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)

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: 29.09.2025

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 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 ^{14}C-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 ^{14}C-Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C-Quellen und -Verdünnungen wurde aus den August- und Oktoberwerten ein Mittelwert errechnet. Es resultierte für die Zeit der Probenahmen 2011 ein $\Delta^{14}C$-Referenzwert von 30 ± 4‰.

Die 87 auf ^{14}C 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 μSv (10^{-6} Sievert = 1 μSv) in einem Jahr. 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 in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}Kr, 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 ^{85}Kr auf konstantem Niveau. Die aktuellen Konzentrationen von ^{37}Ar 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 ^{14}C-Messungen wurden an der Universität 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) $^{14}A_0 = (13.56 \pm 0.07)\ dpm/gC = (0.226 \pm 0.001)\ Bq/gC$

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 kompensiert. Nur lokal manifestiert sich die als "Süss"- 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 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) $\Delta^{14}C_{Ref,\ 2011} = 30 \pm 4$ [‰]

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 -Verdünnungen (Netto $\Delta^{14}C < 0$) hin.

Aufbereitung von Laubproben für die ^{14}C-Messung

Es gelangen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

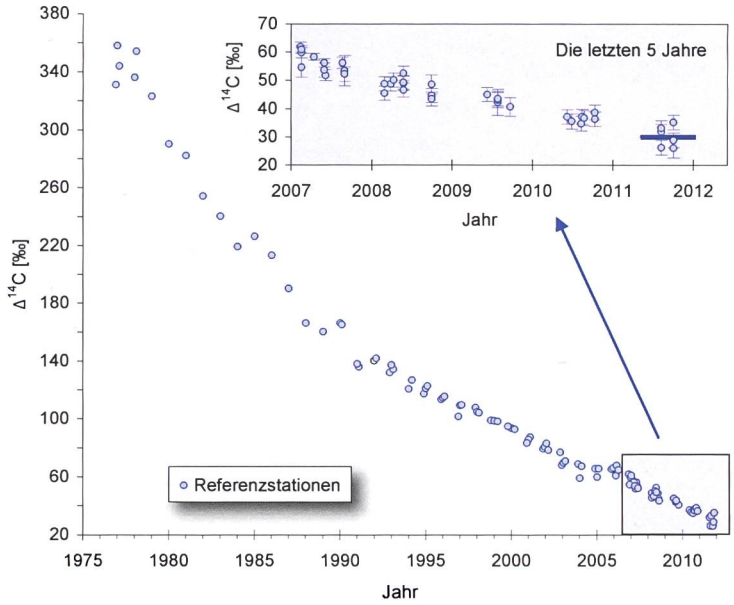
- **Methode A:** ^{14}C-Bestimmung nur in der Blattkohle [1]
- **Methode B:** ^{14}C-Bestimmung im ganzen Blatt

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 2011 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	$\Delta^{14}C$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juni	Aug.	Okt.			
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:
$\Delta^{14}C$-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 ^{14}C-Gehaltes verloren sind.

Kernkraftwerk Leibstadt

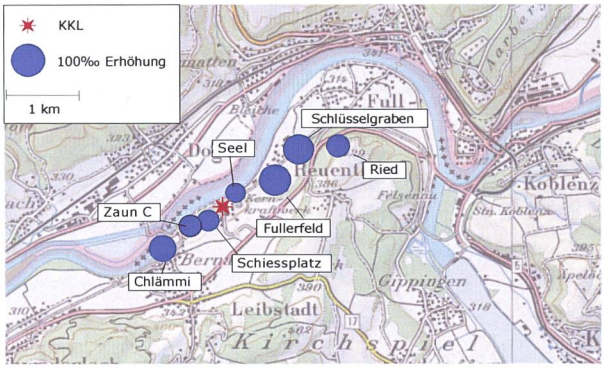
Im Sommer 2011 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste ^{14}C-Konzentration ergab sich in 500-1000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher 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 $\Delta^{14}C$-Höchstwerte an diesen Standorten seit Messbeginn. Im Jahre 2005 musste das Atomkraftwerk während 5 Monaten stillgelegt werden. Deutlich geringere ^{14}C-Konzentrationen waren die Folge. Der grösste 2011 gemessene Netto $\Delta^{14}C$-Wert liegt mit 88 ‰ deutlich unterhalb den Werten der letzten Jahre.

