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:	- (2011)

Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. 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. <u>Siehe Rechtliche Hinweise.</u>

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. <u>Voir Informations légales.</u>

Terms of use

Rubrik:

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. <u>See Legal notice.</u>

Download PDF: 17.05.2025

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 2011 Résultats 2011



7

Messung von Spezialnukliden

Mesures de nucléides spéciaux

7.1 Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37	108
Zusammenfassung	108
Kohlenstoff-14	108
Kernkraftwerk Leibstadt	110
Kernkraftwerk Gösgen	110
Kernkraftwerk Mühleberg	111
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau	111
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	112
Messungen in der Region Basel-Stadt	112
Krypton-85 (⁸⁵ Kr)	115
Argon-37 (³⁷ Ar)	116
7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement	117
Résumé	117
Introduction	118
Méthode de séparation chimique	118
Résultats	119
Conclusions	120













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

Th. Stocker, P.Dürring, R. Fischer, M. Hönger, R. Purtschert und T. Wagner Abt. Klima und Umweltphysik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

Clemens Schlosser, Martina Konrad und Sabine Schmid

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

J. Eikenberg, R. Siegwolf

Paul Scherrer Institut, 5232 VILLIGEN-PSI

Zusammenfassung

Die Messungen des ¹⁴C-Gehalts an Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne, Thun und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2011 weitergeführt. Aus ¹⁴C-Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ¹⁴C-Quellen und -Verdünnungen wurde aus den August- und Oktoberwerten ein Mittelwert errechnet. Es resultierte für die Zeit der Probenahmen 2011 ein Δ^{14} C-Referenzwert von 30 ± 4‰.

Die 87 auf ¹⁴C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -24‰ bis maximal +145‰ von diesem Referenzwert. Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von -0.4 bis +2 μ Sv (10⁻⁶ Sievert = 1 μ Sv) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von 3′000 μ Sv/a fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr nicht ins Gewicht.

Die beiden Edelgas-Radionuklide ⁸⁵Kr und ³⁷Ar werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ⁸⁵Kr, freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren und den zunehmenden Emissionsraten über die letzten 40 Jahre in der Atmosphäre anreichern. Zurzeit verharrt die Aktivitätskonzentration von ⁸⁵Kr auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von ³⁷Ar sind praktisch nicht von künstlichen Quellen beeinflusst. Lokal erhöhte Werte könnten aber auf nukleare Aktivitäten hinweisen. Beide Isotope verursachen keine signifikante Erhöhung der jährlichen Strahlendosis.

Kohlenstoff-14

Die ¹⁴C-Messungen wurden an der Universität Bern durchgeführt, Ausnahmen sind erwähnt.

Referenzwert

Der ¹⁴C-Gehalt von atmosphärischem CO₂ nimmt weiter ab, liegt aber gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbondatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

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

Der noch vorhandene Anteil an durch Nuklearwaffentests vor allem zwischen 1955 und 1966 produziertem ¹⁴CO₂ in der Atmosphäre wird durch die Verbrennung fossiler, d.h. ¹⁴C-freier Brennstoffe global noch nicht kompensiert. Nur lokal manifestiert sich die als "Süss"- oder "Industrie"-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen ¹⁴CO₂. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem ¹⁴C-Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen ¹⁴CO₂-Konzentration.

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

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

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ¹⁴C-Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ¹⁴C-Quellen oder -Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen– und Lindenblätter gesammelt. Ihr ¹⁴C-Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit ¹⁴A₀ verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden Δ^{14} C-Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2011 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die ausgewachsenen, im August und Oktober gepflückten Blätter.

(3) $\Delta^{14}C_{\text{Ref, 2011}} = 30 \pm 4 \, [\%]$

Die Differenz

(4) Netto $\Delta^{14}C = \Delta^{14}C_{Probe} - \Delta^{14}C_{Ref. 2011}$

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

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

Methode A: ¹⁴C-Bestimmung nur in der Blattkohle ¹
Methode B: ¹⁴C-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 ¹⁴C-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 2011 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	∆ ¹⁴ C [%o]			Koordinaton	Em ii M 1	Poumort (Stondort	
OIL	Juni	Aug.	Okt.	Koorumaten	[]	Baumart/Standort	
Taanwald	47	32	35	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald	
Belpberg	40	33	29	606050 / 190800	825	Rotbuche auf Krete Ø 45cm	
Ballenbühl	-	26	26	612550 / 192800	852	Linden freistehend	



Figur 1:

Δ¹⁴C-Werte in Laubblättern von den Referenzstationen. Nach einem praktisch konstanten Level in den Jahren 2004 bis 2006 setzte sich der 2007 festgestellte Rückgang bis heute fort. Die blaue Linie zeigt den bestimmten Referenzwert für die 2. Jahreshälfte, der Hauptsammelzeit der Blätter.

1 Die Probe wird im Stickstoffstrom pyrolysiert. Dabei verflüchtigen sich gewisse Kohlenstoffverbindungen, die somit für die Analyse ihres ¹⁴C-Gehaltes verloren sind.

Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2011 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste ¹⁴C-Konzentration ergab sich in 500-1000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung bei den Birken vom Standort Fullerfeld und im Südwesten im Bereich der Friedhof-Linde an der Position Chlämmi (Figur 2).

Die Figur 3 zeigt die aufgetretenen Netto Δ^{14} C-Höchstwerte an diesen Standorten seit Messbeginn. Im Jahre 2005 musste das Atomkraftwerk während 5 Monaten stillgelegt werden. Deutlich geringere ¹⁴C-Konzentrationen waren die Folge. Der grösste 2011 gemessene Netto Δ^{14} C-Wert liegt mit 88 ‰ deutlich unterhalb den Werten der letzten Jahre.



Figur 2:

Netto ∆¹⁴C-Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) für 2011. Probenahme: 2.8.2011. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 3:

Netto Δ^{14} C-Höchstwerte nordöstlich (•) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt. (Standorte: siehe Figur 2).

Kernkraftwerk Gösgen

In der Figur 4 sind die Resultate der am 6. Juli 2011 gewonnenen Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste ¹⁴C-Messwert resultierte in diesem Jahr nicht am Standort Schachen, sondern östlich des KKG am Standort Aarfeld und liegt 39 ‰ höher als an unbelasteten Standorten. 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 5 ‰ erhöht, d. h. er weicht nur gering vom unbeeinflussten Referenzwert (30 ± 4 ‰) ab.

In der Figur 5 sind die z.T. seit Messbeginn ermittelten, höchsten Netto Δ^{14} C-Werte aufgeführt. Werte > 100 ‰ wurden in dieser Zeitspanne nie festgestellt. Höchstwerte resultierten jeweils in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer an den gleichen Orten. So wurden beispielsweise



Figur 4:

Örtliche Verteilung der Netto ∆¹⁴C-Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Probenahme: 6.7.2011. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.





Netto Δ^{14} C-Höchstwerte östlich (• •) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. Im Jahre 2011 wurden die Werte von Sören und Schachen am Standort Aarfeld (•) leicht übertroffen (Standorte: siehe Figur 4).

in den Jahren 2006, 2008 und 2010 die höchsten Werte östlich des KKG gemessen. In den übrigen Vorjahren wurden Höchstwerte am westlich gelegenen Standort Schachen festgestellt.

Kernkraftwerk Mühleberg

Die in Figur 6 symbolisch dargestellte Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) zeigt wiederum die grösste Erhöhung am Standort M-15 Ufem Horn. Der Netto Δ^{14} C-Höchstwert sank gegenüber dem Vorjahr von 98 ‰ auf neu 79 ‰. Hierbei gilt es zu beachten, dass das Kernkraftwerk im Sommer während ca. 3 Monaten keinen Strom produzierte. Die Messung erfolgte unmittelbar vor dem Stillstand. Während dem Produktionsstopp sank die ¹⁴C-Konzentration nochmals um 10 ‰. Bei einem ähnlichen Betriebsunterbruch im Jahre 2005 beim Kernkraftwerk Leibstadt resultierte ein deutlich stärkerer Abfall der ¹⁴C-Konzentration. Allerdings dauerte der Stillstand damals 2 Monate länger.



Figur 6:

Netto Δ^{14} C-Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM). Probenahme 1.7.2011. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 7:

Netto Δ^{14} C-Höchstwerte östlich (•) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. (Standorte: siehe Figur 6).

In der entgegengesetzten Windrichtung betrugen die höchsten Messwerte am Standort M-5 Schiesspatz 70 ‰ (1.7.2011) sowie 77 ‰ (28.9.2011). Warum es hier während dem Stillstand sogar zu einer geringfügigen Erhöhung der ¹⁴C-Konzentration kam, ist nicht klar.

Alle 2011 gemessenen Proben liegen deutlich unter den seit Messbeginn im Jahre 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116 ‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

In der Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen, höchsten Netto Δ^{14} C-Werte aufgeführt. In dieser Zeitspanne datiert der geringste gemessene Höchstwert aus dem Jahre 2003, dem Jahr mit den heissen Sommermonaten.

Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau

Die zu diesen Standorten gehörenden ¹⁴C- und δ^{13} C-Messungen in den Blattproben wurden am PSI sowie an der Universität Bern durchgeführt. Die Messunsicherheit für die Δ^{14} C-Werte beträgt 4 bis 6 ‰. In der Umgebung des PSI konnten keine erhöhten Δ^{14} C-Werte gemessen werden. Der höchste Messwert stammt aus dem Jahre 1986. Damals ist am Standort Saphir ein um 1'023 ‰ erhöhter Wert festgestellt worden. Im Umfeld des KKB sind die höchsten Messwerte an den Standorten Böttenberg und Althau aufgetreten. Beide Netto Δ^{14} C-Werte betrugen 20 ‰.

In der Figur 9 sind Zeitreihen von Standorten mit erhöhten Messwerten aufgezeigt. Ganz deutlich sichtbar ist der immer kleiner werdende ¹⁴C-Gehalt am Standort Au. Mit -10‰ wird hier 2011 ein Wert erreicht, der nur mit dem «Süss»–Effekt erklärt werden kann. Dieser stammt vermutlich aus fossilen Brennstoffen. An zwei weiteren Strandorten ist dieser Effekt noch ausgeprägter (Standorte Schützenhaus mit -19‰ und Kindergarten mit -18‰).



