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: - (2009)

Rubrik: Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

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: 30.09.2025

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

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz

Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse

Ergebnisse 2009
Résultats 2009

7

Messung von Spezialnukliden

Mesures de nucléides spéciaux

7.1 Tritium, Kohlenstoff-14, Argon-37 und Krypton-85	**92**
Zusammenfassung	92
Kohlenstoff-14	92
Kernkraftwerk Leibstadt	94
Kernkraftwerk Gösgen	94
Kernkraftwerk Mühleberg	95
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau	95
Messungen in der Region Basel Stadt	96
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	98
Krypton-85 (^{85}Kr)	99
Argon-37 (^{37}Ar)	99
Tritium (^{3}H)	100
7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement	**103**
Résumé	103
Introduction	104
Méthode de séparation chimique	104
Résultats	105
Conclusions	108

7.1
Tritium, Kohlenstoff-14, Argon-37 und Krypton-85

Th. Stocker, H. Bürki, R. Fischer, M. Möll, R. Purtschert , R.Reber, U. Schotterer und T. Wagner
Abt. Klima und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

H. Sartorius, C. Schlosser und M. Konrad
Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

J. Eikenberg, R.Siegwolf
Paul Scherrer Institut, 5232 VILLIGEN-PSI

Zusammenfassung

Die Messungen des ^{14}C-Gehalts an Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Gösgen, Leibstadt, Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne, Thun und Zürich), des Paul-Scherrer-Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2009 weitergeführt. Aus ^{14}C-Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C-Quellen und -Verdünnungen wurde ein $\Delta^{14}C$-Referenzwert von 43 ± 3‰ bestimmt.

Die 77 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um höchstens 153‰ von diesem Referenzwert. Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von 0 bis 2 μSv (10^{-6} Sievert = 1 μSv). Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von 3'000 μSv/a fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr nicht ins Gewicht.

Die beiden Edelgas-Radionuklide ^{85}Kr und ^{37}Ar werden auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen in der Atmosphäre produziert. Anthropogenes ^{85}Kr konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren und den steigenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Demgegenüber ist die aktuelle Konzentration von ^{37}Ar praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

Die gewichteten Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen sind nur geringfügig erhöht. Sie betragen, je nach Standort, 0.8 - 3.7 Bq/l.

Kohlenstoff-14

Die ^{14}C-Messungen wurden an der Uni Bern durchgeführt, Ausnahmen sind erwähnt.

Referenzwert
Der ^{14}C-Gehalt von atmosphärischem CO_2 nimmt weiter ab, liegt aber gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbondatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

(1) $^{14}A_0 = (13.56 \pm 0.07)$ dpm/gC = (0.226 ± 0.001) Bq/gC

Der noch vorhandene Anteil an durch Nuklearwaffentests vor allem zwischen 1955 und 1966 produziertem $^{14}CO_2$ in der Atmosphäre wird durch die Verbrennung fossiler, d. h. ^{14}C-freier, Brennstoffe global noch nicht wettgemacht. Nur lokal manifestiert sich die als «Suess»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen $^{14}CO_2$.

Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem ^{14}C-Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen $^{14}CO_2$-Konzentration.

Radiocarbon-Quellen und -Verdünnungen (KKW, KVA, Industrie, Autobahnen) können den ^{14}C-Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich also als ^{14}C-Monitor. Die für diesen Bericht gemessenen ^{14}C-Werte werden mit dem Radiocarbonstandard $^{14}A_0$ verglichen:

(2) $\Delta^{14}C_{Probe} = (^{14}A_{Probe} / {}^{14}A_0 - 1) \times 1000$ [‰]

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ^{14}C-Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ^{14}C-Quellen oder –Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter gesammelt. Ihr ^{14}C-Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit $^{14}A_0$ verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden $\Delta^{14}C$-Werten wurde für das Jahr 2009 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis dienten die ausgewachsenen, im Juni, August und Oktober gepflückten Blätter.

(3) $\Delta^{14}C_{Ref,\ 2009} = 43 \pm 3$ [‰]

Die Differenz

(4) Netto $\Delta^{14}C = \Delta^{14}C_{Probe} - \Delta^{14}C_{Ref,\ 2009}$

weist auf ^{14}C-Quellen (Netto $\Delta^{14}C > 0$) oder –Verdünnungen (Netto $\Delta^{14}C < 0$) hin.

Aufbereitung von Laubproben für die ^{14}C-Messung
Es gelangen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

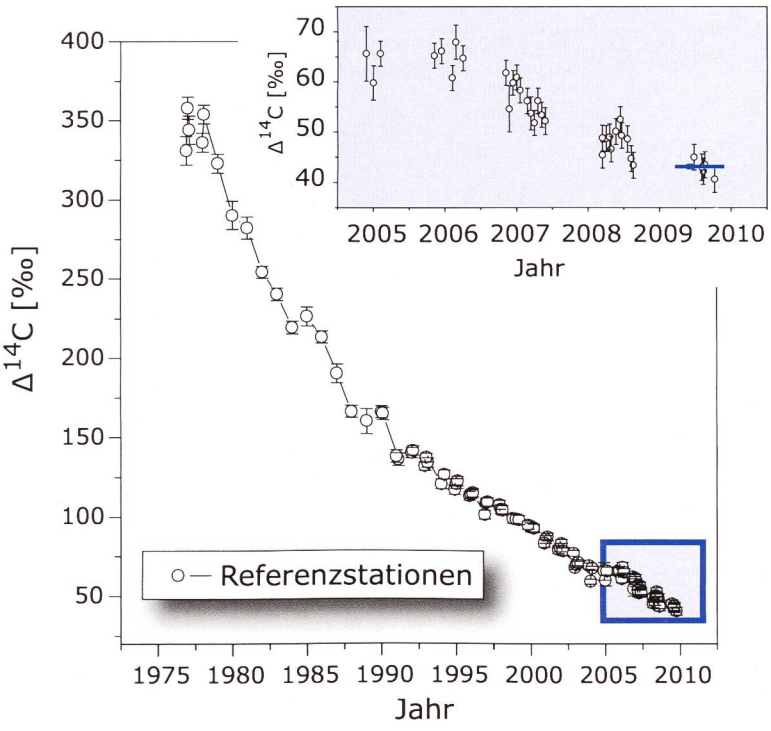
- **Methode A:** ^{14}C-Bestimmung nur in der Blattkohle [1]
- **Methode B:** ^{14}C-Bestimmung im ganzen Blatt

An der Referenzstation ergaben Messungen an der Blattkohle (Methode A) im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt (Methode B) Unterschiede von weniger als 4‰. An belasteten Standorten können die Unterschiede zwischen den Resultaten der nach den Methoden A und B aufbereiteten Proben jedoch grösser sein.

Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber den wahren ^{14}C-Gehalt der Blätter besser wiedergebende Methode B wird für Proben von Standorten verwendet, die bereits in den Vorjahren deutlich höhere Werte zeigten.

Tabelle 1:
Messwerte 2009 und Koordinaten der Referenzstationen

Ort	$\Delta^{14}C$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	-	43.0	-	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald
Belpberg I	45.0	42.2	40.6	606050 / 190800	825	Rotbuche auf Krete Ø 45cm
Ballenbühl	-	43.5	-	612550 / 192800	852	Linden freistehend

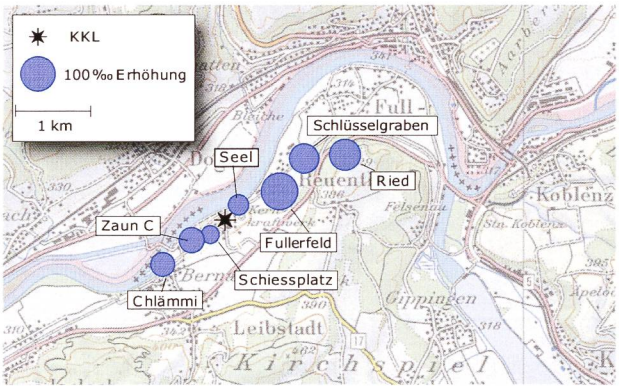


Figur 1:
$\Delta^{14}C$-Konzentrationen in Laubblättern von den Referenzstationen. Nach einem praktisch konstanten Level in den Jahren 2004 bis 2006 setzte sich der 2007 festgestellte Rückgang 2008 und 2009 fort.

[1] Die Probe wird im Stickstoffstrom pyrolisiert. Dabei verflüchtigen sich gewisse Kohlenstoffverbindungen, die somit für die Analyse ihres ^{14}C-Gehaltes verloren sind.

Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2009 wurden beim KKL Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste ^{14}C-Konzentration ergab sich in 500 - 1000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung bei den Birken vom Standort Fullerfeld und im Südwesten bei der Rotbuche an der Position Zaun C (Figur 2).



Figur 2:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL). Probennahme: 12.8.2009. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

In Tabelle 2 sind die im Jahr 2009 gemessenen Netto $\Delta^{14}C$-Werte aufgeführt. Alle Werte liegen deutlich unter den Höchstwerten früherer Jahre.

Tabelle 2:
Im Jahre 2009 gemessene Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern in der Umgebung des KKL im Vergleich mit früheren Jahren (1984-2008).

