

**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:** - (2003)

**Rubrik:** Messungen von Spezialnukliden

### **Nutzungsbedingungen**

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

### **Conditions d'utilisation**

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

### **Terms of use**

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

**Download PDF:** 15.02.2026

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

## 7. Messungen von Spezialnukliden

### 7.1. Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85 <sup>1)</sup>

**Th. Stocker, H. Loosli, R. Fischer, M. Möll, R. Purtschert, U. Schotterer und H. Bürki**

Abt. Klima und Umweltp Physik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

**F. Cartier und J. Löhle**

Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen, 5232 VILLIGEN-HSK

**H. Sartorius, C. Schlosser und S. Schmid**

Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

**J. Eikenberg**

Paul Scherrer Institut, 5232 VILLIGEN-PSI

#### Zusammenfassung

An den Referenzstationen betrug im Jahre 2003 der mittlere  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert<sup>2)</sup> in Blattproben noch 74%. Er stimmt mit dem kontinentalen, troposphärischen  $^{14}\text{CO}_2$  Referenzwert, der auf dem Jungfrauoch bestimmt und bis 2002 publiziert wurde, überein. Dies zeigt, dass unsere Referenzstationen von fossilen  $\text{CO}_2$  Quellen und von Emittenten künstlicher  $^{14}\text{C}$ -Aktivität genügend weit entfernt sind.

Gegenüber dem Referenzwert zeigten Blattproben aus der Umgebung von  $^{14}\text{C}$  Emittenten  $\Delta^{14}\text{C}$  Erhöhungen wie in früheren Jahren. Die maximal im Jahr 2003 gemessenen Netto- $\Delta^{14}\text{C}$  Werte betrugen: 164% beim KKL, 50% beim KKG, 35% beim PSI, 29% beim Verbrennungsofen der VALOREC in Basel, 128% auf dem ehemaligen SANDOZ Gelände und 80% in der Umgebung der Firma ROCHE. In anderen Proben (z.B. Wurzeln, Holz verschiedenen Alters) wurden auch grössere Erhöhungen als in frischen Blattproben gemessen. Ein Teil der zusätzlichen Aktivität, die in Blattproben aus Basel gefunden wurde, liess sich abwaschen, wurde also nicht durch Assimilation von  $^{14}\text{CO}_2$  in die Pflanzen eingebracht.

Mess- und Modellwerte wurden in der Umgebung des KKG verglichen. Die Übereinstimmung ist besser, wenn angenommen wird, dass der Aufbau der Blätter zum grössten Teil schon im Frühling abgeschlossen ist, dass also für die Ausbreitungs-

rechnung die Emissionen nur während der Wachstumsperiode berücksichtigt werden müssen.

Eine zusätzliche  $^{14}\text{C}$ -Aktivität von 100% in Lebensmitteln führt nach UNSCEAR 1988 zu einer hypothetischen maximalen (effektiven) Dosis von ca.  $1\mu\text{Sv/a}$ . Alle Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivitäten, die in der Umgebung der Schweizer Kernkraftwerke und der lokalen Emissionsquellen in Basel gemessen wurden, betragen höchstens 200% und führen also zu zusätzlichen Dosen im  $\mu\text{Sv}$ -Bereich. Dies fällt im Vergleich mit der natürlichen Strahlenbelastung der Bevölkerung nicht ins Gewicht (ca.  $3\text{ mSv/a}$ ).

Die  $^{85}\text{Kr}$  Messungen in Wochenproben vom Jungfrauoch und von Stichproben in Bern zeigten einen troposphärischen Grundlevel von ca.  $1,4\text{ Bq/m}^3$  und dazu überlagert Erhöhungen bis  $1,8\text{ Bq/m}^3$ , die auf Emissionen von europäischen Wiederaufbereitungsanlagen zurückgeführt werden können. Die Strahlendosis von  $^{85}\text{Kr}$  ( $\beta$ -Dosis der Haut und  $\gamma$ -Dosis) ist vernachlässigbar.

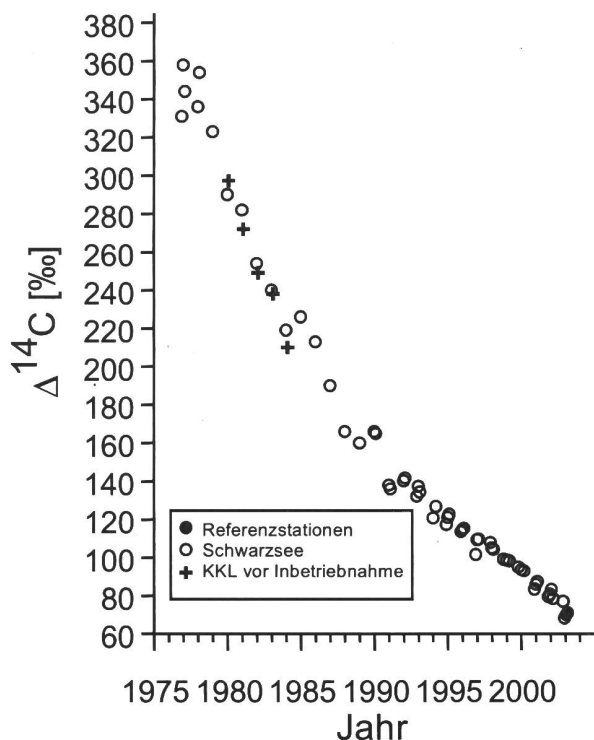
Die Bedeutung von  $^{14}\text{C}$ - und  $^{85}\text{Kr}$ -Messungen liegt also neben dem Strahlenschutz resp. der Überwachung primär darin, dass mit diesen Nukliden Umweltprozesse untersucht und besser verstanden werden können. Darunter fallen Bilanzen und Gleichgewichte, Ausbreitung und Verdünnung und Vergleiche zwischen Messungen und Modellrechnungen.

<sup>1)</sup> Die vorliegenden Überwachungsmessungen werden gemeinschaftlich finanziert durch das BAG, das PSI, die HSK und privatwirtschaftliche Partner (Novartis, Roche, Syngenta und Valorec, Basel). Das Radiokarbonlabor an der Universität Bern wird durch den Schweizerischen Nationalfonds unterstützt.

<sup>2)</sup> Die  $\Delta$ -Notation korrigiert mit Hilfe der gemessenen  $\delta^{13}\text{C}$ -Werte die Isotopenfraktionierung durch die Pflanzen und gibt die relative  $^{14}\text{C}$ -Aktivität der Probe (in ‰) an als Differenz zu einem zerfallskorrigierten Standard-Wert (Radiocarbon 19 (1977)355).

## 7.1.1 Kohlenstoff-14

### Referenzstation



**Figur 1**

$\Delta^{14}\text{C}$ -Messresultate in Buchenblättern von den Referenzstationen

Die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Konzentration in Buchenblättern an den Referenzstationen auf dem Belpberg und am Schwarzsee betrug im Jahr 2003 noch 74‰ (Fig.1). Dies ist ein Mittelwert aus gesamthaft 10 Messungen, die  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte zwischen 65 und 78‰ ergaben; die 5 Blattproben wurden zwischen dem 27.4. und dem 16.11.2003 erhoben. Die zugehörigen  $\delta^{13}\text{C}$  Werte liegen zwischen  $-28,5$  und  $-33\text{‰}$ , je mit einem Fehler von  $0,2\text{‰}$ . Die niedrigsten  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte aus der Umgebung vom KKW Gösgen (4 Proben) und von Basel (11 Proben) liegen im oben angegebenen Messintervall für die Referenzstationen. Auch 4 Proben aus der Umgebung des PSI / SIN / KKB, die am PSI gemessen wurden, ergaben  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte von 69 bis 71‰ (je  $\pm 7\text{‰}$ ).

Um nachzuweisen, dass beim Abwaschen (siehe Fig.11) keine  $^{14}\text{C}$ -Aktivität durch die Lösungsmittel eingeschleppt wird, wurde eine Blattprobe von der Referenzstation dem gleichen Waschvorgang wie Proben mit hoher  $^{14}\text{C}$ -Aktivität unterzogen; sie ergab einen  $\Delta^{14}\text{C}$  Wert von 65‰.

Auf Vorschlag des BAG wurden auch Blattproben vom Schwarzsee (FR) erhoben. Die oben erwähnte Übereinstimmung der Messresultate von Schwarz-

see mit denen vom Belpberg und die schon früher gezeigte Übereinstimmung zwischen Belpberg und Längenberg erlauben den Schluss, dass an all diesen Standorten ungestörte troposphärische  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen bestimmt werden können. Offenbar spielt der Eintrag von fossilem  $\text{CO}_2$  (ohne  $^{14}\text{C}$ -Aktivität) an diesen Referenzstationen keine signifikante Rolle; diese liegen auch genügend weit entfernt von  $^{14}\text{C}$ -Emissionsquellen. I. Levin et al. haben kürzlich gezeigt, dass die  $^{14}\text{CO}_2$  Messungen auf dem Jungfraujoch als kontinentale, atmosphärische Referenzwerte dienen können (Geophys. Res. Letters 30, 2003, 2194). Der für das Jahr 2002 in atmosphärischem  $\text{CO}_2$  gemessene  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert beträgt 80‰, was mit dem  $\Delta^{14}\text{C}$  in Baumblättern vom Belpberg wiederum sehr gut übereinstimmt.

Die kontinuierliche Abnahme des atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ -Gehaltes ist einerseits darauf zurückzuführen, dass das atmosphärische  $\text{CO}_2$  ständig mit dem  $\text{CO}_2$  des globalen Ozeans im Austausch ist, so dass die durch die Kernwaffentests in den 60er Jahren produzierte zusätzliche  $^{14}\text{C}$ -Aktivität langsam in die Ozeane verschwindet. Der steigende Anteil von fossilem  $\text{CO}_2$  führt andererseits zu einer zusätzlichen Abnahme der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität. Dieser sogenannte "Suess-Effekt" spielt aber nicht nur global eine Rolle, sondern Abgaben von fossilem  $\text{CO}_2$  aus Heizungen und Verkehr können auch lokal zu tieferen  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten als an unbeeinflussten Referenzstationen führen. So wurden in der Stadt Basel an mehreren Standorten auch 2003 kleinere  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte als 74‰ gemessen (siehe Text zu Figur 8, und Figur 12 im BAG Bericht 2002, Seite B.7.6). Auch die im Auftrag des BAG durchgeführte  $^{14}\text{C}$  Bestimmung in der Umgebung der KVA Thun zeigte diesen Verdünnungseffekt:

**Tabelle 1**

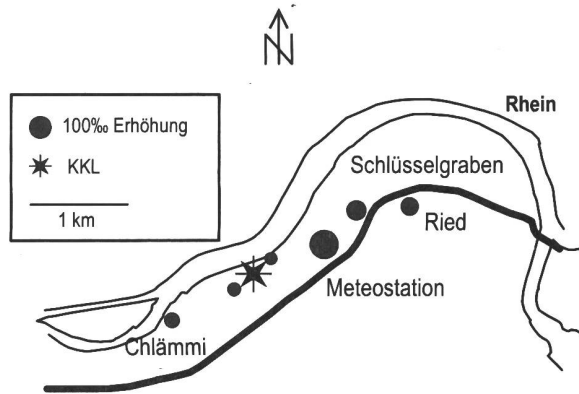
$^{14}\text{C}$ -Aktivitäten im Umfeld der neuen Kehrlichtverbrennungs-Anlage (KVA Thun) vor Inbetriebnahme

Standort	Distanz zur KVA	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	$\Delta^{14}\text{C}$ (‰)
T1 Lerchenfeld (Kirche) T1	W NW 640m	$-29,5 \pm 0,2$	$70,3 \pm 2,6$
T2 Rütlistr.23 (Kaserne)	SO 700m	$-27,6 \pm 0,2$	$51,9 \pm 2,7$
Schönaustr. (Krematorium) T3	SO 1200m	$-27,8 \pm 0,2$	$59,2 \pm 2,6$

Bemerkenswert an diesen Messungen ist, dass die KVA zum Zeitpunkt der Probenahme (5.9.2003) noch gar nicht in Betrieb war; die fossilen Emissionen in der Stadt Thun (Verkehr, Heizung) sind als Ursache der Verdünnung anzusehen.