Kernkraftwerk Gösgen

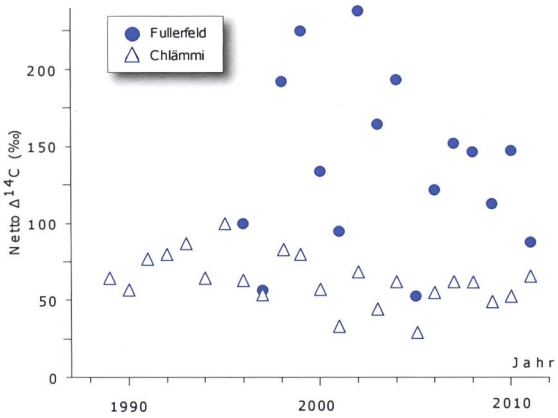
In der Figur 4 sind die Resultate der am 6. Juli 2011 gewonnenen Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste ^{14}C-Messwert resultierte in diesem Jahr nicht am Standort Schachen, sondern östlich des KKG am Standort Aarfeld und liegt 39 ‰ höher als an unbelasteten 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 $\Delta^{14}C$-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

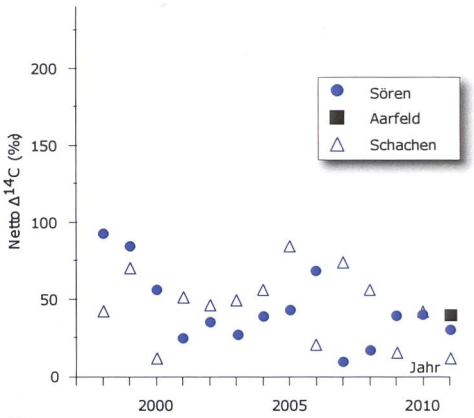


Figur 2:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) für 2011. Probenahme: 2.8.2011. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

Figur 4:
Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Probenahme: 6.7.2011. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 3:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte nordöstlich (•) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt. (Standorte: siehe Figur 2).

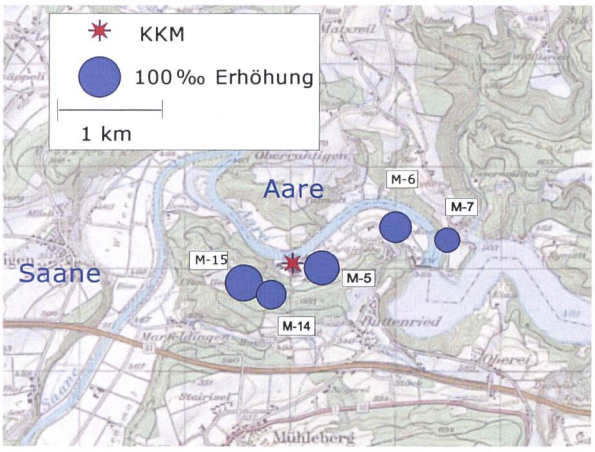


Figur 5:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte östlich (• ■) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. Im Jahre 2011 wurden die Werte von Sören und Schachen am Standort Aarfeld (■) leicht übertroffen (Standorte: siehe Figur 4).

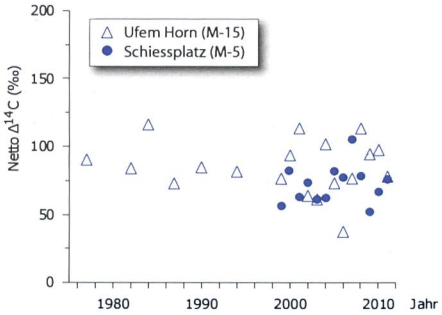
in den Jahren 2006, 2008 und 2010 die höchsten Werte östlich des KKG gemessen. In den übrigen Vorjahren wurden Höchstwerte am westlich gelegenen Standort Schachen festgestellt.