Figur 8:

Netto ∆¹⁴C-Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahre 2011 (Jost Eikenberg, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen. Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

Es wurden in Blättern von Bäumen im Umfeld der Verbrennungsanlagen keine erhöhten ¹⁴C-Konzentrationen festgestellt. Die gegenüber den Referenzstationen erniedrigten Messwerte (<30 ‰) stammen aus den Abgasen fossiler Brenn- und Treibstoffe ("Süss"-Effekt). Die grösste Absenkung konnte wiederum in Lausanne (Standort L-2) mit -24 ‰ gemessen werden.

Die vorliegenden Ergebnisse zeigen ein ähnliches Bild wie im Vorjahr (siehe Figur 10).

Messungen in der Region Basel-Stadt

Wie bereits im Vorjahr fand die Hauptprobenahme 2011 in Basel im August statt. Im Westen befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten um das Areal der Firma Roche. Die höchsten Werte wurden westlich des Rheins (W-10A) mit +48 ‰ und östlich des Rheins (E-34) mit +145 ‰ gemessen. Neu konnten in der Nähe der Landesgrenze (W-8 und W-9) sowie des Verbrennungsofens (E-8A) geringe Erhöhungen festgestellt werden. Auf der französischen, wie auch auf der deutschen Seite wurden im Raum Basel keine Erhöhungen registriert.



Netto Δ¹⁴C-Höchstwerte östlich (•) und westlich (Δ) des PSI/Zwilag sowie des Kernkraftwerks Beznau (□) seit Messbeginn (Standorte: siehe Figur 8).







Figur 10: Δ^{14} C-Messungen in der Umgebung der KVA Lausanne, Zürich, Bern und Thun.

Im Juli, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Bei der Blattverkohlung allenfalls flüchtige Kohlenwasserstoffe werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewendet, wo Höchstwerte zu erwarten sind (siehe Tabelle 2).

Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Westlich des Rheins blieb der Höchstwert von Netto 308 ‰ (Standort W-10A) aus dem Jahr 2005 die Ausnahme. Dasselbe kann östlich des Rheins am Standort E-03 festgestellt werden. Hier wurde der 2006 gemessene Höchstwert von 197 ‰ (E-03) in den letzen Jahren jeweils deutlich unterschritten.

Alle 2011 gemessenen Erhöhungen fallen im Vergleich zu der um einen Faktor 1'000 grösseren natürlichen Strahlenbelastung nicht ins Gewicht.



Figur 12:

Zeitreihe der Netto Δ^{14} C-Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Am Standort W-28 wird die ¹⁴C unbelastete Stadtluft gemessen. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto Δ^{14} C-Wert eingetragen.



Figur 13:

Zeitreihe der Netto Δ^{14} C-Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto Δ^{14} C-Wert eingetragen.

Tabelle 2:

Im Jahre 2011 gemessene höchste Netto Δ^{14} C-Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2010) am Standort Basel östlich (E-..) und westlich (W-..) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von ¹⁴C-Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Bl	attkohl	e	Im ganz	en Blatt	
	Höchster Netto Δ ¹⁴ C-Wert 2011 [‰]	Höchster Netto Δ ¹⁴ C-Wert 1994 - 2010 [‰]		Höchster Netto ∆¹⁴C-Wert 2011 [‰]	Höc Netto A 2004	:hster 1⁴C-Wert - 2010 ‰]
E-03	-5	197	(2006)	-	23	(2007)
E-10	0	251	(1997)	-	-	-
E-26	1	169	(1996)	-	-	-
E-34	68	106	(1998)	145	173	(2004)
E-42	-23	4	(2003)	-	-	-
E-42*	0	218	(2006)	-	-	-
W-06	18	438	(1994)	43	172	(2008)
W-10A	31	259	(1997)	48	308	(2005)
W-28	-15	-6	(2007)	-6	-	-
W-71	6	227	(2008)	14	75	(2009)
W-72	12	107	(2008)	26	115	(2010)

Krypton-85 (85Kr)

⁸⁵Kr wird überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen freigesetzt. Aufgrund der langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren reichert sich ⁸⁵Kr in der Atmosphäre im Verlaufe der Zeit an. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Figur 14). Insgesamt nahmen die globalen Freisetzungsraten von ⁸⁵Kr in den letzten Jahren erstmals seit Jahrzehnten wieder ab, was zu einer Stabilisierung oder leichten Abnahme der atmosphärischen Basisaktivität von derzeit 1.45 Bq/m³ Luft geführt hat



Figur 14:

Atmosphärische ⁸⁵Kr 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 38 Jahre; die Messungen der Proben aus Freiburg und vom Jungfraujoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg i. Br. durchgeführt. Zum Vergleich ist der Verlauf der Emissionsraten der Aufbereitungsanlage von La Hague dargestellt (rote Balken); Einheiten in der Grössenordnung 10¹⁶ Bq/Monat.

