement	Activité [Bq/kg]		
		$^{239/240}Pu$	Rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$	
Aval de Mühleberg : Hagneck (sédiment)	20.12.01-23.01.02	0.1 ± 0.01	0.027 ± 0.01	
Aval de Gösgen : Lac de Klingnau (sédiment)	26.03.-23.04.02	0.155 ± 0.01	0.033 ± 0.01	
Aval de Leibstadt : Pratteln (sédiment)	23.04.-29.05.02	0.078 ± 0.008	0.034 ± 0.01	
		Activité [mBq/m³]		
		$^{239/240}Pu$	Rapport $^{238}Pu/^{239/240}Pu$	^{241}Am
Fribourg (eau de pluie)	2002	3.0 ± 0.6	^{238}Pu < 0 .2 mBq/m³	
Genève (Chancy : eau du Rhône)	2002	1.6 ± 0.3	^{238}Pu < 0 .2 mBq/m³	
Mühleberg (eau de pluie)	2002	3.4 ± 0.6	^{238}Pu < 0.2 mBq/m³	
Pratteln (eau du Rhin)	2002	11.0 ± 1.0	^{238}Pu < 0 .2 mBq/m³	3.0 ± 0.1

Le plan de surveillance de la radioactivité prévoit aussi des contrôles des eaux de rivière et de pluie. Deux eaux de pluie (Fribourg et Mühleberg) et deux eaux de rivière (Genève: eau du Rhône et Pratteln: eau du Rhin) ont donc été analysées. La méthode consiste à pré-concentrer l'échantillon par une précipitation d'hydroxydes de fer sur des prélèvements mensuels ou à évaporer des fractions prélevées chaque semaine sur toute l'année (150 L).

L'activité dans les eaux de pluie est due à la resuspension de particules de sol sur lesquelles les actinides sont adsorbés. Dans l'eau des fleuves, l'activité représente des actinides en suspension dans la partie sédimentaire ou associés aux colloïdes organiques. Les activités en $^{239/240}Pu$ des eaux de pluie sont proches de celles obtenues par Montero et al. [7] (2 à 20 mBq/m³) pour une région du sud-ouest de l'Espagne.

^{238}Pu, $^{239/2240}Pu$ et ^{241}Am dans l'air

Les activités en plutonium et américium dans l'air ont été déterminées pour surveiller la resuspension de ces radioéléments. Les filtres à air ont été analysés pour deux sites en plaine (Mühleberg et Fribourg), pour un site en montagne (Weissfluhjoch) et sur le site de Klingnau. La durée du prélèvement s'étend sur une période d'une année, parce que l'activité de ces radioéléments dans l'air est très faible. Les résultats (Tableau 4 et figure 2) montrent que l'activité en $^{239/240}Pu$ et en ^{238}Pu est très faible, mais dépasse la limite de détection. Les valeurs pour ^{238}Pu et $^{239/240}Pu$ sont en bon accord avec les valeurs mesurées ($^{239/240}Pu$ = 0.53 à 8.1 nBq/m³ et ^{238}Pu = 0.063 à 0.95 nBq/m³) au sud d'Allemagne par Rosner et Winkler [8].

Tableau 4: Concentration en plutonium et américium dans l'air en 2002

Emplacement	Activité [nBq/m³]		
	$^{239/249}Pu$	^{238}Pu	^{241}Am
Fribourg	1.5 ± 0.3	0.9 ± 0.2	4.7 ± 0.4
Weissfluhjoch	1.0 ± 0.3	0.07	242 ± 4.0
Beznau (Klingnau)	0.54 ± 0.08	0.5 ± 0.08	0.53 ± 0.08
Mühleberg	0.5 ± 0.1	0.07	

Pour l'activité de l'américium au site de Weissfluhjoch, on constate une augmentation depuis l'année 2000. Cette augmentation a probablement une origine industrielle (incinération des détecteurs de fumée), parce qu'une contamination suite à un problème dans une centrale nucléaire devrait provoquer aussi une augmentation en plutonium, ce qui n'est pas observé. Le site de prélèvement de Weissfluhjoch se situant à environ 30 km d'une station d'incinération des déchets, on soupçonne que cette station a peut-être brûlé des détecteurs de fumée. Pour vérifier cette hypothèse nous envisageons des prélèvements dans cette station d'incinération. L'évolution de l'activité du ^{241}Am dans l'air sera suivie très soigneusement, afin de déterminer l'origine de l'augmentation observée.