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 $\Delta^{14}C$-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 ^{14}C-Konzentration nochmals um 10 ‰. Bei einem ähnlichen Betriebsunterbruch im Jahre 2005 beim Kernkraftwerk Leibstadt resultierte ein deutlich stärkerer Abfall der ^{14}C-Konzentration. Allerdings dauerte der Stillstand damals 2 Monate länger.



Figur 6:
Netto $\Delta^{14}C$-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 $\Delta^{14}C$-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 ^{14}C-Konzentration kam, ist nicht klar.

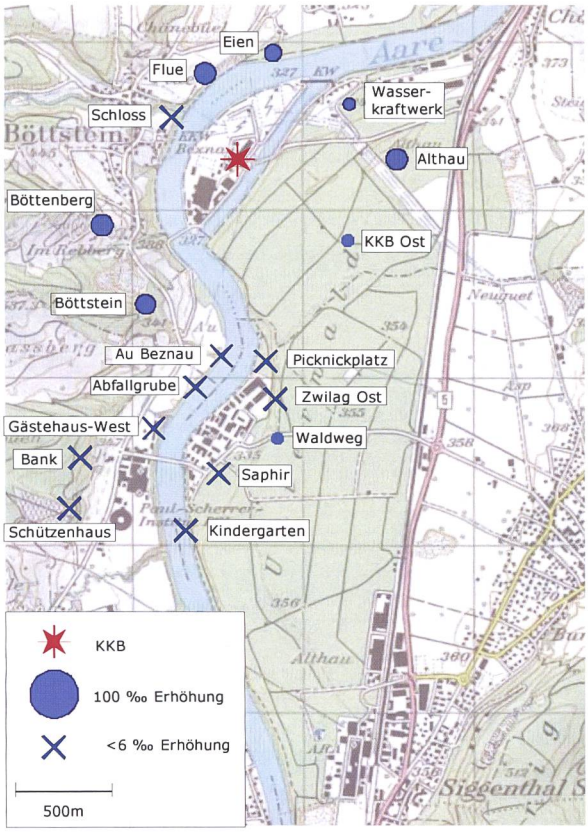
Alle 2011 gemessenen Proben liegen deutlich unter den seit Messbeginn im Jahre 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116 ‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

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

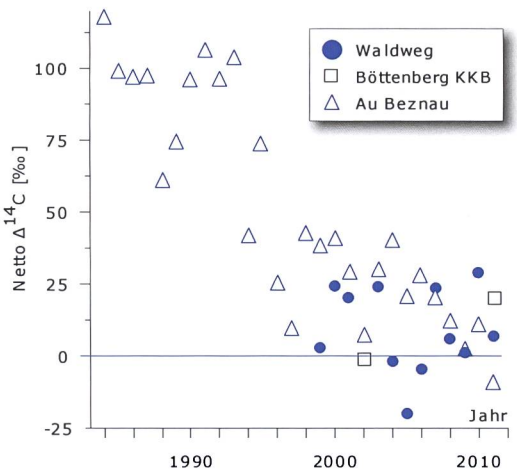
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau

Die zu diesen Standorten gehörenden ^{14}C– und $\delta^{13}C$-Messungen in den Blattproben wurden am PSI sowie an der Universität Bern durchgeführt. Die Messunsicherheit für die $\Delta^{14}C$-Werte beträgt 4 bis 6 ‰. In der Umgebung des PSI konnten keine erhöhten $\Delta^{14}C$-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 $\Delta^{14}C$-Werte betrugen 20 ‰.

In der Figur 9 sind Zeitreihen von Standorten mit erhöhten Messwerten aufgezeigt. Ganz deutlich sichtbar ist der immer kleiner werdende ^{14}C-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 $\Delta^{14}C$-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.