(Figur 14, kleines Bild). Dies zeigen Messungen von Wochenproben der Sammelstationen Freiburg i. Br. und auf dem Jungfraujoch (Figur 14). Die besonders bei der Station Freiburg i. Br. beobachteten Aktivitätsmaxima können zum grossen Teil Abluftfahnen aus der Wiederaufarbeitungsanlage La Hague zugeordnet werden. Dies wird auch durch die hohe Korrelation zwischen den publizierten Emissionsraten von La Hague² und der Intensität und Frequenz der Aktivitätsspitzen unterstrichen (Figur 14: rote Balken). Wegen der erhöhten Lage des Jungfraujochs, die vor allem in den Wintermonaten über der planetaren Grenzschicht liegt, und der Entfernung zu La Hague wird diese Station aber weniger direkt von bodennahen Emissionen beeinflusst. Der qualitative Verlauf der Kr-85 Aktivitätskonzentration, insbesondere der Untergrundpegel, ist an beiden Stationen gleich.

Auch am Physikalischen Institut der Universität Bern werden Stichprobenmessungen der Aktivitätskonzentration von Krypton-85 durchgeführt (20 Liter Luft, die innert einiger Minuten gesammelt werden; Figur 14). Diese Werte stimmen innerhalb der Messfehler gut mit jenen vom Jungfraujoch und Freiburg i. Br. überein, welche am BfS in Freiburg gemessen wurden.

> Bei der Nuklearkatastrophe von Fukushima wurden grosse Mengen von gasförmigen und Partikel-gebundenen Radionukliden freigesetzt und über die Atmosphäre der gesamten Nordhemisphäre verteilt ³,⁴,⁵. Darunter war auch ⁸⁵Kr. Wegen der vergleichsweise hohen Hintergrundaktivität von ⁸⁵Kr (siehe oben) hatten diese zusätzlichen Emissionen aber praktisch keinen Einfluss auf die gemessenen Aktivitätskonzentrationen in Europa (im Gegensatz etwa zu ¹³³Xe, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs oder ¹³¹I). Die Kryptonaktivität macht heute den grössten Anteil der künstlichen Radioaktivität in der Atmosphäre aus. Die Strahlendosis ist mit 7.92 nBq/a per

Bq/m^{3 (6)} aber vernachlässigbar klein im Vergleich zu derjenigen von Radonfolgeprodukten.

- 3 Bowyer, T.W., S.R. Biegalski, M. Cooper, P.W. Eslinger, D. Haas, J.C. Hayes, H.S. Miley, D.J. Strom, V. Woods, Elevated radioxenon detected remotely following the Fukushima nuclear accident, Journal of Environmental Radioactivity 102 (2011) 681e687
- 4 Biegalski, S.R., et al., Analysis of data from sensitive U.S. monitoring stations for the Fukushima Daiichi nuclear reactor accident, Journal of Environmental Radioactivity (2011), doi:10.1016/j.jenvrad.2011.11.007
- 5 Stohl A., Seibert P., Wotawa G., Arnold D., Burkhart J. F., Eckhardt S., Tapia C., Vargas A., and Yasunari T. J. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Daiichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition, Atmospheric Chemistry and Physics, 2011 Vol 11, 28319-28394
- 6 UNSCEAR 2000: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, Sources and Effects of Ionizing Radiation. Volume 1: Sources, Annex A: Dose Assessment Methodologies, United Nations, New York, Table 10, p. 59, 2000

² http://www.areva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-areva-la-hague-plant.html

Argon-37 (³⁷Ar)

³⁷Ar wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion ⁴⁰Ar(n,4n)³⁷Ar produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposhärischen Gleichgewichtsaktivität ergeben ca. 0.5-2 mBq/m³ Luft ⁷,⁸, in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 5 Jahre gemessen Basiswerten (Figur 15, kleines Bild). Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Einflüsse stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre lassen ³⁷Ar Aktivitätsspitzen bis 8-10 mBq/m³ Luft erwarten⁷. Künstlich produziertes 37Ar in messbaren atmosphärischen Konzentrationen bedarf hoher Neutronenflüsse, wie sie im Allgemeinen nur bei nuklearen Testexplosionen auftreten. Insbesondere bei unterirdischen Tests können grosse Mengen ³⁷Ar durch die Reaktion ⁴⁰Ca (n, α) ³⁷Ar erzeugt werden, die durch Spalten oder Klüfte an die Erdoberfläche und schliesslich in die Atmosphäre gelangen können. Dies ist die Grundlage für den Gebrauch von ³⁷Ar zur Überwachung des Vertrags über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Kernwaffenteststopvertrag, CTBT)⁹.