Ort	Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1984-2008 [‰]
Fullerfeld[2]	112	238 (2002)
Ried	82	128 (2002)
Seel	34	65 (2002)
Schlüsselgraben	73	127 (1999)
Chlämmi	48	100 (1995)
Schiessplatz	27	60 (2007)
Zaun C*	53	87 (2008)

*Messbeginn 2005

[2] Frühere Bezeichnung: «Meteostation»

Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 3 und Tabelle 3 sind die Resultate der am 12. August 2009 gewonnenen Blattproben dargestellt. Der höchste Messwert resultierte in nordöstlicher Richtung am Standort Sören (Netto $\Delta^{14}C$-Wert 39‰). Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert bei Chrummacher ist gegenüber dem Referenzwert nur um 4‰ erhöht, d. h. er weicht um weniger als 2σ vom Referenzwert (43 ± 3 ‰) ab.

Figur 3:
Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

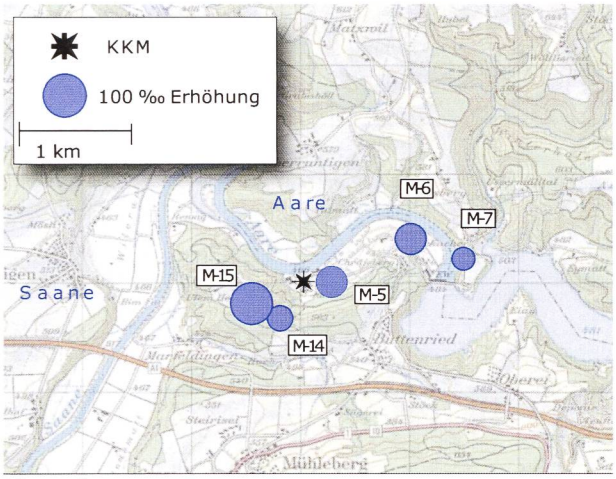
Tabelle 3:
Im Jahre 2009 gemessene Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern in der Umgebung des KKG im Vergleich mit früheren Jahren (1984-2008).

Ort	Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1984-2008 [‰]
Ei*	13	23 (2005)
Sören*	39	92 (1998)
Schachen*	16	84 (2005)
Aarfeld*	10	43 (1995)
Obergösgen*	23	24 (2005)
Gretzenbach*	4	20 (1995)
Chrummacher**	4	6 (2008)

*Messbeginn 2005 **Messbeginn 2004

Kernkraftwerk Mühleberg

Die in Figur 4 symbolisch dargestellte Verteilung der Messwerte um das KKM zeigt ein ähnliches Bild wie im Vorjahr. Die grösste Erhöhung findet sich wieder am Standort M-15 Ufem Horn (Netto $\Delta^{14}C$-Wert von 94‰). Mit Ausnahme des Standorts M-15 liegen alle Werte deutlich unter den seit Messbeginn im Jahre 1977 registrierten Höchstwerten.



Figur 4:
Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) für die Probennahme vom 5. August 2009. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

Tabelle 4:
Im Jahre 2009 gemessene Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern in der Umgebung des KKM im Vergleich mit früheren Jahren (1977- 2008).

Ort	Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1977-2008 [‰]
EW M-6	52	83 (1977)
Wickacker M-7	28	65 (1977)
Runtigenrain M-14	35	85 (1987)
Ufem Horn M-15	94	116 (1984)
Schiessplatz M-5	52	105 (2007)

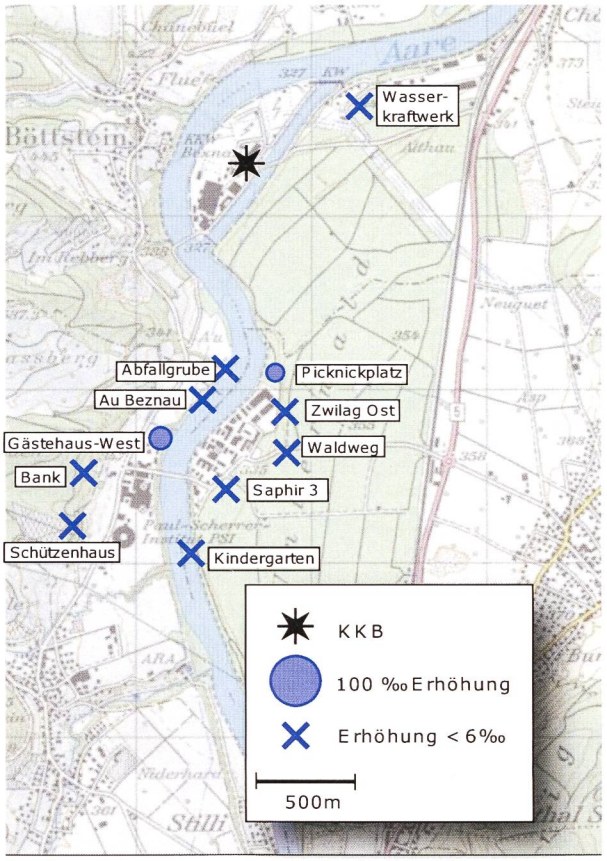
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau

Die ^{14}C- und $\delta^{13}C$-Messungen in den Blattproben wurden am PSI durchgeführt. Die Messunsicherheit für die $\Delta^{14}C$-Werte beträgt 6 bis 7‰. In der Umgebung des PSI wurden nur vereinzelt erhöhte $\Delta^{14}C$-Werte gemessen (bis maximal 19‰). Es ergibt sich dasselbe Bild wie in den letzten 5 bis 10 Jahren.

Tabelle 5:
Im Jahre 2009 gemessene Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern in der Umgebung des PSI/ZWILAG im Vergleich mit früheren Jahren (1984-2008).

Ort	Frühere Bezeichnung	Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1984-2008 [‰]
Abfallgrube*	-	7	32 (2000)
Au Beznau	-	3	118 (1984)
Bank*	-	-9	56 (2000)
Gästehaus-West*	SIN Nord	19	37 (2000)
Kindergarten	EIR Süd	6	49 (1984)
Picknickplatz*	-	12	38 (1998)
Saphir (Reaktorstr.)	Saphir 3	0	1023 (1986)
Schützenhaus*	SIN West	0	34 (1998)
Waldweg**	-	1	25 (2000)
Wasserkraftwerk	-	-1	46 (1986)
Zwilag Ost	EIR Ost	5	51 (1989)

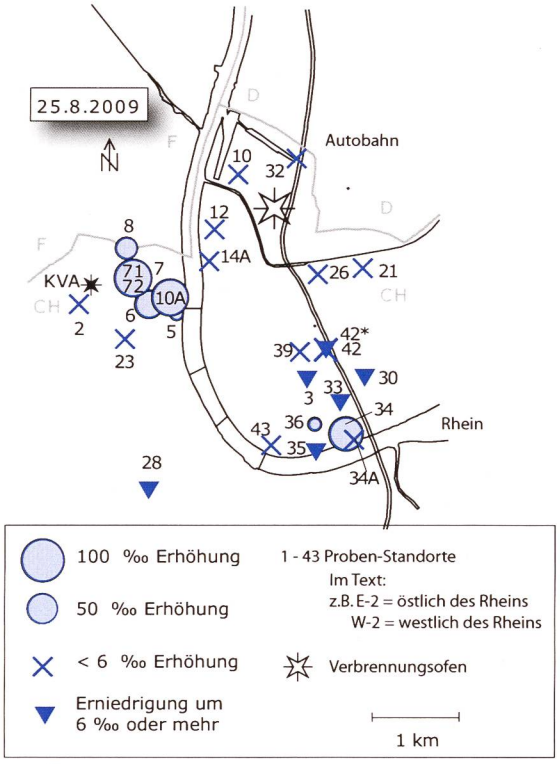
*Messbeginn 1997 **Messbeginn 1999



Figur 5:
Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Paul-Scherrer-Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahre 2009 (Jost Eikenberg, R. Siegwolf, PSI). Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

Messungen in der Region Basel Stadt

Wie bereits im Vorjahr fand die Hauptprobennahme 2009 in Basel im August statt. Im Westen finden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten um das Areal der Firma Roche. Die höchsten Werte wurden im Oktober gemessen, und zwar bei W-10A mit +153‰ und bei E-34 mit +76‰. Die Werte an den Standorten W-07, W-71 und W-72 sind gegenüber dem Vorjahr deutlich abgesunken.