Figur 9:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte östlich (•) und westlich (Δ) des PSI/Zwilag sowie des Kernkraftwerks Beznau (□) seit Messbeginn (Standorte: siehe Figur 8).

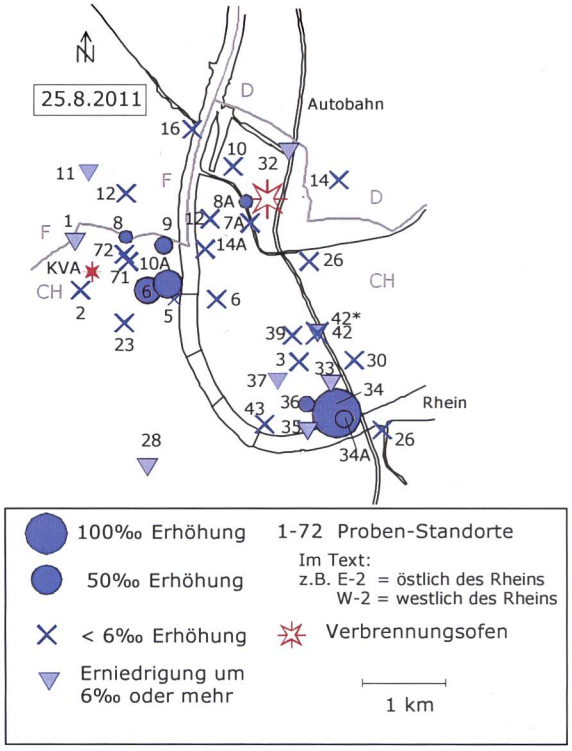
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

Es wurden in Blättern von Bäumen im Umfeld der Verbrennungsanlagen keine erhöhten ^{14}C-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.

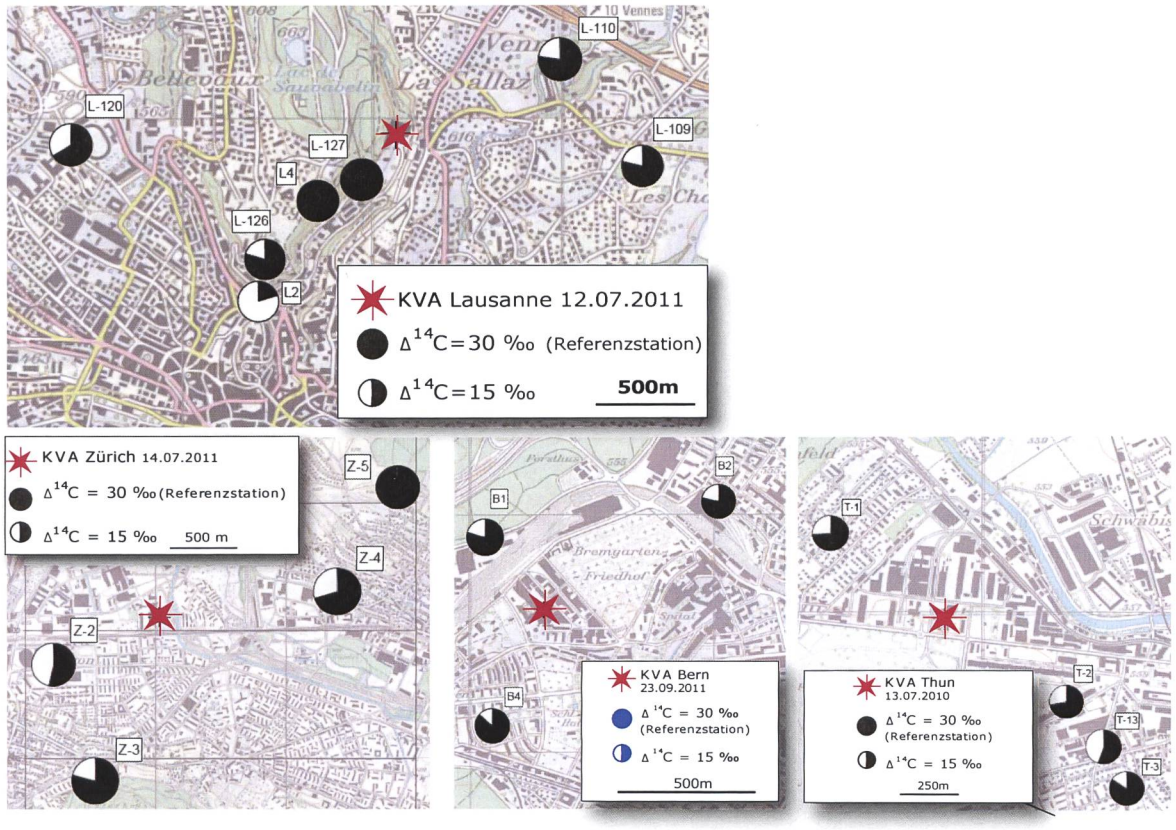
Die vorliegenden Ergebnisse zeigen ein ähnliches Bild wie im Vorjahr (siehe Figur 10).