Am 25.3.2011, also 2 Wochen nach den ersten Vorfällen bei den Fukushima Reaktoren, wurde an einer Berner Luftprobe eine Aktivität vom $7 \pm 2 \text{ mBq/m}^3$ Luft gemessen (Figur 15). Dies entspricht dem höchsten seit 6 Jahren gemessenen Wert, liegt aber im Bereich der zu erwartenden natürlichen Variabilität (siehe oben). Vergleicht man den zeitlichen Verlauf der ³⁷Ar Aktivitäten mit ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs und ¹³¹I Messungen des BAG (Entnahmestation bei Genf), so fällt die gute zeitliche Korrelation auf. Innerhalb eines Reaktordruckgefässes ist aber keine derart hohe ³⁷Ar Produktion zu erwarten, um ein global messbares Signal zu erzeugen. Das liegt im Wesentlichen am Fehlen des Targetnuklids Kalzium. Gemäss den ausführlichen Analysen in⁵ stammen die Emissionen, welche die Aktivitätsspitze um den 25. März verursachten und in ganz Europa nachgewiesen konnten¹⁰,¹¹ (Figur 15), möglicherweise aus dem nicht ausreichend gekühlten Abklingbecken auf dem Dach von Reaktorblock 4. Bei tiefem Wasserstand würden die so frei werdenden hohen Neutronenflüsse in der Betonummantelung zu erhöhter ³⁷Ar-Produktion führen. Die rasche Abnahme der Aktivitäten in Figur 15 wäre durch das Einsetzen der Kühlung mittels Wasserwerfern zu erklären⁵. Da nur ein einziger erhöhter ³⁷Ar Wert gemessen wurde und ähnliche Analysen an anderen Labors nicht durchgeführt werden, kann die Ursache für diesen erhöhten 37Ar Wert am 25.3.2012 aber nicht schlüssig identifiziert werden.



Figur 15:

³⁷Ar Aktivität in Troposphärenluft im Jahr 2011 in Bern im Vergleich mit Werten über die letzten 6 Jahre (eingebettete Grafik). Ebenfalls eingezeichnet sind die Verläufe von ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs und ¹³¹I von Hochvolumenluftproben aus Genf. (http://www.bag.admin.ch/themen/strahlung/00045/02372/02378/index.html)

- 7 Lal, D.; Peters, B. Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth; Springer-Verlag, 1967; Vol. 46.
- 8 Oeschger, H.; Houtermans, H. J.; Loosli, H. H.; Wahlen, M. In Nobel Symposium 12, Radiocarbon Variations and Absolute Chronology, 1970; pp 471-496.
- 9 Riedmann R. and Purtschert R. (2011) Natural 37Ar Concentrations in Soil Air: Implications for Monitoring Underground Nuclear Explosions. Environ. Sci. Technol. 45, 8656-8664.dx.doi.org/10.10217es201192u

¹⁰ Masson, et al: Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks, Environmental Science and Technology 45 (2011), 7670-7677, DOI: 10.1021/ es2017158.

¹¹ http://www.bfs.de/de/ion/imis/aktuelle_messwerte.html

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

J.A. Corcho Alvarado, P. Froidevaux, F. Barraud, K. Garcia, 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 échantillons de sols, de sédiments, de filtres à air, d'eaux, de plantes aquatiques et de poissons. En plaine, les activités en 239+240Pu pour les échantillons de sol (0 - 5 cm), prélevés en 2011, se situent entre 0.12 et 0.19 Bq/kg. En montagne, elles sont significativement plus élevées et se situent entre 0.41 et 0.74 Bq/kg. Aux alentours des centrales nucléaires suisses, les activités des actinides dans les sols et les sédiments ne dépassent pas 0.2 Bq/kg (²³⁹⁺²⁴⁰Pu) et 0.1 Bq/kg (241Am), et montrent un rapport d'activité d'environ 0.03 pour 238Pu/239+240Pu et 0.45 pour ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu. La moyenne du rapport isotopique 238 Pu/ $^{239+240}$ Pu de 0.03 ± 0.01 indigue 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 0.45 ± 0.18 en moyenne. L'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am des filtres à air analysés en 2011 est très faible (< 3 nBq/m³). L'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am des eaux de pluie, de rivière et de surface ne dépasse pas les valeurs des années précédentes (<10 mBq/m³). L'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (< 100 mBq/kg de matière sèche) et en ²⁴¹Am (< 23 mBq/kg de matière sèche) des plantes aquatiques, de la viande des poissons et des moules sont également très faibles. Des rapports isotopiques moyens ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu de 0.010 pour les sédiments, poissons et les moules et de 0.041 pour les eaux ont été obtenus. Cependant les mesures des rapports ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu sont extrêmement variables (0.2 à 0.9 dans les sédiments, 0.7 à 1.0 dans les moules, 0.2 à 2.8 dans les poissons, et 0.5 à 1.0 dans les eaux). Cela indique que le comportement chimique de ces radioelements dans ces compartiments de l'environnement sont différents, notamment leur coefficient de partition entre la phase sédimentaire et la phase aqueuse. De plus, l'américium est connu pour avoir un facteur de concentration supérieur à celui du plutonium dans le poisson (environ 5 fois).

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

Introduction

Le plutonium a été distribué dans l'environnement suite aux essais d'armes atomiques en atmosphère (Tableau 1), 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). L'américium est généré par la désintégration bêta du ²⁴¹Pu, et a été introduit d'une facon 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. Nous avons récemment pu mettre en évidence que le plutonium a un temps moyen de rétention de 40 (±14) ans dans le squelette humain, suite à l'inhalation des retombées radioactives des tests nucléaires en atmosphère¹.

