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: - (2012)

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: 03.07.2025

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 2012
Résultats 2012

7

Messung von Spezialnukliden

Mesures de nucléides spéciaux

7.1 Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37	**98**
Zusammenfassung	98
Kohlenstoff-14	98
Kernkraftwerk Leibstadt	100
Kernkraftwerk Mühleberg	101
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau	102
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	103
Krypton-85 (^{85}Kr)	105
Argon-37 (^{37}Ar)	106
7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement	**107**
Résumé	107
Introduction	108
Méthode de séparation chimique	108
Résultats	108
Conclusions	112

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

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

C. Schlosser, M. Konrad und S. 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 2012 weitergeführt. Aus ^{14}C-Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C-Quellen und -Verdünnungen wurde aus den Werten während der Vegetationszeit (Mai – September) ein Mittelwert errechnet. Es resultierte für die Zeit der Probenahmen 2012 ein $\Delta^{14}C$-Referenzwert von 30 ± 2‰.

Die 96 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -24‰ bis maximal +109‰ von diesem Referenzwert. Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von -0,4 bis +2 µSv (1 µSv = 10^{-6} Sievert) 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 Krypton-85 und Argon-37 werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}Kr, freigesetzt bei der Wiederaufbereitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.8 Jahren und den lange Zeit 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 2012 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juni, August und September gesammelten Blätter.

(3) $\Delta^{14}C_{Ref,\ 2012} = 30 \pm 2$ [‰]

Die Differenz

(4) Netto $\Delta^{14}C = \Delta^{14}C_{Probe} - \Delta^{14}C_{Ref,\ 2012}$

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

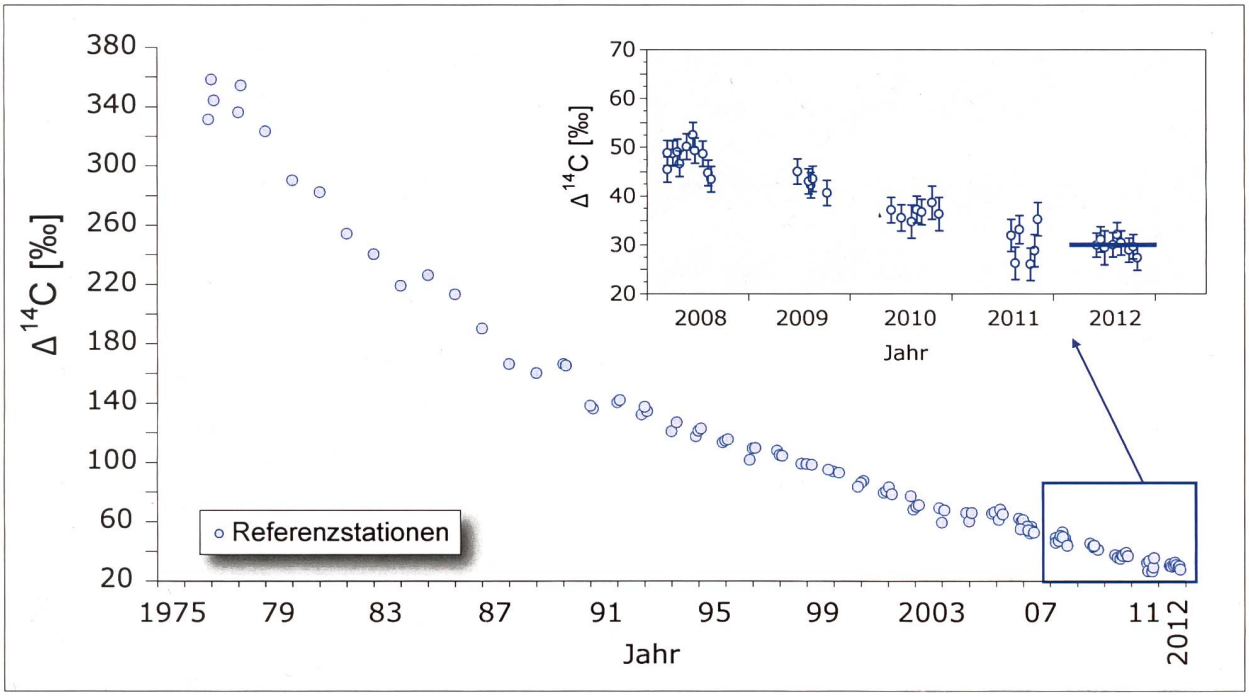
An der Referenzstation ergaben Messungen an der Blattkohle (Methode A) im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt (Methode B) Unterschiede von weniger als 4‰. An belasteten Standorten können die Unterschiede zwischen den Resultaten der nach den Methoden A und B aufbereiteten Proben jedoch grösser sein.

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.

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

Tabelle 1:
Messwerte 2012 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	$\Delta^{14}C$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	30	32	30	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald
Belpberg	31	30	29	606050 / 190800	825	Rotbuche auf Krete
Ballenbühl	29	30	27	612550 / 192800	852	2 Linden freistehend

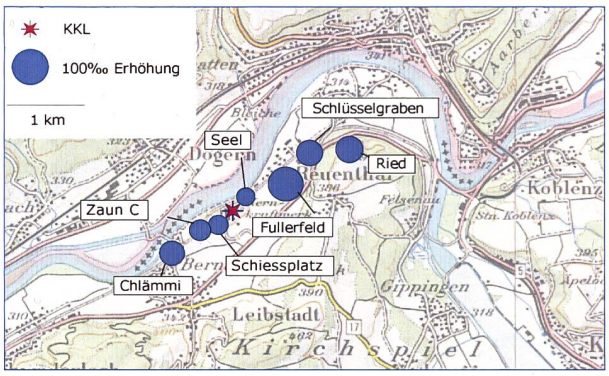


Figur 1:
$\Delta^{14}C$-Werte in Buchen- und Lindenblättern von den Referenzstationen. Die blaue Linie zeigt den bestimmten Referenzwert während der Vegetationzeit.

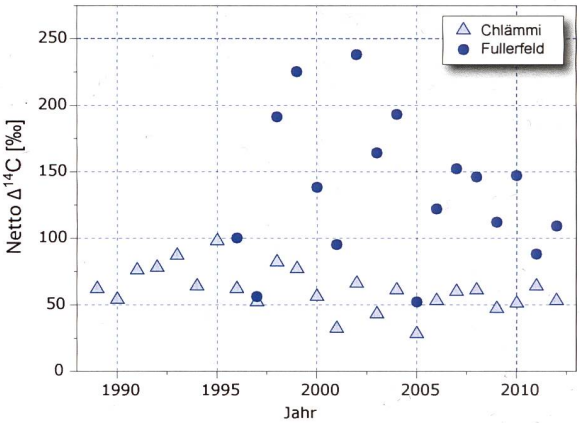
Mit 30 ± 2 ‰ ist der Referenzwert praktisch identisch mit dem des Vorjahres (30 ± 4‰). Einzig die Streuung der einzelnen Werte war 2011 deutlich grösser.