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.



Figur 11:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

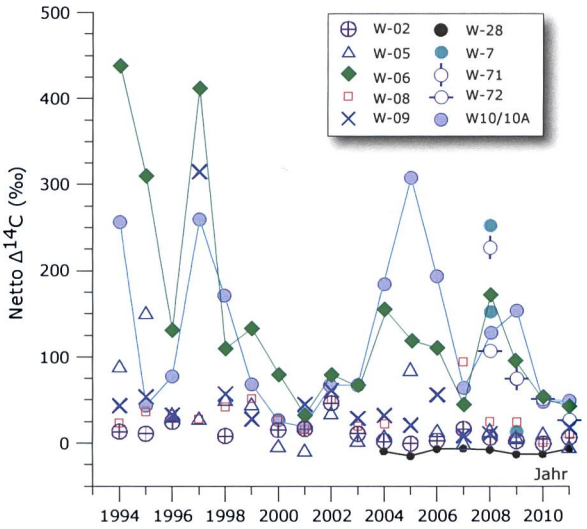


Figur 10:
$\Delta^{14}C$-Messungen in der Umgebung der KVA Lausanne, Zürich, Bern und Thun.

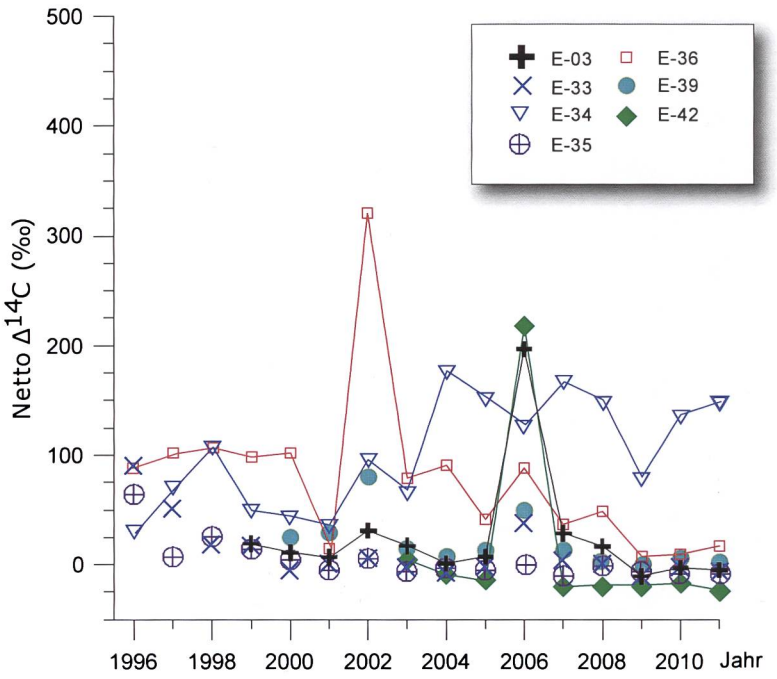
Im Juli, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Bei der Blattverkohlung allenfalls flüchtige Kohlenwasserstoffe werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen 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 $\Delta^{14}C$-Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Am Standort W-28 wird die ^{14}C unbelastete Stadtluft gemessen. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}C$-Wert eingetragen.



