

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: - (1996)

Rubrik: Messungen von Spezialnukliden

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

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. [Voir Informations légales.](#)

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. [See Legal notice.](#)

Download PDF: 26.04.2025

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

7. Messungen von Spezialnukliden

7.1. Tritium-, Kohlenstoff-14-, und Krypton-85

**H. Loosli, U. Schotterer
und H. Bürki**

Abt. Klima- und Umweltphysik, Physikalisches Institut
Universität Bern, Sidlerstr. 5, 3012 BERN

F. Cartier

Hauptabteilung für die Sicherheit von Kernanlagen
5232 VILLIGEN-HSK

W. Weiss und H. Sartorius

Institut für Atmosphärische Radioaktivität, BfS,
Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

7.1.1 Zusammenfassung

Die ^{14}C Messungen in Baumblättern wurden 1996 fortgesetzt, um künstlich erhöhte Konzentrationen in der Umgebung von ^{14}C Emittenten festzustellen und um die Immissionen mit den Emissionen in Beziehung zu setzen. Basis für den Vergleich bildet der $\Delta^{14}\text{C}$ Wert der Referenzstationen, der $1996 + 114 \pm 2 \text{ ‰}$ betrug.

Erhöhungen gegenüber diesem Referenzwert wurden in der Umgebung des KKL, des PSI und des KKB bestimmt. In der Umgebung des KKL waren die Messwerte ähnlich erhöht wie in früheren Jahren, d.h. maximal etwa 150 ‰. Erstmals wurde aber die Auswahl der Probenahmestandorte auf die Ergebnisse der Modellrechnungen der HSK abgestützt. Die Messergebnisse ergaben eine erstaunlich gute Übereinstimmung mit den Werten der Gausschen Ausbreitungsrechnungen. Beispielsweise ergibt der maximale Messwert einen Ausbreitungsfaktor von $1 \cdot 10^{-6} \text{ s/m}^3$, während eines der Modelle für die Wetterbedingungen während der Wachstumsperiode der Blätter einen Wert ergab, der vom Messwert nur ca. 20 ‰ abweicht. Wie erwartet ist die ^{14}C Erhöhung in kleinerer Distanz als der Aufpunkt geringer. Quer zur Hauptausbreitung jedoch sagen die Modelle höhere Werte voraus als sie 1996 gemessen wurden. Die Übereinstimmung zwischen Messergebnissen und Modell ist beispielsweise auch deshalb erstaunlich, weil im bisher verwendeten Modell die Mittelung über die Wettersituationen auch die Nacht einschliesst, obschon Pflanzen nur tagsüber assimilieren.

In der Nahumgebung des früheren Forschungsreaktors Saphir im PSI setzte sich der Rückgang der $\Delta^{14}\text{C}$ Erhöhungen im Jahre 1996 fort; die Netto-Werte liegen jetzt alle unter 100 ‰. Die vier Stichproben in der Umgebung des KKB-PSI Areals zeigten ähnliche Erhöhungen wie in früheren Jahren.

Nachdem die Firma Novartis begonnen hatte, ^{14}C haltige Abfälle im neuen Ofen zu verbrennen, zeigten sich 1996 in dessen Umgebung auch erhöhte $\Delta^{14}\text{C}$ Werte. Diese traten im Berichtsjahr in NW- und SE-Richtung auf, was mit den während der Wachstumsperiode herrschenden Windrichtungen übereinstimmt. Der Maximalwert beträgt 480 ‰ und ist damit ähnlich gross, wie in früheren Jahren in der Umgebung des inzwischen stillgelegten alten Verbrennungsofens. In dessen Umgebung, d.h. in der Nähe der Dreirosenbrücke, sind jedoch nach wie vor erhöhte $\Delta^{14}\text{C}$ Werte bis 140 ‰ gefunden worden, woraus auf eine zusätzliche örtliche Quelle zu schliessen ist. Ob die in der Nähe der Firma Roche in vier

Stichproben gefundene Erhöhungen auf eine weitere Quelle hinweisen oder ob sie der Abluftfahne aus dem neuen Ofen von Novartis zuzuordnen sind, sollen zukünftige Messungen zeigen.

Die Kr-85 Messungen in Wochenproben vom Jungfrauoch und in Stichproben aus Bern ergaben ähnliche Werte wie im Vorjahr: der Grundlevel liegt bei 1,2 resp. 1,3 Bq/m³ Luft. Die Spikes mit Maximalwerten bis ca. 2,5 Bq/m³ treten häufiger auf als in früheren Jahren; sie sind auf den Vorbeizug relativ schlecht verdünnter Abluft aus Wiederaufbereitungsanlagen zurückzuführen.

Die H-3 Aktivitäten in Niederschlägen blieben 1996 praktisch unverändert gegenüber den Werten des Vorjahres und liegen an ungestörten Stationen bei 1,4 bis 2,2 Bq/l (Monatsmittel). Bern zeigt nach wie vor etwas erhöhte Werte (bis maximal 5,5 Bq/l) während für Basel und Vaduz geringe zusätzliche Aktivitäten nicht ausgeschlossen werden können.

7.1.2 Kohlenstoff-14 in unserer Umwelt

a) Einleitung

Das radioaktive Isotop ¹⁴C wird in der Atmosphäre durch die kosmische Strahlung produziert. Dies führt in der Luft zu einer Gleichgewichtsaktivität im CO₂ von ca. 0,04 Bq/m³, was einer spezifischen Aktivität von 227 Bq/kg Kohlenstoff entspricht. Diese Aktivität wird vereinfacht auch als 100 % modern bezeichnet. Mit der Industrialisierung, d.h. mit dem Verbrennen fossiler Brennstoffe etwa in der Mitte des letzten Jahrhunderts, begann diese atmosphärische Konzentration zurückzugehen. Man schätzt, dass diese Verdünnung bis heute zu einer Konzentration von ca. 90 - 95 % modern geführt hätte. Dieser "Suess-Effekt" ist allerdings nicht mehr messbar, weil die Nuklearexplosionen in der Atmosphäre in den 60er Jahren die ¹⁴C Konzentration praktisch verdoppelten. Heute ist der grössere Teil dieser zusätzlichen Aktivität durch Gasaustausch in die Weltmeere gelangt, aber immer noch werden mehr als 100 % modern gemessen (siehe Kapitel b). Gemessene ¹⁴C Resultate in Baumblättern werden auf diese erhöhte atmosphärische Konzentration bezogen; man gibt als Netto-Effekt die Differenz zur heutigen Atmosphärenkonzentration an. Solche Netto-Effekte sind in der Umgebung von Schweizer Kernkraftwerken in Buchenblättern bestimmt worden (Kapitel c) und in der Umgebung von ausgewählten Industriebetrieben, die ¹⁴C haltige Abfälle verbrennen (Kapitel d). Für alle Resultate ist in der Folge die Δ-Notation verwendet, die eine allfällige Fraktionierung der Masse 14 durch die Blätter auskorrigiert (via die Masse 13, Stuiver und Polach, 1977).

b) Δ¹⁴C an Referenzstationen

Als Referenzstationen dienen seit vielen Jahren die Stationen Imihubel auf dem Längenberg (ca. 15 km südlich von Bern) und die Station Wiler auf dem Belpberg. Sie wurden so ausgewählt, dass sie weit entfernt sind von einem Ort, wo fossile Brennstoffe verbrannt werden (Häuser, Strasse) und auch von Betrieben, die ¹⁴C haltiges CO₂ abgeben. Die ¹⁴C Aktivität in Buchenblättern von diesen Stationen wurde 1996 dreimal gemessen und ergab im Mittel einen Δ¹⁴C Wert von 114 ± 2 ‰ (siehe Tabelle 1). Das bedeutet, dass die heutige Konzentration von ¹⁴C noch 114 ‰ über dem Level von 1850 liegt. Diese Erhöhung in Baumblättern stimmt bis auf einige ‰ mit der Aktivität im atmosphärischen CO₂ der Nordtroposphäre überein (Levin und Kromer, 1997). Die an unseren Referenzstationen gemessene Erhöhung stimmt auch mit der Erhöhung an anderen unbeeinflussten Standorten überein: die Proben Büel und Strick in der Umgebung des KKL quer zur Ausbreitungsrichtung zeigen innerhalb des statistischen Zählfehlers (1s) den gleichen Wert (Tabelle 1). Auch

in Basel wurden einige Proben gemessen, deren Erhöhung mit derjenigen unserer Referenzstationen übereinstimmt (Kapitel d). Diese Übereinstimmungen zeigen ferner, dass Memory-Effekte in Probenaufbereitung vernachlässigbar sind und dass die Aufarbeitung reproduzierbar ist.

Die gemessene Erhöhung an den Referenzstationen von 114 ‰ stammt noch von den Kernwaffenversuchen der 60er Jahre. Dieser atmosphärische ^{14}C Ueberschuss wird durch den CO_2 -Austausch zwischen Atmosphäre und den Weltmeeren langsam abgebaut, was auch daran sichtbar ist, dass die Referenzwerte langsam abnehmen (1992: 141 ± 3 ‰, 1993: 134 ± 3 ‰, 1994: 124 ± 4 ‰, 1995: 120 ± 2 ‰).

Zur Abschätzung der heutigen zusätzlichen Dosis wegen des Bomben ^{14}C kann von einer Erhöhung um 114 ‰ in allen Nahrungsmitteln gegenüber einem um den Suess-Effekt korrigierten atmosphärischen Level ausgegangen werden. Die totale Erhöhung beträgt dann ca. 160 bis 210 ‰. Dies gäbe nach UNSCEAR 1988 eine jährliche zusätzliche Dosis von 2 bis 3 μSv .

Tabelle 1: $\Delta^{14}\text{C}$ Werte an Referenzstationen und in der Umgebung von Schweizer Kernanlagen

Probenahme	$\Delta^{14}\text{C}$	1 s (‰)	netto $\Delta^{14}\text{C}$ (‰)	Umgebung von:
Wiler 96 (14.7.96)	114.5	2.7		Referenzstation
Imihubel 96 (29.8.96)	113.4	2.7		Referenzstation
Imihubel 96 (29.8.96)	115.3	2.7		Referenzstation
Standard 1996	114.4	1.6		Referenzstation
Wasserkraftwerk	124.1	2.7	9.7	KKB und PSI
Au	140.3	2.7	25.9	KKB und PSI
EIR Ost	125.0	2.7	10.6	KKB und PSI
EIR Süd	124.2	2.7	9.8	KKB und PSI
Saphir B	180.1	2.8	65.7	Saphir
Saphir C	177.7	2.8	63.3	Saphir
Saphir E	155.2	2.8	40.8	Saphir
Saphir A	128.2	2.7	13.8	Saphir
Chlärmi	177.0	3.6	62.6	KKL
Wermet	149.8	3.7	35.4	KKL
KKWL Zaun	140.8	3.6	26.4	KKL
KKWL Schiessplatz	140.4	3.6	26	KKL
Seel	138.0	2.7	23.6	KKL
Meteostation "319"	213.9	3.7	99.5	KKL
Matschmulde	197.9	3.7	83.5	KKL
Unterm Tal	178.7	3.7	64.3	KKL
Schlüsselgraben	208.7	2.8	94.3	KKL
Ried	200.4	2.8	86	KKL
Schiebenäcker	155.3	3.6	40.9	KKL
Büel	114.1	3.5	-0.3	KKL
Strick	116.0	3.5	1.6	KKL
Feld Schiessplatz	261.0	3.8	146.6	KKL
Linden grosser Kirschbaum	136.8	3.6	22.4	KKL

c) $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in der Umgebung von Kernanlagen

In Tabelle 1 sind die Messwerte der Blattproben aus der Umgebung des KKB, des PSI und des KKL zusammengestellt. Enthalten sind auch die Netto-Erhöhen gegenüber dem Wert von 114,4 ‰ der Referenzstationen.

Die Probenahme in der Umgebung des KKL wurde diesmal anders geplant: Basis bildeten die Ergebnisse der von der HSK benutzten Gausschen Ausbreitungsmodelle (IAEA 1980; HSK R-41). Zudem sollten die langjährigen Messerien mindestens teilweise fortgesetzt werden (siehe z. B. BAG Berichte 1993 und 1994 für die Stationen Chläämli, Schlüsselgraben, Unterem Tal, Ried und Schiebenäcker). Diese bisherigen Stationen sind (von West nach Ost) in der Figur 1 mit einem Punkt im Zentrum der Aktivitäts-Scheibe markiert. Die Modellrechnungen für die Emissionen im Frühling 1996 und für die damals herrschenden Wetterbedingungen ergaben, dass deutlich erhöhte Werte auch näher als die bisherigen Probenahmeorte zu erwarten sind, ebenfalls quer zur Hauptwindrichtung. Um dies zu verifizieren, um Messwerte direkt mit den Werten verschiedener Modelle zu vergleichen und um im Prinzip experimentell Langzeitverdünnungsfaktoren zu bestimmen, wurde das Probenahmenetz erweitert (siehe Figur 1).