In den Jahren 2004 – 2006 wurde in den Blättern ein konstanter ^{14}C-Level gemessen. Dies wiederholt sich nun in den Jahren 2011 und 2012. Möglicherweise bremsen besonders warme Jahre die jährliche $^{14}CO_2$ -Abnahme in der Atmosphäre. Das könnte verursacht sein durch eine geringere Aufnahme von $^{14}CO_2$ im Ozean, der in wärmeren Jahren eine verstärkte Stratifizierung der obersten Wasserschichten aufweist. Man würde in diesem Fall auch einen verstärkten Anstieg von CO_2 in der Atmosphäre erwarten. Das ist konsistent mit der Beobachtung von verstärkten Anstiegsraten von CO_2 während El Niño Jahren und verringerten Raten bei Abkühlungen (z.B. Pinatubo Eruption).

Jahre mit konstantem Level während der Vegetationszeit hat auch die Universität Heidelberg (D) festgestellt. Dort wird der ^{14}C-Gehalt allerdings in der Luft und nicht in Blättern gemessen. An der deutschen Referenzstation Schauinsland, im Schwarzwald, wurden in den Jahren 2005 – 2006 sowie 2010 – 2011 ebenfalls konstante ^{14}C- Konzentrationen gemessen.



Figur 2:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2012. Probenahme: 27.7.2012. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

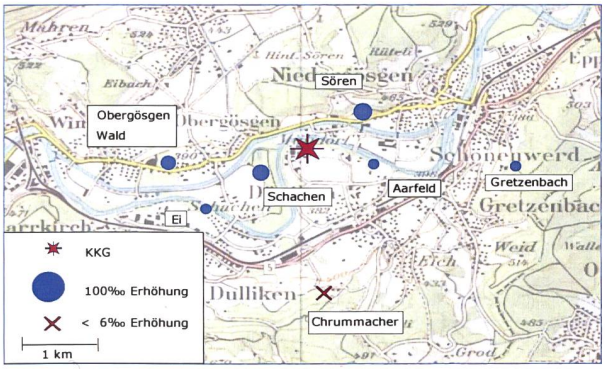


Figur 3:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte nordöstlich (•) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. Der Standort Fullerfeld wird seit 1996, derjenige von Chlämmi seit 1989 beprobt. (Standorte: siehe Figur 2).

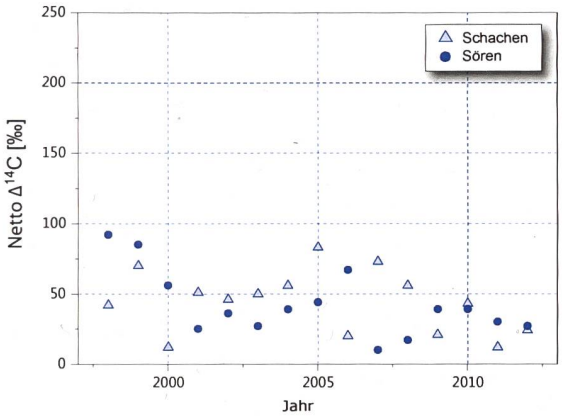
Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2012 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. Der Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwert verringerte sich gegenüber dem Vorjahr von 193 ‰ auf 52 ‰. 2012 lag der höchste Wert bei 109 ‰. Der grösste gemessene Netto $\Delta^{14}C$-Wert seit Messbeginn betrug 238 ‰ (2002).



Figur 4:
Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Probenahme: 10.7.2012. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

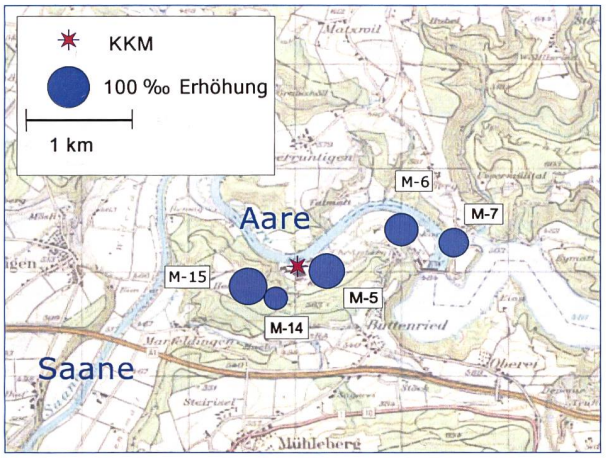


Figur 5:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte östlich (•) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen.

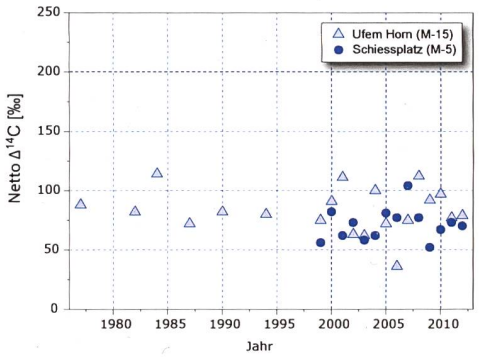
Kernkraftwerk Gösgen

In der Figur 4 sind die Resultate der am 10.7.2012 gewonnenen Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerks Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste ^{14}C-Messwert resultierte in diesem Jahr mit 28 ‰ am Standort Schachen. Er ist 11 ‰ geringer als der Höchstwert des Vorjahres (Standort Aarfeld). Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert bei Chrummacher ist identisch mit den Werten der unbelasteten Referenzstandorte.

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 in der gleichen Windrichtung.



Figur 6:
Netto $\Delta^{14}C$-Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2012. Probenahme: 26.7.2012. Die Kreisflächen sind proportional zur 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).

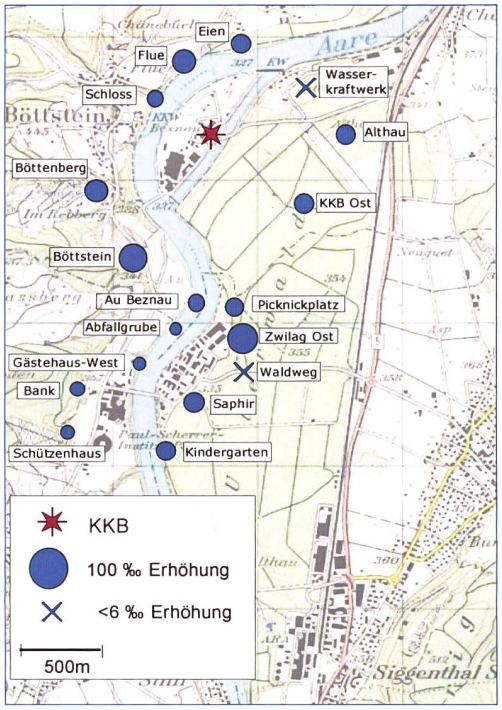
Kernkraftwerk Mühleberg

Die in Figur 6 mit Symbolen 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 blieb wie im Vorjahr bei 80 ‰.