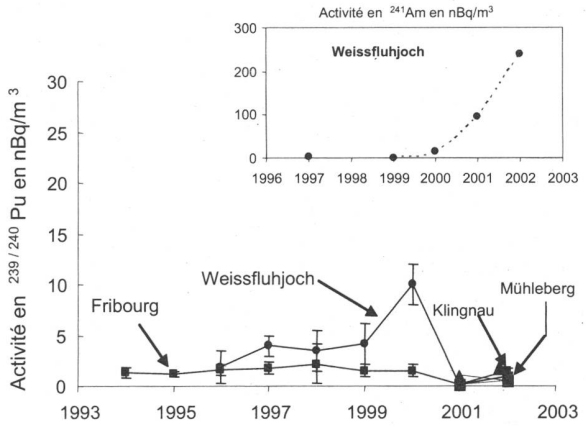

Fig. 2: Activité en $^{239/240}$Pu et en ^{241}Am des filtres à air en plaine et en montagne. Les barres d'incertitudes sur les valeurs sont reportées en 2σ, correspondant à un intervalle de confiance de 95%.

7.2.4 Profils de sols du Jura

Profil d'activité au site de St-Cergue

Deux profils de sol dans le Jura vaudois (St-Cergue: 1041 m et Col de Givrine:1228 m) ont été analysés afin de déterminer la déposition atmosphérique en $^{238,239/240}$Pu et ^{241}Am et leur migration dans le sol. Le profil de St-Cergue a été mesuré jusqu'à une profondeur de 40 cm, celui du Col de la Givrine jusqu'à 20 cm, parce que le sol est très rocheux et un prélèvement plus profond n'est pas possible. Les valeurs des dépositions surfaciques sont 310 ± 15 Bq/m^2 en $^{239/240}$Pu et de 120±10 Bq/m^2 en ^{241}Am. Ces valeurs confirment une déposition des radionucléides due aux retombées des années soixante (r ^{241}Am/$^{239/249}$Pu = 0.39). Le Jura montre une valeur plus élevée de la déposition de plutonium et d'américium par rapport aux sites en plaine pour lesquels une valeur moyenne de la déposition de plutonium de 70 Bq/m^2 a été déterminée.

Les résultats des ces deux études se trouvent dans le tableau 2 et sont représentés dans les figures 3 et 4.

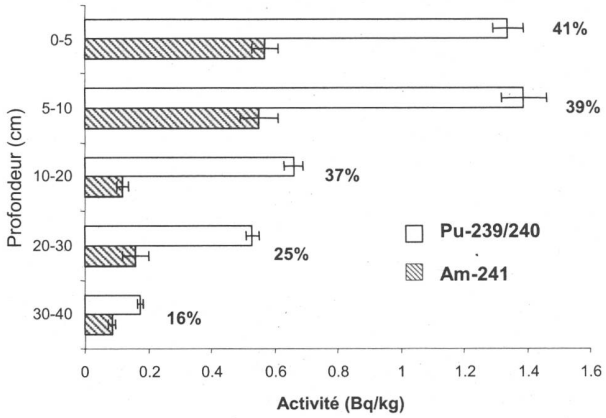

Fig. 3: Profil de St-Cergue : activité en plutonium et en américium en fonction de la profondeur. Les % indiquent le contenu en matière organique

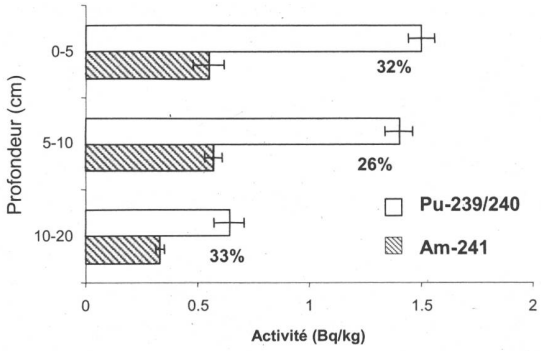

Fig. 4: Profil du Col de la Givrine: activité en plutonium et en américium en fonction de la profondeur. Les % indiquent le contenu en matière organique.