Im oberen Teil der Figur 1 sind die gemessenen Netto- $\Delta^{14}\text{C}$ Werte dargestellt, wobei die Kreisfläche proportional zur Erhöhung relativ zum Mittelwert der Referenzstation ist. Für die beiden Probenahmeorte südlich von Reuental (Büel und Strick) beträgt die Erhöhung weniger als 5 ‰, und der Messpunkt ist mit einem Kreuz markiert. Aus dieser Figur folgt, dass erhöhte Werte in der Tat auch näher als die bisherigen Standorte vorkommen, bis wenige 100 m vom Emissionspunkt. Die Messung an der Station Feld Schiessplatz nordwestlich von Reuental ergab den grössten Netto-Wert, der gefunden wurde (147 ‰, siehe Tabelle 1). Dagegen sind die Messwerte quer zu den Hauptausbreitungsrichtungen nicht erhöht.

Die Erhöhungen an den bisherigen Probenahmestandorten sind praktisch gleich gross wie in früheren Jahren, was zeigt, dass die Emissionen und die mittlere Verdünnung während der Wachstumszeit ähnlich gross waren wie in den früheren ca. 10 Jahren.

Im unteren Teil der Figur 1 sind zum Vergleich die Ergebnisse eines HSK-Ausbreitungsmodells dargestellt. Die berechneten ^{14}C Konzentrationen stützen sich auf die zwischen dem 15. April - 15. Mai 1996 angenommenen ^{14}C Abgaben und die am Kernkraftwerkstandort am Meteomast gemessenen meteorologischen Daten. Das Gaussche Ausbreitungsmodell berücksichtigt die Geländeerhebungen durch Anpassung der Abgabehöhe. Die Ausbreitungsrechnungen wurden mit dem im MADUK-System integrierten Computerprogramm durchgeführt. Dabei wurden aus den im 10 Minuten Takt, in 10 und 100 Meter erhobenen Windgeschwindigkeiten und Temperaturen die Gausschen Ausbreitungsparameter und Ausbreitungsfaktoren ortsabhängig bestimmt und über den erwähnten Zeitraum von einem Monat überlagert. Es wurde somit angenommen, dass die ^{14}C Abgabe konstant war; diese wurde alle 14 Tage bestimmt und ergab für die Zeit zwischen 15. April und 15. Mai total ca. 16 GBq; daraus errechnet sich die für das Modell angenommene Emissionsrate von ca. 6 kBq/s. Die Modellrechnung ergab für den Aufschlagpunkt einen Verdünnungsfaktor von $1,2 \cdot 10^{-6} \text{ s/m}^3$. Bei der Ausbreitungsrechnung wurde auch über die Nacht gemittelt, obwohl die Pflanzen nur bei Tageslicht assimilieren.

Der Vergleich zwischen den Messwerten (oben) und den Modellwerten (unten) zeigt eine ausserordentlich gute Uebereinstimmung. Die maximal gemessene Konzentration (nordwestlich vom Reuental) ist ziemlich genau am Aufschlagpunkt des Modells und die gemessenen Erhöhungen wenige 100 m vom Emissionspunkt entfernt sind geringer und

betragen 22 bis 35 % (grosser Kirschbaum, Wernet, KKWL Schiessplatz und KKWL Zaun im Westen und Seel im Osten des KKL), während das Modell Werte zwischen 10 und 50 % voraussagt. Der am weitesten östlich gelegene Standort Schiebenacker ergibt eine Erhöhung um 41 % in Übereinstimmung mit dem Modell. Nur quer zur Ausbreitungsrichtung sind die Messwerte eindeutig geringer als die Modellwerte. Aus dem höchsten Messwert (147 %) und den Emissionen (6 kBq/s) lässt sich auch ein Verdünnungsfaktor abschätzen, der mit dem Modellwert sehr gut übereinstimmt (147 % entsprechen gemäss den in der Einleitung gemachten Angaben einer Konzentration von $6 \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3$). Also ergibt sich

$$\chi = \frac{6 \cdot 10^{-3} \text{ Bq/m}^3}{6 \cdot 10^3 \text{ Bq/s}} = 1 \cdot 10^{-6} \text{ s/m}^3.$$

Zusätzlich durchgeführte Berechnungen mit einem Modul zur Berücksichtigung der Verwirbelung an Gebäuden stimmten qualitativ schlecht mit den Messergebnissen überein; deshalb wurde dieses Modul hier nicht verwendet.

In der Nahumgebung des ehemaligen Forschungsreaktors Saphir des PSI wurde die ahrelange Messreihe an vier Standorten weitergeführt. Der seit 1992 beobachtete Rückgang der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte setzte sich auch 1996 fort (Figur 2). Erstaunlicherweise ist aber kein eindeutiger exponentioneller sondern eher ein linearer Rückgang festzustellen. Es ist nach wie vor nicht möglich, zu entscheiden, ob aus gefangenen Volumina des 1993 abgestellten Reaktors immer noch Restaktivität entweicht, ob die gemessene Aktivität ganz oder teilweise aus dem KKB stammt oder ob die Bäume für die Blätter einen Teil ihres Kohlenstoffbedarfs aus alten Vorräten beziehen, die eine grössere ^{14}C Erhöhung aufweisen. Allerdings scheint die letzte Erklärungsmöglichkeit unwahrscheinlich, weil die Buchen kaum 40 bis 50 % des Kohlenstoffs in einem neuen Blatt aus Einlagerungen des Vorjahres beziehen und weil der Rückgang in der Umgebung des stillgelegten Verbrennungsofens der CIBA in Basel viel rascher erfolgte (siehe später und Figur 6).

In der Umgebung des KKB wurden vier bisherige Standorte weiter beprobt (siehe Tabelle 1). Die Messwerte liegen ähnlich tief wie vor zwei Jahren (vergl. mit Figur 2 des BAG Berichts 1995, Seite B.3.2.10), aber tiefer als vor einem Jahr. Dies kann mit dem beobachteten Rückgang der ^{14}C Aktivität in der Umgebung des Reaktors Saphir zusammenhängen. Aber auch die Emission des KKB oder/und die Ausbreitungsbedingungen für CO_2 aus dem KKB können geändert haben.

d) $\Delta^{14}\text{C}$ in der Stadt Basel

Im Auftrag der Firma Novartis, Basel, wurden die ^{14}C Messungen in Baumblättern in der Stadt Basel fortgesetzt. Eine Zielsetzung war, den Effekt des neuen Verbrennungsofens K-930, in dem 1996 erstmals ^{14}C haltige Abfälle verbrannt wurden, festzustellen und mit Modellwerten zu vergleichen. Eine zweite Zielsetzung bestand darin, die erwartete zeitliche Abnahme in der Umgebung des nicht mehr benutzten alten Ofens K-227 zu verfolgen. Die Probenahme erfolgte wiederum unter tatkräftiger Mithilfe des Kantonalen Laboratoriums und der Stadtgärtnerei, die bestens verdankt ist.

In Figur 3 sind die Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte aller im Jahre 1996 gewonnen Blattproben schematisch dargestellt. Die Fläche der Kreise ist proportional zur Netto-Erhöhung, wobei als Massstab + 100 % in der Legende angegeben ist. Die Messfehler betragen meistens etwa 4 %, so dass Netto Effekte, die kleiner als $1,5 \sigma$ betragen (also 6 %) nicht mehr als Wert sondern als Kreuz angegeben sind. In der Figur 3 sind in nordwestlicher und südöstlicher Richtung vom neuen Verbrennungsofen deutlich erhöhte Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte sichtbar. Der maximale Wert in ca. 300 m Entfernung beträgt 480 % (E-08). In diesen beiden Sektoren sind weder 1994 noch 1995 Erhöhungen von über 15 % aufgetreten. In Figur 4 zeigt die zeitliche Entwicklung ebenfalls, dass Erhöhungen in E-10 (140 %, nordwestlich vom Ofen) und E-24 (240 %, südöstlich vom Ofen) erst 1996 auftraten. Allerdings sollen die 1994

gesammelten Blätter der Stationen E-08, E-26 und E-27 noch nachträglich gemessen werden. Damit scheint klar, dass die in diesen Sektoren neu gemessenen $\Delta^{14}\text{C}$ Erhöhungen über 100 % von Emissionen des neuen Verbrennungsofens stammen. Dies auch insbesondere, weil während den Verbrennungen ^{14}C haltiger Abfälle der Wind nach Messungen der Novartis vorwiegend in nordwestliche und südöstliche Richtung blies, nämlich am 2., 11., 16. und 23. April und am 7 und 14. Mai, je mit Emissionen von im Mittel ca. 4 GBq, während bei der Verbrennung am 29. April der Wind in östliche Richtung blies (4,1 GBq).

Figur 5 zeigt die Radialabhängigkeit der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in west-nordwestlicher Richtung. Eine deutliche Abnahme mit zunehmender Entfernung vom Emissionsort ist sichtbar. Nördlich und östlich vom Verbrennungsofen sind neun $\Delta^{14}\text{C}$ Werte gefunden worden, die 1996 keine Erhöhung zeigen, im Gegenteil: drei Messwerte in der Nähe der Autobahn zeigen mit Werten von -10 bis -15 % die Verdünnung des atmosphärischen ^{14}C Gehalts durch das Verbrennen von fossilem Brennstoff.

Wie die Figur 3 weiter zeigt, bleiben die $\Delta^{14}\text{C}$ Werte südlich des alten Ofens, d.h. im Gebiet der Dreirosenbrücke erhöht. Der zeitliche Verlauf von fünf dieser Messpunkte, die die deutlichsten Erhöhungen zeigten, ist in Figur 6 dargestellt. (Für die Standorte vergl. mit dem BAG Bericht 1995, Seite B.3.2.13.) Der Rückgang von 1994 auf 1995 (Fig. 6) ist darauf zurückzuführen, dass der alte Ofen im Sommer 1994 ausser Betrieb genommen wurde. Die Tatsache aber, dass die Messwerte 1996 etwa gleiche Erhöhungen zeigen wie im Vorjahr (Fig. 6), macht die Existenz einer weiteren Quelle sehr wahrscheinlich, z. B. im Areal der ehemaligen Firma Sandoz. Die Emissionen des neuen Verbrennungsofens von Novartis kommt weniger in Frage, weil Messorte zwischen neuem Ofen und der Dreirosenbrücke tiefere $\Delta^{14}\text{C}$ Werte zeigen und weil zudem der Wind nur während der Verbrennung am 21. Mai gegen Südwesten blies, also zu einer Zeit, als das Blattgerüst im Wesentlichen schon aufgebaut war. Wie schon in früheren Berichten erwähnt, weist der unregelmässige aber nicht eindeutig abnehmende Verlauf anderer Messpunkte in der weiteren Umgebung des Voltaplatzes (Fig. 7) auf eine zusätzliche Quelle hin, deren Emissionen aber wohl wesentlich tiefer sind als diejenige des neuen Ofens von Novartis.

Um abzuklären, ob eventuell noch weitere Quellen von ^{14}C in CO_2 Form bestehen, wurden 1996 auch vier Stichproben in der Nahumgebung der Firma Roche erhoben. Wie in der Figur 3 (ganz im Süden) zu sehen ist, scheinen dort in der Tat erhöhte $\Delta^{14}\text{C}$ Werte vorzukommen (30 - 90 %). Nach Angaben der Firma Roche fanden 1996 keine Verbrennungen von radioaktiven Stoffen mehr statt; die Emissionen aus den Syntheselabors während der Wachstumszeit der Bäume sind aber relativ gering. Allerdings ist nicht auszuschliessen, dass diese Erhöhungen im Süden auf eine weitreichende Abluftfahne des neuen Ofens von Novartis deuten; die Tatsache, dass alle vier Messpunkte ähnliche Erhöhungen zeigen, wäre damit im Einklang. In Zukunft soll dieser Frage noch nachgegangen werden.

Mit Hilfe von Jahrringen eines Baumes wurde begonnen, frühere Immissionswerte in der Umgebung des alten Ofens der Firma CIBA abzuklären. Der Baum stammt von der Müllheimerstrasse, ca. 500 m südöstlich des alten Ofens. Es wurden folgenden Netto Werte gemessen: 1997: $85 \pm 6 \%$, 1991: $21 \pm 4 \%$, 1992: $15 \pm 3,4 \%$. Diese Messungen werden vervollständigt.

e) Zusätzliche Strahlendosen wegen ^{14}C

Die Grössenordnung von Netto Erhöhungen in der Umgebung von Kernanlagen wie auch in Basel beträgt 100 %. Unter der Annahme, dass eine Person in ihrem Körper eine ^{14}C Konzentration aufbauen würde, die 100 % über dem natürlichen Level läge, würde die Dosis ca. 1 μSv pro Jahr betragen. Dies ist gegenüber anderen Strahlendosen und deren Variationen vernachlässigbar, insbesondere gegenüber den Dosen wegen den Radon Folgeproduk-

ten. Diese Beurteilung ist in Uebereinstimmung mit einer Toleranzwertbetrachtung: Der Toleranzwert für ^{14}C beträgt in Lebensmitteln gemäss FIV 200 Bq/kg. Ein Wert von $\Delta^{14}\text{C} = +100\text{‰}$ entspricht einer Gesamtaktivität von 250 Bq/kg C, also einem Wert von ca. 40 Bq/kg Lebensmittel, was deutlich kleiner ist als der Toleranzwert.

f) Allgemeiner Kommentar zu den ^{14}C Resultaten

Die Bedeutung der gefundenen ^{14}C Erhöhungen in der Umgebung von Siedewasserreaktoren und von gewissen Industriebetrieben liegt nicht in der zusätzlichen Strahlendosis. Diese liegt in der Grössenordnung von höchstens μSv und fällt somit nicht ins Gewicht. Dieser Schluss ist vom Strahlenschutz auch dann richtig, wenn in Betracht gezogen wird, dass künstliche Radioaktivität, die mit Lebensmitteln aufgenommen wird, psychologisch gravierender erscheint als solche in anderen Medien.