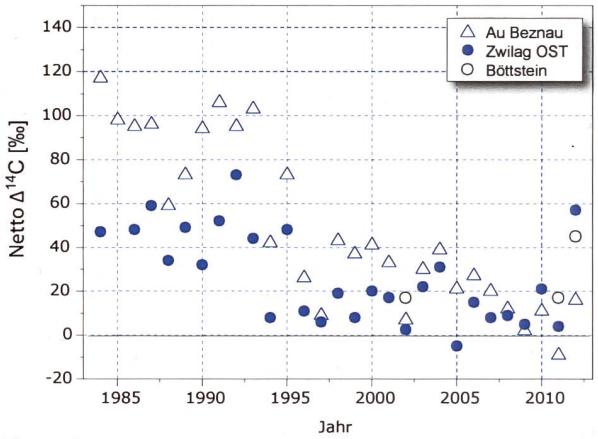
In der entgegengesetzten Windrichtung betrug der höchste Messwert am Standort M-5 Schiesspatz 71 ‰ gegenüber 77 ‰ im Vojahr.

Alle 2012 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, einem Jahr mit sehr heissen Sommermonaten.



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 2012 (J. Eikenberg, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



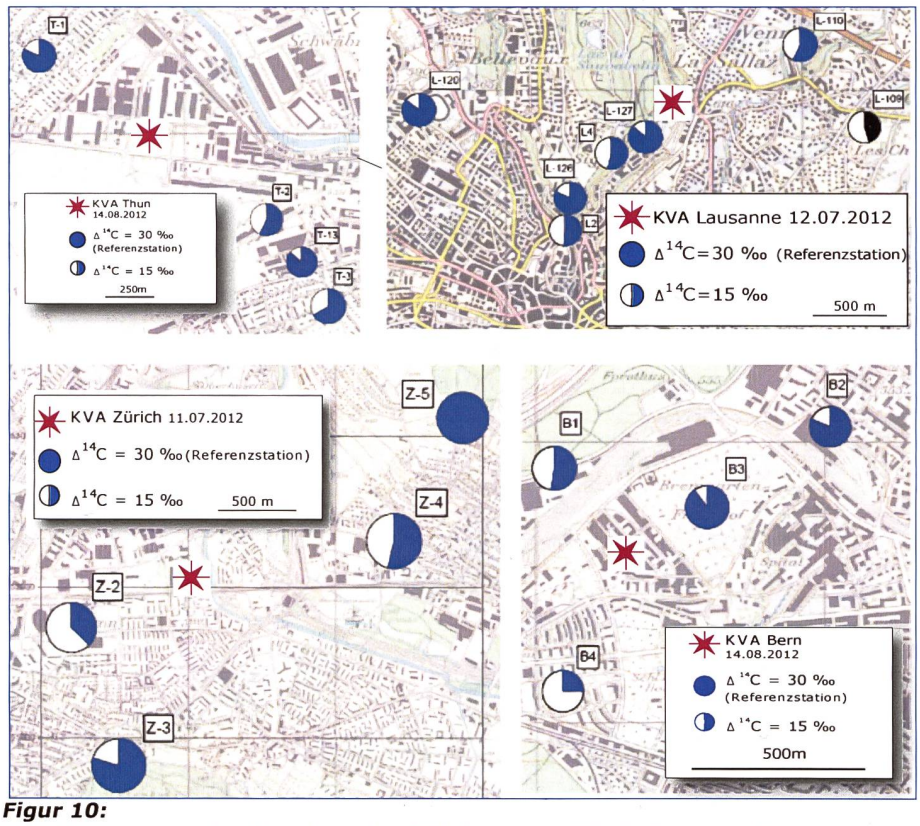
Figur 9:
Netto $\Delta^{14}C$-Höchstwerte östlich (•) und westlich (O) des PSI/Zwilag sowie des Kernkraftwerks Beznau (Δ) seit Messbeginn (Standorte: siehe Figur 8).

Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk 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 ‰. Die Werte in der Umgebung PSI/ZWILAG sind gegenüber dem Vorjahr, von einer Ausnahme abgesehen (Standort Waldweg) generell angestiegen. Sie liegen 9 - 57 ‰ höher als der Referenzwert. Der Standort ZWILAG Ost (57‰) ist allerdings mit einer hohen Messunsicherheit behaftet (± 27‰). Der höchste Messwert stammt aus dem Jahre 1986. Damals ist am Standort Saphir ein um 1023‰ erhöhter Wert festgestellt worden.

Der Standort Böttstein im Einflussbereich PSI/ZWILAG/KKB zeigt mit 45 ‰ ebenfalls eine Erhöhung an. Sonst liegen die Messwerte rund um das KKB bei 15 - 32‰.

In der Figur 9 sind Zeitreihen von Standorten mit erhöhten Messwerten aufgezeigt. Es wurden 2012 keine negativen Werte ermittelt.



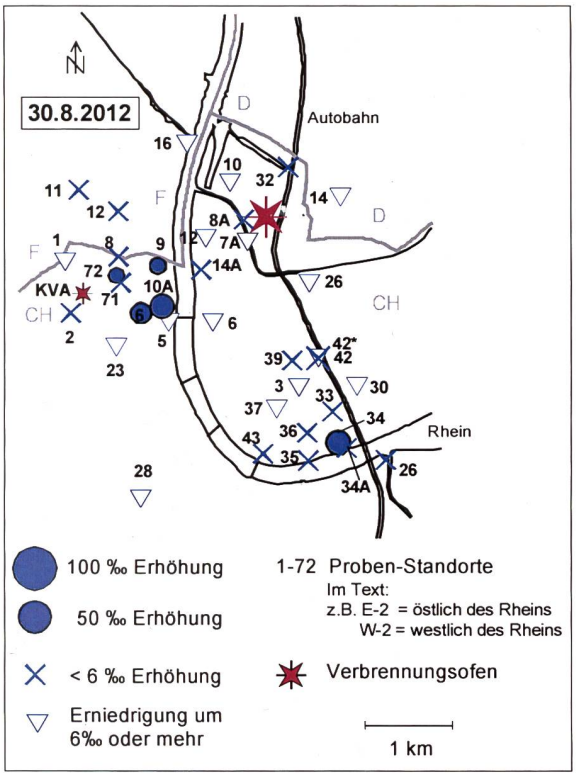
Figur 10:
$\Delta^{14}C$-Messungen in der Umgebung der KVA Lausanne, Zürich, Bern und Thun.

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 liess sich erstmals nicht in Lausanne, sondern mit -23 ‰ in Bern (B-4, Stampflistrasse) messen. Der Standort in Zürich (Z-5, Pfadiheim) entspricht auch in diesem Jahr den Verhältnissen, wie sie bei den unbelasteten Referenzstationen auzutreffen sind.

Messungen in der Region Basel-Stadt

Wie üblich fand die Hauptprobenahme 2012 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 im August gemessen, und zwar westlich des Rheins (W-10A) mit +25 ‰ und östlich des Rheins (E-34) mit +26 ‰. Die ^{14}C-Konzentrationen sind relativ tief. Hinzu kommen 3 weitere Standorte mit geringfügig erhöhten Werten. Auffallend ist zudem, dass sich die Anzahl der Erniedrigungen um > 6 ‰ gegenüber dem Vorjahr von 6 auf 14 erhöht hat (siehe Figur 11 / Symbol ▽). Auf der französischen, wie auch auf der deutschen Seite wurden im Raum Basel keine Erhöhungen registriert.