Die in den Figuren 2 bis 11 dargestellten Netto-Erhöhrungen sind die Abweichungen zu den oben erwähnten +74‰ an der Referenzstation.

### 7.1.2 KKL



**Figur 2**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (Die Kreisflächen sind proportional zur gemessenen Netto-Erhöhrung).

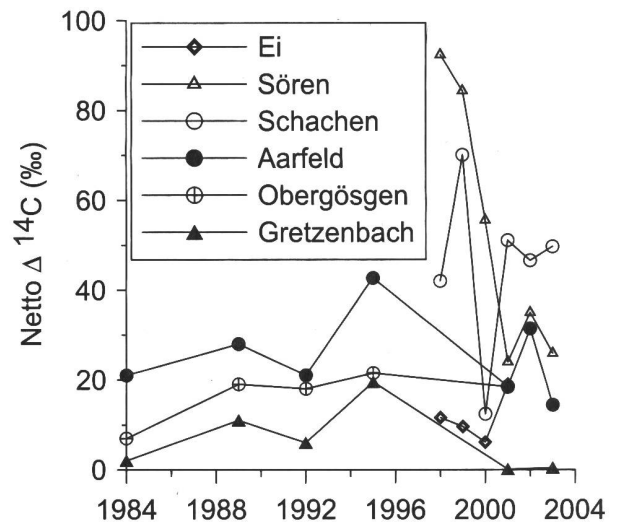
Das Langzeit-Überwachungsprogramm um KKL wurde in den beiden Hauptwindrichtungen an 6 Standorten fortgesetzt (Fig. 2). Die maximale Erhöhrung wurde wie in den früheren Jahren in ca. 700m Entfernung vom Emissionsort in Nord-Östlicher Richtung am Standort "Meteostation" festgestellt. Sie betrug 164‰ mit einem statistischen Fehler von 4‰. An den andern 5 Standorten lagen die Erhöhrungen – ebenso wie in früheren Jahren – zwischen 30 und 78‰. Bei der Interpretation der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -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.

### 7.1.3 KKG

4 Blattproben wurden am 26.4.2003 und 8 Proben wurden am 14. Juli erhoben. Je zwei Messresultate setzen die Langzeitreihe fort und sind in Figur 4 dargestellt. Man erkennt, dass die Netto -  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte im Jahre 2003 etwa gleich gross sind wie in früheren Jahren.

Weil das KKG jetzt die Emissionen von  $^{14}\text{C}$  in  $\text{CO}_2$ -Form, d.h. geeignet für die Assimilation durch die Bäume, zeitlich aufgelöst misst, wurde eine erste Probenahme nach dem Aufbau der Blätter durchgeführt (am 26.4.2003) und eine zweite im Sommer, wenn die Bäume die neu erzeugten, organischen Substanzen für das Folgejahr und als Reserve angelegt haben. Die von der HSK durchgeführten Modellrechnungen mit einer Integrationszeit bis

zum Probenahmedatum berücksichtigen nur die Wachstumsphase während des Tages (ohne Nächte) und sind als Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Konturen in Figur 4 dargestellt. Verwendet wurden die vom KKG bestimmten Emissionsraten von ca.  $2 \times 10^4$  Bq/s. Zur Berechnung der in der Figur 4 auch angegebenen maximalen  $^{14}\text{C}$  Konzentration am Hauptaufschlagspunkt wurde für die Fröhlings-Proben ein Ausbreitungsfaktor von  $7 \times 10^{-7}$  und für die Sommerproben von  $3,5 \times 10^{-7}$  s/m<sup>3</sup> bestimmt.



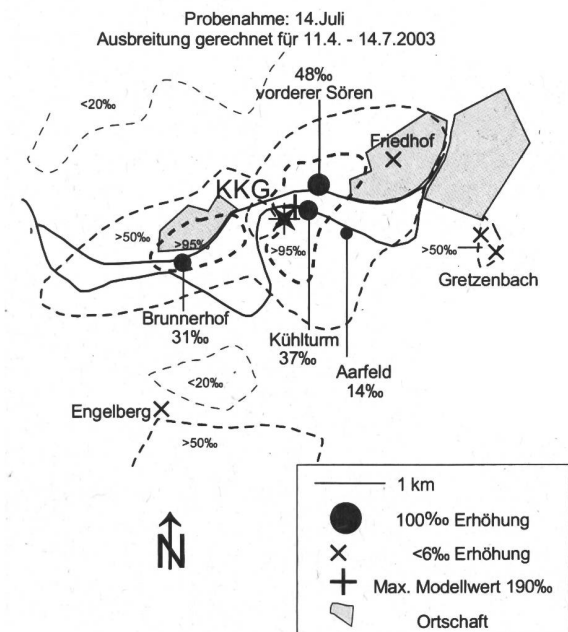
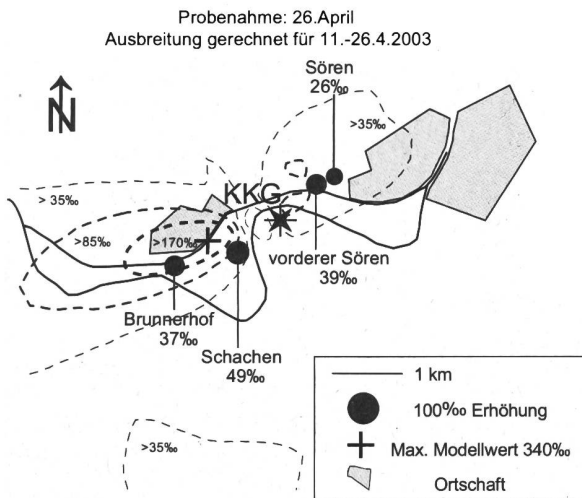
**Figur 3**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  in der Umgebung des KKG (Standorte siehe Figur 4)

Aus Figur 4 ist ersichtlich, dass der Hauptaufschlagspunkt für die April-Periode im Westen und bis im Juli im Osten vom KKG erwartet wird. Wohl liegen die gemessenen höchsten Messwerte in der Hauptwindrichtung, aber die wiederholten Proben Brunnerhof und vorderer Sören zeigen keinen signifikanten Unterschied zwischen Fröhlings- und Sommerprobe. Eine Erklärungsmöglichkeit dafür ist, dass die Blattsubstanz Ende April im Wesentlichen vorhanden ist und dass für beide Probenahmedaten die Integration bis Ende April massgebend ist. Damit stimmen auch die beiden im Sommer erhobenen Proben in Gretzenbach besser überein, für die beide weniger als 6‰ Erhöhrung gemessen wurden, während die Modellrechnungen dort bis im Sommer eine signifikante Erhöhrung voraussagen. Auch die kleine Erhöhrung Aarfeld und der Basiswert in der Probe Friedhof passen besser für diese Annahme über den Blattaufbau im Fröhring.

Die Messdaten der Proben Brunnerhof, Friedhof und Engelberg weisen darauf hin, dass die anhand des Ausbreitungsmodells mit den laufend erhobenen Wetterdaten und den Emissionsdaten berechneten Immissionswerte generell zu hoch sind. Der



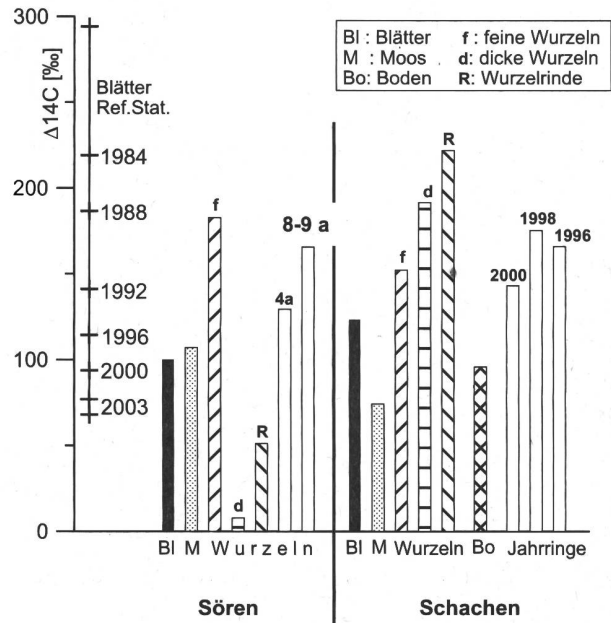
hauptsächliche Beitrag zu dieser Ungenauigkeit liegt im Ausbreitungsmodell und ist hier insbesondere in der Interpretation der Wetterdaten zu suchen.



**Figur 4**  
Gemessene Netto  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte in der Umgebung des KKG für zwei Probenahmedaten und gerechnete Modellkonturen für die entsprechenden Integrationszeiten

An den Orten in den Hauptwindrichtungen, die bisher die grössten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte zeigten (Sören und Schachen) wurden im April und im Juli 2003 neben den Baumblättern weitere Objekte genommen: Moos, Boden, Wurzeln und Äste mit datierbaren Jahrringen. In obiger Figur wird für die Wurzeln unterschieden zwischen feinen und dicken Wurzeln (f resp. d), deren Rinde (R) und Wurzeln

von jungen Pflanzen, deren Alter abgeschätzt werden kann (4 resp. 8-9 Jahre).