Die Bedeutung der ^{14}C Messungen liegt vielmehr in der Möglichkeit, mit diesem Nuklid Emissionen verfolgen zu können und im besten Fall sogar Modellparameter quantitativ verifizieren zu können. Andere Abgaben etwa aus Kernkraftwerken führen nicht zu so deutliche messbaren Immissionen wie für ^{14}C . Zudem handelt es sich dann vorwiegend um die Kurzeitenausbreitung, die wegen den Variationen der Windverhältnisse mit sehr grossen Unsicherheiten verbunden sind, oft bis zu zwei Grössenordnungen. So würde man mindestens für die paar Kurzzeitabgaben während der Verbrennung im Novartis-Ofen in den Monaten April und Mai auch grössere Variationen der Immissionen erwarten. Bei den Siedewasserreaktoren mag eine Mittelung während der Wachstumsperiode zu einer Ausnivellierung führen, insbesondere, da beim KKL die Winde bevorzugt ins Rheintal wehen. Aber gerade in Basel könnten durchaus eine Verteilung in mehrere Sektoren und auch eine grössere Streuung der Absolutwerten erwartet werden. Entscheiden tun die Messungen (und nicht die Modelle) und deshalb ist eine Fortsetzung der Messungen nötig und auch geplant.

7.1.3 Krypton-85-Aktivität in Troposphärenluft

Figur 8 zeigt in der oberen Hälfte die Kr-85 Resultate der auf dem Jungfrauoch genommenen Wochenproben; in der unteren Hälfte sind zum Vergleich die Messwerte in Freiburg i.B. beigefügt. An dieser Stelle sei wiederum den beiden Hauswarten auf dem Jungfrauoch, Herrn F. Baertschi und Herrn P. Kuster für die zuverlässige Gewinnung der Kr-Proben herzlich gedankt. Aus den beiden Teilen der Figur sind folgende Ergebnisse ersichtlich:

- Der Grundlevel auf dem Jungfrauoch liegt 1996 etwa wie 1995 bei ca. $1,2 \text{ Bq/m}^3$.
- Die Kr-85 Aktivität in Freiburg ist fast immer höher als auf dem Jungfrauoch; der Grundlevel in Freiburg liegt bei etwa $1,3 \text{ Bq/m}^3$. Die Basiswerte sind auf dem Jungfrauoch deshalb kleiner, weil in der gesamten Atmosphäre wegen dem radioaktiven Zerfall eine Abnahme mit der Höhe auftritt (Weiss und Sartorius, 1995); die Quellen des Inventars befinden sich praktisch auf Meereshöhe und die Senke ist der Zerfall in der Atmosphäre.
- Die Spikes treten in Freiburg i.B. häufiger auf als auf dem Jungfrauoch und sind auch grösser (1996 bis maximal ca. $2,4 \text{ Bq/m}^3$). Das ist dadurch erklärbar, dass die Abluftfahne von La Hague oder Sellafield eine Flachlandstation mit höherer Konzentration und häufiger erreicht als eine Höhenstation, wo "reinere" Höhenluft beigemischt ist.
- Meistens ist die Konzentration in Freiburg i.B. auch erhöht, wenn auf dem Jungfrauoch erhöhte Werte auftreten.

Auch in Berner Luft wurden in vier Stichproben Kr-85 Aktivitäten bestimmt. Die Ergebnisse lauten:

Probenahmedatum	Messwert (Bq/m ³ Luft)
15.01.1996	1,37 ± 0,08
12.02.1996	1,32 ± 0,08
12.02.1996	1,33 ± 0,08
02.05.1996	1,82 ± 0,11

Diese Aktivitäten stimmen sehr gut mit Werten anderer europäischen Stationen überein.

Die durch ⁸⁵Kr bewirkte zusätzliche Dosis (Grössenordnung der Hautdosis: µSv) fällt nicht ins Gewicht, obschon Kr-85 das künstliche Nuklid mit der höchsten Aktivität in der Luft ist.

7.1.4 Tritium in Niederschlags-, Flusswasser und in Eisproben

Die gewichteten Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen blieben auch 1996 gegenüber dem Vorjahr praktisch unverändert (Fig. 10). Ob die minim höheren Werte auf der Alpennordseite auf den Einfluss von Industrietritium zurückzuführen sind, lässt sich nicht eindeutig beantworten. Ein erster Vergleich mit einer aus einem Eisbohrkern rekonstruierten Tritium-Zeitreihe vom Fiescherhorn Plateau weist allerdings auf eine solche Möglichkeit hin (siehe Figur 9) (U. Schotterer et al: From prebomb levels to industrial times: A complete tritium record from an alpine ice core and its relevance for environmental studies). Bern ist wegen der Freisetzung von Industrietritium gegenüber den anderen Stationen erhöht. In Basel, Vaduz und Nyon sind lokale Einflüsse ebenfalls nicht ganz auszuschliessen.

In den Monatsmittelwerten fallen vor allem März und April auf, beide Monate sind besonders auf der Alpennordseite deutlich erhöht. Im übrigen liegen die Winterwerte mancher Stationen bereits an der Nachweisgrenze des LSC- Methode. Die Inbetriebnahme eines grossvolumigen Messgerätes, das die Nachweisgrenze für Tritium unter 0.1 Bq/l (und damit in dem Bereich der natürlichen Produktion) bringt, erfolgte im ersten Quartal 97. Das Gerät arbeitet nun sehr zufriedenstellend im Routinebetrieb.

Auch in der Aare bei Brugg blieben die Tritiumwerte gegenüber dem Vorjahr unverändert. Die Ursache für die Erhöhung im Mai 1996 ist nicht bekannt.

Literatur

Stuiver, M. and Polach, H.A.: Discussion reporting of ^{14}C data, Radiocarbon 19, 3, 1977, 355-363.

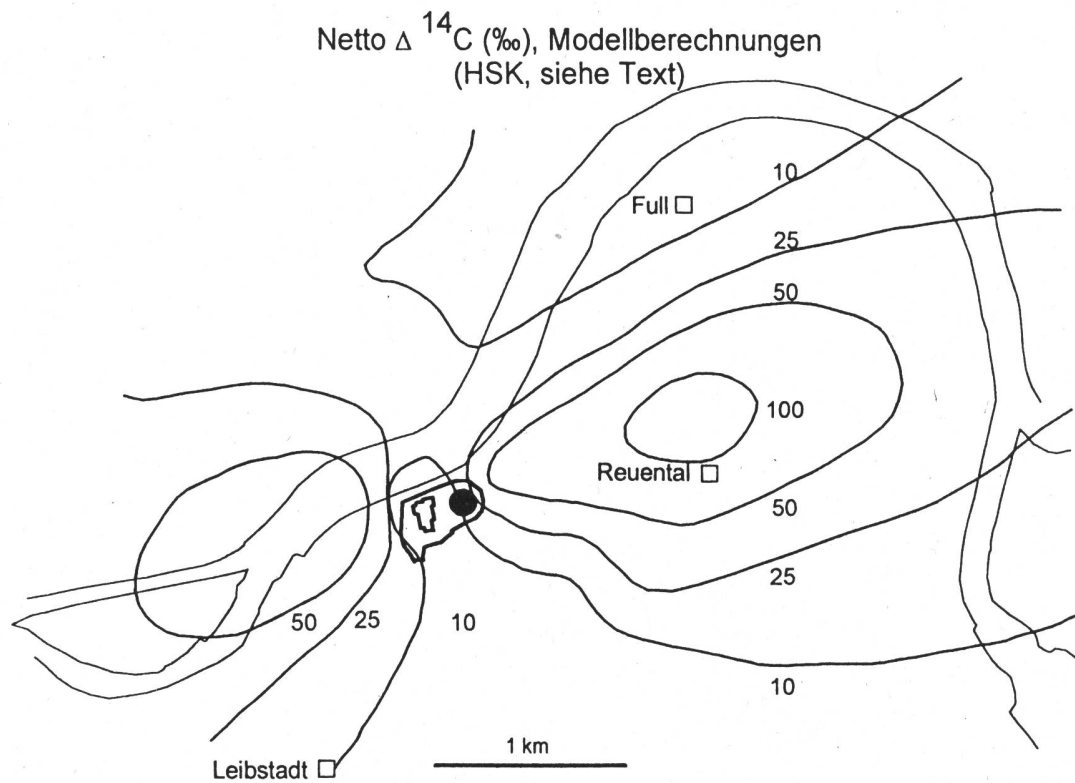
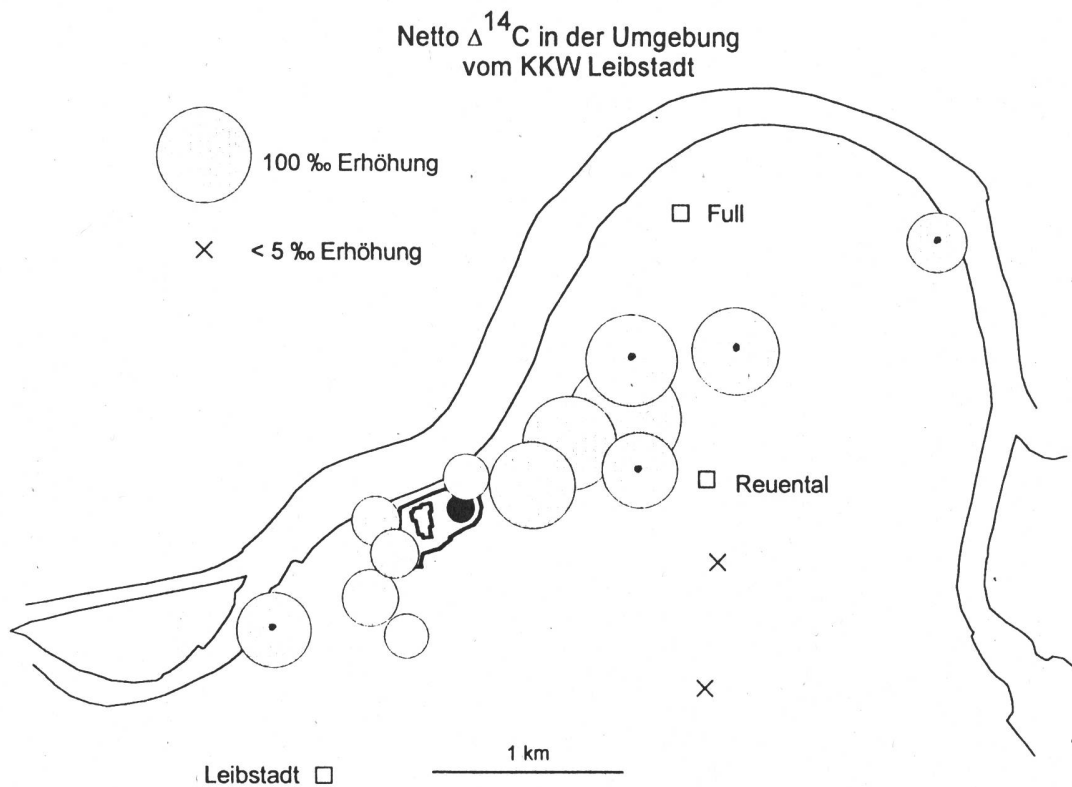
Levin, I. and Kromer, B.: Twenty years of high precision atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ observations at Schauinsland station, Germany, pH-1762, submitted 1997 to Radiocarbon.

International Atomic Energy Agency (IAEA), 1980: Atmospheric Dispersion in Nuclear Plant Siting, IAEA Safety Guides, Safety series No. 50-SG-S3.