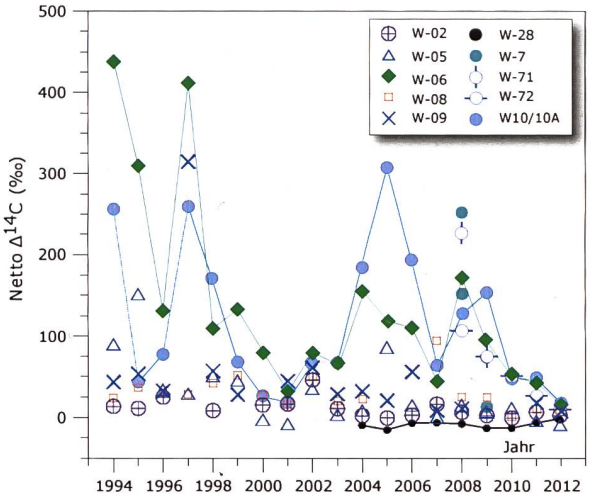


Figur 11:
Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

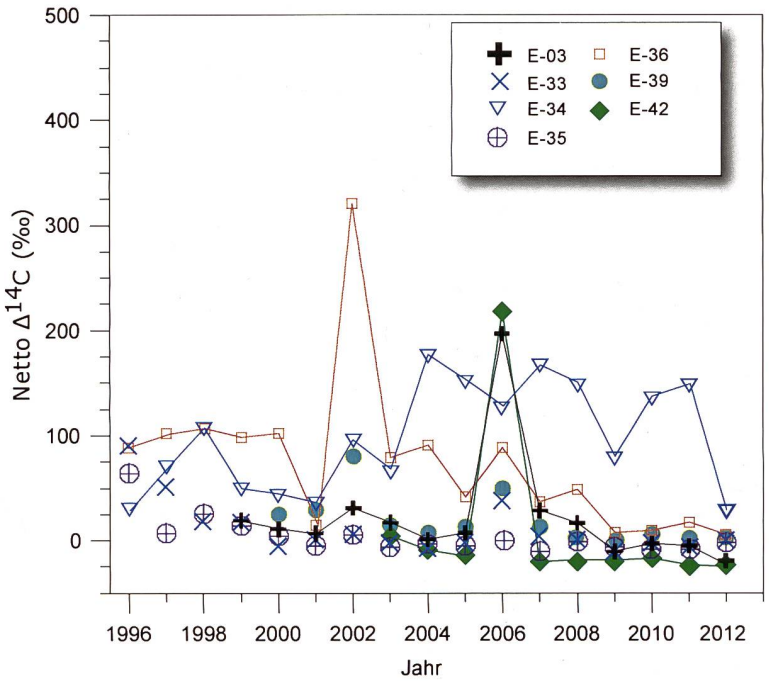
Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Bei der Blattverkohlung allenfalls flüchtige Kohlenwasserstoffe werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen 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 2012 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.

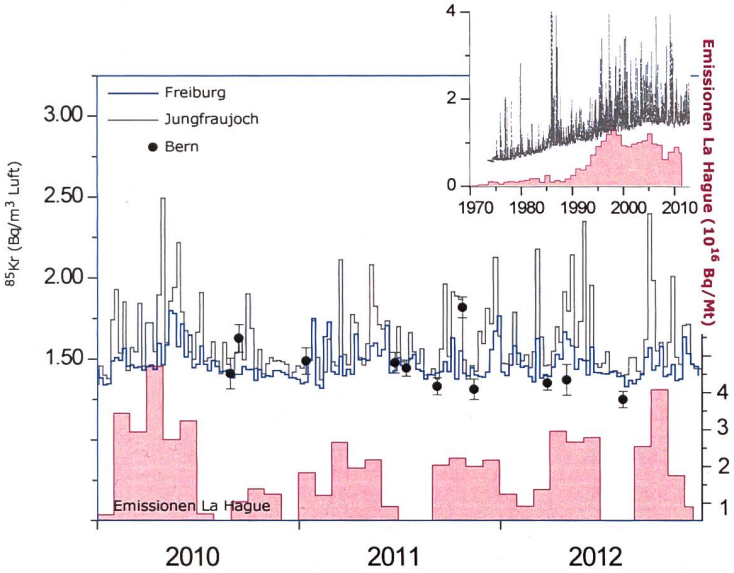
Tabelle 2:
Im Jahre 2012 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}C$-Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2011) am Standort Basel östlich (E-..) und westlich (W-..) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von ^{14}C-Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.*

Ort	In der Blattkohle			Im ganzen Blatt		
	2012 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]	1994-2011 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]		2012 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]	2004 - 2011 Höchster Netto $\Delta^{14}C$-Wert [‰]	
E-03	-22	197	(2006)	-	23	(2007)
E-10	-14	251	(1997)	-	-	
E-26	-16	169	(1996)	-	-	
E-34	22	106	(1998)	26	173	(2004)
E-42	-24	4	(2003)	-	-	
E-42*	0	218	(2006)	-	-	
W-06	7	438	(1994)	24	172	(2008)
W-10A	25	259	(1997)	20	308	(2005)
W-28	-11	-6	(2007)	-2	-	
W-71	10	227	(2008)	-9	75	(2009)
W-72	12	107	(2008)	4	115	(2010)

Krypton-85 (^{85}Kr)

Das radioaktive Edelgasisotop ^{85}Kr ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von 10.76 ± 0.02 Jahren. Natürliches atmosphärisches ^{85}Kr hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch ^{84}Kr in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen ^{85}Kr-Inventar von etwa $9 \cdot 10^{11}$ Bq[2]. Das derzeitige ^{85}Kr in der Atmosphäre wird hauptsächlich bei der Spaltung von Uran in Kernkraftwerken gebildet, wo es im Laufe des Betriebs in den Brennstäben akkumuliert. Bei der Wiederaufarbeitung von Brennstäben wird es in zeitlich gepulsten Emissionen von einigen Stunden in die Atmosphäre freigesetzt, in der es sich global verteilt. Dort ist die dominante Senke der radioaktive Zerfall mit 6.4 %/Jahr. Aufgrund seiner relativ langen Halbwertszeit, seiner chemischen Eigenschaften als Edelgas und durch steigende Ableitungen über Jahrzehnte hat sich ^{85}Kr in der Atmosphäre zunächst stetig angereichert, bis sich vor etwa 10 Jahren ein Gleichgewicht zwischen Emissionsrate und Zerfallsrate eingestellt hat. Zurzeit ist die Wiederaufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Figur 14)[3].