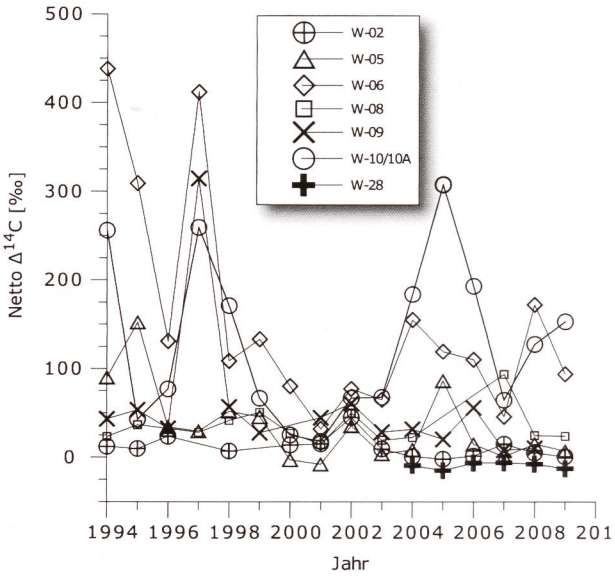


Figur 6:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

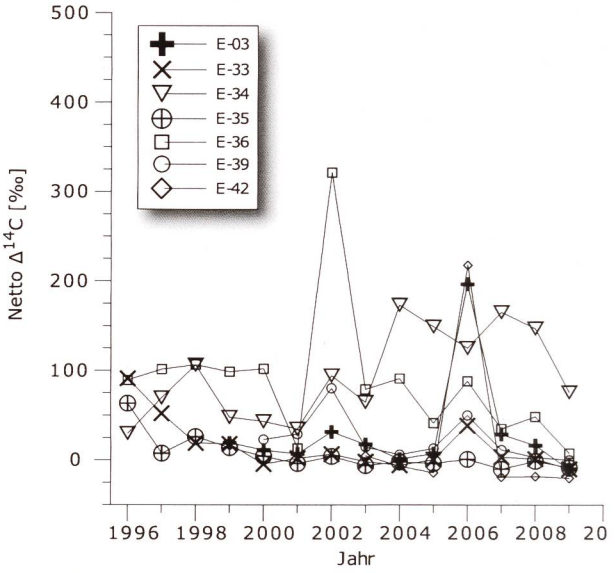
Für das am 14.10.2009 an den Standorten E-34, W-06 und W-10A gepflückte Laub wurden die ^{14}C-Messungen sowohl an der Blattkohle als auch am ganzen Blatt durchgeführt (in den Tabellen 6 und 7 blau hinterlegt). Bei allen Wertepaaren sind die Resultate der ^{14}C-Messungen am ganzen Blatt höher als diejenigen an der Blattkohle. Es ist daher sinnvoll, überall dort, wo erhöhte Messwerte zu erwarten sind, die zeitaufwändigere Messung am ganzen Blatt durchzuführen.

Alle 2009 gemessenen Erhöhungen fallen im Vergleich zu der um einen Faktor 1'000 grösseren natürlichen Strahlenbelastung nicht ins Gewicht.

In den Figuren 7+8 werden Zeitreihen ausgewählter Standorte abgebildet. Hier erkennt man Jahre mit erhöhten Messwerten. Schwankungen in diesem Bereich sind jedoch unbedeutend.



Figur 7:
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}C$-Werte eingetragen.



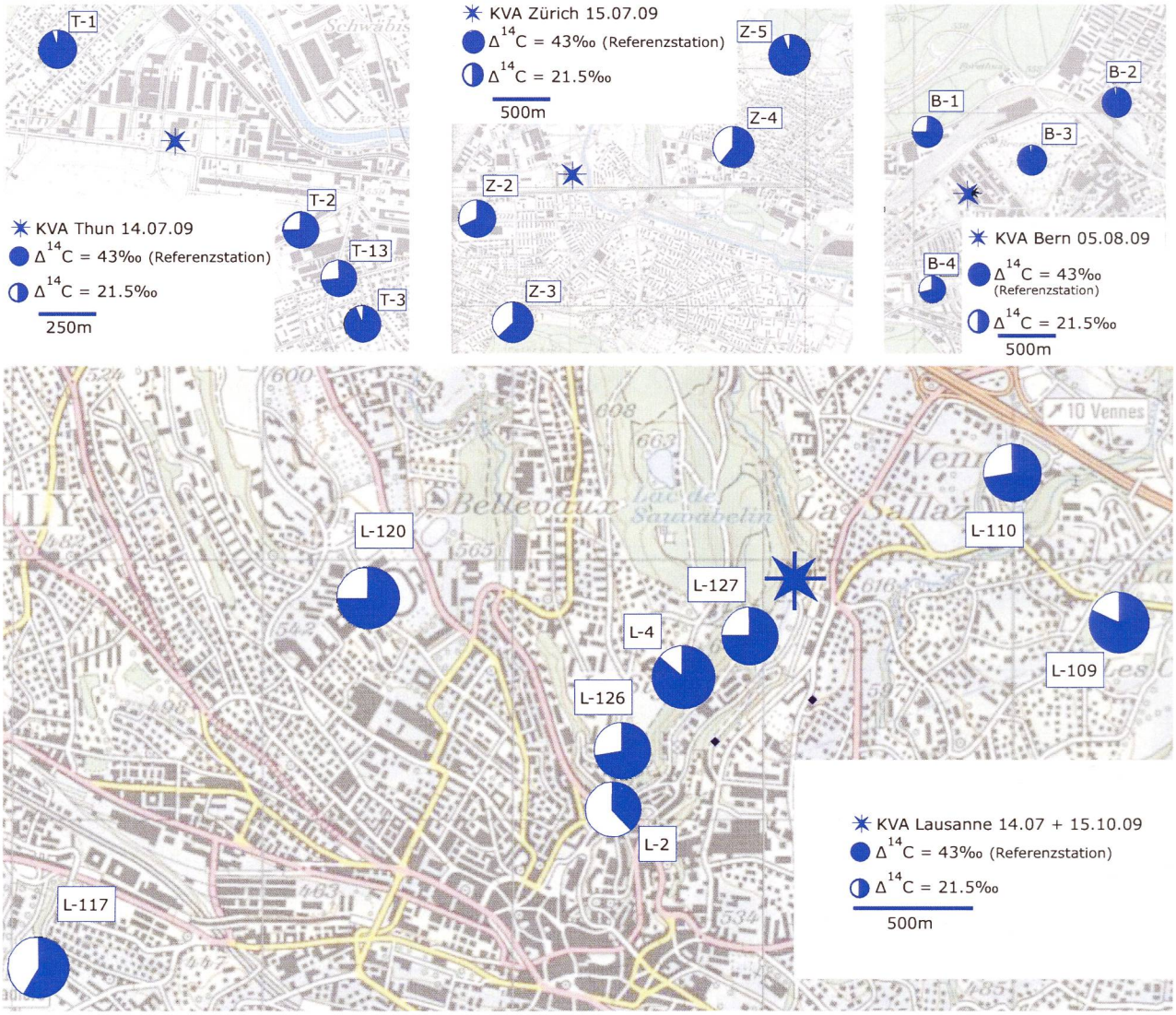
Figur 8:
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}C$-Werte eingetragen.

Tabelle 6:
Im Jahre 2009 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2008) am Standort Basel östlich des Rheins. Hellblau hinterlegt ist der Standort mit Resultaten aus der Blattkohle und dem ganzen Blatt. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42, Hofseite) gemessen.*

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1994 - 2008 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2005 - 2008 [‰]
E-03	-	197 (2006)	-11	23 (2007)
E-10	-1	251 (1997)	-	-
E-12	0	43 (1997)	-	-
E-14A	-3	66 (1997)	-	-
E-21	2	11 (2007)	-	-
E-26	-1	169 (1996)	-	-
E-32	6	-	-	-
E-33	-10	38 (2006)		
E-34	38	173 (1996)	76	165 (2007)
E-34A	9	30 (1998)	-	-
E-35	-9	63 (2006)	-	-
E-36	7	106 (2003)	-	88 (2006)
E-39	0	50 (2006)	-	-
E-42	-20	4 (2003)	-	
E-42*	-5	218 (2006)	-	
E-43	5	74 (2002)		

Tabelle 7:
Im Jahre 2009 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2008) am Standort Basel westlich des Rheins. Hellblau hinterlegt sind die Standorte mit Resultaten aus der Blattkohle und dem ganzen Blatt.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1994 - 2008 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2005 - 2008 [‰]
W-02	-	45 (2002)	1	-
W-05	7	152 (1995)	-	-
W-06	70	438 (1994)	94	172 (2008)
W-07	-	89 (2000)	13	253 (2008)
W-71	-	227 (2008)	75	-
W-72	-	107 (2008)	72	-
W-08	-	94 (2007)	24	-
W-10A	140	259 (1997)	153	308 (2005)
W-23	0	14 (2000)	-	-
W-28	-13	-6 (2007)	-	-



Figur 9:
$\Delta^{14}C$-Messungen in der Umgebung der KVA Bern, Lausanne,Thun und Zürich.

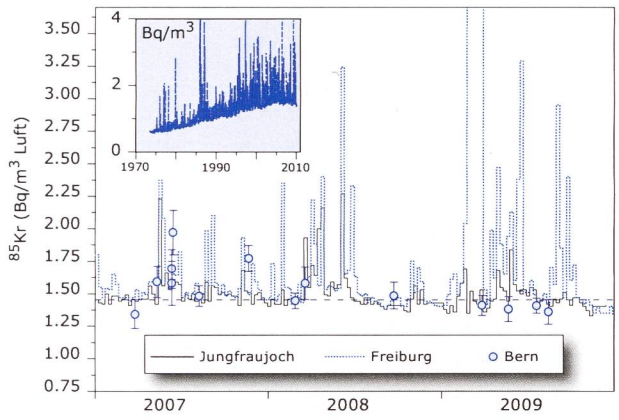
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

In den Emissionen der geprüften Kehrichtverbrennungsanlagen wurden keine erhöhten ^{14}C-Werte gemessen. Es wurden also in keiner der Anlagen im Laub nachweisbare Mengen von ^{14}C verbrannt.