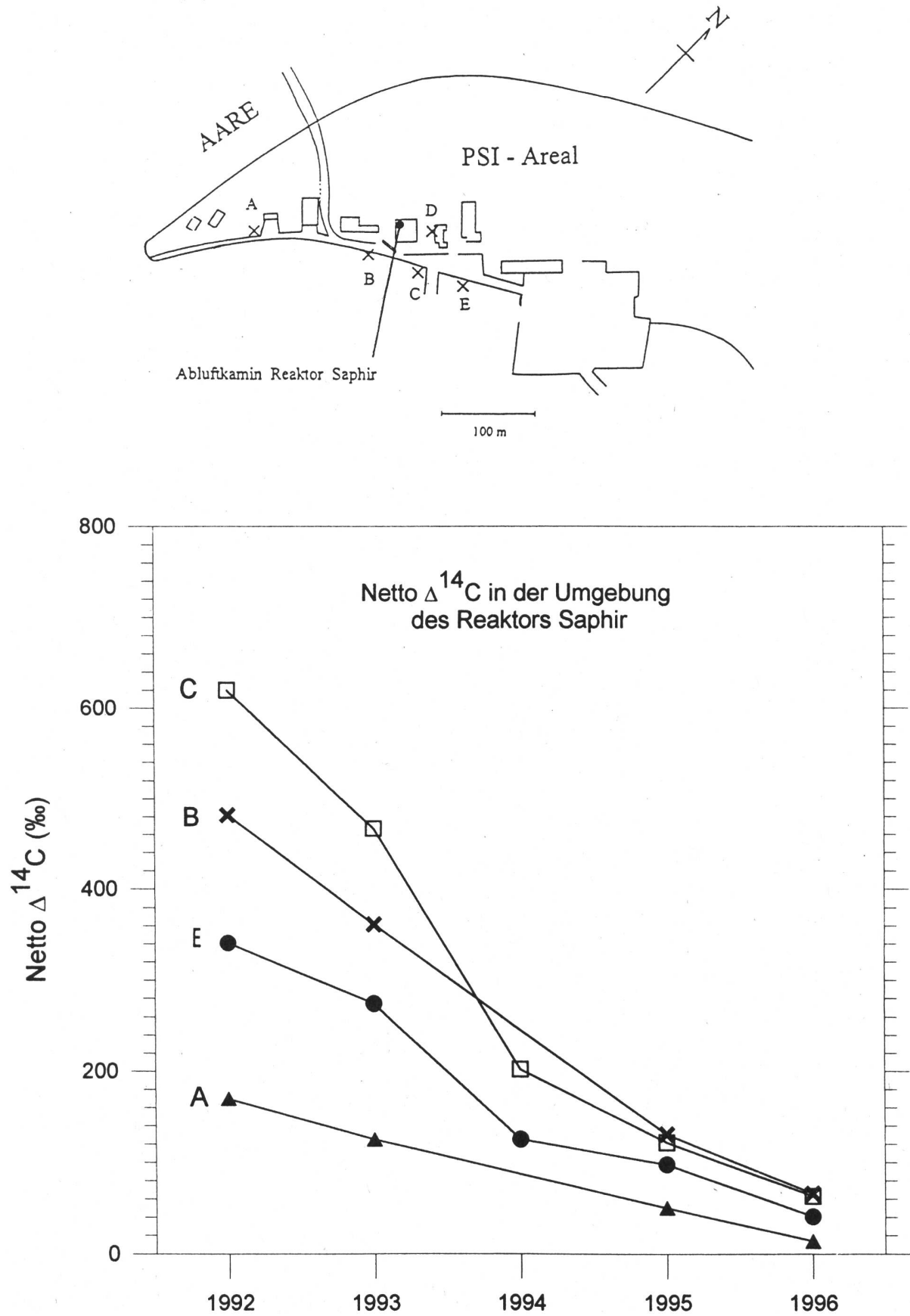
HSK-Richtlinie R-41: Berechnung der Strahlenexposition in der Umgebung aufgrund von Emissionen radioaktiver Stoffe aus Kernanlagen.

Weiss, W. and Sartorius, H.: Krypton-85, ein anthropogener Spurenstoff der Atmosphäre mit kontinuierlich ansteigendem Inventar, Proc. des Seminars über Umweltbelastung durch langlebige künstlich erzeugte Radionuklide, Luzern und Vitznau, 1995, 37-42.

Figur 1: oben: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in der Umgebung vom KKW Leibstadt
unten: zum Vergleich: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte aus Modellberechnungen der HSK

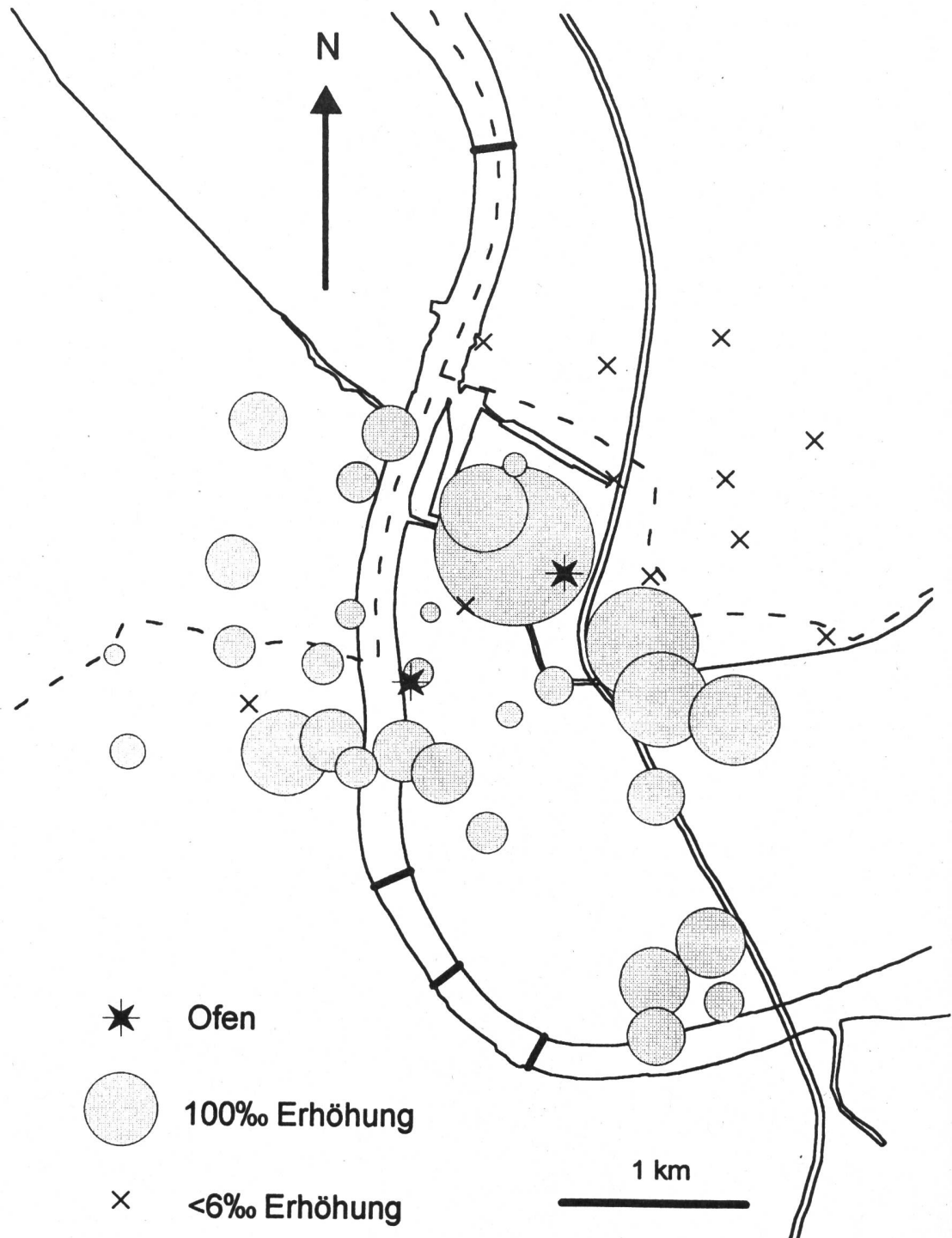


Figur 2: Zeitliche Entwicklung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in der Nahumgebung des ehemaligen Reaktors Saphir des PSI.

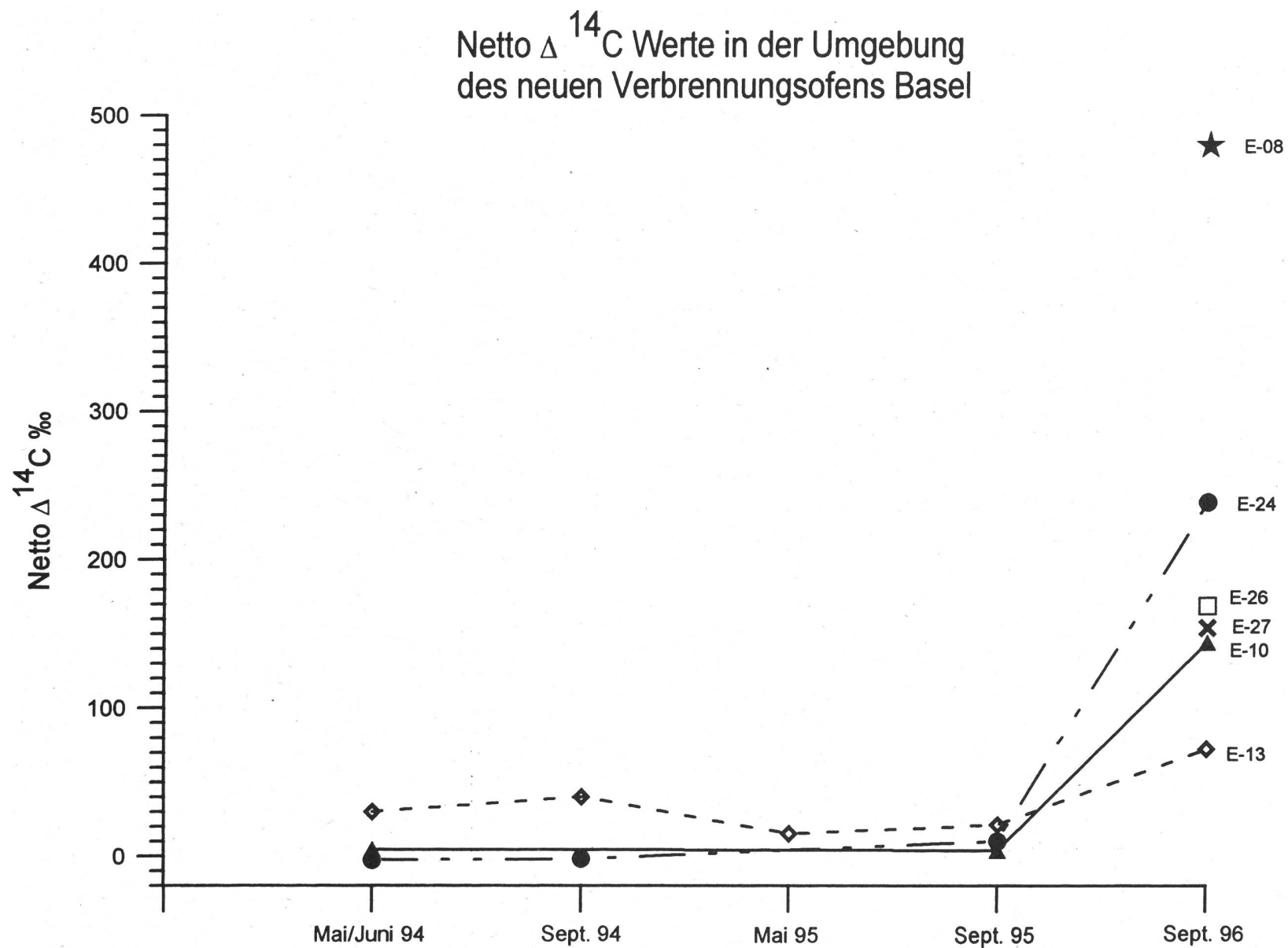


Figur 3: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in Basel in der Umgebung des alten und neuen Verbrennungsofens der Firma Novartis und in der Umgebung der Firma Roche.

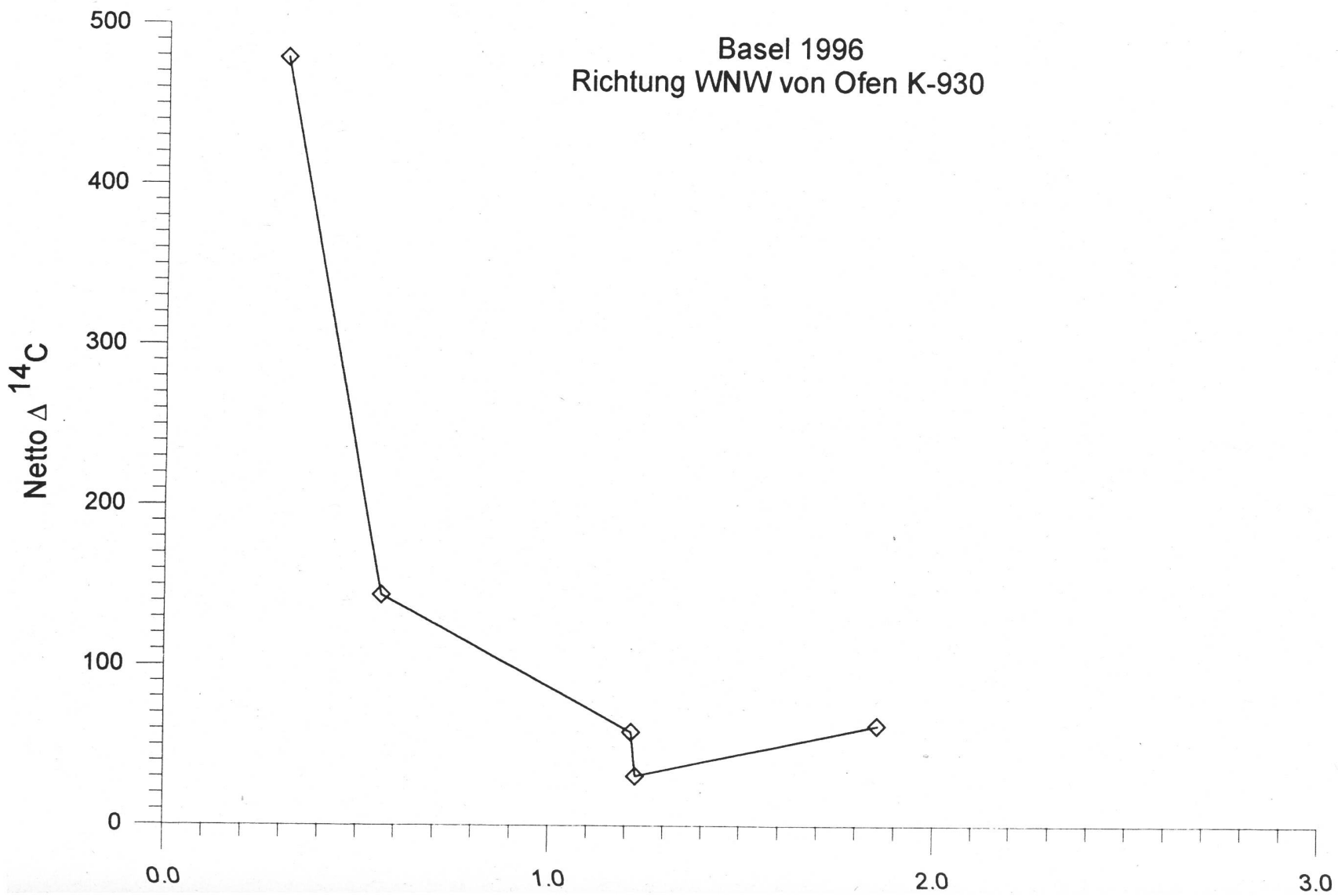
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte, Herbst 1996