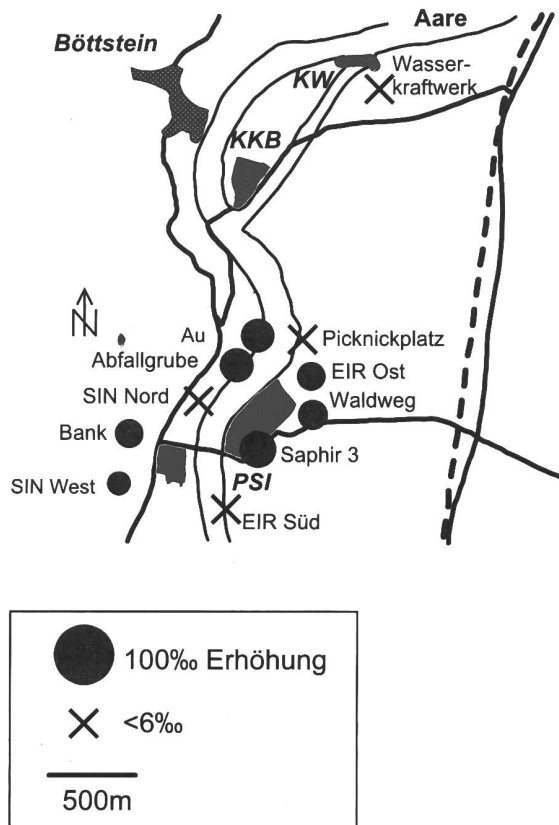


**Figur 5**  
 $\Delta^{14}\text{C}$  Aktivität in verschiedenen Proben aus der Umgebung des KKG (2003). Als Vergleichsmassstab sind die Jahre angegeben, in denen Blätter von den Referenzstationen die betreffenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufwiesen.

In den meisten Proben führen die Emissionen des KKG zu  $^{14}\text{C}$ -Erhöhungen gegenüber den Referenzstationen, insbesondere in den Blattproben, in den feinen Wurzeln, in den Wurzeln datierbarer Jungpflanzen, in den Holz-Jahrringen und in einer Moosprobe. Für die dicken Wurzeln und deren Rinde im Schachen können die Emissionen ebenfalls als Grund für die Erhöhung angesehen werden; es kann aber für diese Proben nicht ausgeschlossen werden, dass sie ca. 20-jährig sind. Die tiefen Messwerte für dicke Wurzeln und deren Rinde in Sören deuten auf ein noch höheres Alter hin.

Weitere Untersuchungen sind nötig, um die Prozesse in der Kette Baumblätter-Holz-Wurzeln-Boden besser zu verstehen; die in der Umgebung des KKG genommenen Proben an verschiedenen Objekten haben die Verständnislücken offengelegt (z.B. für eine Interpretation von Boden- und Moos-Proben Schachen und von weiteren Objekten; vorgesehen ist, die Vorgänge mit Hilfe der  $^{14}\text{C}$ -Zeitreihen an den Referenzstationen zu untersuchen und parallel dazu die Anwendungen in der Umgebung von Emittenten zu fördern).

### 7.1.4 PSI und KKB

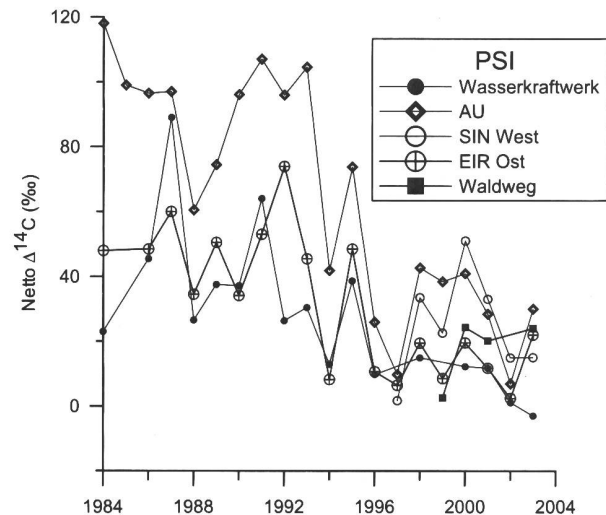


**Figur 6**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des PSI/KKB und des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen im Jahre 2003

Die  $^{14}\text{C}$ -Aktivität wurde vom PSI mit der Liquid Szintillation Counting Technik bestimmt, während die  $\delta^{13}\text{C}$ -Werte an zwei Stichproben von der Abteilung KUP, Bern, gemessen wurden.

Relativ geringe Netto-Erhöhrungen traten in den Baumblättern wie in früheren Jahren in der Umgebung PSI/SIN und des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen auf und betrugen im Jahr 2003 maximal ca. 30‰, während in Nord-Osten des KKB und an 3 Standorten in der Umgebung des PSI  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten gemessen wurden, die sich nicht signifikant von denen an den Referenzstationen unterscheiden (siehe Figur 1). Die Messunsicherheit der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte beträgt ca. 9‰.

Die Messungen an Baumblättern zeigten 2003 ähnliche Werte wie in den vergangenen 7 Jahren. Die beobachteten zeitlichen Variationen müssen nicht notwendigerweise mit variablen Emissionen erklärt werden; variable Windverhältnisse während der Wachstumsperiode der Blätter spielen sicher auch eine Rolle.



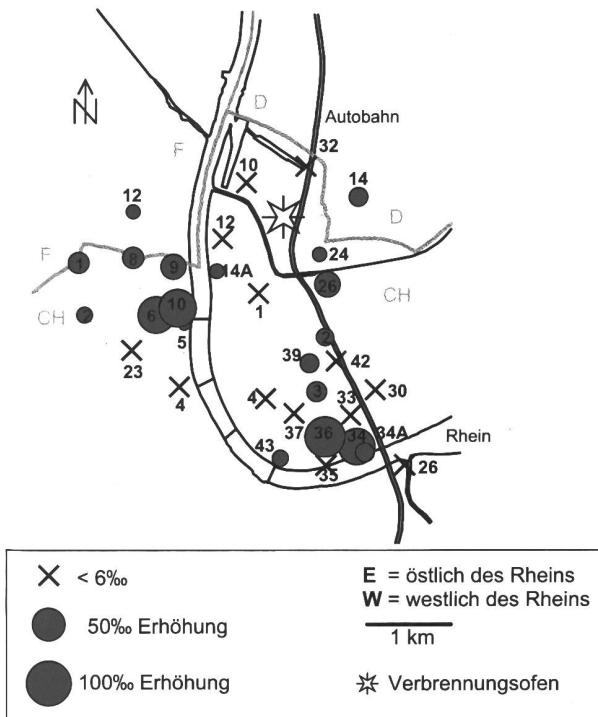
**Figur 7**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aus der Umgebung des PSI / SIN, des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen und des KKB (Standorte: siehe Figur 6)

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  $^{14}\text{C}$ -haltiger Abfälle am PSI und die am SIN durchgeführten Experimente.

### 7.1.5 Region Basel

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

Für mehrere Standorte ergaben die Messungen  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte, die innerhalb von 2 Sigma mit den Werten der Referenzstationen übereinstimmen: 4 Proben in der Umgebung des RSMVA zwischen Rhein und Autobahn, 2 Proben südlich des SANDOZ Geländes und 6 Proben in der Umgebung der ROCHE. Bei 4 Proben ist ein Verdünnungseffekt der  $^{14}\text{C}$  Konzentration mit fossilem  $\text{CO}_2$  in Betracht zu ziehen, wobei davon 2 Proben (E-32 und W-26) in der Nähe der Autobahn liegen (siehe Kommentar zu Figur 1); die Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte dieser 4 Proben liegen zwischen -11 und -13‰.

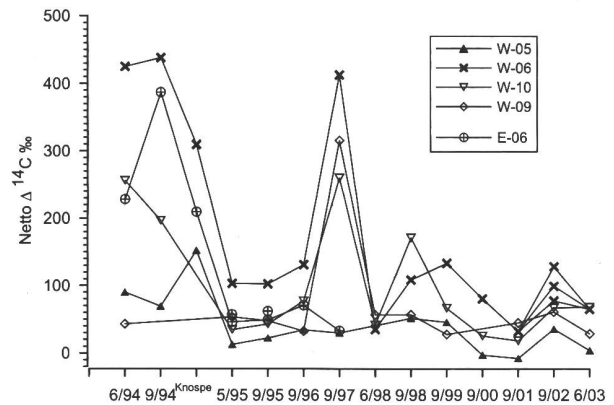


**Figur 8**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Basel, Juni 2003

In der Umgebung des Verbrennungsofens RSMVA sind zwischen Rhein und Autobahn keine und östlich der Autobahn nur geringe Netto-Aktivitäten gemessen worden. Der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von E-26 beträgt  $29 \pm 4\%$ , wobei diese Erhöhung auch von Emissionen aus Süden oder Westen stammen kann. Die Netto Erhöhungen in der Umgebung des RSMVA sind sehr gering, seitdem  $^{14}\text{C}$ -haltige Abfälle nur noch nachts verbrannt werden.

Wie in den letzten Jahren wurden in Stichproben aus der Umgebung des Volaplatzes und der Firma ROCHE erhöhte  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten gemessen. Maximal betrugen die Netto Erhöhungen im Jahre 2003  $68 \pm 3\%$  für W-10 und  $65 \pm 3\%$  für W-06 resp.  $64 \pm 4$  und  $79 \pm 3\%$  für E-34 und E-36. Blattproben von 2 Bäumen vom Volaplatz (W-06), die im Jahre 2002 gefällt wurden, konnten erst im Berichtsjahr gemessen werden; ihre Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betrugen 99 und 128%.

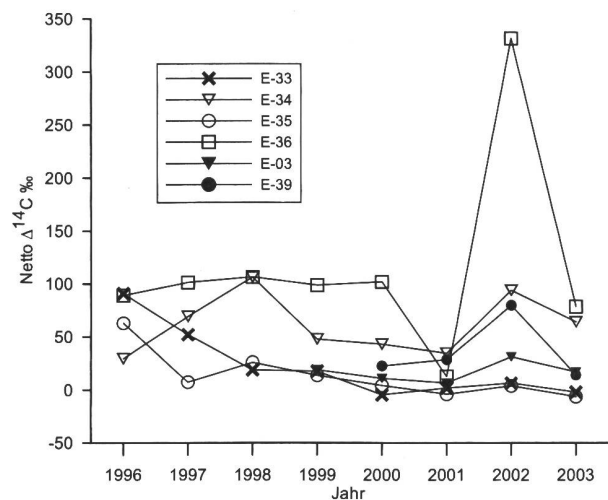
Die Messungen an 10 Stichproben in der Umgebung der ehemaligen Firma SANDOZ ergaben im Jahr 2003 ähnliche  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten wie in den vorangehenden 6 Jahren. Die Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte von W-04 und W-05 waren kleiner als 6%, der Standort W-23 zeigte mit  $-13 \pm 3\%$  eine Verdünnung mit fossilem  $\text{CO}_2$ . Die maximale Erhöhung betrug im Jahre 2003 bei W-06 und W-10 je ca.  $65 \pm 3\%$ .



**Figur 9**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte am Volaplatz (Standorte siehe Figur 8)

Die in der obigen Zeitreihe dargestellten hohen Messwerte des Jahres 1994 und Knospen 1995 gehen auf die Emissionen des alten Verbrennungsofens K-224 bei der Dreirosenbrücke zurück, diejenigen des Jahres 1997 auf die Emissionen des neuen Ofens RSMVA, in welchem in den Jahren 1996 und 1997 auch tagsüber  $^{14}\text{C}$ -haltige Abfälle verbrannt wurden.