Figur 13:
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}C$-Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}C$-Wert eingetragen.

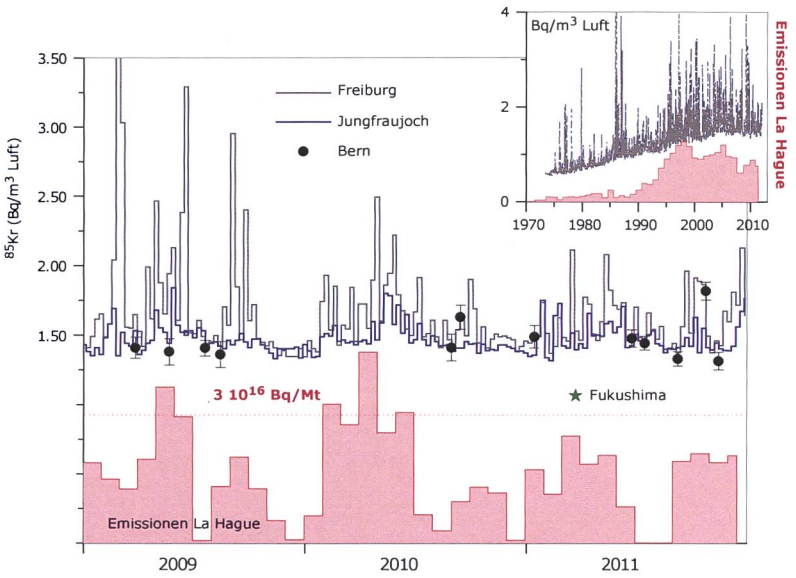
Tabelle 2:
Im Jahre 2011 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2010) am Standort Basel östlich (E-..) und westlich (W-..) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von ^{14}C-Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.*

Ort	In der Blattkohle			Im ganzen Blatt		
	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2011 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 1994 - 2010 [‰]		Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2011 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert 2004 - 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 (^{85}Kr)

^{85}Kr wird überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen freigesetzt. Aufgrund der langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren reichert sich ^{85}Kr 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 ^{85}Kr in den letzten Jahren erstmals seit Jahrzehnten wieder ab, was zu einer Stabilisierung oder leichten Abnahme der atmosphärischen Basisaktivität von derzeit 1.45 Bq/m^3 Luft geführt hat (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 Hague[2] 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.



Figur 14:
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 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 10^{16} Bq/Monat.

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 ^{85}Kr. Wegen der vergleichsweise hohen Hintergrundaktivität von ^{85}Kr (siehe oben) hatten diese zusätzlichen Emissionen aber praktisch keinen Einfluss auf die gemessenen Aktivitätskonzentrationen in Europa (im Gegensatz etwa zu ^{133}Xe, ^{134}Cs, ^{137}Cs oder ^{131}I). 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.