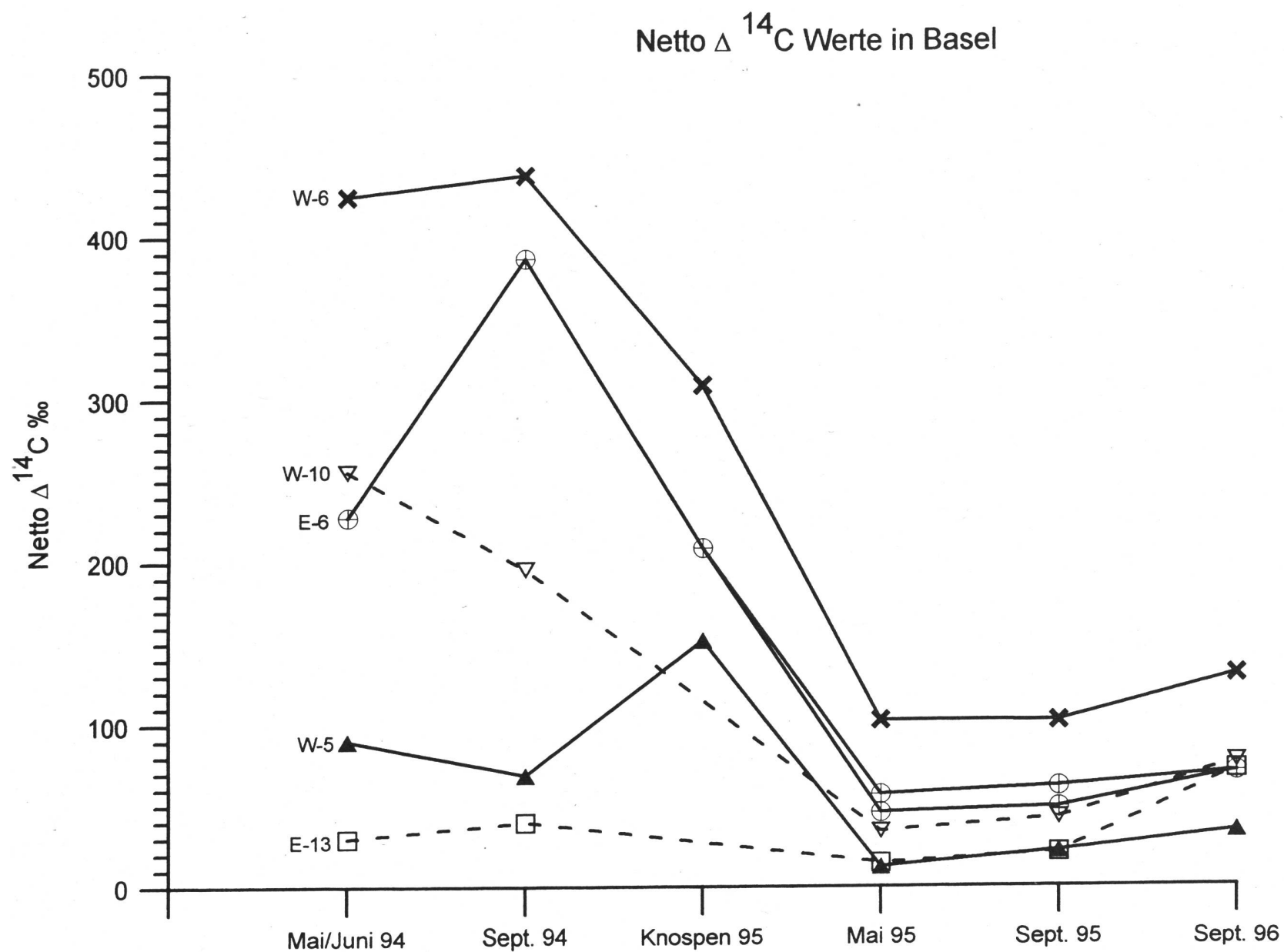
Figur 4: Zunahme der ^{14}C Werte an einzelnen Standorten, nachdem 1996 mit der Verbrennung ^{14}C haltiger Abfälle im neuen Ofen begonnen wurde.



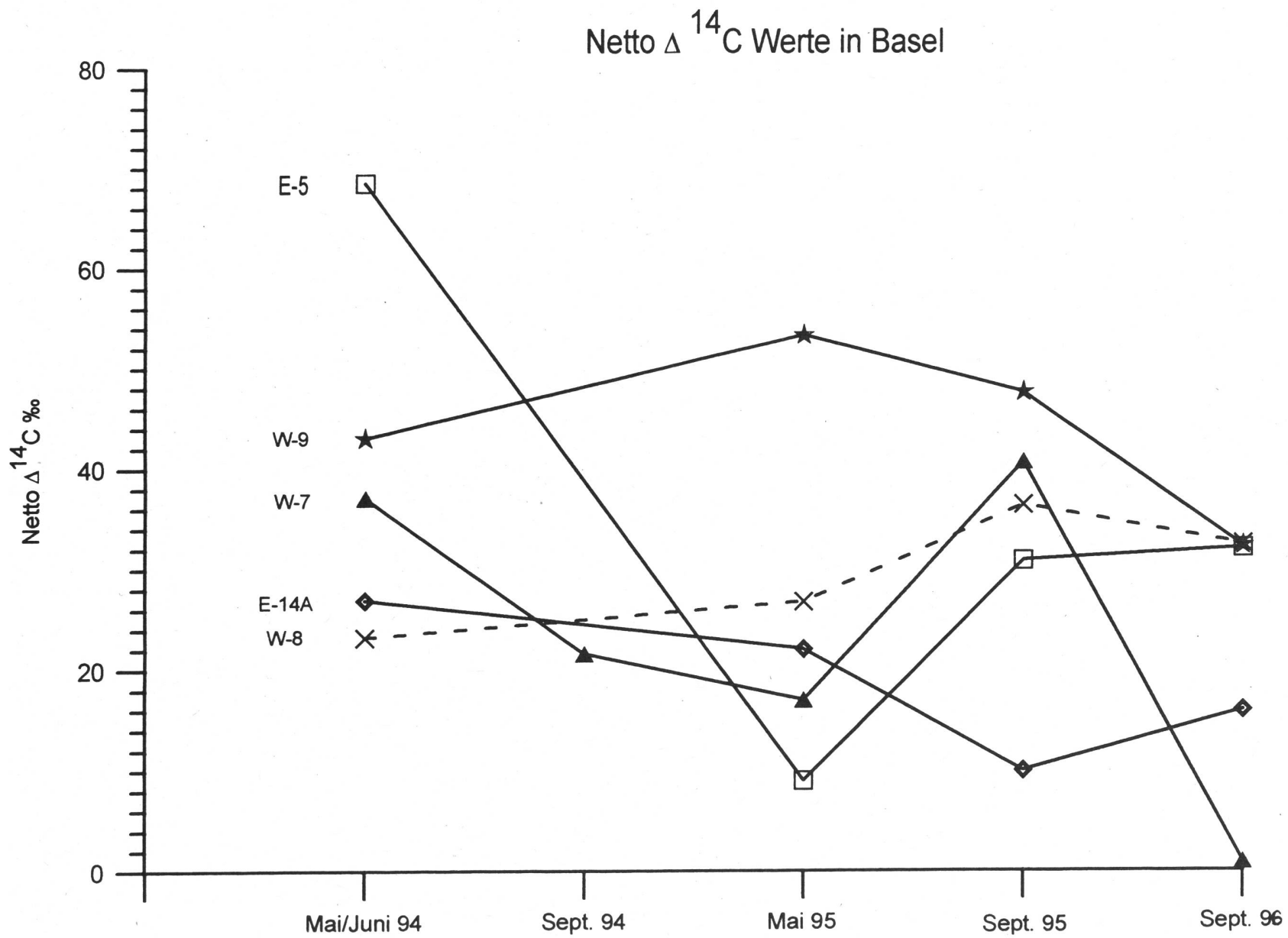
Figur 5: Radialabhängigkeit der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Aktivitäten in west-nordwestlicher Richtung vom neuen Verbrennungssofen K-930.



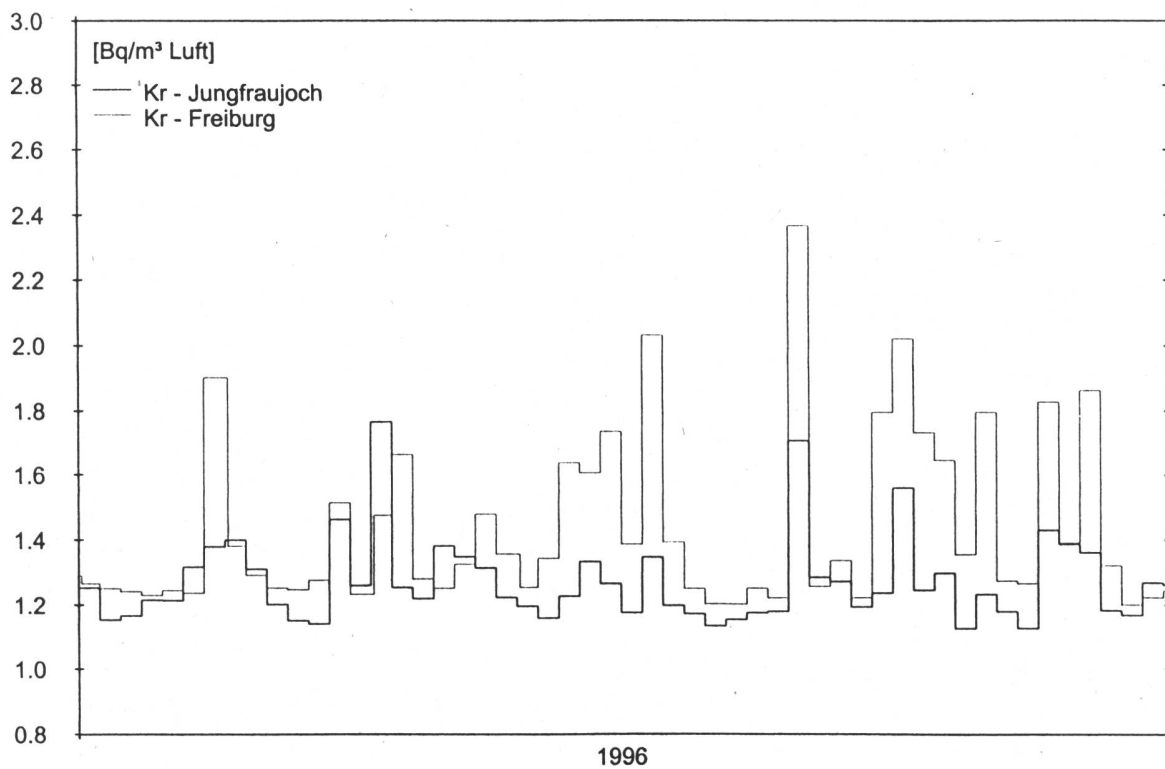
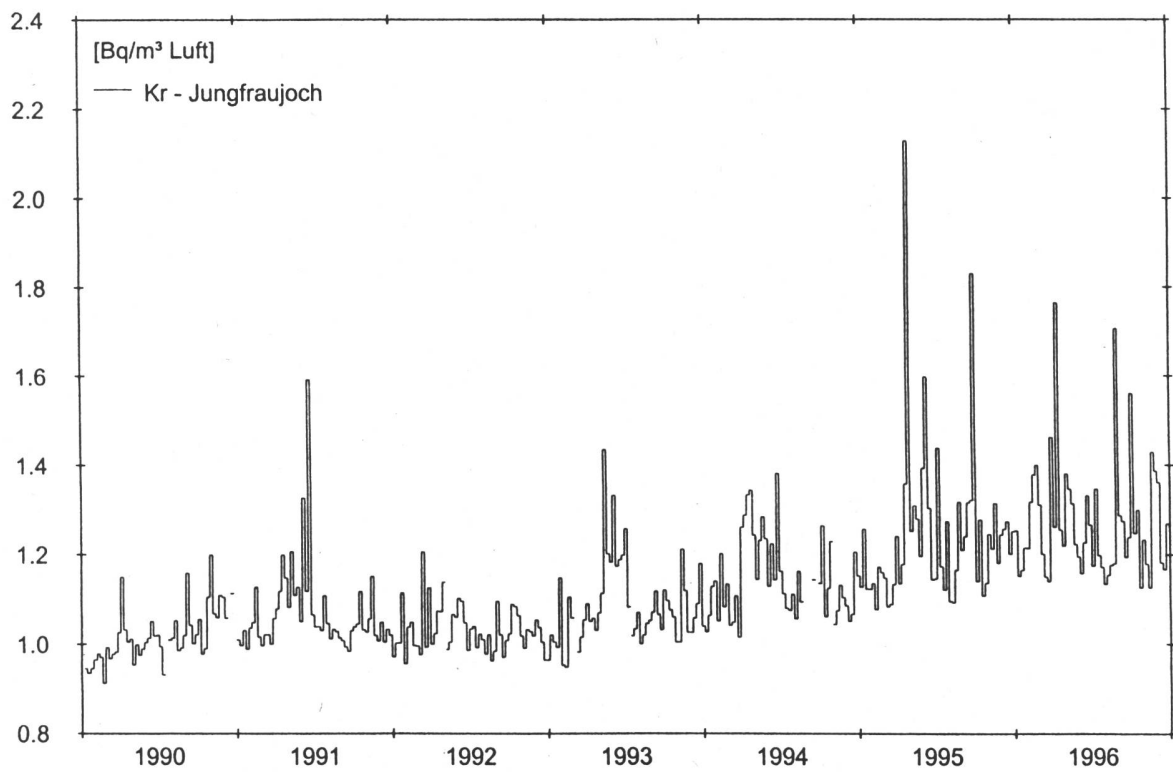
Figur 6: Zeitliche Entwicklung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in der Nähe des Voltaplatzes und der Dreirosenbrücke in Basel.