Zur Erklärung der permanenten Erhöhung gegenüber der Referenzstation in den Jahren 1995, 1996 und 1998 bis 2003 muss eine lokale Quelle angenommen werden. Variationen dieser gemessenen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte können mit unterschiedlicher Ausbreitung und Verdünnung oder/und mit variablen Emissionsraten dieser lokalen Quellen während der Wachstumsperiode der Blätter erklärt werden.

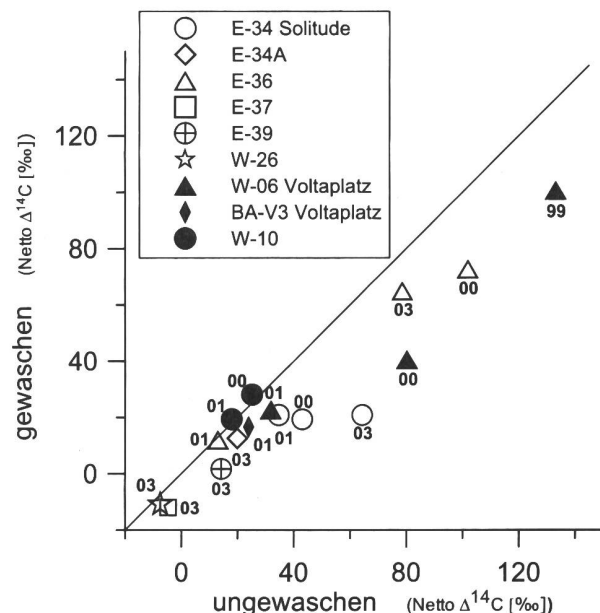


**Figur 10**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung ROCHE (Standorte siehe Figur 8)

Die Anzahl Proben im ROCHE Areal und dessen Umgebung wurden im Jahre 2003 erhöht (Figur 8). Bisherige Probenahmestandorte wurden aber beibehalten; die Zeitreihe zeigt dafür Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -

Werte in der gleichen Grössenordnung wie in den Jahren 1996 bis 2000 (Figur 10). Nach wie vor finden sich die grössten Erhöhungen am Standort E-36.

Die in Figur 8 dargestellte örtliche Verteilung lässt die Interpretation zu, dass im Jahre 2003 die Emissionen möglicherweise gegen Norden an einigen Standorten bis in 3 km Entfernung zu kleinen Erhöhungen führten.



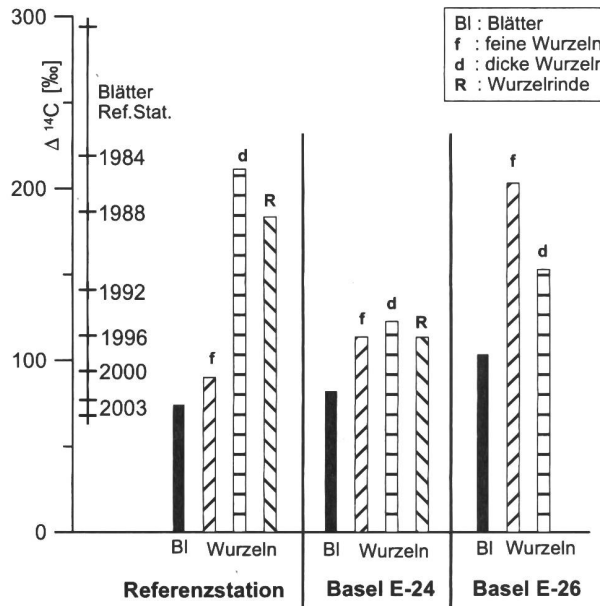
**Figur 11**

Resultate bisheriger Abwaschversuche von Blättern aus Basel (Voltaplatz und ROCHE Areal; Standorte: siehe Figur 8)

Die Frage ist offen, ob die in Basel gemessene zusätzliche  $^{14}\text{C}$ -Aktivität in  $\text{CO}_2$  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  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivitäten von Proben - gewaschenen und ungewaschenen - sind in obiger Figur verglichen, wobei alle in den Jahren 1999 bis 2003 erhaltenen Resultate dargestellt sind. Offene Symbole betreffen Proben aus dem ROCHE Areal, gefüllte das frühere SANDOZ Areal. Die Messunsicherheit der Netto-Aktivitäten betragen je 3 bis 4%.

Die bisherigen Messresultate lassen keine eindeutigen Schlüsse zu; die Reduktion der gemessenen zusätzlichen Aktivität ist variabel. Beispielsweise liessen sich bei den Proben von den Standorten E-34 und E-36, die im Jahre 2003 genommen wurden, ca. 65% resp. weniger als 20% der Aktivität abwaschen. Auch am Standort W-06 (Voltaplatz)

zeigte eine Probe eine starke Reduktion der  $^{14}\text{C}$ -Aktivität, nämlich um 50%, während bei der Probe aus dem Jahr 1999 die Aktivität nur um ca. 25% sank. Wieweit der abwaschbare Anteil vom Waschvorgang, vom Alter der Deposition oder von der Emission selbst abhängt, ist offen. Immerhin kann geschlossen werden, dass mindestens ein Teil der lokal abgegebenen  $^{14}\text{C}$ -Aktivität nicht in  $\text{CO}_2$ -Form erfolgt.



**Figur 12**

$\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Blättern und Wurzeln von verschiedenen Standorten (Probenahme 2003). Als Vergleichsmaßstab sind die Jahre angegeben, in denen Blätter von den Referenzstationen die betreffenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufwiesen.

In Figur 12 sind  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte von drei verschiedenen Standorten dargestellt, an denen Baumblätter in den letzten Jahren (1999-2003) keine oder höchstens eine geringe zusätzliche Aktivität zeigten. Zu beachten ist, dass die  $^{14}\text{C}$ -Aktivität in Baumblättern der Stationen E-24 und E-26 östlich des Verbrennungsofens RSMVA in den Jahren 1996 und 1997 mit Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten bis 250% deutlich erhöht waren; weil in dieser Zeit  $^{14}\text{C}$ -haltige Abfälle auch tagsüber verbrannt wurden.

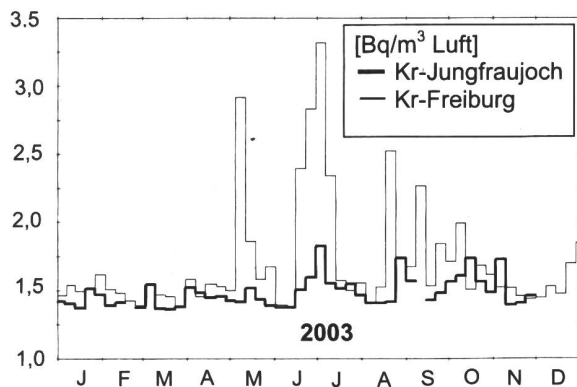
In Figur 12 ist auch ersichtlich, dass feine Wurzeln an allen Standorten eine grössere  $\Delta^{14}\text{C}$  Aktivität besitzen als Baumblätter. Proben von feinen Wurzeln zeigten auch schon im Jahre 2002 höhere Werte: sie ergaben an allen drei Standorten Werte zwischen 110 und 150%, vergleichbar zum Wert von E-24 für das Jahr 2003. Das daraus abgeleiteten Alter von 5 bis 10 Jahren für feine Wurzeln scheint aber aus biologischer Sicht zu hoch (BAG Bericht 2002, Seite B.7.8). Noch älter müssten die feinen Wurzeln mit einem  $\Delta^{14}\text{C}$  Wert von 203% von E-26 sein (ca.15 Jahre). Allerdings "genügt" für

die feinen Wurzeln von E-26 auch ein mittleres Alter von ca. 6 Jahren, wenn man annimmt, dass ihr Kohlenstoff-Gehalt zu einem grossen Teil aus der Zeit der Tagesverbrennungen in RSMVA stammt.

Dicke Wurzeln und zugehörige Rinden enthielten an allen drei Standorten sowohl in Proben des Jahres 2003 wie auch 2002 deutlich höhere  $\Delta^{14}\text{C}$ -Aktivitäten als Baumblätter. Ein durch Jahrringe bestimmtes, unabhängiges Alter der dicken Wurzelproben liegt noch nicht vor.

Organisches Material in Bodenproben wurde zum besseren Verständnis der Prozesse an der Referenzstation auf dem Belpberg, in Schachen (beim KKG) und am Standort E-24 auf ihre  $^{14}\text{C}$ -Aktivität untersucht. Während die beiden ersten Proben sinnvolle  $\Delta^{14}\text{C}$  Werte von 80 bis 96‰ ergaben, enthielt die Probe von E-24 vermutlich einen beträchtlichen Anteil von ganz altem oder anorganischem Kohlenstoff; ihr  $\Delta^{14}\text{C}$  Wert beträgt nur 11‰.

### 7.1.2 Krypton-85



**Figur 13**  
Gemessene  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivitäten in Luftproben, die während einer Woche auf dem Jungfrau (3500m) und Freiburg in Brsg. (200m) gesammelt wurden

Auch im Jahre 2003 wurde vom Bundesamt für Strahlenschutz, Abteilung Notfallschutz (Freiburg im Breisgau) die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität in Krypton-Proben (2-5ml) gemessen, die während jeweils einer Woche gesammelt wurden. In Figur 13 sind die Resultate für zwei Probenahme-Orte auf verschiedenen Höhen über Meer dargestellt. Der Grundwert der  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität beträgt ca.  $1.4 \text{ Bq/m}^3$  Luft und zeigt eine steigende Tendenz. Die tiefsten Werte werden in Proben vom Jungfrau gemessen, was etwa dem Niveau der Troposphärenluft auf der Nordhalbkugel entspricht.

Die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität ist in der Luft deutlich höher als der Grundwert, wenn die Probenahmestation in eine noch schlecht verdünnte Abluftfahne von La

Hague oder Sellafield gerät. Es ist verständlich, dass die Spikes in Freiburg häufiger und höher auftreten als auf dem Jungfrau, weil in 3500m Höhe die Verdünnung von Abluft stärker ausfällt. Das unregelmässige Auftreten der Spikes hängt mit den variablen Emissionsraten und den wechselnden Windverhältnissen in Europa zusammen. Die erhöhten Werte im Juni/Juli konnten durch Rückwärts- und Vorwärts-Trajektorien auf Emissionen in Frankreich (La Hague) zurückgeführt werden.

Im Labor der Abteilung KUP wurde an Stichproben von Bern die  $^{85}\text{Kr}$ -Aktivität gemessen, wobei das Krypton aus 10-20 l Luft abgetrennt wurde (ca.  $10 \mu\text{l}$  Krypton). Der so ermittelte Grundwert von ca.  $1.4 \text{ Bq/m}^3$  stimmt innerhalb der Messunsicherheit mit demjenigen in Freiburg überein. Bei Amplitude (bis  $3 \text{ Bq/m}^3$ ) und zeitlichem Auftreten der Spikes bestehen hingegen Unterschiede. Dies liegt einerseits daran, dass die Messungen in Bern Momentaufnahmen entsprechen (Probenahme innerhalb Minuten statt einer Woche wie in Freiburg und Jungfrau) und andererseits an der unterschiedlichen geographischen Lage der Stationen. Aus dem jährlichen Anstieg des Grundwertes lässt sich eine Freisetzungsrate durch Wiederaufarbeitungsanlagen von  $5 \times 10^{17} \text{ Bq/Jahr}$  abschätzen (BAG 2002).