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

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

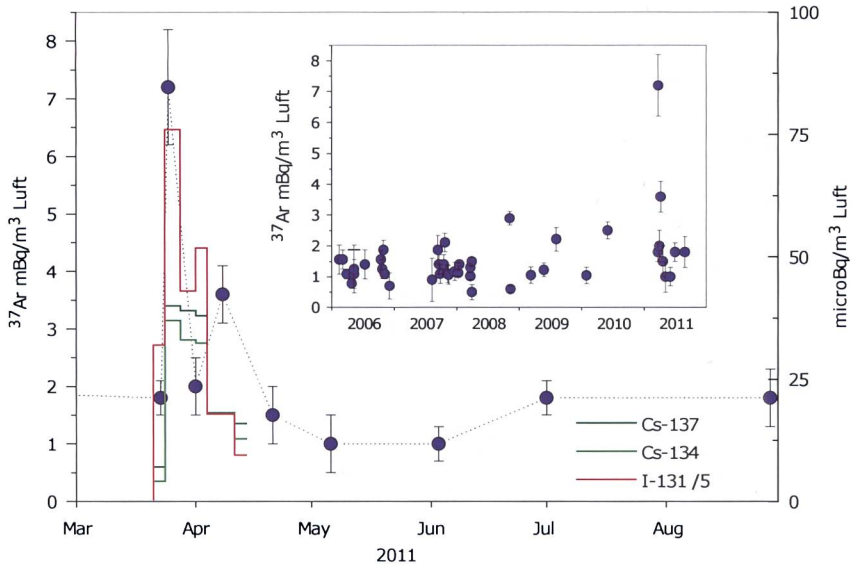
5 Stohl A., Seibert P., Wotawa G., Arnold D., Burkhart J. F., Eckhardt S., Tapia C., Vargas A., and Yasunari T. J. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Daiichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition, Atmospheric 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

Argon-37 (^{37}Ar)

^{37}Ar wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion $^{40}Ar(n,4n)^{37}Ar$ 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 ^{37}Ar Aktivitätsspitzen bis 8-10 mBq/m³ Luft erwarten[7]. Künstlich produziertes ^{37}Ar in messbaren atmosphärischen Konzentrationen bedarf hoher Neutronenflüsse, wie sie im Allgemeinen nur bei nuklearen Testexplosionen auftreten. Insbesondere bei unterirdischen Tests können grosse Mengen ^{37}Ar durch die Reaktion ^{40}Ca (n, α) ^{37}Ar 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 ^{37}Ar 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 ± 2 mBq/m³ 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 ^{37}Ar Aktivitäten mit ^{134}Cs, ^{137}Cs und ^{131}I Messungen des BAG (Entnahmestation bei Genf), so fällt die gute zeitliche Korrelation auf. Innerhalb eines Reaktordruckgefässes ist aber keine derart hohe ^{37}Ar Produktion zu erwarten, um ein global messbares Signal zu erzeugen. Das liegt im Wesentlichen am Fehlen des Targetnuklids Kalzium. Gemäss den ausführlichen Analysen in[5] stammen die Emissionen, welche die Aktivitätsspitze um den 25. März verursachten und in ganz Europa nachgewiesen konnten[10,11] (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 ^{37}Ar-Produktion führen. Die rasche Abnahme der Aktivitäten in Figur 15 wäre durch das Einsetzen der Kühlung mittels Wasserwerfern zu erklären[5]. Da nur ein einziger erhöhter ^{37}Ar Wert gemessen wurde und ähnliche Analysen an anderen Labors nicht durchgeführt werden, kann die Ursache für diesen erhöhten ^{37}Ar Wert am 25.3.2012 aber nicht schlüssig identifiziert werden.



Figur 15:
^{37}Ar 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 ^{134}Cs, ^{137}Cs und ^{131}I 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 $^{239+240}$Pu 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 ($^{239+240}$Pu) et 0.1 Bq/kg (^{241}Am), et montrent un rapport d'activité d'environ 0.03 pour ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu et 0.45 pour ^{241}Am/$^{239+240}$Pu. La moyenne du rapport isotopique ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu de 0.03 ± 0.01 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 0.45 ± 0.18 en moyenne. L'activité en $^{239+240}$Pu et ^{241}Am des filtres à air analysés en 2011 est très faible (< 3 nBq/m^3). 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 en $^{239+240}$Pu (< 100 mBq/kg de matière sèche) et en ^{241}Am (< 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 ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu 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 ^{241}Am/$^{239+240}$Pu 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).

7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement - @OFSP 2012

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 ^{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. 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 atmosphère[1].

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[2]). 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	+++
	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 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[3]. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur des disques d'acier[4], 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 bibliographique[3].