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 2²). Par conséquent, la mesure du plutonium et de l'américium au niveau de traces dans l'environnement est indispensable à la compréhension des mécanismes de mobilisation. Pour cela, des sols, des sédiments, de l'eau et des filtres à air ont été analysés.

Tableau 2:

Propriétés chimiques des actinides dans l'environnement. Les constantes de stabilté 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)². Colonne 5: tendance d'adsorption à des surfaces telles que les colloïdes.

Elé- ment	Espèce aqueuse	log(K) M(OH)	log(K) Mox	Sorption aux col- loïdes
Pu	Pu ³⁺	7	6.5	+++
	Pu⁴+	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 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 échantillons³. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur des disques d'acier⁴, et les sources sont mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS. La performance de la méthode en 2011 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). La procédure est décrite en détails dans la référence bibliographique³.

¹ Froidevaux P., Bochud F., Haldimann M., Chemosphere 80(5), 519-524 (2010)

² Pearson F.J.Jr., Berner U., Hummel W., Nagra Technical Report NTB 91-18 (1992).

³ Luisier F, Corcho Alvarado JA, Steinmann P, Krachler M, Froidevaux P., J. Radioanal. Nucl. Chem. 281, 3: 425-432 (2009).

⁴ Bajo S., Eikenberg J., J. Radioanal. Nucl. Chem. 242, 3, 745-751 (1999).

Résultats

Les tableaux 3, 4 et 5 rapportent les principaux résultats obtenus en 2011. 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 et sédiments de Suisse. La couche analysée est de 0 - 5 cm. Lors de la mesure des sols, en plaine, l'activité en plutonium se situe entre 0.12 et 0.19 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 0.20 Bg/kg (plutonium) et 0.10 Bg/kg (américium). En montagne, l'activité en Pu peut s'élever au-dessus de 0.2 Bq/kg avec un maximum de 0.74 Bq/kg dans un sol d'Allmendhubel (Oberland bernois). Les valeurs élevées en Pu des sols de montagne s'expliquent principalement par des dépositions humides plus importantes en montagne qu'en plaine. Nous avons récemment pu mettre en évidence ce phénomène d'augmentation des dépositions de radioactivité (90Sr) avec l'altitude à l'échelle de l'Europe occidentale⁵ dans les produits laitiers. Comme indicateur de contamination anthropogénique, nous utilisons également le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu. Il faut préciser que le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu représente un coefficient entre deux éléments de chimie différente, donc de comportement potentiellement différent dans le sol et, plus particulièrement, dans les échantillons en équilibre avec une phase aqueuse, comme les sédiments, les plantes aquatiques et les poissons. Néanmoins, comme l'américium est issu de la désintégration radioactive bêta d'un isotope du plutonium (241Pu) on retrouve en général le même rapport entre ces isotopes (compris entre 0.3 - 0.5) dans les sols. On observe néanmoins des rapports ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu différents dans d'autres compartiments de l'environnement (ex. sédiments de Klingnau et Pratteln), en raison de coefficients de partition entre la phase liquide et les particules de sol ou de sédiments différents pour ces deux radioéléments, sans qu'il y ait pourtant d'apport supplémentaire par une contamination d'origine accidentelle.

 Fourcelot L., Steinmann P., Froidevaux, P., Chemosphere 66, 1571–1579 (2007).

Tableau 3:

Lieu	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu
		Sol plaine		
Arenenberg	0.19 ± 0.04	0.07 ± 0.02	0.04 ± 0.02	0.39 ± 0.10
Cadenazzo	0.12 ± 0.02	0.07 ± 0.02	0.03 ± 0.02	0.56 ± 0.16
Posieux	0.16 ± 0.04	0.07 ± 0.02	0.03 ± 0.02	0.46 ± 0.12
	Sols cent	rales nucléaires + PS	I + CERN	
Beznau	0.12 ± 0.04	0.06 ± 0.02	0.04 ± 0.04	0.54 ± 0.22
Gösgen	0.19 ± 0.04	0.08 ± 0.02	0.03 ± 0.02	0.44 ± 0.14
Leibstadt	0.17 ± 0.04	0.06 ± 0.02	0.02 ± 0.02	0.34 ± 0. 10
Mühleberg	0.16 ± 0.02	0.06 ± 0.02	0.05 ± 0.04	0.37 ± 0.12
ZWILAG	0.13 ± 0.02	0.06 ± 0.02	0.03 ± 0.04	0.49 ± 0.18
PSI-OASE	0.10 ± 0.02	0.05 ± 0.02	0.03 ± 0.04	0.47 ± 0.20
CERN	0.09 ± 0.02	0.04 ± 0.02	0.02 ± 0.02	0.47 ± 0.32
		Sols sites d'altitude		
Allmendhubel	0.74 ± 0.26	0.36 ± 0.28	0.03 ± 0.02	0.48 ± 0.20
Diesse	0.41 ± 0.06	0.16 ± 0.04	0.03 ± 0.02	0.41 ± 0.08
Fahrni	0.44 ± 0.20	0.19 ± 0.10	0.02 ± 0.02	0.41 ± 0.06
Gimmelwald	0.70± 0.08	0.30 ± 0.04	0.03 ± 0.02	0.43 ± 0.08
		Sédiments		
Hagneck	0.08 ± 0.02	0.03 ± 0.02	0.02 ± 0.02	0.40 ± 0.18
Pratteln	0.17 ± 0.04	0.03 ± 0.02	0.02 ± 0.02	0.17 ± 0.06
Klingnau	0.07 ± 0.02	0.06 ± 0.02	0.04 ± 0.04	0.90 ± 0.32
		Moyenne Suisse :	0.03 ± 0.02	0.45 ± 0.18