### 7.1.3 Tritium

Die Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen weisen gegenüber dem Vorjahr geringfügige Unterschiede auf. Locarno liegt um  $0.3 \text{ Bq/l}$  tiefer und hat wieder den Wert von 2001 erreicht. Die Werte in Bern haben weiter abgenommen, dies wahrscheinlich wegen der Umstellungen in der Leuchtfarbenindustrie (persönliche Mitteilung Heinz Surbeck). Die übrigen Jahresmittel bewegen sich im Rahmen üblichen Streureiches. Generell hat die Alpensüdseite die tiefsten Tritiumkonzentrationen, die lokal oder regional unkontaminierten Stationen der Alpennordseite liegen um etwa  $0.3 \text{ Bq/l}$  höher. Die Stationen Vaduz und Basel sind wie in den vergangenen Jahren dagegen lokal leicht kontaminiert. Die meisten Stationen haben 2003 einen deutlichen Jahresgang mit Sommermaxima und Winterminima.

Die mittleren Tritiumkonzentrationen im Flusswasser der Aare bei Brugg lassen sich in den letzten beiden Jahren wegen technischer Probleme bei der Probenentnahme nicht miteinander vergleichen. Im laufenden Jahr werden allerdings Wochenproben zur Verfügung stehen, um kurzzeitige Erhöhungen besser erfassen zu können.

**Tabelle 2**

Tritium-Resultate im Niederschlag: BAG Stationen 2003 ( $^3\text{H}$  in Bq/l,  $\pm 0,1-0,2$ )

	Basel	Bern	Grimsel	Guttannen	Meiringen
Jan	1.9	8.4 $\pm$ 0.3	1.1	1.0	1.2
Feb	1.5	4.5	1.4	1.4	1.1
Mar	1.5	3.2	1.4	1.5	1.9
Apr	2.0	3.7	1.4	1.5	1.4
Mai	1.8	3.0	1.5	1.5	1.5
Jun	1.9	3.1	2.2	1.8	2.6
Jul	1.6	3.0	1.7	1.5	1.7
Aug	1.6	3.4	1.3	1.1	1.6
Sep	2.0	5.1	1.1	1.4	1.6
Okt	1.6	3.6	1.1	1.1	1.1
Nov	1.5	5.6	0.8	1.0	1.1
Dec	1.2	3.6	1.1	1.1	1.0

**Tabelle 3**

Tritium-Resultate im Niederschlag: BAG Stationen und der Aare bei Brugg 2003 ( $^3\text{H}$  in Bq/l,  $\pm 0,1-0,2$ )

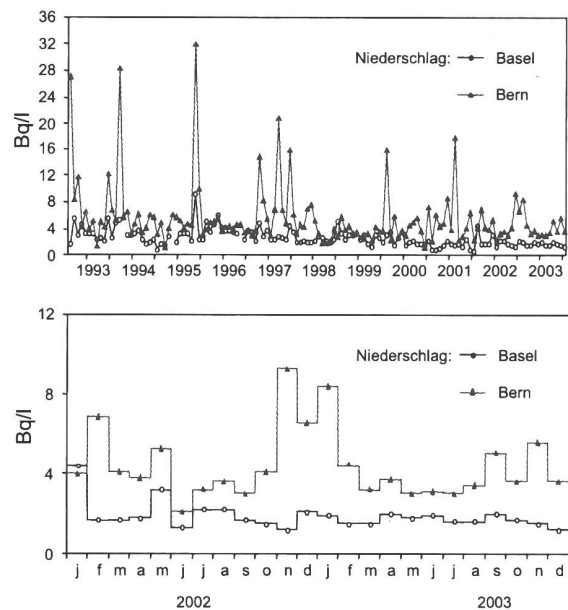
	Vaduz	Nyon	La Brévine	Locarno	Aare Brugg
Jan	0.9	1.1	1.1	0.4	2.0
Feb	0.9	0.9	2.5	k.N	2.4
Mar	1.4	1.5	1.4	k.N	19.2 $\pm$ 0.6
Apr	2.1	1.6	1.5	1.2	5.5
Mai	1.6	1.8	1.3	1.4	3.5
Jun	1.7	2.2	1.9	1.3	2.5
Jul	1.6	1.2	1.3	1.2	2.1
Aug	1.5	1.2	1.3	1.0	1.7
Sep	1.7	1.4	1.3	1.1	2.0
Okt	1.5	1.2	1.1	0.8	-
Nov	0.7	1.0	0.9	0.6	-
Dec	0.8	0.8	1.0	0.5	1.3

k.N = kein Niederschlag

**Tabelle 4**

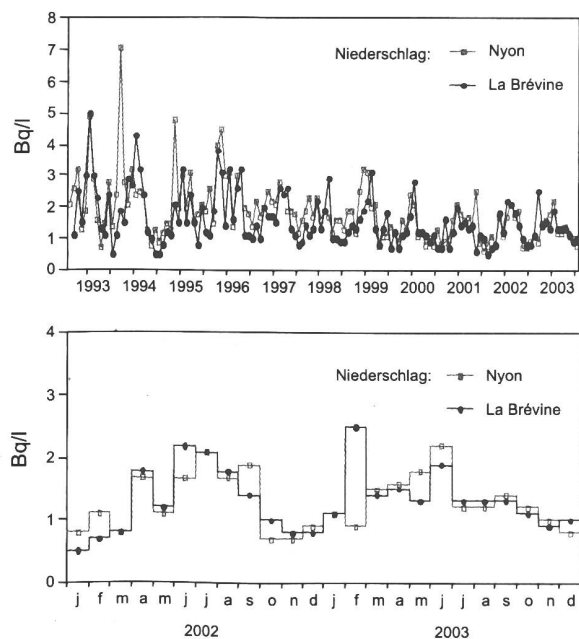
Vergleich der Jahresmittel der Tritium-Aktivität im Niederschlag an den BAG Stationen 2002 und 2003 (Bq/l)

Mittel	Basel	Bern	Grimsel
2003	1.7	3.9	1.3
2002	1.9	4.7	1.1
	Guttannen	Meiringen	Vaduz
2003	1.3	1.5	1.5
2002	1.2	1.3	1.5
	Nyon	La Brévine	Locarno
2003	1.3	1.3	0.9
2002	1.1	1.2	1.2
	Aare Brugg		
2003	4.2		
2002	2.2		



**Figur 14**

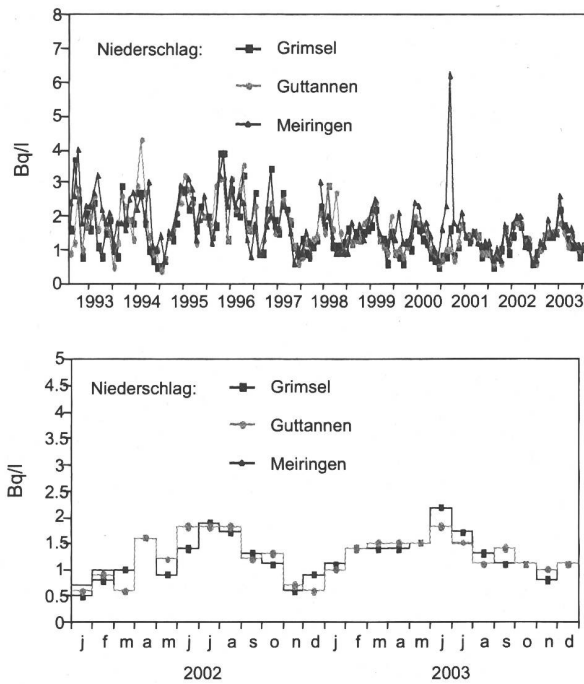
$^3\text{H}$ -Aktivität im Niederschlag Nordschweiz und Mittelland



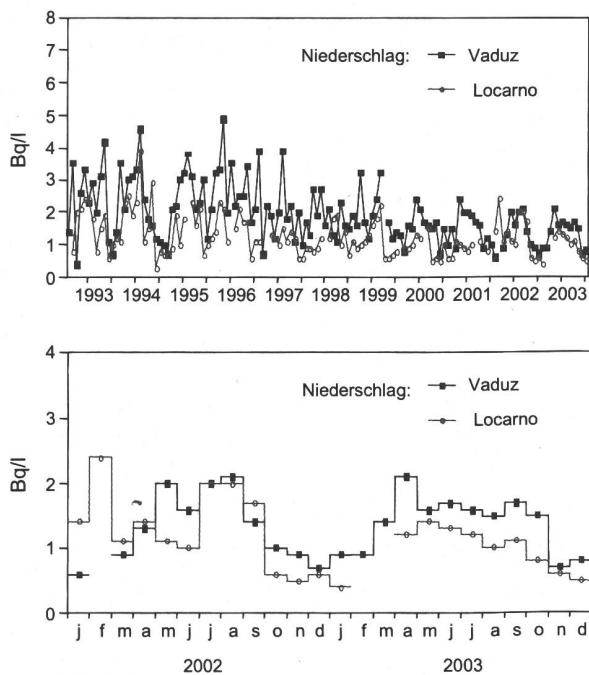
**Figur 15**

$^3\text{H}$ -Aktivität im Niederschlag Westschweiz

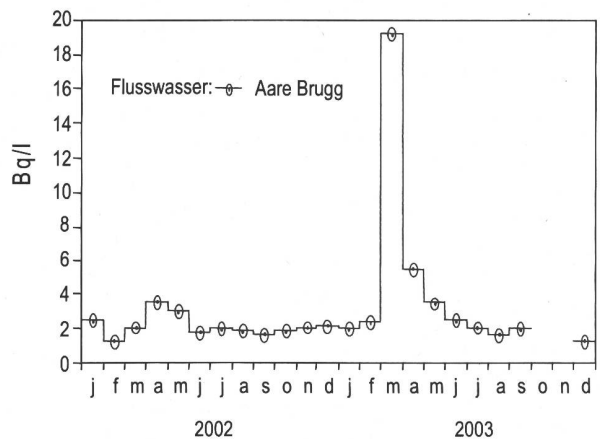
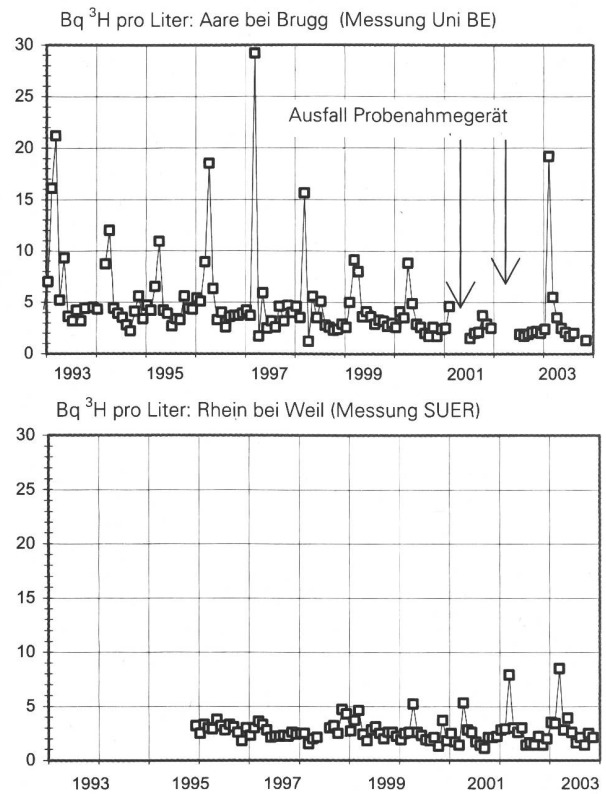