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 Bq/kg (plutonium) et 0.10 Bq/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 (^{90}Sr) avec l'altitude à l'échelle de l'Europe occidentale[5] dans les produits laitiers. Comme indicateur de contamination anthropogénique, nous utilisons également le rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$. Il faut 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 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 (^{241}Pu) on retrouve en général le même rapport entre ces isotopes (compris entre 0.3 - 0.5) dans les sols. On observe néanmoins des rapports $^{241}Am/^{239+240}Pu$ 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.

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

Tableau 3:
Plutonium et américium (Bq/kg de matière sèche) dans les sols (0-5 cm) et sédiments prélevés en Suisse en 2011.

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 centrales nucléaires + PSI + 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**

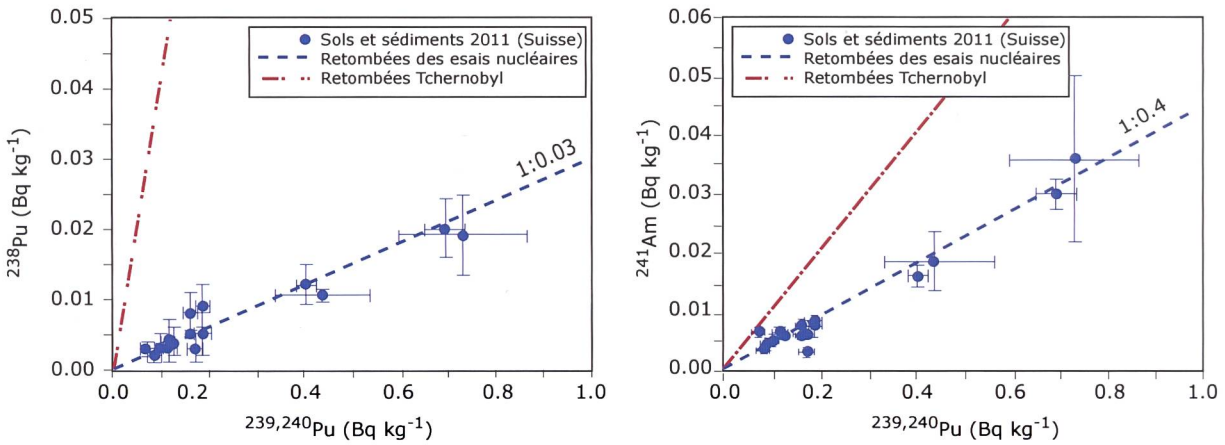


Figure 1:
a)Activité du ^{238}Pu en fonction de l'activité du $^{239+240}$Pu dans 17 échantillons de sol (0 - 5cm) et sédiments prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2011.
b) Activité du ^{241}Am en fonction de l'activité du $^{239+240}$Pu dans 17 échantillons de sol (0 - 5cm) et sédiments prélevés 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 ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu et ^{241}Am/$^{239+240}$Pu dans les sols et sédiments de Suisse. Tous les échantillons sont regroupés autour d'une valeur (0.03 pour ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu, 0.4 ^{241}Am/$^{239+240}$Pu) 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 2011 sont de 0.03 pour le rapport ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu et de 0.45 pour le rapport ^{241}Am/$^{239+240}$Pu. 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	Type	^{239,240}Pu	^{241}Am	^{241}Am/^{239,240}Pu
Eaux (mBq/m³)				
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 Moules (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

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

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

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 $^{241}Am/^{239+240}Pu$ peut induire une mauvaise interprétation des résultats. Ainsi dans le tableau 4, les rapports $^{241}Am/^{239+240}Pu$ 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 $^{241}Am/^{239+240}Pu$ 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 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 plutonium[6,7] et cela pourrait expliquer les rapports $^{241}Am/^{239+240}Pu$ 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/l) 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 sol[8]. 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).
7 Livingstone H, Bowen V. In: Hardy E. (ed.). Healthand Safety Laboratory Environmental Quarterly. HASL-315. Springfield,Virgiania, National Technical Information Service (1977).
8 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'américium[8].

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 $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ 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 et d'incorporation dans les organismes vivants.