Mit Hilfe der ^{85}Kr-Messreihen des BfS wird ein derzeitiges atmosphärisches Gesamtinventar von etwa $5 \cdot 10^{18}$ Bq ^{85}Kr ermittelt. Die interhemisphärische Mischung der Troposphäre erfolgt auf Zeitskalen von 1-2 Jahren, was zu einer räumlich homogenen Basisaktivitätskonzentration führt. In der Nähe von Emissionsquellen, wie etwa bei der Station Freiburg i. Br. können hingegen Aktivitätsspitzen beobachtet werden, die mehrheitlich auf Abluftfahnen aus der Wiederaufarbeitungsanlage La Hague[4] zurückgeführt werden können (Figur 14). Wegen der erhöhten Lage des Jungfraujochs, die vor allem in den Wintermonaten über der planetaren Grenzschicht liegt, und der grösseren Entfernung zu La Hague wird diese Station weniger direkt von bodennahen Emissionen beeinflusst. Der qualitative Verlauf der ^{85}Kr Aktivitätskonzentration, insbesondere der Untergrundpegel, ist aber an beiden Stationen gleich.



Figur 14:
Atmosphärische ^{85}Kr Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfraujoch (3500 m. ü. M.) , Freiburg i. Br. (276 m. ü. M.) in der bodennahen Luft 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).

Insgesamt nahmen die globalen Freisetzungsraten von ^{85}Kr in den letzten Jahren erstmals seit Jahrzehnten wieder ab, was zu einer entsprechenden Stabilisierung der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration von derzeit 1.4 Bq/m^3 Luft in der bodennahen Luft in Mitteleuropa geführt hat (Figur 14, kleines Bild). Anthropogenes ^{85}Kr macht derzeit den grössten Anteil der künstlichen Radioaktivität in der Atmosphäre aus. Die darauf zurückzuführende jährliche effektive Dosis ist jedoch mit ca. 0.01 µSv ($8 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq m^{-3} Jahr)[5] im Vergleich zu der durch das natürlich vorkommende Radon und Folgeprodukte verursachten jährlichen Strahlenbelastung von etwa 3.2 mSv äusserst gering.

2 Schröder, K.J.P. and W. Roether, 1975, The releases of krypton-85 and tritium to the environment and tritium to krypton-85 ratios as source indicators, International Atomic Energy Agency, Vienna 1975, IAEA-SM-191/30.

3 Schlosser, C.: Grossräumige Veränderung der Umweltradioaktivität: Atmosphärische Radioaktivität. In: Interventionen und Nachhaltigkeit im Strahlenschutz. Klausurtagung der Strahlenschutzkommission am 13./14. November 2008, Berlin. Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Band 65, H. HOFFMANN GmbH, Berlin, 2010, 254-280, ISBN 978-3-87344-159-0

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

5 ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.). Table C.1., p. 61

Auch am Physikalischen Institut der Universität Bern werden Stichprobenmessungen der Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr durchgeführt. Diese Werte stimmen innerhalb der Messunsicherheiten meist gut mit jenen vom Jungfraujoch und Freiburg i. Br. überein, liegen zum Teil aber leicht unter dem Niveau von Freiburg und dem Jungfraujoch. Dies ist wahrscheinlich auf den unterschiedlichen Sammelzeitraum zurückzuführen. Während in Freiburg und auf dem Joch das Krypton aus einer integrierten Wochenprobe extrahiert wird, werden in Bern 20 Liter Luft innert weniger Minuten gesammelt. Damit steigt die Wahrscheinlichkeit, eine von Abluftfahnen nicht beeinflusste Probe zu erfassen.

Argon-37 (^{37}Ar)

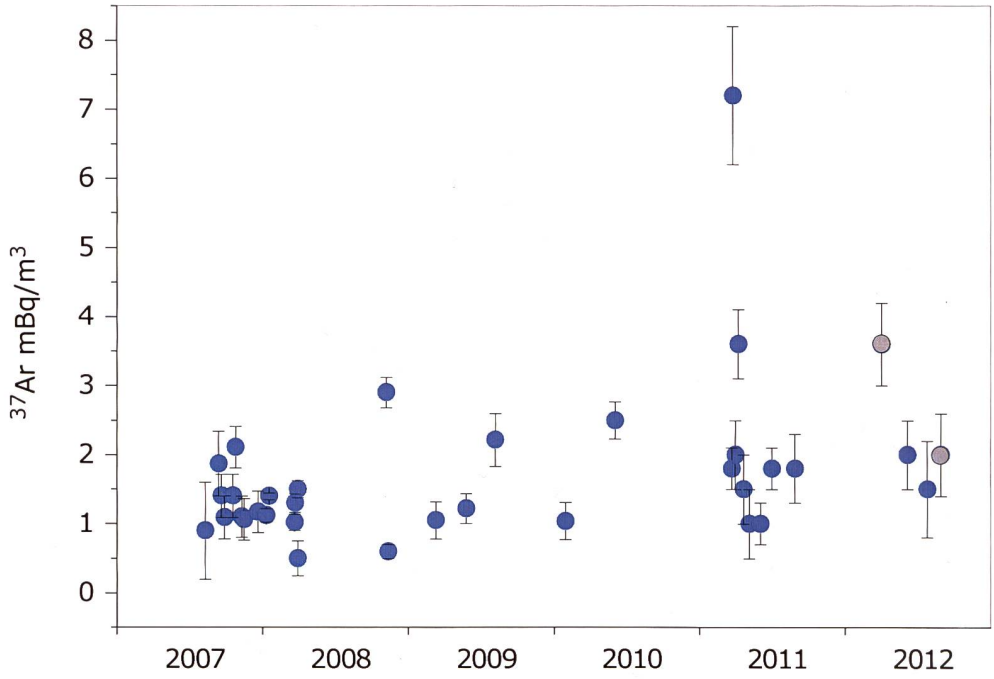
^{37}Ar wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion $^{40}Ar(n,4n)^{37}Ar$ produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposhärischen Gleichgewichtsaktivität liegen bei ca. 0.5-2 mBq/m³ Luft[6,7], in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 5 Jahre gemessen Basiswerten (Figur 15). Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Einflüsse stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre, welche vor allem im Frühjahr zu erwarten sind, können zu erhöhten ^{37}Ar Aktivitäten bis 8-10 mBq/m³ Luft führen[6,7]. Dementsprechend wurden insbesondere in den Jahren 2011 und 2012 Werte über 2 mBq/m³ Luft beobachtet. Gemäss theoretischen Berechnungen sind auch in unmittelbarer Nähe von Kernreaktoren keine signifikanten ^{37}Ar Emissionen zu erwarten[8]. Dies bestätigen Stichproben die in Abwindrichtung zum Atomkraftwerk Mühleberg genommen wurden (Figur 15, graue Messwerte). 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 (Kernwaffenteststopp-Vertrag, CTBT)[9].

6 Lal, D.; Peters, B. Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth; Springer-Verlag, 1967; Vol. 46.

7 Oeschger, H.; Houtermans, H. J.; Loosli, H. H.; Wahlen, M. In Nobel Symposium 12, Radiocarbon Variations and Absolute Chronology, 1970; pp 471-496.

8 Fay, A.G. and S.R. Biegalski, Contributions to the 37Ar Background by Research Reactor Operations. J Radioanal Nucl Chem, 2012.