**Figur 16**  
 $^3\text{H}$ -Aktivität im Niederschlag Alpenraum (Berner Oberland)



**Figur 17**  
 $^3\text{H}$ -Aktivität im Niederschlag Südschweiz und Lichtenstein



**Figur 18**  
 $^3\text{H}$ -Aktivität im Flusswasser von Aare und Rhein

## Verdankungen

Wir bedanken uns für die Mithilfe bei der Probenahme bei den Mitarbeitern der NOVARTIS, der ROCHE, des Kantonalen Labors Basel und bei den Hauswarten auf Jungfrauoch. Viel geholfen haben uns die Diskussionen mit Prof. Fritz Schweingruber, WSL, Birmensdorf und mit Prof. Urs Feller, Uni Bern.



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

**K. Friedrich Bénet, P. Froidevaux, T. Schmittler, F. Barraud, J.F. Valley**

Institut de radiophysique appliquée, Grand Pré 1, 1007 LAUSANNE

### Résumé

Les activités en plutonium et en américium ont été mesurées dans le sol, les filtres à air, l'eau et les sédiments pour assurer une surveillance de la radioactivité de l'environnement en Suisse. L'activité du sol (0-5 cm) en  $^{239/240}\text{Pu}$  est comprise entre 0.1 et 4.0 Bq/kg de masse sèche (MS) et l'activité du  $^{238}\text{Pu}$  est environ 30 fois plus petite. Les analyses ont déterminé que l'activité en américium est comprise entre 0.09 et 1.3 Bq/kg de masse sèche et représente environ 0.4 fois l'activité en  $^{239/240}\text{Pu}$ . Ces rapports isotopiques ont clairement identifié la source de ces radioéléments en Suisse comme provenant des essais nucléaires entrepris dans les années soixante. Deux profils de sol (Marchairuz et Mollendruz) ont été analysés afin de décrire le transfert de plutonium et d'américium dans des sols calcaires du Jura. Dans ces sols non cultivés par l'agriculture, mais utilisés comme pâturage, l'activité en  $^{239/240}\text{Pu}$  et en  $^{241}\text{Am}$  décroît avec la profondeur analysée. Toutefois un de ces profils présente une homogénéisation de l'activité sur l'ensemble de la profondeur prélevée. Les sédiments collectés dans les lacs et rivières en aval des centrales nucléaires suisses montrent un rapport d'activité  $^{238}\text{Pu} / ^{239/240}\text{Pu}$  d'environ 0.037. Dans les eaux de rivières et de pluie, l'activité en plutonium la plus élevée mesurée était celle de la Venoge à Vufflens-la-Ville avec 54 mBq/m<sup>3</sup>. Les valeurs d'activité en  $^{239/240}\text{Pu}$  déterminées dans les filtres à air de Fribourg et du Weissfluhjoch sont respectivement de 1.5 et 18 nBq/m<sup>3</sup>. L'activité en  $^{241}\text{Am}$  dans les filtres à air du site du Weissfluhjoch montre une augmentation de l'activité depuis l'année 2000 jusqu'en 2002. En 2003 la valeur détectée a décliné de moitié mais reste supérieure à celle attendue. Les activités mesurées sont très faibles, mais montrent l'utilisation de l'américium au niveau industriel (détecteurs, système anti-électrostatique, etc.).

*Les rapports isotopiques déterminés indiquent encore l'impact des essais nucléaires dans l'environnement en Suisse.*

### 7.2.1 Introduction

Le plutonium, l'américium et d'autres actinides ont été distribués dans l'environnement suite aux tests nucléaires, au retraitement de combustible, au fonctionnement des réacteurs et aux accidents [1,2]. Le plutonium se retrouve dans l'eau douce et dans les océans [3, 4], dans les sédiments [5, 6], dans les particules d'aérosol, dans les carottes des glaces polaires et dans l'eau des nappes phréatiques [7]. L'importance de la surveillance du plutonium et de l'américium dans l'environnement se justifie par leur radiotoxicité et leur longue longévité dans les systèmes biologiques, ce qui incite les chercheurs à comprendre la chimie de base des actinides, à en déterminer les concentrations environnementales, leur spéciation et leur répartition ainsi que leur mécanisme de transport.

Environ six tonnes de plutonium ont été déposées depuis les années cinquante dans l'environnement par l'homme. Le radioélément américium est généré par la désintégration du  $^{241}\text{Pu}$  et a été également introduit d'une façon non uniforme dans l'environnement suite aux tests nucléaires, à l'utilisation civile de l'énergie nucléaire et aux différents accidents impliquant le nucléaire en général (Sellafield, Mayak, Palomares, Tchernobyl).

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 prélevés, le premier au col du Marchairuz (Jura vaudois, profondeur 40 cm), le second au col du Mollendruz (Jura vaudois, profondeur 20 cm).

**Tableau 1**

Caractéristiques physiques du plutonium et de l'américium

Isotope	Période [ans]	émission
$^{239}\text{Pu}$	24131	Particule $\alpha$
$^{240}\text{Pu}$	6569	Particule $\alpha$
$^{238}\text{Pu}$	87.8	Particule $\alpha$
$^{241}\text{Pu}$	14.35	Particule $\beta$
$^{241}\text{Am}$	482	Particule $\alpha$ et $\gamma$

## 7.2.2 Méthode

La méthode de séparation chimique utilisée en 2002 a été développée à partir de la méthode de EML 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 [8]. 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 [9].

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

### Plutonium et américium dans les sols

Selon le plan de prélèvement 2003, les échantillons de sols ont été analysés pour en déterminer l'activité en plutonium et en américium, exprimée en Bq/kg de matière sèche. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2.

**Tableau 2**

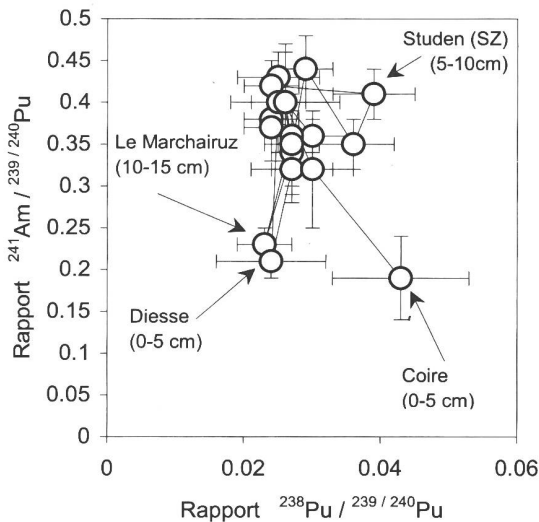
Plutonium et américium dans le sol en 2003 en Bq/kg mat. sèche (couche de 0-5 cm ou spécifiée)

Lieu	$^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
<b>Centrales nucléaires</b>				
Mühleberg (BE)	0.25±0.02	0.09±0.008	0.03±0.012	0.36±0.05
Gösgen (SO) 0-5 cm	0.37±0.03	0.116±0.009	0.032±0.012	0.31±0.06
Leibstadt (AG); 0-5 cm	0.205±0.02	0.065±0.008	0.03±0.012	0.31±0.06
Beznau (AG); 0-5 cm	0.23±0.02	0.082±0.008	0.029±0.012	0.35±0.06
<b>Sites en plaines:</b>				
Lindau (ZH)	0.17±0.01	0.066±0.008	0.026±0.008	0.4±0.06
Fahrni (BE)	0.51±0.02	0.16±0.024	0.03±0.006	0.32±0.07
Arenenberg (TG)	0.15±0.02	0.06±0.02	0.026±0.008	0.40±0.07
Coire (GR)	0.50±0.03	0.093±0.012	0.034±0.01	0.19±0.05
Grangeneuve (FR)	0.43±0.03	0.152±0.014	0.027±0.01	0.35±0.04
<b>Sites en altitude:</b>				
Diesse (BE)	0.84±0.07	0.17±0.02	0.024±0.008	0.21±0.02
Studen (SZ) 0-5 cm	1.07±0.05	0.38±0.02	0.036±0.006	0.35±0.03
Studen (SZ) 5-10 cm	0.97±0.04	0.39±0.03	0.039±0.006	0.41±0.03
Studen (SZ) 10-15 cm	1.12±0.05	0.47±0.02	0.024±0.004	0.42±0.03
Ochsenboden (SZ) 0-5 cm	0.93±0.04	0.34±0.02	0.03±0.006	0.36±0.02
Chalchboden (SZ) 0-5 cm	2.07±0.08	0.79±0.04	0.024±0.004	0.38±0.02
Studen (SZ) 0-5 cm Ort	1.52±0.08	0.65±0.02	0.025±0.006	0.43±0.03
Studen (SZ) 5-10 cm Ort	1.4±0.05	0.48±0.08	0.027±0.004	0.35±0.06
Studen (SZ) 10-15 cm Ort	0.82±0.03	0.36±0.03	0.029±0.004	0.44±0.04
Gimmelwald (BE)	0.68±0.04	0.25±0.02	0.024±0.004	0.37±0.04
Allmendhübel (BE)	1.65±0.06	0.66±0.03	0.025±0.004	0.4±0.06
Davos (GR)	n.m.	1.3±0.07	n.m.	n.m.
<b>Profils de sol:</b>				
Lieu	$^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	Rapport $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
Marchairuz (VD), 0-5 cm	4.0±0.0.2	1.44±0.06	0.027±0.004	0.36±0.01
Marchairuz (VD), 5-10 cm	2.3±0.15	n.m.	0.032±0.008	n.m.
Marchairuz (VD), 10-15 cm	2.0±0.09	0.46±0.03	0.023±0.004	0.23±0.02
Marchairuz (VD), 15-20 cm	0.21±0.01	0.071±0.008	0.027±0.001	0.34±0.04
Marchairuz (VD), 20-30 cm	0.092±0.008	0.034±0.009	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	0.373±0.1
Marchairuz (VD), 30-40 cm	0.04±0.006	n.m.	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	n.m.
Mollendruz (VD), 0-5 cm	0.91±0.04	n.m.	0.026±0.003	n.m.
Mollendruz (VD), 5-10 cm	0.59±0.03	0.19±0.02	0.027±0.006	0.32±0.04
Mollendruz (VD), 10-15 cm	0.65±0.03	n.m.	0.032±0.006	n.m.
Mollendruz (VD), 15-20 cm	0.69±0.03	n.m.	0.029±0.006	n.m.