In Lausanne wurde ca. 0.8 km nord-nordöstlich der mittlerweile stillgelegten KVA eine neue Anlage in Betrieb genommen. Im Oktober 2009 wurden erstmals neue Standorte in den Hauptwindrichtungen (Nordost/Südwest) der neuen KVA beprobt. Diese in Absprache mit dem Betriebsleiter der neuen KVA gewählten Standorte ermöglichen eine optimierte Beprobung im Vergleich zu den bisherigen Standorten. Es wurde ausschliesslich Laub von Eichen untersucht, die von der KVA Lausanne bereits für die Erkennung von Schwermetallen beprobt werden. Zu bemerken ist die Tatsache, dass trotz dem neuen Standort der KVA Lausanne bei L-2 weiterhin die geringste ^{14}C-Konzentration gemessen wurde. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Luftzusammensetzung lokal vor allem durch die Abgase fossiler Brenn- und Treibstoffe beeinflusst wird.

Krypton-85 (^{85}Kr)

^{85}Kr wird überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt. Die zunehmenden Emissionsraten über die letzten drei Jahrzehnte führten zu einem Anstieg der Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr in der Atmosphäre auf bis zu 1.45 Bq/m^3 Luft in Mitteleuropa (Figur 10, kleines Bild und gestrichelte Linie in Figur 10). Seit etwa 2003 reduzierte sich die Zuwachsrate und im Jahr 2009 nahmen die Werte erstmals wieder leicht ab. Das bedeutet, dass die globalen Aufarbeitungsraten erstmals seit langer Zeit wieder abnehmen (zumindest in der Nordhemisphäre). Der Vergleich der Wochenwerte der Messstationen Freiburg i. Br. und auf dem Jungfraujoch über die letzten 3 Jahre ergibt praktisch identische Basiswerte für beide Stationen (Figur 10). Die Aktivitätsmaxima von Abluftfahnen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (E) und La Hague (F) sind bei der Forschungsstation Jungfraujoch jedoch weniger häufig und auch weniger ausgeprägt. Dies ist auf die erhöhte Lage des Jochs zurückzuführen, die vor allem in den Wintermonaten über der planetaren Grenzschicht liegt und somit von bodennahen Emissionen weniger beeinflusst wird.



Figur 10:
Atmosphärische ^{85}Kr Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3500 m.ü.M.) , Freiburg i. Br. (276 m.ü.M.) sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Uni Bern) über die letzten drei Jahre. Kleines Bild: Aktivitätsverlauf bei der Station Freiburg i. Br. über die letzten 37 Jahre. Die Messungen der Proben aus Freiburg und vom Jungfraujoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg i. Br. durchgeführt.

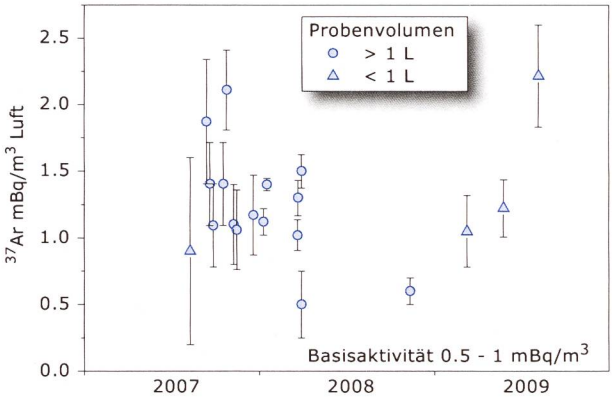
Auch am Physikalischen Institut der Universität Bern werden Stichprobenmessungen der ^{85}Kr Aktivitätskonzentration durchgeführt (20 L Luft, die innert Minuten gesammelt werden; Figur 10). Diese Werte stimmen innerhalb der Messfehler gut mit jenen vom Jungfraujoch und Freiburg i. Br. überein, welche am Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in Freiburg gemessen wurden.

Die Kryptonaktivität macht zwar den grössten Anteil der künstlichen Radioaktivität in der Atmosphäre aus. Die Strahlendosis ist mit 10^{-2} µSv/a per Bq/m^3 aber vernachlässigbar klein im Vergleich zur derjenigen von Radonfolgeprodukten.

Argon-37 (^{37}Ar)

Die periodische Überwachung der ^{37}Ar Aktivität in der Atmosphäre durch die Universität Bern wurde auch im Jahr 2009 fortgeführt (Figur 11). Argon-37 wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion ^{40}Ar(n, 4n)^{37}Ar produziert. Die Neutronen stammen dabei von der kosmischen Strahlung. Künstlich produziertes ^{37}Ar in messbaren atmosphärischen Konzentrationen bedarf hoher Neutronenflüsse, wie sie nur bei nuklearen Testexplosionen auftreten. Insbesondere bei unterirdischen Tests werden grosse Mengen ^{37}Ar durch die ^{40}Ca (n, α) ^{37}Ar Reaktion erzeugt. Bei unvollständiger Versiegelung der Testkaverne könnte das Gas an die Erdoberfläche und schliesslich in die Atmosphäre gelangen.

In den letzten drei Jahren gemessene Luftproben aus der Station Bern entsprechen der natürlichen Hintergrundaktivität von ca 0.5 - 2 mBq/m^3 Luft. Dies ist nochmals 3 Größenordnungen weniger als die ^{85}Kr Aktivität. Diese sehr geringe Hintergrundaktivität, bedingt durch die kurze Halbwertszeit von 35 Tagen und die kleine Produktionsrate, macht ^{37}Ar bei Vor-Ort-Inspektionen zu einem sensitiven Werkzeug zur Überwachung des Vertrags über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Kernwaffenteststopvertrag, CTBT).



Figur 11:
^{37}Ar Aktivität in Troposphärenluft von Bern.

Tritium (^3H)

Die Tritiumkonzentration in den Niederschlägen über dem Alpenraum setzt sich aus mehreren Komponenten zusammen und zwar aus der natürlichen Tritiumproduktion über die kosmische Strahlung, dem Rest aus der Kernwaffenproduktion (zwischen 1950 und 1970) der noch in der Stratosphäre verblieben ist und dem Industrietritium.

Die natürliche Tritiumproduktion hat im Jahresmittel einen Anteil von etwa 0.5 Bq/l und hängt von der Entfernung zum Ozean ab, der das Tritium aus den Niederschlägen aufnimmt und stark verdünnt. Das Oberflächenwasser der Ozeane hat eine Konzentration von etwa 0.2 Bq/l.

Der Rest aus der Kernwaffenproduktion, der noch in der Stratosphäre verblieben ist, gelangt im Frühsommer in die Troposphäre und wird dort von der Luftfeuchtigkeit der Ozeane laufend verdünnt und ausgeregnet. Typisch dafür ist ein ausgeprägter Jahresgang der Konzentration mit einem Maximum im Sommer und einem Minimum im Winter.

Das Industrietritium schliesslich hat verschiedene Quellen. Ausserhalb der Schweiz wird es über die Wiederaufbereitung von Kernbrennstoffen erzeugt. In der Schweiz selbst gelangt neben Abgaben aus AKWs der grösste Teil über die Leuchtfarbenproduktion, über Abfälle aus medizinischen Anwendungen und deren Entsorgung in Kehrichtverbrennungsanlagen in die Atmosphäre und damit in den Niederschlag. Alle diese Abgaben sind sehr unregelmässig, haben keinen Jahresgang und lassen sich daher oft in der saisonalen Tritiumverteilung nachweisen. Dieser Einfluss von Industrietritium ist lokal beschränkt. Da die Niederschläge in der Schweiz im Monatsmittel sehr unterschiedlich verteilt sind, kann man nur qualitative Rückschlüsse ziehen. Da die Standorte dieser Abgaben eine weitgehend konstante Verteilung aufweisen, ergibt sich aus dem BAG/ISOT Messnetz auch eine regionale Verteilung der Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen (Tabellen 8 und 9).

Ein von Industrietritium weitgehend ungestörter Jahresgang lässt sich vor allem in Locarno beobachten (Figur 13), dessen Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen wegen der Nähe zum Mittelmeer die tiefsten der ganzen Schweiz sind. Sie lagen in den letzten beiden Jahren unter 1 Bq/l. Ein Einfluss von Industrietritium aus dem Raum Mailand lässt sich vom Jahresgang her kaum beobachten.

Die Westschweiz mit Sion, Nyon und La Brévine (Figur 12 und Tabelle 9) kommt diesen tiefen Konzentrationen nahe. Da die Entfernung zum Atlantik grösser ist, erhöht sich auch der Einfluss kontinentaler Luftmassen. Damit wird die Möglichkeit der Beimischung von Industrietritium zum Niederschlag grösser. Einzelne Erhöhungen der monatlichen Tritiumkonzentrationen, die atypisch für die jahreszeitliche Verteilung sind, lassen sich immer wieder nachweisen.

Der Raum Bern wird von den Abgaben aus Niederwangen so stark geprägt, dass der natürliche Jahresgang des Tritiums völlig überdeckt ist (Figur 15). Einzelne Kontaminationsfahnen können das ganze Berner Oberland erreichen, der Nachweis hängt allerdings wie erwähnt von der lokalen Niederschlagsverteilung ab (Figur 14).

Ähnliches gilt für den Raum Basel (Figur 15). Generell werden in der Nordschweiz etwas höhere Werte gemessen als in den übrigen Regionen. Die Niederschläge in Vaduz haben vermehrt Einfluss aus dem Süden und damit auch tiefere Tritiumkonzentrationen (Figur 13).