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



Figur 15:
^{37}Ar-Aktivität in Troposphärenluft im Jahr 2012 in Bern im Vergleich mit Werten über die letzten 6 Jahre. In grau Messwerte von Proben, die in unmittelbarer Nähe des Kernkraftwerks Mühleberg gesammelt wurden.

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

P. Froidevaux, M. Straub, J.A. Corcho Alvarado, F. Barraud, K. Garcia, 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 2012, se situent entre 0.034 et 0.268 Bq/kg. En montagne, elles sont significativement plus élevées et se situent entre 0.108 et 0.541 Bq/kg. Aux alentours des centrales nucléaires suisses, les activités des actinides dans les sols ne dépassent pas 0.27 Bq/kg ($^{239+240}$Pu) et 0.11 Bq/kg (^{241}Am), et montrent un rapport d'activité d'environ 0.031 pour ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu et 0.39 pour ^{241}Am/$^{239+240}$Pu. La moyenne du rapport isotopique ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu de 0.031 ± 0.006 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 0.39 ± 0.08 en moyenne. L'activité en $^{239+240}$Pu et ^{241}Am des filtres à air analysés en 2012 est très faible (< 4 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 (< 70 mBq/kg de matière sèche) et en ^{241}Am (< 30 mBq/kg de matière sèche) des plantes aquatiques, de la viande des poissons et des moules sont également très faibles. Les rapports ^{241}Am/$^{239+240}$Pu dans les échantillons de sédiments, filtres à air, plantes aquatiques et poissons sont plus variables mais la moyenne (0.51 ± 0.20) se rapproche de celle trouvée dans les sols. Cela indique que l'origine de la contamination est identique (essais d'armes nucléaires en atmosphère) mais le comportement chimique de ces radioelements dans ces compartiments de l'environnement diffère, notamment le coefficient de partition entre la phase sédimentaires 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 2013

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 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]. Par comparaison, le temps de rétention du ^{90}Sr dans les vertèbres humaines est de 12 ± 2 ans et est directement lié au temps de rétention du ^{90}Sr dans le sol, l'herbe et le lait [1].

Le but de ce travail est d'évaluer tout d'abord la présence des radioéléments plutonium et américium dans l'environnement en Suisse et d'en attribuer l'origine. L'accent est mis sur la surveillance des centrales nucléaires suisses, avec des mesures de sol, d'air et d'eau de pluie prélevés autour des centrales et de sédiments, de plantes aquatiques et de poissons en aval des rejets. Ces mesures sont complétées par des analyses d'échantillons de sites de référence, sans influence des centrales nucléaires.

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 [2]. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur des disques d'acier [3] et sont mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS. La procédure est décrite en détails dans la référence bibliographique [2] et validée annuellement par la participation à des intercomparaisons internationales.

Résultats

Les tableaux 2, 3 et 4 rapportent les principaux résultats obtenus en 2012. Sauf indication contraire, les incertitudes des mesures sont reportées pour un intervalle de confiance de 95% (k=2).

Sols et sédiments
Le tableau 2 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 0.034 et 0.268 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 0.27 Bq/kg (plutonium) et 0.11 Bq/kg (américium). En montagne, l'activité en Pu peut s'élever au-dessus de 0.2 Bq/kg avec un maximum de 0.54 Bq/kg dans un sol d'Allmendhubel (Oberland bernois). Les valeurs plus élevées en Pu des sols de montagne s'expliquent principalement par des dépositions humides plus importantes en montagne qu'en plaine. Nous avons pu mettre en évidence ce phénomène d'augmentation des dépositions de radioactivité (^{90}Sr) avec l'altitude à l'échelle de l'Europe occi-

dentale [4] dans les produits laitiers. Les indicateurs de contamination reposent sur les rapports isotopiques $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ ainsi que sur les rapports $^{241}Am/^{239+240}Pu$. Ces rapports sont proches de 0.03 et 0.4 pour les retombées cumulées des essais d'armes atomiques réalisées en atmosphère dans les années soixante, en y incluant la contribution de ^{238}Pu provenant de la destruction dans l'atmosphère du satellite SNAP-9A contenant une source de ^{238}Pu.

La figure 1 montre les résultats obtenus pour ces rapports dans les sols en Suisse; tous les résultats sont alignés sur les droites représentants les rapports des retombées globales des essais d'armes atomiques. Aucune contribution significative de l'accident de Tchernobyl à l'activité en plutonium et américium n'a été mise en évidence. De la même manière, aucune contribution significative des rejets des centrales nucléaires suisses n'a été observée; dans le cas contraire, les rapports présentés dans la figure 1 auraient été significativement augmentés.

Eaux, plantes aquatiques et poissons

L'analyse de plutonium et d'américium dans l'eau requiert au moins 100 litres par échantillon. Le prélèvement s'effectue par co-précipitation avec des hydroxydes de fer (Rhin, Pratteln), par prélèvement direct suivi d'évaporation (Rhône, Genève) et par collecte sur des entonnoirs de 1m² de surface puis passage sur une résine d'échange de cations et d'anions (eau de pluie de Mühleberg, Posieux et IRA Lausanne). L'activité en plutonium (< 5 mBq/m³) et en américium (< 1 mBq/m³) des eaux de pluie, de rivière et de surface (Tableau 3) 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 elles contiennent une forte charge en sédiments sur lesquels ces radioéléments sont adsorbés.

Les activités en plutonium et en américium des plantes aquatiques sont faibles (< 70 mBq/kg de matière sèche). Les plantes aquatiques peuvent

Tableau 2:
Plutonium et américium (Bq/kg de matière sèche) dans les sols (0-5 cm) et sédiments prélevés en Suisse en 2012.

Lieu	$^{239,240}Pu$	^{241}Am	$^{238}Pu/^{239,240}Pu$	$^{241}Am/^{239,240}Pu$
Sol plaine				
Güttingen	0.106 ± 0.012	0.043 ± 0.006	< LD	0.40 ± 0.08
Cadenazzo	0.069 ± 0.006	0.011 ± 0.002	0.031 ± 0.013	0.16 ± 0.04
Posieux	0.051 ± 0.006	0.018 ± 0.004	0.043 ± 0.022	0.34 ± 0.08
Sols centrales nucléaires + PSI + CERN				
Beznau	0.169 ± 0.020	0.074 ± 0.008	0.029 ± 0.018	0.44 ± 0.08
Gösgen	0.099 ± 0.008	0.042 ± 0.006	0.029 ± 0.014	0.43 ± 0.07
Leibstadt	0.216 ± 0.014	0.088 ± 0.010	0.031 ± 0.014	0.41 ± 0.06
Mühleberg	0.034 ± 0.004	0.012 ± 0.002	0.039 ± 0.025	0.34 ± 0.08
ZWILAG	0.159 ± 0.014	0.080 ± 0.008	0.026 ± 0.013	0.50 ± 0.07
PSI-OASE	0.268 ± 0.020	0.111 ± 0.010	0.032 ± 0.012	0.41 ± 0.05
CERN	0.057 ± 0.006	0.021 ± 0.004	< LD	0.37 ± 0.07
Sols sites d'altitude				
Allmendhubel	0.541 ± 0.026	0.213 ± 0.020	0.023 ± 0.004	0.39 ± 0.04
Diesse	0.263 ± 0.016	0.126 ± 0.010	0.029 ± 0.008	0.48 ± 0.06
Fahrni	0.108 ± 0.030	0.039 ± 0.004	< LD	0.36 ± 0.10
Gimmelwald	0.146 ± 0.012	0.052 ± 0.004	0.029 ± 0.010	0.36 ± 0.04
		Moyenne Suisse :	**0.031 ± 0.006**	**0.39 ± 0.08**
Sédiments				
Hagneck	0.055 ± 0.009	0.030 ± 0.006	0.046 ± 0.030	0.53 ± 0.09
Pratteln	0.035 ± 0.005	0.038 ± 0.006	0.032 ± 0.026	1.07 ± 0.22
Klingnau	0.079 ± 0.009	0.035 ± 0.006	0.028 ± 0.018	0.44 ± 0.09
Lucens, Broye, 10 m du rejet	0.036 ± 0.006	0.016 ± 0.004	< LD	0.43 ± 0.060
Lucens, Broye, au rejet	0.027 ± 0.004	0.014 ± 0.004	< LD	0.53 ± 0.14
Lucens, Broye, face au rejet	n.m	0.016 ± 0.004	n.m	n.m
Lucens, Broye, 100 m du rejet	n.m	0.010 ± 0.004	n.m	n.m