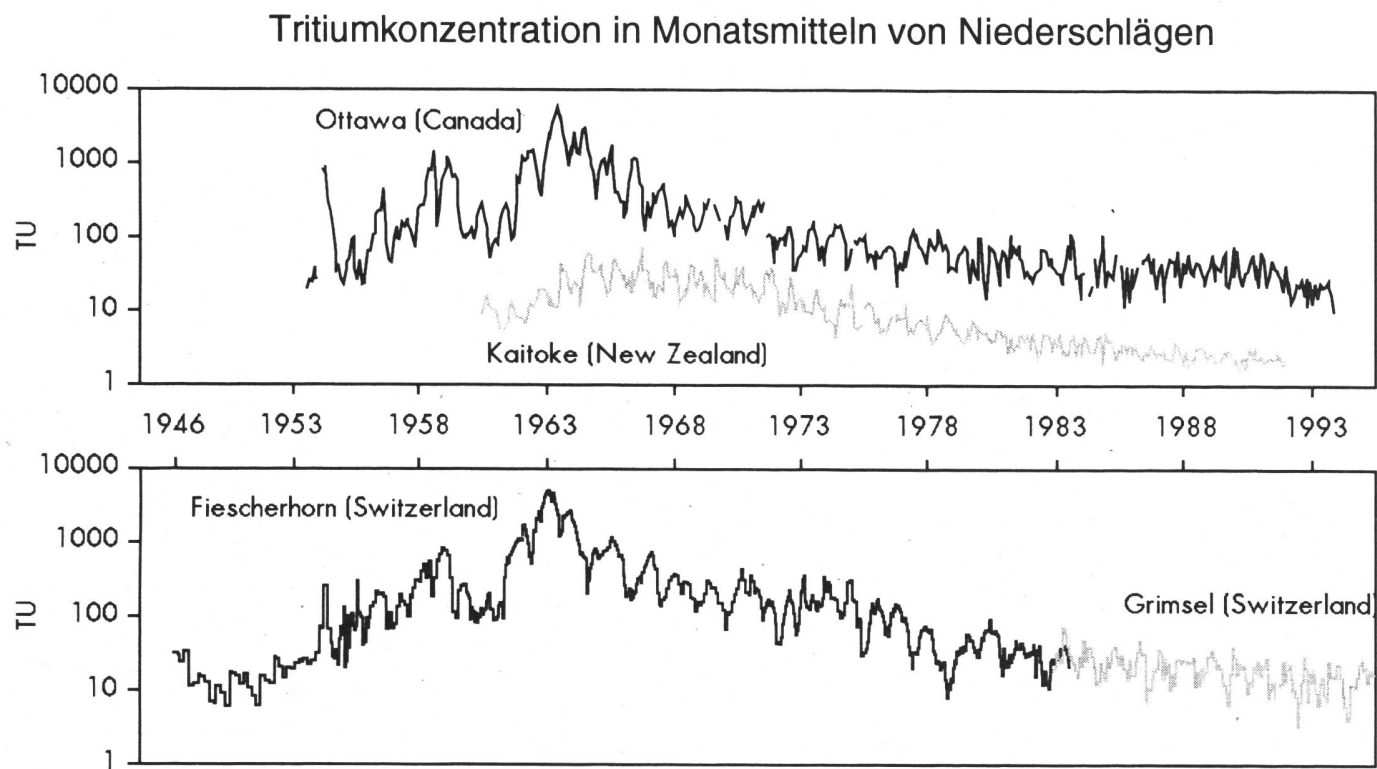
Figur 7: Zeitliche Entwicklung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ Werte in der weiteren Umgebung des alten VerbrennungsOfens der CIBA.



Figur 8: Kr-85 Aktivitäten in Wochenproben vom Jungfraujoch und von Freiburg i.B.



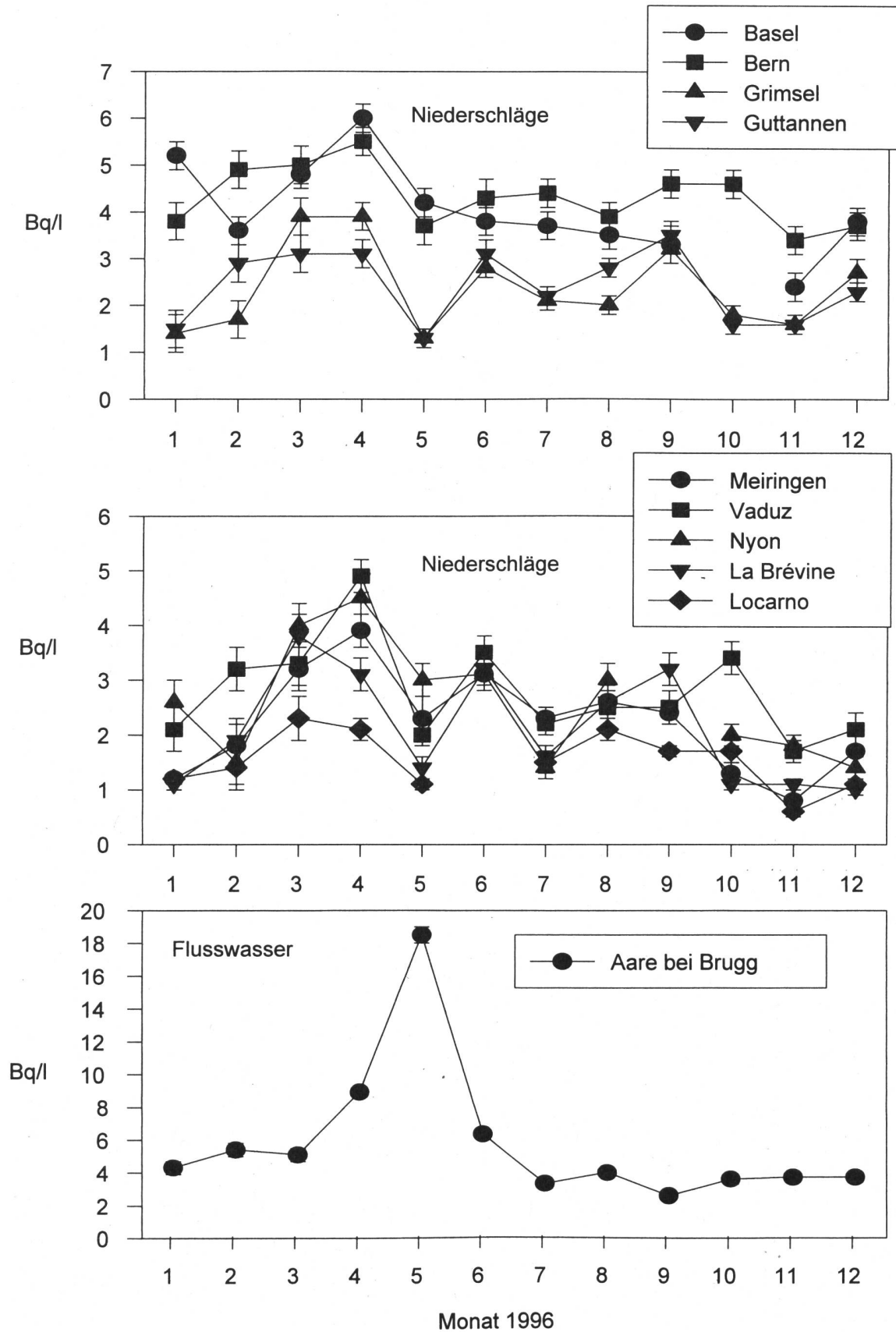
Figur 9: Tritiumkonzentrationen in Monatsmitteln von Niederschlägen.



Rekonstruktion der Tritiumkonzentration in Niederschlägen aus einem Eisbohrkern

Aus: U. Schotterer et al., From prebomb levels to industrial times: A complete tritium record from an alpine ice core and its relevance for environmental studies, IAEA, Vienna, 1997

Figur 10: Tritiumkonzentrationen in Niederschlags- und Flusswasserproben.



7.2. Mesures de strontium-90 dans le sol, l'herbe, le lait et le froment

J.-J. Geering, J.-F. Valley

Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, 1015 LAUSANNE

M. Burger, R. Holzer

AC-Laboratorium Spiez
Gruppe Rüstung, EMD, 3700 SPIEZ

V. Figueiredo, A. Herrmann

Kantonaies Laboratorium BS, 4012 BASEL

Résumé

En 1996, les déterminations de strontium-90 dans des échantillons de sol, d'herbe, de lait et de froment ont été effectuées conformément au plan de prélèvement établi par la Section surveillance de la radioactivité de l'OFSP. Les résultats restent comparables à ceux des années précédentes. Aucune augmentation de l'activité du strontium-90 n'a pu être mise en évidence aux alentours des centrales nucléaires. En plaine, on a mesuré, en 1996, 0,8 à 9,7 Bq/kg de strontium-90 dans le sol, 0,5 à 25 Bq/kg dans l'herbe, 0,02 à 0,3 Bq/l dans le lait et 0,37 à 0,80 Bq/kg dans le blé.

7.2.1. Introduction

Les déterminations en routine du strontium-90 dans l'environnement doivent permettre de déceler à son tout premier stade une éventuelle augmentation de la concentration de ce radionucléide en raison du risque particulièrement élevé que comporte son ingestion. Ce risque est lié à sa longue période, à l'énergie bêta maximale élevée de son produit de filiation, l'yttrium-90, et au fait que le strontium, dont le métabolisme est apparenté à celui du calcium, se fixe dans le squelette et les autres tissus calcifiés [1,2].

Le strontium-90 présent actuellement dans l'environnement provient essentiellement des retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante.

Les déterminations de strontium-90 ont porté, en 1996, principalement sur des échantillons de sol (couche de 0 à 5 cm de profondeur), d'herbe, de lait et de froment provenant des environs des centrales nucléaires (Beznau, Mühleberg, Gösgen et Leibstadt). De plus, des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été collectés sur les sites de plaine suivants, éloignés de toute source de contamination: Arenenberg (TG), Coire (GR), Grangeneuve (FR), Fahrni (BE), Diesse (BE), Lausanne (VD), Finges (VS), Rodi (TI), Sessa (TI) et Sissach (BL), ainsi qu'aux points d'altitude suivants: Davos (GR), Rasa (TI) ainsi que Gimmelwald et Allmendhubel près de Mürren (BE). Des échantillons de lait ont également été collectés à Saignelégier (JU) et Vendlincourt (JU). Des échantillons de froment provenant de chacune des régions de production de Suisse ont aussi été analysés.

7.2.2. Résultats de la surveillance

A titre de comparaison, les résultats de la surveillance du strontium-90 en 1995 ont également été reportés dans les tableaux.