Bezogen auf das Vorjahr waren die mit dem Niederschlag gewichteten Mittelwerte an den meisten Stationen wohl geringfügig höher (Tabelle 8). Solch minime Änderungen sind wahrscheinlich auf die Niederschlagsverteilung zurückzuführen. Das Beispiel Bern mag dies illustrieren: die gewichteten Jahresmittel für 2008 und 2009 sind praktisch gleich, da die Konzentrationserhöhungen im Oktober und November 2009 durch tiefere Werte im Dezember verbunden mit stark erhöhten Niederschlagssummen kompensiert wurden.

Ähnliches muss auch für die Messungen der Tritiumkonzentrationen der Aare bei Brugg gesagt werden (Figur 16). Da hier keine Abflussmessungen zur Verfügung stehen, können nur die Konzentrationsverläufe verglichen werden, nicht aber die abgegebene Aktivität. Der Konzentrationsverlauf ist in den letzten beiden Jahren sowohl im Jahresgang wie auch in den Konzentratiosspitzen vergleichbar.

Tabelle 8:
Gewichtete Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen im Niederschlag für die Jahre 2008 und 2009.

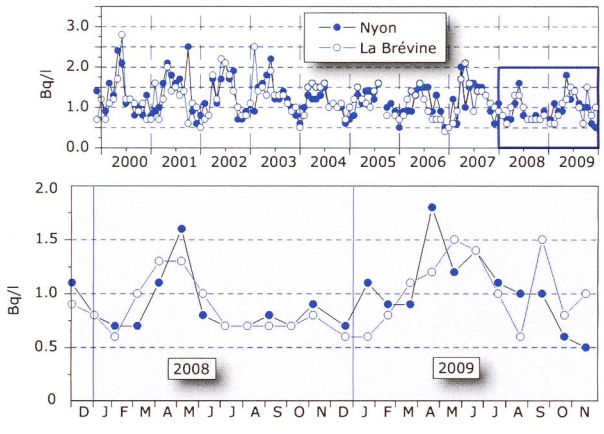
	Basel	Bern	Vaduz*	Meiringen	Guttannen
			(Bq/l)		
Mittel 2009	1.60	3.90	1.20	1.20	1.10
Mittel 2008	1.20	3.69	0.96	1.07	1.06
	Grimsel	**La Brévine***	**Nyon***	**Locarno**	**Aare Brugg**
			(Bq/l)		
Mittel 2009	1.20	1.00	1.00	0.80	3.00
Mittel 2008	1.05	0.91	1.00	0.71	3.04

Tabelle 9:
Tritiumkonzentrationen im Niederschlag; Monatsmittelwerte für 2009 [Bq/l].

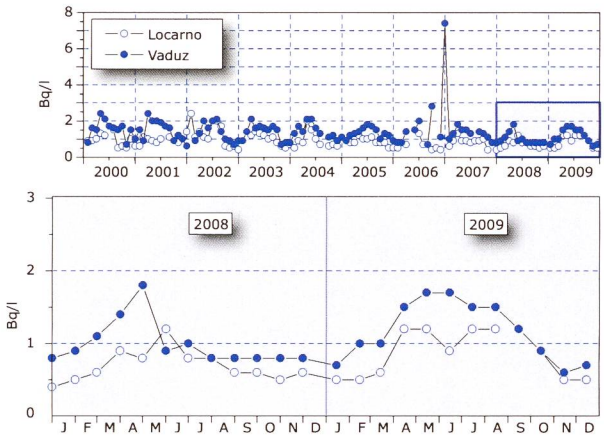
	Basel		Bern		Grimsel		Guttannen		Meiringen		Locarno	
JAN	2.22	± 0.11	8.72	± 0.19	0.76	± 0.07	0.64	± 0.07	0.76	± 0.07	0.52	± 0.07
FEB	1.55	± 0.10	3.06	± 0.12	0.88	± 0.07	1.04	± 0.08	1.43	± 0.09	0.49	± 0.07
MAR	1.64	± 0.08	4.11	± 0.13	1.23	± 0.08	1.11	± 0.07	1.01	± 0.07	0.61	± 0.07
APR	1.96	± 0.10	2.26	± 0.13	1.24	± 0.08	1.17	± 0.08	1.33	± 0.07	1.23	± 0.07
MAI	1.99	± 0.09	3.01	± 0.09	1.60	± 0.07	1.67	± 0.08	1.63	± 0.08	1.16	± 0.07
JUN	1.70	± 0.08	2.35	± 0.10	1.29	± 0.06	1.29	± 0.06	1.38	± 0.06	0.86	± 0.07
JUL	2.48	± 0.09	2.26	± 0.08	1.15	± 0.07	1.30	± 0.07	1.20	± 0.06	1.20	± 0.07
AUG	1.19	± 0.07	2.23	± 0.09	2.16	± 0.07	1.27	± 0.07	1.39	± 0.07	1.21	± 0.06
SEP	1.24	± 0.07	1.69	± 0.08	1.16	± 0.07	1.02	± 0.07	1.08	± 0.06	keine Probe	
OKT	1.15	± 0.07	6.80	± 0.16	1.00	± 0.06	0.95	± 0.06	1.02	± 0.06	0.86	± 0.07
NOV	0.93	± 0.08	7.77	± 0.08	0.84	± 0.07	0.71	± 0.07	0.99	± 0.08	0.47	± 0.07
DEZ	1.45	± 0.07	2.67	± 0.19	0.57	± 0.07	1.14	± 0.08	0.60	± 0.06	0.48	± 0.07

	Vaduz*		Nyon*		La Brévine*		St. Gallen*		Sion*		Aare Brugg	
JAN	0.68	± 0.07	0.65	± 0.07	0.59	± 0.07	1.00	± 0.07	0.88	± 0.07	1.07	± 0.28
FEB	0.98	± 0.07	1.11	± 0.07	0.57	± 0.08	0.97	± 0.08	0.70	± 0.07	1.32	± 0.28
MAR	0.98	± 0.07	0.89	± 0.07	0.84	± 0.07	1.14	± 0.07	0.97	± 0.07	1.72	± 0.28
APR	1.46	± 0.08	0.92	± 0.07	1.10	± 0.07	1.54	± 0.08	keine Probe		13.7	± 0.48
MAI	1.68	± 0.08	1.81	± 0.08	1.16	± 0.07	1.60	± 0.07	1.06	± 0.07	4.27	± 0.32
JUN	1.66	± 0.09	1.24	± 0.08	1.46	± 0.07	1.35	± 0.08	1.28	± 0.08	5.89	± 0.35
JUL	1.48	± 0.09	1.35	± 0.08	1.36	± 0.08	1.09	± 0.07	1.27	± 0.08	1.19	± 0.28
AUG	1.46	± 0.09	1.13	± 0.07	1.02	± 0.07	1.50	± 0.08	1.38	± 0.08	0.85	± 0.28
SEP	1.20	± 0.08	0.96	± 0.07	0.62	± 0.06	1.09	± 0.08	keine Probe		1.11	± 0.28
OKT	0.95	± 0.07	0.96	± 0.08	1.49	± 0.08	1.09	± 0.07	0.96	± 0.07	1.61	± 0.27
NOV	0.60	± 0.07	0.61	± 0.07	0.78	± 0.07	0.76	± 0.08	0.45	± 0.07	2.19	± 0.27
DEZ	0.70	± 0.07	0.50	± 0.07	1.02	± 0.07	0.90	± 0.07	0.49	± 0.07	1.65	± 0.27

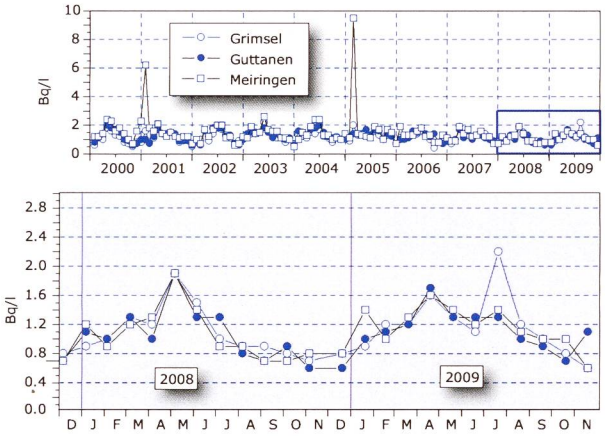
* ISOT - Stationen (nationales Netz zur Beobachtung der Isotope im Wasserkreislauf)



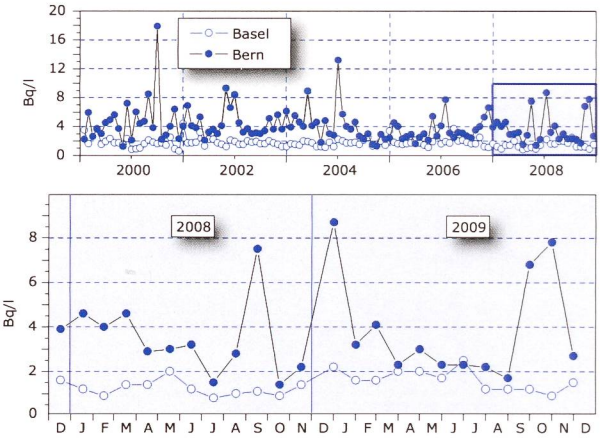
Figur 12:
Tritiumkonzentrationen in der Westschweiz im zehnjährigen Verlauf und im Vergleich 2008 und 2009. Die Erhöhungen im Mai 2009 (Nyon) und Oktober 2009 (La Brévine) könnten von Industrietritium beeinflusst sein.