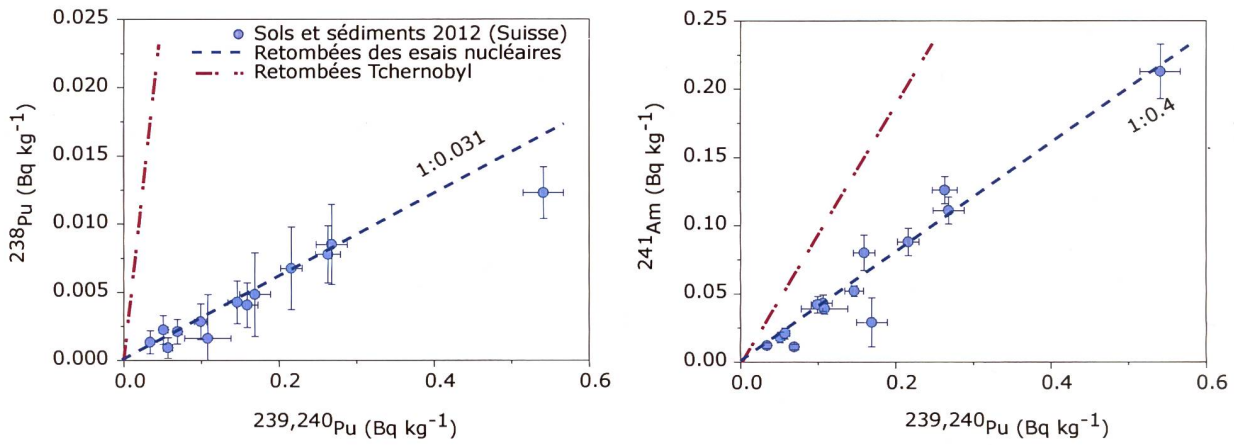


Figure 1:
a)Activité du ^{238}Pu en fonction de l'activité du $^{239+240}$Pu dans 14 échantillons de sol (0 - 5 cm) prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2012.
b) Activité du ^{241}Am en fonction de l'activité du $^{239+240}$Pu dans 14 échantillons de sol (0 - 5 cm) prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2012.
Le rapport isotopique moyen ^{241}Am/$^{239+240}$Pu est de 0.39 ± 0.08, et celui de ^{238}Pu/$^{239+240}$Pu est de 0.031 ± 0.006. Les rapports de l'accident de Tchernobyl (ligne pointillée) et des retombées des essais nucléaires (ligne pleine) sont aussi montrés pour comparaison.

absorber les radioéléments par transfert racinaire à partir des sédiments et par transfert foliaire à partir de l'eau. Dans les deux cas, des mécanismes impliquant des canaux sélectifs et non-sélectifs (p.ex. AKT1, CNGCs, KUP [5,6] entrent en jeu. L'accumulation de plutonium et d'américium n'est donc pas forcément identique et les rapports entre ces deux radioéléments ne seront pas similaires à ceux mesurés dans les sédiments ou dans l'eau. Dans ce travail, les rapports ^{241}Am/$^{239+240}$Pu sont proches de ceux des sols et des sédiments (moyenne : 0.37), ce qui indique que le transfert racinaire avec canaux non sélectifs est prédominant ou que les plantes aquatiques contiennent une proportion importante des radioéléments sous forme particulaire adsorbée au feuillage.

Tableau 3:
Mesures du plutonium et de l'américium dans les eaux (mBq/m³), les plantes aquatiques (Bq/kg MS) et la viande de poisson (Bq/kg MS) prélevés en 2012

Lieu	Type	^{239,240}Pu	^{241}Am	^{241}Am/^{239,240}Pu
Eaux (mBq/m³)				
KKM (Mühleberg)	eau de pluie	0.30 ± 0.20	< LD	< LD
Posieux (Fribourg)	eau de pluie	0.23 ± 0.12	< LD	< LD
Rhin (Pratteln)	eau de rivière	3.4 ± 1.0	2.7 ± 0.8	< LD
Rhône (Genève)	eau de rivière	5.0 ± 1.2	n.m	n.m
Lausanne IRA, 1m²	eau de pluie (2011)	0.6 ± 0.2	0.2 ± 0.1	0.40 ± 0.24
Lausanne IRA, 1m²	eau de pluie (2012)	1.7 ± 0.6	0.66 ± 0.3	0.38 ± 0.21
Plantes Aquatiques (Bq/kg de matière sèche)				
Pratteln	plantes aquatiques	0.046 ± 0.009	0.014 ± 0.002	0.31 ± 0.07
Klingnau	plantes aquatiques	0.061 ± 0.010	0.030 ± 0.006	0.49 ± 0.12
Hagneck	plantes aquatiques	0.067 ± 0.010	0.021 ± 0.006	0.31 ± 0.09
Viande de Poisson (Bq/kg de matière sèche)				
Aare KKG	poissons	0.0200 ± 0.0012	0.004 ± 0.002	0.73 ± 0.45
Aare KKB	poissons	0.0053 ± 0.0022		0.99 ± 0.46
Aare KKM	poissons	0.0027 ± 0.0012	0.002 ± 0.001	0.81 ± 0.36
Rhin Bâle	poissons	0.0010 ± 0.0004		
Leibstadt	poissons	n.m	0.0005 ± 0.0002	n.m

Tableau 4:
Plutonium et américium dans les filtres à air (nBq/m³) prélevés en 2012.