Les déterminations de strontium-90 dans le sol, l'herbe et le lait des sites de Fahrni, Diesse et de la région de Mürren (Gimmelwald et Allmendhubel) ont été effectuées par le laboratoire AC de Spiez. L'analyse dans le lait de Mühleberg a été faite par le laboratoire cantonal de Berne. Les résultats de mesure du strontium-90 des laits de Sissach, Rasa, Rodi, Sessa, Saignelégier et Vendlincourt ont été fournis par le laboratoire cantonal de Bâle-Ville.

Les marges d'erreur sur les résultats individuels indiquent l'écart-type (comptage et séparation chimique).

Sol

Les activités en strontium-90 mesurées en 1996 dans le sol sont reportées dans le tableau 1. Les prélèvements sont effectués selon les directives de l'Office fédéral de la santé publique.

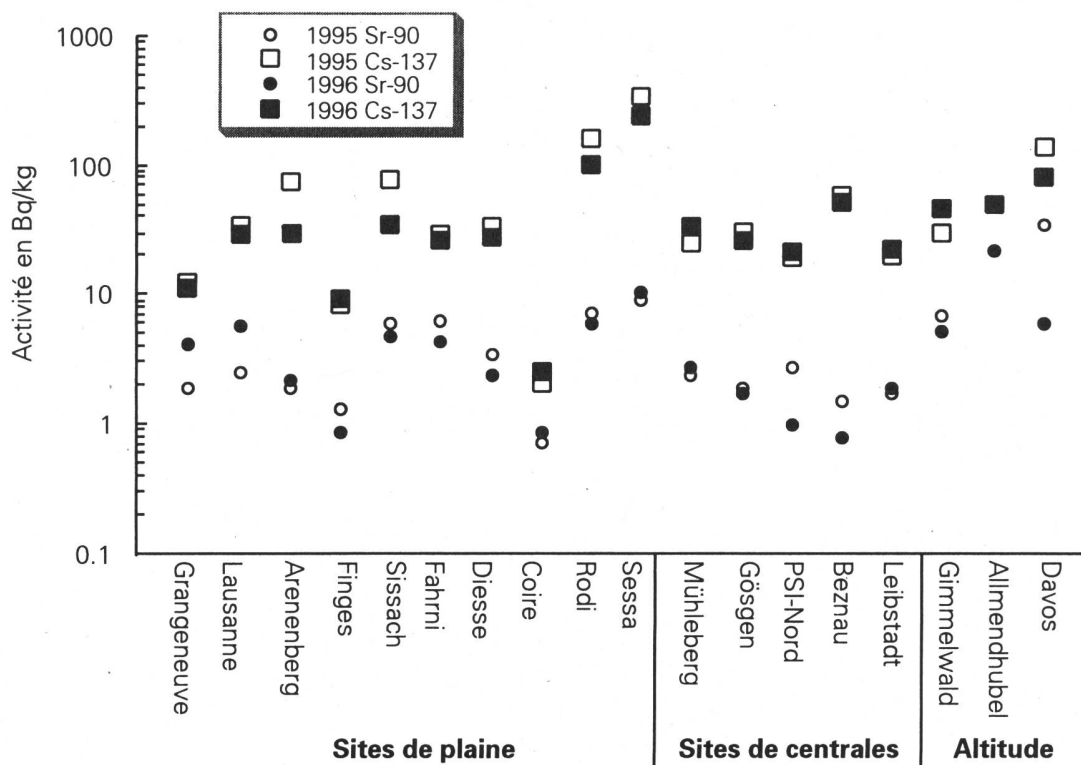
Les résultats de mesure restent comparables à ceux des années précédentes. Les sites en altitude présentent des activités plus élevées qu'en plaine. L'effet de l'altitude est particulièrement frappant pour les prélèvements de sol, d'herbe et de lait à Gimmelwald (1000 m) et Allmendhubel (1500 m). Quant aux fluctuations dans le temps de l'activité du strontium-90 dans le sol et l'herbe, elles peuvent être attribuées à la diversité des sols et de l'herbe, à la topographie et aux microclimats, surtout en montagne. Comme les déterminations dans le sol se limitent à la couche de 0 à 5 cm de profondeur, la vitesse de migration du strontium-90 dans le sol a également une influence sur l'activité de ce nuclide. Pour une raison encore inexpliquée, l'activité mesurée dans le sol de Davos est plus basse que les années précédentes (moyenne de 1991 à 1995: 37 ± 3 Bq/kg).

Tableau 1: Concentration en strontium-90 dans le sol (Bq/kg MS*)

	1995	1996
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	1,5 - 2,8	1,0 - 2,6
Sites de plaine	0,7 - 6,4	0,8 - 9,7
Sites en altitude		
Davos (GR)	$35,2 \pm 0,7$	$6,1 \pm 0,3$
Gimmelwald (BE)	$7,0 \pm 0,6$	$5,3 \pm 0,5$
Allmendhubel (BE)	-	$22,7 \pm 3,4$

* matière sèche

Figure 1: Concentration radioactive du strontium-90 et du césium-137 dans les sols en 1995 et 1996



La figure 1 présente les activités en strontium-90 et en césium-137 des sols individuels. Le rapport $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ est en moyenne proche de 10 à part quelques valeurs élevées observées tant en plaine qu'en montagne. Le rapport $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ dans les retombées des années soixante est estimé à 1,6 [3], ces deux nucléides ne subissant pas de fractionnement au moment de l'explosion. Les valeurs plus élevées de ce rapport mesurées actuellement dans le sol s'expliquent par la vitesse de migration dans les sols du strontium plus grande que celle du césium, ainsi que par l'apport dû à l'accident de Tchernobyl. Comme le montre la figure 1, l'activité en strontium-90 du sol au voisinage des sites de centrales nucléaires ne diffère pas des autres sites de plaine.

Herbe

Les résultats sont présentés dans le tableau 2. Comme les années précédentes, les activités en strontium-90 et en césium-137 dans l'herbe de Sessa sont plus élevées que dans les autres sites de plaine, où l'activité du césium-137 reste en général en-dessous de la limite de détection (env. 1,3 Bq/kg). Par contre, la limite de détection du strontium-90 dans l'herbe est plus basse (env. 0,1 Bq/kg).

Tableau 2: Concentration en strontium-90 dans l'herbe (Bq/kg MS)

	1995	1996
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	1,5 - 5,2	1,2 - 8,0
Sites de plaine	0,7 - 6,5	0,5 - 10,6
Exception: Sessa	15,4 ± 0,3	22,3 ± 1,3
Sites en altitude		
Davos (GR) été	8,0 ± 0,3	7,7 ± 0,4
automne	23,8 ± 0,5	17,9 ± 0,9
Gimmelwald (BE)	11,3 ± 1,0	2,2 ± 0,2
Allmendhubel (BE)	-	28,3 ± 2,3

Froment

Les activités en strontium-90 mesurées en 1996 dans les blés, tant au voisinage des centrales nucléaires que dans les 9 zones de production couvrant l'ensemble du territoire suisse, ne permettent pas de mettre en évidence des différences significatives entre régions. Les activités sont comprises entre 0,37 et 0,80 Bq/kg (0,28 et 0,50 Bq/kg en 1995) et confirment les valeurs mesurées les années précédentes.

Lait

Le tableau 3 présente les résultats des analyses de strontium-90 dans le lait, comparables aux valeurs mesurées les années précédentes. On ne constate aucune augmentation de l'activité en strontium-90 du lait dans l'environnement des centrales nucléaires.

A Sessa et à Rodi, qui constituent des exceptions pour les sites de plaine, ainsi que dans les points en altitude de Davos et Mürren, les activités en strontium-90 du lait sont plus élevées et reflètent celles de l'herbe. Remarquons que l'activité du césium-137 est légèrement plus élevée dans le lait de montagne, alors que dans les laits de plaine, elle reste, actuellement, le plus souvent en-dessous de la limite de détection.

Tableau 3: Concentration en Sr-90 dans le lait (Bq/l)

		1995	1996
Sites proches des centrales nucléaires et du PSI	moyenne	0,06 -0,09 0,07 ±0,01	0,07 -0,09 0,08 ±0,01
Sites de plaine	moyenne	0,03 -0,14 0,06 ±0,02	0,02 -0,16 0,07 ±0,03
Exceptions:	Rodi (TI)	0,30 ±0,01	0,18 ±0,03
	Sessa (TI)	0,40 ±0,04	0,26 ±0,07
Sites en altitude			
Davos (GR)	été	0,44 ±0,01	0,12 ±0,01
	automne	0,27 ±0,02	0,37 ±0,02
Gimmelwald (BE)	été	0,12 ±0,01	0,12 ±0,01
Allmendhubel (BE)	été	-	0,54 ±0,05
Rasa (TI)	été	0,49 ±0,02	0,38 ±0,03
	automne	0,49 ±0,02	0,33 ±0,01

7.2.3. Facteurs de transfert

Les facteurs de transfert sol-herbe, rapportés à la masse, et herbe-lait, rapportés à la teneur en calcium, déterminés sur les sites où des échantillons de sol, d'herbe et de lait ont été prélevés simultanément, corroborent les valeurs mesurées les années précédentes. Les valeurs moyennes des facteurs de transfert mesurés de 1990 à 1996 à Grangeneuve, Lausanne, Arenenberg, Finges, Coire et Davos sont de $1,6 \pm 0,2$ pour le transfert sol-herbe et de $0,20 \pm 0,03$ pour le transfert herbe-lait. On observe cependant de grandes fluctuations dans le temps ainsi qu'entre sites de prélèvement, imputables aux conditions météorologiques, aux types de sols, aux variétés d'herbe, à la saison, etc. [4].

7.2.4. Conclusions

Les déterminations de strontium-90 effectuées en Suisse en 1996 dans le sol, l'herbe, le lait et le blé ont donné des résultats comparables à ceux mesurés depuis 1989, lorsque les effets de l'accident de Tchernobyl n'étaient plus guère perceptibles dans la chaîne alimentaire. De même, les activités en strontium-90 dans le sol, l'herbe et le lait les plus élevées ont été mesurées en montagne (Mürren, Davos), ainsi qu'à Sessa qui constitue une exception pour les sites de plaine. Les moyennes des facteurs de transfert, pour les années 1990 à 1996, se situent respectivement vers 1,6 pour le transfert sol-herbe et vers 0,2 pour le transfert herbe-lait. Dans les sols, les activités en strontium-90 sont environ 10 fois plus faibles que celles du césium-137. Comme pour le strontium-90, l'activité en césium-137 des sols de montagne est plus élevée qu'en plaine.

Remerciements

Nous tenons à remercier toutes les personnes qui ont contribué à ce travail en fournissant les échantillons, en particulier la section de surveillance de la radioactivité à Fribourg et les laboratoires cantonaux.

Bibliographie

- [1] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1982.
- [2] Some Aspects of Strontium Radiobiology, NCRP Report N0. 110, Bethesda, 1991, p. 38-48.
- [3] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, UNSCEAR Report, United Nations Publication, New-York 1969.
- [4] W. Steffens, W. Mittelstädt, F. Führ, The Transfer of Sr-90, Cs-137, Co-60 and Mn-54 from Soils to Plants. Results from Lysimeter Experiments, Pergamon Press, Oxford (1980), p.1139.