Plutonium et américium (Bg/kg de matière sèche) dans les sols (0-5 cm) et sédiments prélevés en Suisse en 2011.



Figure 1:

a) Activité du ²³⁸Pu en fonction de l'activité du ²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans 17 échantillons de sol (0 - 5cm) et sédiments prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2011.

b) Activité du ²⁴¹Am en fonction de l'activité du ²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans 17 échantillons de sol (0 - 5cm) et sédiments prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2011.

Le rapport isotopique moyen 241 Am/ $^{239+240}$ Pu est de 0.45 ± 0.18, et celui de 238 Pu/ $^{239+240}$ Pu est de 0.03 ± 0.01. Les rapports de l'accident du Tchernobyl et du global fallout sont aussi montrés pour comparaison.

La figure 1 illustre les rapports en ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les sols et sédiments de Suisse. Tous les échantillons sont regroupés autour d'une valeur (0.03 pour ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu, 0.4 ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu) représentative des rapports des retombées des essais nucléaires réalisés dans les années soixante et de la chute du satellite (source de ²³⁸Pu) SNAP-9A. Les moyennes observées en 2011 sont de 0.03 pour le rapport ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu et de 0.45 pour le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu. Ces rapports sont très différents de ceux observés lors de l'accident de Tchernobyl. On peut donc conclure que les apports de plutonium et d'américium par l'accident de Tchernobyl ont été négligeables en Suisse.

Tableau 4:

Mesures du plutonium et de l'américium dans les eaux (mBq/m³), les plantes aquatiques (mBq/kg) et les poissons (mBq/kg MS) prélevés en 2011

Lieu	Туре	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu			
Eaux (mBq/m ³)							
KKM (Mühleberg)	eau de pluie	0.26 ± 0.10	< DL	< DL			
Posieux (Fribourg)	eau de pluie	0.27 ± 0.12	< DL	< DL			
Rhin (Pratteln)	eau de rivière (2010)	8.0 ± 1.2	4.6 ± 0.9	0.57 ± 0.14			
Rhin (Pratteln)	eau de rivière (2011)	1.8 ± 0.6	1.9 ± 0.4	1.0 ± 0.4			
Rhône (Genève)	eau de rivière	1.6 ± 0.4	0.6 ± 0.2	0.36 ± 0.18			
	Plantes Aquatiques (mBq/kg de matière sèche)						
Wohlensee		65 ± 18	15 ± 6	0.24 ± 0.12			
Pratteln		44 ± 30	23 ± 8	0.53 ± 0.42			
Hagneck		48 ± 18	9 ± 6	0.18 ± 0.16			
	Viande de Poisson et Mo	oules (mBq/kg de	matière sèche)				
Rhin (Leibstadt)	Poisson 2011	0.6 ± 1.0	< DL	< DL			
Dogern BRD	Poisson 2010	2.8 ± 0.8	2.7 ± 1.0	0.99 ± 0.46			
KKB (Beznau)	Poisson 2009	2.3 ± 0.4	0.4 ± 0.3	0.16 ± 0.13			
KKM (Mühleberg)	Poisson 2009	1.3 ± 0.4	3.5 ± 1.2	2.8 ± 1.4			
Aarau	Poisson 2009	1.1 ± 0.2	< DL	< DL			
Klingnau	Chair de moule 2009	24.6 ± 1.0	< DL	< DL			
Klingnau	Moules 2009	9.6 ± 3.6	6.9 ± 1.6	0.72 ± 0.44			

Lieu	Volume	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu
	Filtres	à air (nBq/m³)		
Klingnau	$V_{filtré} = 5'426'272 \text{ m}^3$	0.80 ± 0.12	0.36 ± 0.08	0.46 ± 0.12
Fribourg	$V_{filtré} = 500'934 \text{ m}^3$	0.51 ± 0.15	2.3 ± 1.0	4.5 ± 2.4
Mühleberg	$V_{filtré} = 534'397 \text{ m}^3$	0.64 ± 0.17	0.33 ± 0.23	0.51 ± 0.38
Jungfraujoch	$V_{filtré} = 239'274 \text{ m}^3$	3.0 ± 0.6	1.7 ± 0.8	0.57 ± 0.30
Posieux (Fribourg)	V _{filtré} = 1'609'085 m ³	1.3 ± 0.1	0.67 ± 0.26	0.52 ± 0.21

Tableau 5: Plutonium et américium dans les filtres à air (nBq/m³) prélevés en 2011.