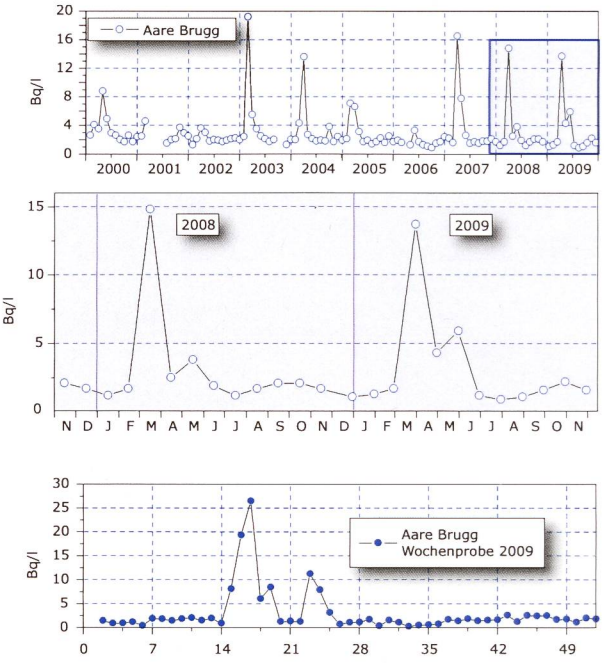
Figur 13:
Tritiumkonzentrationen in der Südschweiz und im Fürstentum Liechtenstein im zehnjährigen Verlauf und im Vergleich 2008 und 2009. Der regionale Unterschied ist deutlich zu sehen.



Figur 14:
Tritiumkonzentrationen im Berner Oberland im Verlauf der letzten 10 Jahre und im Vergleich der beiden letzten Jahre.



Figur 15:
Tritiumkonzentrationen in Basel und Bern. Die lokalen Emissionen von Industrietritium überdecken vor allem in Bern den natürlichen Jahresgang im Niederschlag.



Figur 16
Tritiumkonzentrationen im Flusswasser der Aare bei Brugg. Die jährlichen Tritiumabgaben aus Gösgen sind über mehrere Wochen verteilt. Der jahreszeitlche Verlauf ist seit 2007 praktisch gleich, einzig die Spitzen der Abgabem haben etwas abgenommen.

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

J.A. Corcho Alvarado, P. Froidevaux, F. Chawla, F. Barraud, A. Savary, F. Bochud
Institut de Radiophysique, Rue du Grand Pré 1, 1007 Lausanne, Suisse

Résumé

Les mesures de plutonium et d'américium ont été effectuées sur des sols, des sédiments, des filtres à air et des eaux. En plaine les activités en $^{239+240}$Pu pour les échantillons de sol (0 - 5 cm) prélevés en 2009 se situent entre 0.09 et 0.16 Bq/kg. En montagne, elles sont significativement plus élevées, entre 0.3 et 0.95 Bq/kg. Aux alentours des centrales nucléaires suisses les activités des actinides dans les sols et les sédiments ne dépassent pas 0.18 Bq/kg ($^{239+240}$Pu) et 0.08 Bq/kg (^{241}Am), et montrent un rapport d'activité d'environ 0.03 pour ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu et 0.4 pour ^{241}Am/$^{239+240}$Pu. La moyenne du rapport isotopique ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu de 0.03 - 0.04 indique une contamination provenant des essais d'armes atomiques effectués durant les années soixante et de la chute du satellite SNAP-9A. Cette origine est confirmée par le rapport ^{241}Am/$^{239+240}$Pu qui est de 0.43 ± 0.05 en moyenne.

L'activité en $^{239+240}$Pu et ^{241}Am des eaux de pluie, de rivière et de surface ne dépasse pas les valeurs des années précédentes (<10 mBq/m^3). L'activité des filtres à air analysés en 2009 est très faible (< 3 nBq/m^3), sauf pour l'^{241}Am dans les filtres à air du Weissfluhjoch, de manière similaire à ce qui a été observé depuis quelques années. Cette station montre en 2009 une activité en ^{241}Am de 615 nBq/m^3. En 2009, deux échantillons d'air additionnels ont été collectés à Coire et à Davos, afin de vérifier l'absence de contamination en ^{241}Am à plus large échelle. Dans les deux sites, l'^{241}Am est resté au dessous de la limite de détection. Ainsi la contamination en ^{241}Am dans les filtres à air du Weissfluhjoch résulte, comme déjà montré en 2008, des travaux effectués dans la station de recherche au début des années 2000 avec l'incinération de matériaux de construction qui contenaient probablement des détecteurs d'incendie contenant de l'^{241}Am.

En 2009, nous avons développé une procédure pour la détermination de l'isotope ^{241}Pu. La procédure radiochimique a été validée avec plusieurs matériaux de référence, avec d'excellents résultats. Ensuite, la procédure a été utilisée pour l'analyse du ^{241}Pu sur des sols du Val Piora prélevés en 2006. La moyenne du rapport d'activité ^{241}Pu/^{239,240}Pu de 1.4 confirme que la contamination provient des essais d'armes atomiques effectués durant les années soixante, et que la contribution de l'accident de Tchernobyl est négligeable.

Introduction

Le plutonium a été distribué dans l'environnement suite aux essais d'armes atomiques en atmosphère, et suite à divers accidents comme celui de la centrale nucléaire de Tchernobyl ainsi que via le fonctionnement d'installations nucléaires et du cycle du combustible (retraitement) (Tableau 1). L'américium est généré par la désintégration bêta du ^{241}Pu, et a été introduit d'une façon non uniforme dans les deux hémisphères par les mêmes sources que le plutonium (Tableau 1). L'importance de la surveillance de ces deux radioéléments dans l'environnement se justifie par leur radiotoxicité et leur longévité dans les systèmes biologiques.

Le but de ce travail était 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.

Le comportement du plutonium et de l'américium dans les systèmes naturels dépend de leur solubilité et des réactions de sorption, du couple pH-Eh, de l'hydrolyse et des réactions de complexation, notamment avec des ligands organiques présents dans les sols et les eaux (Tableau 2, [1]). Par conséquent, la mesure du plutonium et de l'américium au niveau de traces dans l'environnement est indispensable à la compréhension de ces mécanismes de mobilisation. Pour cela, des sols, des sédiments, de l'eau et des filtres à air ont été analysés.

En 2009, une procédure a été développée pour la détermination du ^{241}Pu. Ce radionucléide est le plus gros contributeur à la radioactivité totale du plutonium dans l'environnement suite aux essais d'armes atomiques dans l'atmosphère, au fonctionnement d'installations nucléaires, ainsi qu'aux accidents. De plus, le ^{241}Pu est la mère de l'^{241}Am. Par conséquent, l'établissement d'une procédure pour la détermination précise du ^{241}Pu est d'un grand intérêt, en particulier pour une estimation précise de la dose de radiation à long terme de la population. De plus, la valeur du ^{241}Pu/^{239,240}Pu est liée à l'origine de la contamination en plutonium. Par conséquent, la détermination de ^{241}Pu est aussi un outil pour tracer les sources du plutonium dans l'environnement.

Tableau 2:
Propriétés chimiques des actinides dans l'environnement. Les constantes de stabiltés correspondent à la première hydrolyse (logK M(OH), col. 3) et à la formation du complexe 1:1 avec l'oxalate (logK Mox, col. 4) [1]. Colonne 5: tendance d'adsorption à des surfaces telles que les colloïdes.

Elément	Espèce aqueuse	log(K) M(OH)	log(K) Mox	Sorption aux colloïdes
Pu	Pu^{3+}	7	6.5	+++
	Pu^{4+}	13.3	10.9	+++
	PuO_2^{+}	4.3	4.3	++
	PuO_2^{2+}	8.4	7	++
Am	Am^{3+}	7.5	6.5	+++

Méthode de séparation chimique

La méthode de séparation chimique utilisée en 2009 pour les analyses de plutonium et d'américium consiste à séparer séquentiellement le plutonium et l'américium sur des résines TEVA® et DGA® respectivement, après la digestion micro-onde des échantillons [2]. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur des disques d'acier [3], et les sources sont mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS. La performance de la méthode en 2009 était excellente, avec des rendements élevés pour la séparation du plutonium (environ 80%) et de l'américium (environ 70%) dans les échantillons prélevés (sols, sédiments, filtres à air et l'eau).

Tableau 1:
Propriétés radioactives des actinides et leurs sources dans l'environnement. Dernière colonne: le "% du NWT-fallout-Pu" est donné en % de masse, "r" correspond au rapport des activités. NWT = nuclear weapon testing.