$^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu} = 0.35±0.02$  (moyenne suisse, n = 25)

$^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu} = 0.028±0.009$  (moyenne suisse, n = 25)

Les intervalles d'incertitude sur les rapports sont reportés en  $2\sigma$ , pour un intervalle de 95%.



**Figure 1**

Analyse multi-variables des échantillons de sol mesurés pour les radioéléments  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239/240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$ , en 2003. Les barres d'incertitude sur les rapports sont reportées en  $2\sigma$ , pour un intervalle de confiance de 95%.

L'analyse multi-variable (Figure 1) montre que tous les échantillons sont centrés autour d'une valeur (0.34; 0.028). Ces données attribuent la contamination du sol suisse aux essais nucléaires réalisés dans les années soixante. Trois mesures (Diesse 0-5 cm, Coire 0-5 cm, Le Marchairuz 10-15 cm) ont donné des résultats légèrement différents de ceux attendus mais les autres mesures ont confirmé qu'une contamination n'était pas présente dans ces échantillons. Des mécanismes de migration différenciés peuvent être à l'origine de ces écarts. On constate qu'il est alors nécessaire de prélever l'ensemble du profil (profondeur jusqu'à 30-40 cm si possible) pour évaluer l'ensemble de la déposition.

En général on peut conclure que les sites en altitude ont été plus touchés par les dépositions radioactives que les sites en plaine. Cette situation de déposition des radionucléides est comparable aux valeurs moyennes déterminées pour l'Italie centrale:  $^{239/240}\text{Pu} = 0.72 \pm 0.46$  Bq/kg,  $^{238}\text{Pu} = 0.023 \pm 0.014$  Bq/kg et  $^{241}\text{Am} = 0.241 \pm 0.165$  Bq/kg [10]. La déposition trouvée dans cette région correspond aux sites suisses d'altitude. Les rapports isotopiques pour le sol suisse correspondent tout à fait aux rapports isotopiques

déterminés par Michel et al. [11] pour la région de Cumbria en Angleterre ( $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu} = 0.04$  et  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu} = 0.37$ ). Mais une réelle contamination a toutefois été déterminée dans la même région, en aval de la centrale nucléaire de Sellafield [12] où on trouve une contamination du sol mille fois plus élevée qu'en Suisse, avec un rapport  $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$  de 1.1 à 1.27.

### Plutonium et américium dans les sédiments et dans l'eau

Pour déterminer l'impact d'une centrale nucléaire sur l'environnement on analyse des sédiments de surface en aval de ces centrales.

Aucune contamination provenant de rejets des centrales n'a pu être détectée lors des mesures effectuées en 2003 sur ces sédiments (Tableau 3). Les activités déterminées sont plus faibles que les valeurs moyennes européennes qui sont autour de 0.5 Bq/kg pour le plutonium et l'américium dans les sédiments [13]. Le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$  moyen suisse des sédiments est de  $0.033 \pm 0.013$  et est très proche de celui déterminé pour les sols de Suisse. Cette valeur ne reflète aucune contamination due aux centrales nucléaires suisses, mais caractérise des contaminations dues aux tests nucléaires des années soixante.

Le plan de surveillance de la radioactivité prévoit aussi des contrôles des eaux de fleuve, de rivière et de pluie. Pour cette raison deux eaux de pluie (Fribourg et Mühleberg), deux eaux de fleuve (Genève; eau de Rhône et Pratteln; eau du Rhin) et deux eaux de rivière (Venoge à l'Isle et Venoge à Vufflens-la-Ville) ont été analysées.

L'activité dans les eaux de pluie est due à la ré-suspension de particules de sol sur lesquelles les actinides sont adsorbés. Dans l'eau des fleuves, l'activité représente des actinides adsorbés sur la partie sédimentaire en suspension ainsi que les actinides adsorbés sur les colloïdes organiques car l'eau n'est que grossièrement filtrée. Les activités en  $^{239/240}\text{Pu}$  des eaux de pluie sont proches de celles obtenues par Montero et al. [14] (2 à 20 mBq/m<sup>3</sup>) pour une région du sud-ouest de l'Espagne.

**Tableau 3**

Concentration en plutonium et en américium dans les sédiments et dans l'eau en 2003

Emplacement	Période de prélèvement	Activité des sédiments [Bq/kg]			
		$^{239/240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
<b>Aval de Mühleberg</b>					
Hagneck (sédiment)	01.01.03-31.12.03	0.17±0.01	0.031±0.014	0.064±0.011	0.38±0.14
Aval de Gösgen	01.01.03-31.12.03	0.26±0.02	0.035±0.012	0.093±0.009	0.35±0.04
Lac deKlingnau (sédiment)					
Aval de Leibstadt	01.01.03-31.12.03	0.21±0.02	0.018±0.008	n.m.	n.m.
Pratteln (sédiment)					
<b>Activité de l'eau [mBq/m<sup>3</sup>]</b>					
		$^{239/240}\text{Pu}$	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	Rapport $^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
Venoge à l'Isle	2003	16±2	$^{238}\text{Pu}$ <LD	5.5±2.0	0.35±0.1
Venoge à Vufflens-la-Ville	2003	54±10	$^{238}\text{Pu}$ <LD	16±6	0.3±0.1
Fribourg (eau de pluie)	2003	9±2	$^{238}\text{Pu}$ <LD	5±1	0.59±0.12
Genève (Chancy) (eau du Rhône)	2003	25±2	$^{238}\text{Pu}$ <LD	11±2	0.44±0.05
Mühleberg (eau de pluie)	2003	11±2	$^{238}\text{Pu}$ <LD	3±0.8	0.23±0.06
Pratteln (eau Rhin)	2003	8.7±0.8	$^{238}\text{Pu}$ <LD	5.1±0.9	0.59±0.15

### Plutonium et américium dans l'air

La resuspension de ces radioéléments dans l'air a été déterminée pour surveiller les activités en plutonium et américium. Les filtres à air ont été analysés pour deux sites en plaine (Mühleberg et Fribourg), pour un site en montagne (Weissfluhjoch) et pour des filtres à haut débit 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 les activités en  $^{239/240}\text{Pu}$  et en  $^{238}\text{Pu}$  sont très faibles, mais dépassent les limites de détection. Les valeurs de  $^{239/240}\text{Pu}$  sont en bon accord avec les valeurs mesurées ( $^{239/240}\text{Pu}$  = 0.53 à 8.1 nBq/m<sup>3</sup>) au sud de l'Allemagne par Rosner et Winkler [15].

**Tableau 4**

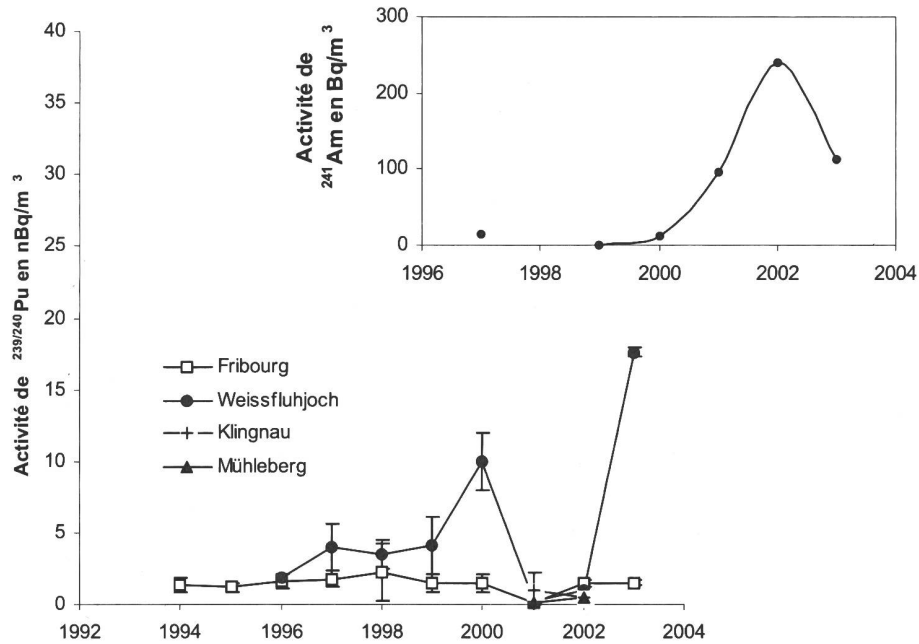
Concentration en plutonium et américium dans l'air

Emplacement	Activité [nBq/m <sup>3</sup> ]			
	$^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}$
Fribourg	1.5±0.3	2.4±0.3	$^{238}\text{Pu}$ <LD	1.5±0.3
Weissfluhjoch, 2002 octobre à décembre	3.1±1.0	54±6	$^{238}\text{Pu}$ <LD	17±6
Weissfluhjoch, 2002, filtres en fibre de verre	11±4	18±6	$^{238}\text{Pu}$ <LD	1.6±1.0
Weissfluhjoch, 2003 janvier à octobre 2003	18±3	113±8	$^{238}\text{Pu}$ <LD	6.4±1.0
Mühleberg	n.m. <sup>a)</sup>	0.45±0.06	$^{238}\text{Pu}$ <LD	n.m.

Pour Mühleberg et le filtre à air à haut débit de Klingnau nous n'avons pas pu donner un résultat parce que la source n'a pas pu être complètement décontaminée du polonium, ce qui empêche de déconvoluer proprement le spectre du plutonium.

Pour l'activité de l'américium du Weissfluhjoch, on constate une augmentation depuis l'année 2000 jusqu'en 2002 (Figure 2). Cette augmentation a probablement une origine industrielle (incinération des détecteurs de fumée). Les valeurs d'américium des filtres à air de la période de l'année 2003 montrent une diminution de moitié par rapport à l'année passée. Pour vérifier la non contamination

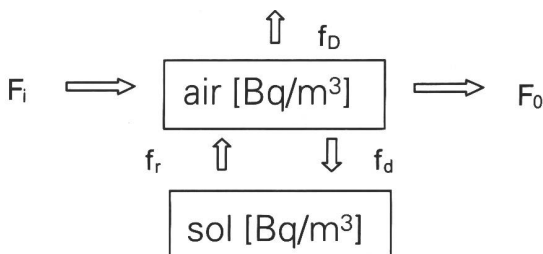
des filtres avant leur utilisation nous avons analysé les filtres non-exposés et nous n'avons détecté aucune contamination. Le site de prélèvement de Weissfluhjoch se situe à environ 30 km d'une station d'incinération de déchets et on soupçonne que cette station a peut-être incinéré des détecteurs de fumée.