Dans la figure 3 on constate que la concentration de l'activité ne dépend pas simplement de la profondeur mais aussi de la matière organique qui se trouve dans le sol [9]. La spéciation des radioéléments dépendant fortement des propriétés physico-chimiques du sol (pH, Eh, etc), la quantité de matière organique affecte la rétention et la migration des radioéléments dans l'environnement. Lee et Lee [9] ont analysé deux profils de sol (jusqu'à 20 cm) avec des quantités différentes de matière organique et observé les faits suivants : le sol volcanique contient environ 4 fois plus de matière organique et les concentrations d'activité déterminées sont aussi 4 fois plus élevées par rapport à un sol non volcanique. Ceci confirme l'influence de la matière organique sur la rétention et la migration des radioéléments. Le sol prélevé dans notre

étude est un sol non cultivé mais utilisé pour la pâture. Les radioéléments ne migrent pas très profondément dans ce type de sol et la presque totalité de l'activité se trouve dans les premiers 20 cm. La forte teneur en matière organique de l'horizon supérieur de ces sols est certainement responsable de la rétention du plutonium et de l'américium.

7.2.5 Conclusions

La mesure des activités en $^{239/240}Pu$, ^{238}Pu et ^{241}Am a été effectuée sur les échantillons présentés dans ce rapport. L'utilisation d'une analyse multi-variable permet de détecter d' éventuelles contaminations par des radioéléments, mais toutes les valeurs obtenues se groupent autour d'une valeur moyenne suisse:

- $r\,(^{238}Pu/^{239/240}Pu) = 0.028 \pm 0.009$

et

- $r(\,^{241}Am/^{239/240}Pu) = 0.41 \pm 0.05$

Les activités mesurées sont dues aux essais nucléaires des années soixante. L'analyse des filtres à air de Weissfluhjoch a permis de détecter une augmentation d' ^{241}Am dont l'origine est pour le moment encore incertaine mais probablement due à l'incinération de détecteurs d'incendie. Une étude plus approfondie est envisagée. L'analyse de deux profils de sol du Jura vaudois montre que le plutonium et l'américium ne migrent pas très profondément dans le sol de montagne à forte teneur organique. La presque totalité de l'activité se trouve dans les 20 premiers centimètres.

7.2.6 Bibliographie

[1] Froidevaux, P., Geering, J.-J., Valley, J.-F., Plutonium and Americium in the Swiss Environment, Eichrom's users group meeting, Paris, 7th December 1998.

[2] PROCORAD, Association for the Promotion of Quality Control of Analses in Medical Radiobiology, Commisariat à l'Energie Atomique (CEA), Bureau du Conseiller Medical DRHRS/CM, 31-33 rue de la Fédération, 75752 Paris CEDEX 15 France.

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

[4] Michel, H., Barci-Funel, G., Dalmasso, J., Ardisson, G., Appleby, P.G., Haworth, E., El-Daoushy, F., **2002**, *J. Environ. Radioactivity.*, 59, 127-137.

[5] Coppelstone, D. Johnson, M.S., Jones, S.R., 2001, *J. Environ. Radioactivity.*, 55, 93-108.

[6] Warwick, P.E., Croudance, I.W., **2001**, Oh, J.-S., Anal. Chem., 73, 3410-3416.

[7] Montero, M.P., Sanchez, A.M., **2001**, *Appl. Rad.Isot.*, 55, 97-102.

[8] Rosner, G., Winkler, R., **2001**, *The Sci Tot. Environ.*, 273, 11-25.

[9] Lee, M.H., Lee, C.W., **2001**, *J. Environ. Radioactivity.*, 46, 253-262.