Radio-isotope	Emission	Energie (MeV)	Période (a)	Remarques (origine)
^{238}Pu	α	5.456, 5.499	87.8	Satellites SNAP, r(^{238}Pu/^{239,240}Pu)=0.036
^{239}Pu	α	5.101, 5.143	$2.41\ 10^4$	84% du NWT-fallout Pu
^{240}Pu	α	5.124, 5.168	$6.57\ 10^3$	15% du NWT-fallout Pu
^{241}Pu	β	0.021	14.1	0.7% du NWT-fallout Pu, fille: ^{241}Am
^{242}Pu	α	4.856, 4.900	$3.74\ 10^5$	0.3% du NWT-fallout Pu
^{241}Am	α	5.443, 5.485	433	Fille: ^{237}Np, r(^{241}Am/^{239,240}Pu)=0.39

En 2009, une procédure a été développée pour la détermination du ^{241}Pu. La méthode consiste à extraire le plutonium électrodéposé sur le disque d'acier, et ensuite séparer et purifier la fraction du Pu sur une résine d'extraction TEVA [4]. Après la séparation sur la résine, la fraction du Pu est mélangée avec le cocktail de scintillation Ultima Gold AB. La source est ensuite mesurée par scintillation liquide de bas niveau avec un Wallac Quantulus 1220 (PerkinElmer Inc., Finlande), pendant environ 21'600 secondes. La procédure a été testée sur des échantillons de référence pour lesquels l'activité en ^{241}Pu était connue (ex. IAEA-300, IAEA-368, IAEA-367 et IAEA-384). La performance de la méthode s'est avérée excellente, avec tous les résultats à moins de 15% d'écart par rapport à la valeur cible [4]. Ensuite, la procédure a été utilisée pour l'analyse du ^{241}Pu sur des sols de Val Piora prélevés en 2006. Ce site a été sélectionné car des activités comparativement plus élevées y sont attendues par rapport aux sols de la plaine [5].

Résultats

Les tableaux 3, 4 et 5 rapportent les principaux résultats obtenus en 2009. Sauf indication contraire, les incertitudes des mesures sont reportées pour un intervalle de confiance de 95% (k=2).

Sols et sédiments

Le tableau 3 présente les résultats dans différents sols de Suisse ainsi que pour les sédiments en aval des centrales nucléaires. La couche analysée est 0 - 5 cm. Lors de la mesure des sols, en plaine, l'activité en plutonium se situe entre 0.08 et 0.16 Bq/kg de sol, ce qui correspond bien à la gamme des valeurs observées dans les prélèvements des années précédentes. Aux alentours des centrales nucléaires suisses l'activité des actinides dans les sols et les sédiments ne diffère guère du reste du territoire et ne dépasse pas 0.18 Bq/kg (plutonium) et 0.08 Bq/kg (américium). En montagne, l'activité en Pu peut s'élever au-dessus de 0.3 Bq/kg avec un maximum de 0.95 Bq/kg dans un sol d'Allmendhubel. Les valeurs élevées en Pu des sols de montagne s'expliquent principalement par l'altitude des sites. Nous avons récemment pu mettre en évidence ce phénomène d'augmentation des dépositions de radioactivité (^{90}Sr) avec l'altitude à l'échelle de l'Europe occidentale [5].

Tableau 3:
Plutonium et américium (Bq/kg de matière sèche) dans les sols (0-5 cm) en Suisse, ainsi que dans les sédiments aquatiques prélevés en 2009 en aval des centrales nucléaires suisses.

Lieu	^{239,240}Pu	^{241}Am	^{238}Pu/ ^{239,240}Pu	^{241}Am/ ^{239,240}Pu
Sol plaine				
Grangeneuve	0.16 ± 0.02	0.07 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.42 ± 0.07
Arenenberg	0.09 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.02 ± 0.02	0.49 ± 0.11
Sol centrales nucléaires + PSI				
Beznau	0.12 ± 0.01	0.06 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.50 ± 0.10
Gösgen	0.17 ± 0.01	0.07 ± 0.02	0.02 ± 0.01	0.42 ± 0.12
Leibstadt	0.13 ± 0.01	0.05 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.34 ± 0.07
Mühleberg	0.12 ± 0.01	0.05 ± 0.01	0.04 ± 0.02	0.44 ± 0.10
PSI-ZWILAG	0.17 ± 0.03	0.06 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.38 ± 0.11
PSI-OASE	0.12 ± 0.01	0.07 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.58 ± 0.10
Sol sites d'altitude				
Allmendhubel	0.95 ± 0.06	0.38 ± 0.03	0.03 ± 0.01	0.40 ± 0.04
Diesse	0.36 ± 0.02	0.15 ± 0.02	0.03 ± 0.01	0.44 ± 0.05
Fahrni	0.37 ± 0.02	0.13 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.36 ± 0.04
Gimmelwald	0.35 ± 0.02	0.15 ± 0.01	0.02 ± 0.01	0.43 ± 0.05
Sédiments				
Hagneck	0.10 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.38 ± 0.04
Klingnau	0.16 ± 0.01	0.06 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.37 ± 0.04
Pratteln	0.05 ± 0.01	0.02 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.46 ± 0.07
		Moyenne Suisse :	**0.03 ± 0.01**	**0.43 ± 0.05**

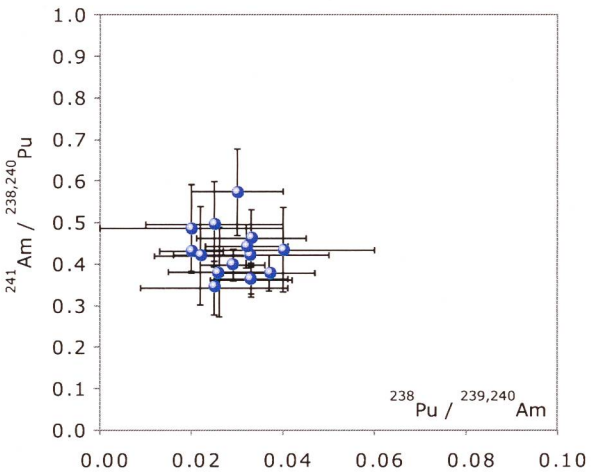


Figure 1:
Rapports isotopiques $^{238Pu/239+240}Pu$ en fonction du rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$ dans 12 échantillons de sol (0 - 5cm) et 3 échantillons de sédiment prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2009. Le rapport isotopique moyen $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ est de 0.029 ± 0.005, et celui de $^{241}Am/^{239+240}Pu$ est de 0.43 ± 0.05.

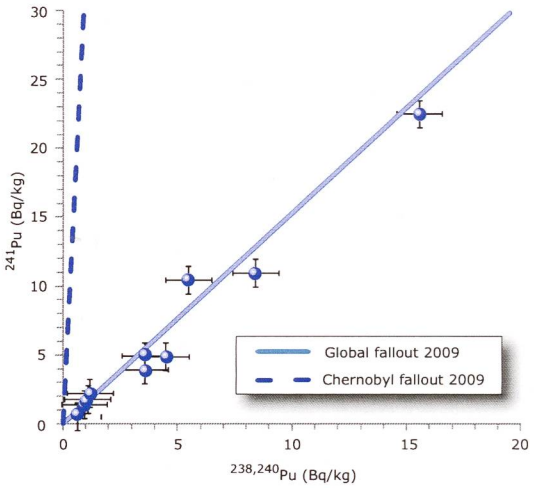


Figure 2:
^{241}Pu en fonction de $^{239+240}Pu$ dans les échantillons de sol de Val Piora prélevés en 2006. Les activités de ^{241}Pu ont été ramenées à la date du 01.06.2009. Les rapports isotopiques représentatifs des retombées des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl sont aussi montrés (corrigées pour 2009).

La figure 1 illustre les rapports en $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et $^{241}Am/^{239+240}Pu$ dans les sols et les sédiments. Tous les échantillons sont regroupés autour d'une valeur (0.03, 0.4) représentative des rapports des retombées des essais nucléaires réalisés dans les années soixante et de la chute du satellite (source de ^{238}Pu) SNAP-9A. Les moyennes observées en 2009 sont de 0.029 pour le rapport $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et de 0.43 pour le rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$. Il faut aussi préciser que le rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$ représente un coefficient entre deux éléments de chimie différente, donc de comportement potentiellement différent dans le sol. Néanmoins, comme l'américium est issu de la désintégration radioactive bêta d'un isotope du plutonium (^{241}Pu) on retrouve en général le même rapport entre ces isotopes (compris entre 0.3 - 0.5) en particulier dans les sols. On peut malgré tout parfois observer parfois des rapports $^{241}Am/^{239+240}Pu$ différents dans d'autres compartiments de l'environnement, en raison d'une migration différente de ces deux éléments, sans qu'il y ait pourtant d'apport supplémentaire par une contamination d'origine accidentelle.

Tableau 4:
Activité du ^{241}Pu (Bq/kg de matière sèche) mesurée dans les sols de Val Piora. Les activités et les rapports isotopiques ont été calculés pour une date de référence fixée au 01.06.2009. La date de la contamination, obtenue par la méthode de datation $^{241}Am/^{241}Pu$, est rapportée dans la dernière colonne.