Eaux, plantes aquatiques et poissons

Pour l'analyse des eaux (Tableau 4), 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 (< 3 mBq/m³) des eaux de pluie, de rivière et de surface (Tableau 4) sont faibles et sont comprises dans la gamme observée lors des années précédentes (< 10 mBq/m³). Les eaux du Rhône et du Rhin présentent une activité en plutonium et américium supérieure à l'eau de pluie car, de par la nature de son prélèvement, elle contient une forte charge en sédiments sur lesquels ces radioéléments sont adsorbés.

On constate ainsi que lorsque l'on s'éloigne du sol, des phénomènes de spéciation peuvent provoquer le fractionnement des différents radioéléments et une analyse seule du rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu peut induire une mauvaise interprétation des résultats. Ainsi dans le tableau 4, les rapports ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu des eaux de rivière (Rhin et Rhône) s'éloignent significativement du rapport attendu (0.4) sans pour autant indiquer une contamination supplémentaire par du combustible nucléaire. Le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu représente un coefficient entre deux éléments de chimie différente, donc de comportement potentiellement différent dans les eaux de rivière. On doit toutefois tenir compte du fait que cet échantillons d'eau n'est pas filtré et, après évaporation sur des prélèvements hebdomadaires, contient principalement des carbonates alcalino-terreux et des particules de sol en grande quantité. L'activité reflète donc plutôt celle des sédiments. Le fait que l'américium soit présent en excès par rapport au plutonium peut s'expliquer par une mobilité accrue du plutonium sous forme colloïdale.

Les activités en plutonium et en américium des plantes aquatiques, de la viande de poissons et de moules (Tableau 4) sont faibles (< 100 mBq/kg de matière sèche). Les organismes</p> aquatiques peuvent accumuler des transuraniens lors de l'interaction avec de l'eau, l'alimentation et l'exposition aux sédiments. L'accumulation peut se produire par l'assimilation ou par adsorption. En règle générale, l'américium a montré une biodisponibilité plus élevée que le plutonium⁶,⁷ et cela pourrait expliquer les rapports ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu élevés observés chez les poissons. En effet, le facteur de concentration dans le poisson, qui est exprimé comme le rapport de l'activité contenue dans la chair de poisson (Bq/kg) et celui de la concentration dans l'eau (Bq/I) est environ 5 fois plus élevé par rapport au plutonium.

Filtres à air

L'activité en plutonium et en américium des filtres à air (Tableau 5) reflète en général le phénomène de re-suspension des particules de sol⁸. En Suisse, nous étudions annuellement quatre sites (Fribourg, Klingnau, Mühleberg et Jungfraujoch) sur lesquels des prélèvements de filtres à air sont effectués de façon hebdomadaire. En 2011, un deuxième site à Fribourg (Posieux) a été étudié. 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 200'000 m³, ce qui permet une analyse à très bas niveau d'activité (nBq/m³). De manière générale, toutes les activités sont très faibles pour les sites de plaine (< 1 nBq/m³), sauf pour l'américium dans les filtres de Fribourg (2.3 nBq/m³). On notera qu'une légère augmentation de l'activité en américium des filtres à air de Fribourg avait également été observée entre 2002 et 2010, probablement due au phénomène d'incinération involontaire de détecteurs d'incendie. Le plutonium, qui n'est pas utilisé dans des applications industrielles, ne pré-

⁶

Aarkrog A, Boelskifte S, Dahlgaard H, Duniec S, Holm E, Smith J. J Radioanal. Nucl. Chem.;115: 39-50 (1987). Livingstone H, Bowen V. In: Hardy E. (ed.). Healthand Safety Laboratory Environmental Quarterly. HASL-315. Springfield, Virgiania, National Tech-7 nical Information Service (1977).

Corcho Alvarado J.A., P. Froidevaux, F. Luisiser, F. Barraud, J. Dlala, A. Savary, F. Bochud, Rapport OFSP (2009).

sente pas d'augmentation d'activité dans les filtres à air. Son activité moyenne à Fribourg entre 1994 et 2010 est de 1.0 ± 0.5 nBq/m³. Ces valeurs sont représentatives d'une activité dans les filtres à air provenant de la resuspension de particules de sol dans l'air. Le site du Weissfluhjoch, analysé pendant les dix dernières années, a été abandonné car, d'une part, la station météo n'est plus en activité et d'autre part le système de prélèvement d'air présentait une contamination à l'américium due à l'incinération à proximité de la prise d'air de déchets de chantier contenant un (ou des) détecteur d'incendie à l'américium⁸.

Conclusions

Les analyses de plutonium et d'américium dans l'environnement en 2011 n'ont pas revélé d'activité inattendue. Les mesures de plutonium et d'américium dans les échantillons de sol et sédiments 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 ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu 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 ²³⁸Pu. Les résultats obtenus dans des compartiments de l'environnement autres que le sol montrent que le rapport isotopique ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu est un bon indicateur de l'origine de la contamination mais que le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu doit être utilisé avec précaution car ces deux éléments sont susceptibles de fractionnement au cours du processus de mobilisation et d'incorporation dans les organismes vivants.