**Figure 2**

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

La radioactivité mesurée sur les filtres à air provient essentiellement de la re-suspension. Ce mécanisme est responsable du transport des particules polluantes dans l'environnement. Ce processus est difficile à simuler car il dépend de nombreux paramètres. Ces paramètres sont spécifiques pour un endroit donné, parce que le régime des vents, leurs directions, leur intensité et leur fréquence, le type de sol, la taille des particules remises en suspension et leur vitesse de re-déposition sur le sol, l'activité surfacique de la déposition et l'âge de celle-ci dépendent du site géographique en question [16]. Pour construire un modèle de simulation on doit se baser sur un concept de balance de masse, représenté dans le schéma 1.



**Schéma 1**

Concept d'une balance de masse dans un compartiment du modèle de simulation de re-suspension.

L'activité  $F$  résultante tient compte de l'activité  $F_i$  qui entre dans un compartiment par unité de temps, l'activité  $F_o$  qui sort de ce compartiment, du flux de l'activité  $f_r$  remise en suspension, du flux de la déposition  $f_d$  et du flux d'activité  $f_d$  vers des couches supérieures de l'atmosphère. Un moyen simple d'estimer le facteur de la re-suspension est de calculer le rapport entre la concentration d'activité mesurée dans l'air,  $c_a$ , et la concentration d'activité dans le sol par unité de surface  $c_s$ :

$$RF_{\text{obs}} = [c_a]/[c_s]$$

Pour un type de sol correspondant à la Suisse, c'est-à-dire avec une forte couverture végétale et, souvent, une couche de neige protectrice, une valeur du facteur de re-suspension supérieur à  $5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^{-1}$  indique une contamination postérieure aux retombées des tests d'armes probable [16]. Une telle valeur peut également signifier l'introduction directe dans l'atmosphère du radioélément en question. Dans le Tableau 5 nous avons calculé ces facteurs pour les différents sites et périodes de prélèvement. Les valeurs obtenues correspondent aux valeurs déterminées pour une région au sud de l'Allemagne [15] (valeurs entre  $1.4 \times 10^{-10} \text{ m}^{-1}$  et  $1.0 \times 10^{-11} \text{ m}^{-1}$ ). Ces valeurs n'indiquent aucune contamination, à l'exception de l'américium pour le site du Weissfluhjoch.

**Tableau 5**  
Facteurs de re-suspension

Emplacement	facteur de resuspension $RF_{obs} [m^{-1}]$	
	$^{239/240}Pu$	$^{241}Am$
Fribourg	$5.0 \times 10^{-12}$	$1.6 \times 10^{-11}$
Weissfluhjoch, 2002 octobre à décembre	$1.03 \times 10^{-11}$	$3.6 \times 10^{-10}$
Weissfluhjoch, 2002, fibre de verre	$8.7 \times 10^{-11}$	$1.2 \times 10^{-10}$
Weissfluhjoch, 2003 janvier à octobre	$6.0 \times 10^{-11}$	$7.5 \times 10^{-10}$
Mühleberg	n.m.	$3.0 \times 10^{-12}$

D'autre part le facteur de re-suspension ( $RF_{obs} = 1.0 \times 10^{-9} m^{-1}$ ) pour l'américium de l'année passée (2002) au Weissfluhjoch indique clairement une contamination qui ne peut pas seulement résulter du phénomène de re-suspension de la déposition des essais nucléaires des années soixante. Ce fait implique qu'une autre source d'américium atmosphérique existe à proximité du site du Weissfluhjoch. L'évolution d'activité du  $^{241}Am$  dans l'air sera suivie très précautionneusement, afin de déterminer l'origine de cette augmentation intempestive en américium.

#### 7.2.4 Profils des sols

##### Profil d'activité au Marchairuz et au Mollendruz

Deux profils de sol dans le Jura vaudois (Marchairuz; 1385 m et Mollendruz; 1200 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 du Marchairuz a été mesuré jusqu'à une profondeur de 40 cm, celui du Mollendruz jusqu'à 20 cm. Les valeurs des dépositions surfaciques en  $^{239/240}Pu$  sont de  $401 \pm 22 Bq/m^2$  et de  $240 \pm 11 Bq/m^2$  et se calculent selon l'équation:

$$a_f = a_m \times \rho \times \Delta h$$

$a_f$  = activité surfacique en  $[Bq/m^2]$

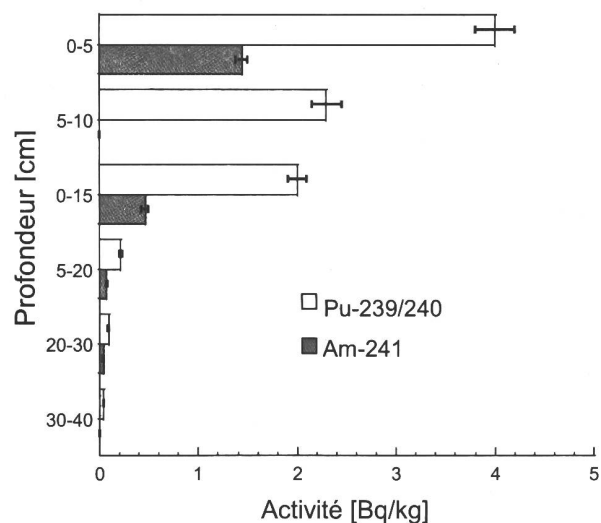
$a_m$  = activité massique en  $[Bq/kg]$

$\rho$  = masse volumique

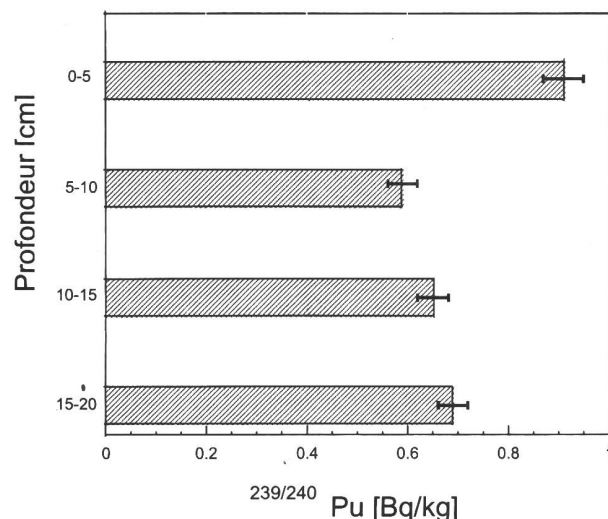
$\Delta h$  = épaisseur

Les sols du Jura montrent une déposition plus élevée en plutonium que les sites de plaine ou une valeur moyenne de  $75 Bq/m^2$  a été déterminée. A ce titre ils sont plus représentatifs d'une situation de montagne.

Les résultats des ces deux études sont présentés dans le Tableau 1 et dans les Figures 3 et 4.



**Figure 3**  
Profil de Marchairuz: activité en plutonium et en américium en fonction de la profondeur.



**Figure 4**  
Profil de Mollendruz: activité en plutonium en fonction de la profondeur.

Le site du Marchairuz présente une situation assez classique, avec une migration du plutonium en profondeur correspondant à un mécanisme de diffusion (Figure 3). La situation est très différente sur le site saturé du col du Mollendruz (Figure 4), où les activités du plutonium sont homogènes sur l'ensemble du profil. La présence d'argile à partir de 30 cm empêche un écoulement des eaux dans l'aquifère et sature le profil en eau pendant de longues périodes. Un recyclage des radioéléments dans le sol entre la surface et les premiers 30 cm est ainsi possible dû à la présence du vecteur « eau ». Le sol étant également fortement organique (type tourbière) des acides humiques présents dans la fraction liquide du sol peuvent également participer à la mobilisation des radioéléments, en particulier le plutonium.

### 7.2.5 Conclusions

Les mesures des activités en  $^{239/240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  ont été effectuées sur les échantillons présentés dans ce rapport. L'utilisation d'une analyse multi-variable permet de détecter une éventuelle contamination par une déposition postérieure aux retombées globales des essais d'armes atomiques. Toutes les valeurs obtenues en 2003 se groupent autour des valeurs moyennes suisses de:

- $r(^{238}\text{Pu}/^{239/240}\text{Pu}) = 0.031 \pm 0.007$
- $r(^{241}\text{Am}/^{239/240}\text{Pu}) = 0.37 \pm 0.04$

Les activités mesurées sont dues aux essais nucléaires des années soixante. L'analyse des filtres à air du Weissfluhjoch a permis de détecter une augmentation de  $^{241}\text{Am}$  depuis 2000 jusqu'en 2003, dont l'origine est pour le moment encore incertaine, mais probablement l'incinération de détecteurs d'incendie dans des matériaux de construction. Une étude plus approfondie est envisagée pour répondre à cette interrogation. L'analyse de deux profils de sol du Jura vaudois montre que le plutonium migre de manière différenciée dans le sol en fonction des propriétés physico-chimiques de celui-ci.

### Bibliographie

- [1] Taylor, D.M., 1995, Appl. Radiat. Isotopes 46, 1245
- [2] Pentreath, R.J., 1995, Appl. Radiat. Isotopes 46, 1279
- [3] Cornett, R.J., Eve, T., Docherty, A.E., Cooper, E.L., 1995, Appl. Radiat. Isotopes 46, 1239
- [4] Kershaw, P.J., Sampson, K.E., McCarthy, W., Scott, R.D.,
- [5] Buesseler, K.O., 1997, J. Environ. Radioact., 36, 69
- [6] Kershaw, P.J., Denoon, D.C., Woodhead, D.S., 1999, J. Environ. Radioact., 44, 191
- [7] Kersting, A.B., Efur, D.W., Finnegan, D.L., Rokop, D.J., Smith, D.K., Thompson, 1999, Nature, 56
- [8] Froidevaux, P., Geering, J.-J., Valley, J.-F., Plutonium and Americium in the Swiss Environment, Eichrom's users group meeting, Paris, 7th December 1998.
- [9] PROCORAD, Association for the Promotion of Quality Control of Analyses in Medical Radiobiology, Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Bureau du Conseiller Medical DRHRS/CM, 31-33 rue de la Fédération, 75752 Paris CEDEX 15 France.
- [10] Jia, G, Testa, C., Desideri, D, Guerra, F., Meli, M.A., Roselli, C., Belli, M.E., 1999, Health Physics, 77, 52-61.
- [11] Michel, H., Barci-Funel, G., Dalmasso, J., Ardisson, G., Appleby, P.G., Haworth, E., El-Daoushy, F., 2002, J. Environ. Radioact., 59, 127-137.
- [12] Coppelstone, D. Johnson, M.S., Jones, S.R., 2001, J. Environ. Radioact., 55, 93-108.
- [13] Warwick, P.E., Croudance, I.W., 2001, Oh, J.-S., Anal. Chem., 73, 3410-3416.
- [14] Montero, M.P., Sanchez, A.M., 2001, Appl. Radiation and Isotopes, 55, 97-102.
- [15] Rosner, G., Winkler, R., 2001, The Science of the Total Environment, 273, 11-25.
- [16] Garcia-Olivares, A., 1997, J. Environ. Radioact., 37, 101-114.