Sols	^{241}Pu	$^{241}Pu/^{239+240}Pu$	$^{238}Pu/^{239+240}Pu$	$^{241}Am/^{239,240}Pu$	Date de la contamination
Val Piora 1, 3-9 cm	1.4 ± 0.2	1.5 ± 0.2	0.022 ± 0.004	0.40 ± 0.04	1951 ± 12
Val Piora 1, 9-15 cm	0.5 ± 0.1	0.8 ± 0.1	0.015 ± 0.006	0.42 ± 0.05	1950 ± 13
Val Piora 2, 0-5 cm	3.9 ± 0.5	1.1 ± 0.2	0.037 ± 0.006	0.43 ± 0.03	1955 ± 8
Val Piora 2, 5-10 cm	22.5 ± 2.9	1.4 ± 0.2	0.026 ± 0.002	0.44 ± 0.02	1960 ± 7
Val Piora 2, 10-16 cm	11.0 ± 1.5	1.3 ± 0.2	0.022 ± 0.004	0.43 ± 0.03	1958 ± 7
Val Piora 8, 0-5 cm	4.9 ± 0.7	1.4 ± 0.2	0.034 ± 0.002	0.46 ± 0.03	1958 ± 7
Val Piora 8, 5-10 cm	4.9 ± 0.7	1.1 ± 0.2	0.029 ± 0.004	0.36 ± 0.03	1958 ± 7
Val Piora 3, 0-4 cm	10.5 ± 1.4	1.9 ± 0.3	0.027 ± 0.002	-	-
Val Piora 4, 0-5 cm	1.8 ± 0.3	1.6 ± 0.3	0.032 ± 0.006	-	-
Val Piora 4, 5-9 cm	2.3 ± 0.3	1.9 ± 0.3	0.022 ± 0.004	-	-
Moyenne		**1.4 ± 0.4**	**0.027 ± 0.008**	**0.43 ± 0.05**	**1956 ± 6**
NWT		1.3 - 1.7			1963 (maximum)
Tchernobyl fallout		> 27			1986

L'activité en ^{241}Pu dans les échantillons de sol provenant du Val Piora se situe entre 0.5 et 22.5 Bq/kg de sol (tableau 4). Les rapports d'activité $^{241}Pu/^{239+240}Pu$ dans ces sols sont regroupés autour d'une valeur de 1.4, représentative des rapports des retombées des essais nucléaires (1.3 - 1.7) réalisés dans les années soixante, et corrigés pour la date de référence de 2009 (tableau 4, figure 2) [4]. La moyenne du rapport $^{241}Pu/^{239+240}Pu$ de 1.4 confirme aussi que la contribution en plutonium de l'accident de Tchernobyl (rapport typique > 27) ou des installations nucléaires est négligeable. Les rapports des activités $^{241}Pu/^{241}Am$ ont été utilisés pour déterminer l'âge de la contamination par le plutonium, qui est aussi une donnée importante pour distinguer les sources qui en sont à l'origine. La date moyenne de la contamination en plutonium des sols de Val Piora est 1956 ± 6, ce qui correspond bien à la date du maximum des retombées des essais nucléaires. Cette date confirme donc également l'origine de la contamination [4].

Eaux et filtres d'air

Pour l'analyse des eaux (Tableau 5), au moins 100 litres par échantillon ont été prélevés. Dans les eaux de surface, les actinides sont présents en suspension dans la partie sédimentaire ou associés aux colloïdes organiques. Leur présence dans les eaux de pluie est due à la re-suspension de particules de sol sur lesquelles les actinides sont adsorbés. L'activité en plutonium (< 10 mBq/m³) et en américium (< 1 mBq/m³) des eaux de pluie, de rivière et de surface (Tableau 5) sont faibles et sont comprises dans la gamme observée lors des années précédentes (< 5 mBq/m³).

L'activité en plutonium et en américium des filtres à air (Tableau 5) reflète en général le phénomène de re-suspension des particules de sol [6]. En Suisse, nous étudions annuellement quatre sites (Fribourg, Klingnau, Mühleberg et Weissfluhjoch) sur lesquels des prélèvements de filtres à air sont effectués de façon hebdomadaire. Ces filtres sont ensuite réunis pour former un échantillon annuel par site, pour l'analyse du plutonium et de l'américium. Le volume d'air ainsi prélevé est d'au moins 160'000 m³, ce qui permet une analyse à très bas niveau d'activité (nBq/m³).

Depuis le début de ces analyses (1994 pour le plutonium et 1998 pour l'américium), les activités mesurées en plutonium et en américium sont toujours inférieures à 20 nBq/m³, sauf pour l'américium sur le site du Weissfluhjoch. Sur ce site, on mesure des activités en américium supérieures à 100 nBq/m³ depuis 2002, alors que les activités en plutonium sont restées inférieures à 10 nBq/m³. En août 2008, l'OFSP a montré que la contamination est le résultat de travaux effectués dans la station de recherche au début des années 2000, date à partir de laquelle nous avons commencé à observer de l'^{241}Am sur les filtres à air. L'hypothèse la plus vraisemblable est l'incinération, lors des travaux, de dispositifs contenant de l'^{241}Am, soit dans des détecteurs d'incendie (le plus probable), soit dans des dispositifs scientifiques présents dans la station de recherche du Weissfluhjoch. En 2009, deux échantillons d'air additionnel ont été collectés à Coire et Davos, afin de vérifier une contamination par l'américium. Pour les deux sites, l'américium est resté en dessous de la limite de détection, confirmant l'hypothèse d'une contamination locale.

Tableau 5:
Mesure de plutonium et d'américium dans les eaux (mBq/m³) et les filtres à air (nBq/m³) prélevés en 2009.

Lieu	Type	$^{239,240}Pu$	^{241}Am	$^{241}Am/^{239,240}Pu$
		Eau (mBq/m³)		
Mühleberg	eau de pluie	0.09 ± 0.02	< DL	< DL
Pratteln	rivière	1.70 ± 0.40	< DL	< DL
Fribourg	eau de pluie	0.50 ± 0.10	< DL	< DL
Rhône (Genève)	rivière	1.30 ± 0.20	< DL	< DL
Val Piora	eau du lac, <0.45 µm, 100 L	4.40 ± 0.70	< DL	< DL
Val Piora	eau de surface, <0.45 µm, 100 L	9.00 ± 0.70	< DL	< DL
		Filtres à air (nBq/m³)		
Klingnau	$V_{filtré}$ = 1'700'144 m³	0.70 ± 0.11	0.34 ± 0.05	0.49 ± 0.08
Weissfluhjoch	$V_{filtré}$ = 274'965 m³	1.33 ± 0.34	615 ± 33	463 ± 120
Fribourg	$V_{filtré}$ = 893'816 m³	0.64 ± 0.13	0.32 ± 0.05	0.50 ± 0.10
Mühleberg	$V_{filtré}$ = 527'085 m³	0.74 ± 0.17	0.43 ± 0.08	0.57 ± 0.12
Coire	$V_{filtré}$ = 246'191 m³	2.50 ± 0.27	< DL	< DL
Davos	$V_{filtré}$ = 167'047 m³	2.29 ± 0.31	0.81 ± 0.56	0.36 ± 0.26

Conclusions

Les analyses de plutonium et d'américium dans l'environnement en 2009 n'ont, en général, pas relevé d'activité inattendue à l'exception du cas de l'américium des filtres à air du Weissfluhjoch. Dans les sites proches de Coire et Davos, deux échantillons d'air additionnels, prélevés en 2009, n'ont pas montré d'américium. Ces résultats ont permis de confirmer que la contamination en américium est uniquement locale, comme semblaient le montrer les études effectuées sur le site du Weissfluhjoch en 2008. Des mesures seront prises pour assainir le dispositif d'échantillonnage de l'air. Les mesures de plutonium et d'américium dans les échantillons de sol sur l'ensemble de la Suisse montrent que la déposition est faible sur le plateau suisse et croît avec l'altitude du site de prélèvement. Cette relation entre le niveau d'activité et l'altitude ou encore le niveau de précipitation est maintenant un phénomène bien connu pour les dépositions de radioéléments suite aux essais des bombes atomiques en atmosphère.

Pour tous les autres échantillons l'analyse des rapports isotopiques $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et $^{241}Am/^{239+240}Pu$ a montré que l'origine de la contamination provient des essais des armes atomiques réalisés en atmosphère durant les années soixante et de la désintégration dans l'atmosphère du satellite SNAP-9A contenant une source de ^{238}Pu. Les résultats obtenus dans des compartiments de l'environnement autres que le sol montrent que le rapport isotopique $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ est un bon indicateur de l'origine de la contamination mais que le rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$ doit être utilisé avec précaution car ces deux éléments sont susceptibles de fractionnement au cours du processus de mobilisation.

En 2009, nous avons introduit la détermination de l'isotope de plutonium ^{241}Pu. Ce radionucléide a été déterminé sur des sols de montagne (Val Piora) prélevés en 2006. La moyenne du rapport d'activité $^{241}Pu/^{239,240}Pu$ de 1.4 confirme que la contamination provient d'essais d'armes atomiques effectués durant les années soixante, et que la contribution de l'accident de Tchernobyl est négligeable. Les résultats obtenus montrent que le rapport isotopique $^{241}Pu/^{239+240}Pu$ est aussi un bon indicateur de l'origine de la contamination de plutonium. Ce radionucléide a été également utilisé avec sa fille de désintégration, l'américium, pour calculer l'âge de la contamination qui est aussi une donnée importante pour distinguer les sources de plutonium.

7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement - @OFSP 2010

Références

[1] Pearson F.J.Jr., Berner U., Hummel W., Nagra Technical Report NTB 91-18 (1992).
[2] Luisier F, Corcho Alvarado JA, Steinmann P, Krachler M, Froidevaux P.. J. Radioanal. Nucl. Chem. 281, 3: 425-432 (2009).
[3] Bajo S., Eikenberg J., J. Radioanal. Nucl. Chem. 242, 3, 745-751 (1999).
[4] Corcho Alvarado J.A., Chawla F., Froidevaux P. Radiochimica Acta (soumis).
[5] Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux, P., Chemosphere 66, 1571–1579 (2007).
[6] Garcia-Olivares A., J. Environ. Radioact., 37, 101-114 (1997).