Lieu	Volume	$^{239,240}Pu$	^{241}Am	$^{241}Am/^{239,240}Pu$
Filtres à air (nBq/m³)				
Klingnau	$V_{filtré}$ = 4'208'248 m³	0.453 ± 0.055	0.130 ± 0.080	0.29 ± 0.10
	$V_{filtré}$ = 1'884'935 m³	0.449 ± 0.080	0.186 ± 0.044	0.41 ± 0.12
Posieux	$V_{filtré}$ = 1'691'072 m³	2.810 ± 0.230	1.380 ± 0.020	0.49 ± 0.08
	$V_{filtré}$ = 1'190'130 m³	1.110 ± 0.170	0.324 ± 0.082	0.29 ± 0.09
Mühleberg	$V_{filtré}$ = 496'551 m³	0.770 ± 0.280	0.530 ± 0.300	0.68 ± 0.44
Jungfraujoch	$V_{filtré}$ = 257'886 m³	3.760 ± 0.680	2.270 ± 0.900	0.60 ± 0.30

La chair des poissons contient des activités en plutonium et américium très basses (< 50 mBq/kg de matière sèche). Le facteur de concentration des radioéléments dans le poisson se définit selon:

$$CF = A[Bq/kg] / A[Bq/l]$$

où A[Bq/kg] est l'activité dans la chair fraîche du poisson et A[Bq/l] est l'activité dans l'eau. Sur la base des données du tableau 3, le facteur de concentration, CF, déterminé dans ce travail est d'environ 1.10^3, ce qui est significativement inférieur aux CFs reportés dans la littérature [7] (3.10^3 - 10^4). L'eau des rivières contient donc une partie importante de plutonium et d'américium non bio-disponible, sous forme de colloïdes organiques ou associés aux particules de sédiments.

Filtres à air

En Suisse, nous étudions annuellement quatre sites (Posieux, Klingnau, Mühleberg et Jungfraujoch) sur lesquels des prélèvements d'air par filtres à air sont effectués de façon hebdomadaire. Ces filtres sont ensuite réunis pour former un échantillon annuel par site, pour l'analyse du plutonium et de l'américium. Le volume d'air ainsi prélevé est d'au moins 200'000 m³, ce qui permet une analyse à très bas niveau d'activité (nBq/m³). Ce type de prélèvement mesure essentiellement la fraction particulaire de l'air, sur laquelle sont adsorbés les radioéléments. De manière générale toutes les activités sont très faibles pour les sites de plaine (< 3 nBq/m³). Ces mesures effectuées à 1 m du sol illustrent principalement le phénomène de re-suspension. Cette dernière dépend, pour un emplacement donné, de

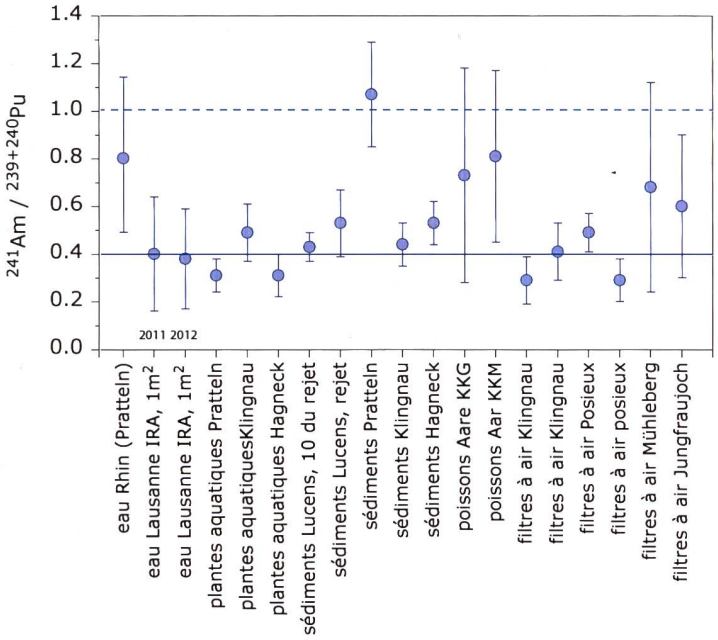


Figure 2:
Rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$ dans différents échantillons dans lesquels le plutonium et l'américium peuvent être soumis à un fractionnement. La ligne pleine indique le rapport des retombées globales des essais nucléaires tel que mesuré dans les sols et la ligne pointillée indique le rapport trouvé dans les émissions radioactives issues de l'accident de Tchernobyl.

facteur tels que l'âge de la déposition, le régime des vents, la nature du sol et de sa couverture végétale, du coefficient de friction entre la masse d'air et le sol, ainsi que de la vitesse de re-déposition, qui dépend de la taille des particules soulevées. Le facteur de re-suspension se définit comme :

$$RF = A_{air}[Bq/m^3] / A_{sol}[Bq/m^2]$$

Où A_{air} est l'activité mesurée dans l'air et A_{sol} l'activité mesurée dans le sol, exprimée en Bq par unité de surface. Pour une déposition moyenne en plutonium de l'ordre de 150 - 300 Bq/m² en Suisse et les données du tableau 4, on détermine un RF de $2.5\ 10^{-11}$ à 1.10^{-12} m^{-1}. Ces valeurs sont typiques de dépositions anciennes, issues d'événement antérieur à 40 ans [8] tels que les essais nucléaires en atmosphère.

Conclusions

Les analyses de plutonium et d'américium dans l'environnement en 2012 n'ont pas relevé d'activité inattendue, ni de contribution significative des rejets des centrales nucléaires suisses. Les mesures de plutonium et d'américium dans les échantillons de sol sur l'ensemble de la Suisse montrent que la déposition est faible sur le plateau suisse et croît avec l'altitude du site de prélèvement. L'analyse des rapports $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ et $^{241}Am/^{239+240}Pu$ dans les sols indique que l'origine du plutonium et de l'américium sont les retombées globales des essais d'armes nucléaires réalisés en atmosphère dans les années soixante. La détermination du facteur de re-suspension confirme l'ancienneté de la déposition. En aval du rejet des centrales nucléaires suisses, l'analyse du rapport $^{241}Am/^{239+240}Pu$ dans des échantillons de sédiments, de plantes aquatiques et de chair de poissons confirme également l'absence de marquage radioactif par les centrales, bien que les valeurs individuelles de ce rapport soient plus variables que dans les sols.

Références

[1] Froidevaux P., Bochud F., Haldimann M., Chemosphere 80(5), 519-524 (2010)
[2] Luisier F., Corcho Alvarado J.A., Steinmann P., Krachler M., Froidevaux P., J. Radioanal. Nucl. Chem. 281, 3: 425-432 (2009).
[3] Bajo S., Eikenberg J., J. Radioanal. Nucl. Chem. 242, 3, 745-751 (1999).
[4] Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux, P., Chemosphere 66, 1571–1579 (2007).
[5] Broadley M., White, P. Plant Soil 355, 23-27 (2012).
[6] Guillaume T., Chawla, F., Steinmann, P., Gobat, J.M., Froidevaux, P. Plant Soil 355, 29-39 (2012)
[7] IAEA (1985). Technical reports series n° 422. Sediments distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment
[8] Garcia-Olivares A., Iranzo, CE. J. Environ. Radiact. 37, 101-114 (1997).