7.3. Mesures de plutonium dans quelques échantillons clefs de la Suisse: surveillance et évaluation des dépôts atmosphériques

J.-J. Geering, T. Buchillier, M. Kosinski, J.-F. Valley

Institut de radiophysique appliquée
Centre Universitaire, IRA, 1015 LAUSANNE

A. Albrecht

Institut fédéral pour l'aménagement, l'épuration et la protection
des eaux, EAWAG-ETH, 8600 DÜBENDORF

A. Oess

Institut d'Aménagement des terres et des eaux
Pédologie, EPFL, 1015 LAUSANNE

Résumé

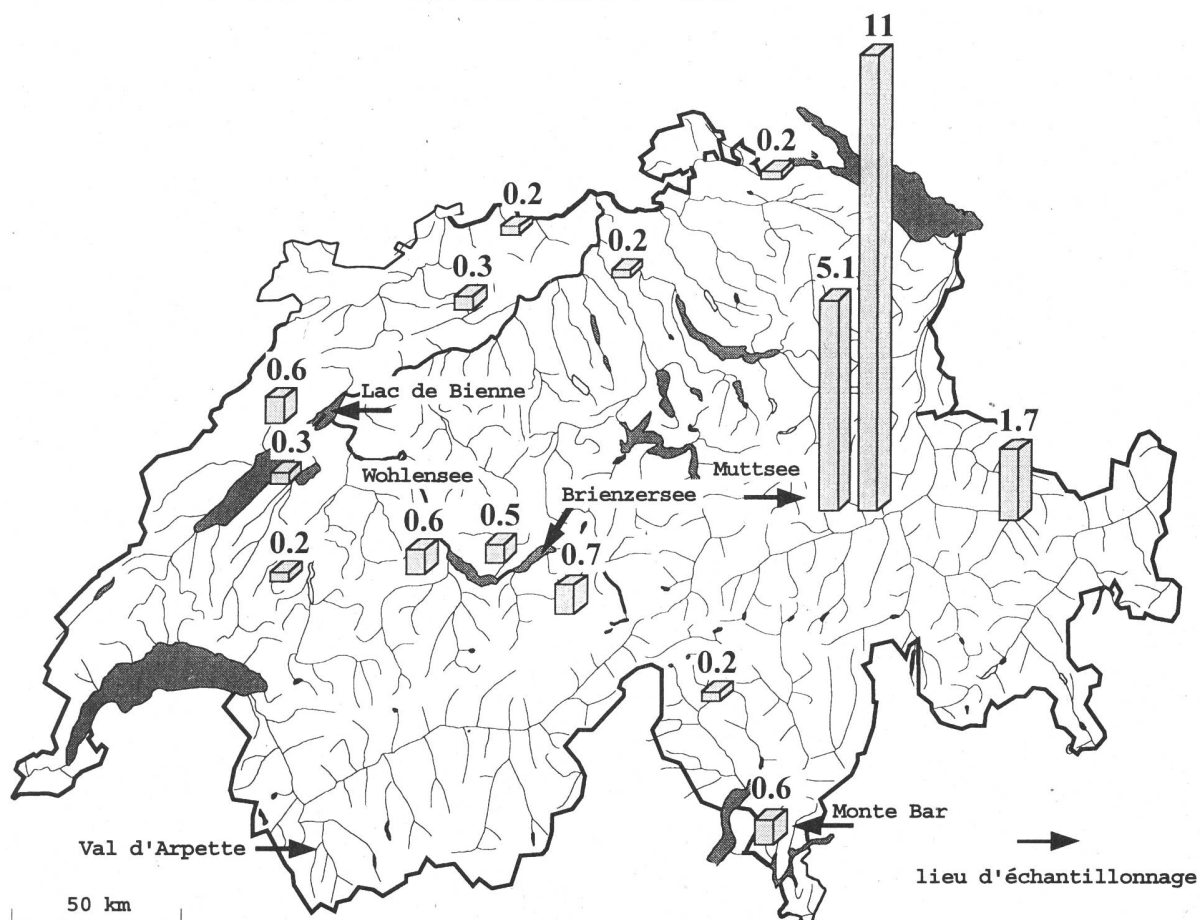
Les déterminations de $^{239,240}\text{Pu}$ -ainsi que celles du ^{238}Pu - effectuées en 1996 ont porté sur des échantillons de sols, de sédiments, d'eaux et de filtres aérosol. Les niveaux d'activité de ces nucléides sont très faibles. Ils confirment les valeurs mesurées en 1994 et 1995. L'activité en $^{239,240}\text{Pu}$ était, en 1996, comprise entre 0.16 et 1.5 Bq/kg dans le sol, entre 0.04 et 0.12 Bq/kg dans les sédiments; dans l'air prélevé au moyen d'un filtre aérosol, on a mesuré 1.9 nBq/m³ au Weisfluhjoch et moins de 1.6 nBq/m³ à Fribourg. Pour mieux comprendre les variations locales et pour évaluer le flux total de plutonium en Suisse une étude plus détaillée sur les sédiments et les sols a été réalisée. Les sédiments permettent de mesurer l'activité du plutonium en fonction du temps. Pour les sédiments déposés dans les années quarante et cinquante l'activité est de 0.02 Bq/kg, augmente d'un facteur 100 pour les sédiments des années soixante, mais reste à un niveau mesurable dans les sédiments plus récents. Cette activité est due essentiellement à l'érosion de sol. Les profils de sol permettent une estimation du flux total de Pu pour la Suisse qui se situe entre 65 et 100 Bq/m² ($^{239,240}\text{Pu}$) avec un rapport $^{239,240}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ de 30.

7.3.1. Introduction

Il existe trois différents niveaux d'approche permettant d'appréhender l'étude des radionucléides dans l'environnement. Le premier niveau, qui trouve son application surtout en radioécologie, consiste à mesurer l'activité des radionucléides d'un échantillon soit par unité de masse [Bq/kg] ou par unité de volume [Bq/l]. Le deuxième niveau tente de préciser l'origine de la radioactivité (dépôt atmosphérique ou décharge). Cette approche peut s'appréhender en effectuant des mesures d'activité sur les précipitations en fonction du temps ou en se servant des archives naturelles que sont les carottes de sédiments ou de sols. Le troisième niveau intègre les 2 premiers mais cherche en plus à comprendre les processus chimiques et physiques qui contrôlent le dépôt, le stockage ou la migration des radionucléides dans chaque compartiment et le transfert d'un système à un autre.

En ce qui concerne les études effectuées sur le plutonium en Suisse, le premier niveau a été atteint grâce aux analyses effectuées sur des échantillons de sol (Figure 1), de sédiments, des eaux et de l'air, qui seront présentées dans la première partie de ce rapport.

Figure 1: Activité de $^{239,240}\text{Pu}$ en $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ dans différents sols suisses provenant d'horizons supérieurs. Les flèches indiquent les lieux d'échantillonnage pour les sols et les sédiments étudiés en détail.



Le plutonium déposé en Suisse provient de retombées atmosphériques et peut être attribué aux essais atomiques (1944-1963) d'une part (UNSCEAR, 1972) et aux dépôts du satellite SNAP-9A en ce qui concerne le ^{238}Pu d'autre part (Hardy et al., 1973). Les dépôts dus au satellite sont cependant nettement plus faibles et peuvent être évalués à l'aide des différents rapports isotopiques typiques du Pu. La plupart des composés du Pu se trouvent dans la nature surtout associés aux particules de sol et de sédiment (Graf, 1994). La surveillance du Pu dans l'environnement est nécessaire à cause de sa radiotoxicité élevée.

7.3.2. Préparation des échantillons et méthode de séparation chimique du plutonium

Pour déterminer le plutonium dans l'environnement, il est nécessaire d'engager dans l'analyse une grande masse d'échantillon (au moins 30 g de sol ou de sédiment). Pour les carottes de sédiments des différents lacs, les échantillons ont été séchés et la radioactivité γ mesurée. La distribution du radiocésium en fonction de la profondeur a été utilisée pour la datation (Albrecht et al., 1997a). Elle a permis de déterminer le taux de sédimentation et la période représentée par chaque échantillon. Les profils de sols ont été pris en bloc sur le terrain, tranchés au laboratoire et traités de suite comme les sédiments. La masse de

particules sèches et le volume total pris par échantillon ont été mesurés et seront présentés sous forme de densité (à sec, brut en g cm⁻³).

Lors de la séparation chimique la totalité de la matrice de l'échantillon a dû être éliminée, ainsi que les radionuclides qui pourraient interférer dans la mesure par spectrométrie alpha du ^{239,240}Pu et du ²⁴²Pu (par exemple ²⁴¹Am, ²²⁸Th). Le ²⁴²Pu, absent de l'environnement, est utilisé comme traceur afin de tenir compte des pertes inévitables lors de la séparation chimique.

La méthode de séparation chimique utilisée en 1996 est adaptée de la méthode de EML (1990). Elle comprend les étapes suivantes:

- calcination à 550° C et adjonction d'un traceur (²⁴²Pu)
- mise en solution répétée des actinides dans de l'acide nitrique 8M, suivie de centrifugations.
- deux purifications successives du plutonium sur résine anionique après ajustement du degré d'oxydation du plutonium à +4 avec du nitrite de sodium. Le plutonium est élué par une solution nitrique d'hydroxylamine.
- électrodéposition et comptage par spectrométrie α au moyen de détecteurs à barrière de surface.

7.3.3. Résultats de la surveillance

Tableau 1: Concentration en plutonium dans le sol en 1996 (couche de 0 à 5 cm)

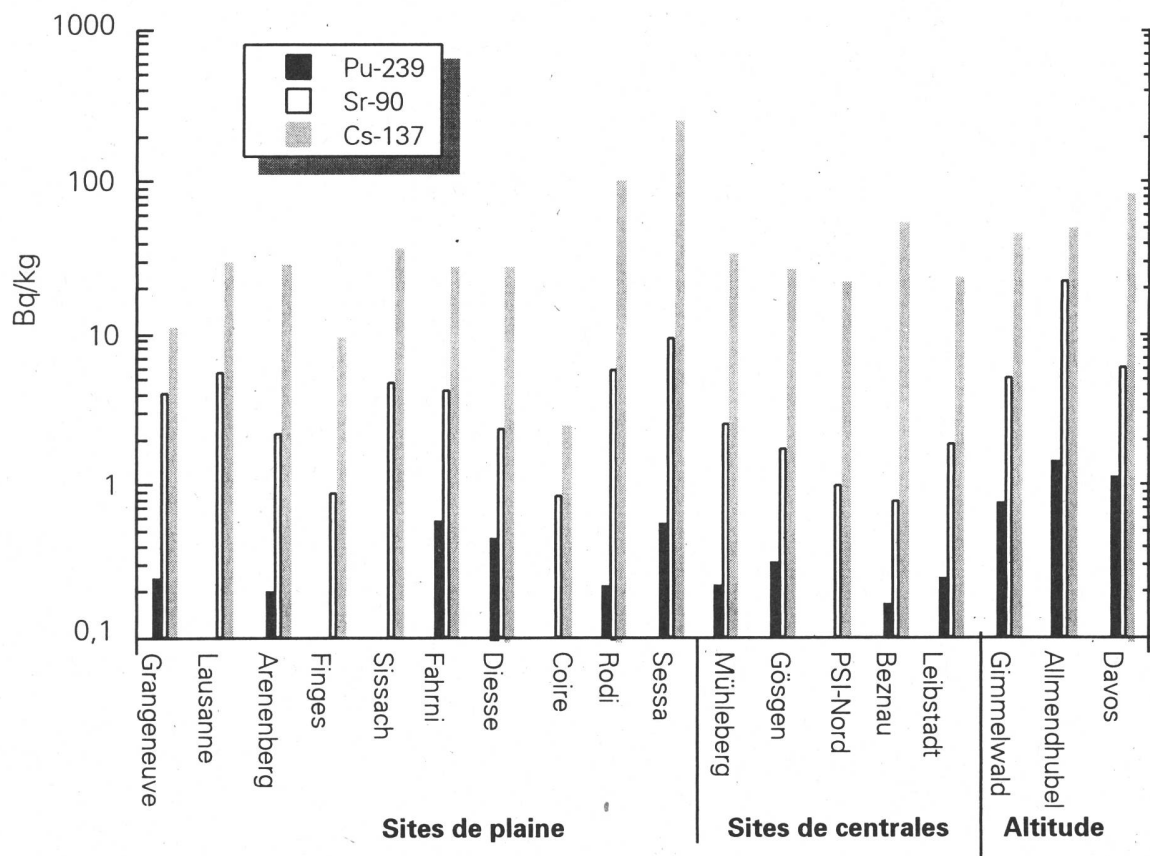
	Concentration (Bq ^{239,240} Pu/kg)	Rapport ²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu	Rapport ^{239,240} Pu/ ⁹⁰ Sr
Centrales nucléaires:			
Mühleberg (BE)	0,22±0,03	< 0,02	0,08±0,02
Gösgen (SO)	0,31±0,04	0,022±0,009	0,18±0,04
Leibstadt (AG)	0,25±0,03	0,027±0,009	0,13±0,03
Beznau (AG)	0,16±0,02	0,030±0,010	0,21±0,04
Sites en plaine:			
Grangeneuve (FR)	0,25±0,04	< 0,04	0,06±0,01
Arenenberg (TG)	0,20±0,02	0,028±0,013	0,09±0,02
Fahrni (BE)	0,57±0,07	0,021±0,008	0,13±0,03
Rodi (TI)	0,22±0,03	0,023±0,011	0,04±0,01
Sessa (TI)	0,57±0,07	0,034±0,013	0,06±0,01
Sites en altitude:			
Diesse (BE)	0,45±0,05	0,039±0,015	0,19±0,04
Gimmelwald (BE)	0,76±0,08	0,031±0,010	0,14±0,03
Allmendhubel (BE)	1,44±0,15	0,028±0,009	0,06±0,02
Davos (GR)	1,15±0,12	0,021±0,007	0,19±0,03

Sol

Les points de prélèvement pour la mesure du plutonium dans le sol représentent tant l'environnement des centrales nucléaires que des régions de plaine et d'altitude.

Les résultats, rapportés au sol sec, sont présentés au Tableau 1 et à la Figure 2; cette dernière permet de comparer les activités en ^{90}Sr , ^{137}Cs et $^{239,240}\text{Pu}$ des sols. On ne constate pas de différence significative de l'activité en $^{239,240}\text{Pu}$ dans le sol entre les sites des centrales nucléaires et les autres points situés en plaine. A Sessa, la concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ est toutefois plus élevée, de même que celle du ^{137}Cs et du ^{90}Sr . L'activité du Pu est aussi plus élevée dans les sols de montagne, en particulier à Allmenhubel (Mürren), où elle atteint 1.4 Bq/kg. Ces fluctuations de l'activité du $^{239,240}\text{Pu}$ reflètent celles du ^{90}Sr et seront discutées dans les chapitres suivants.

Figure 2: Concentration du $^{239,240}\text{Pu}$, du ^{90}Sr et du ^{137}Cs dans le sol en 1996 en Bq/kg



Sédiments

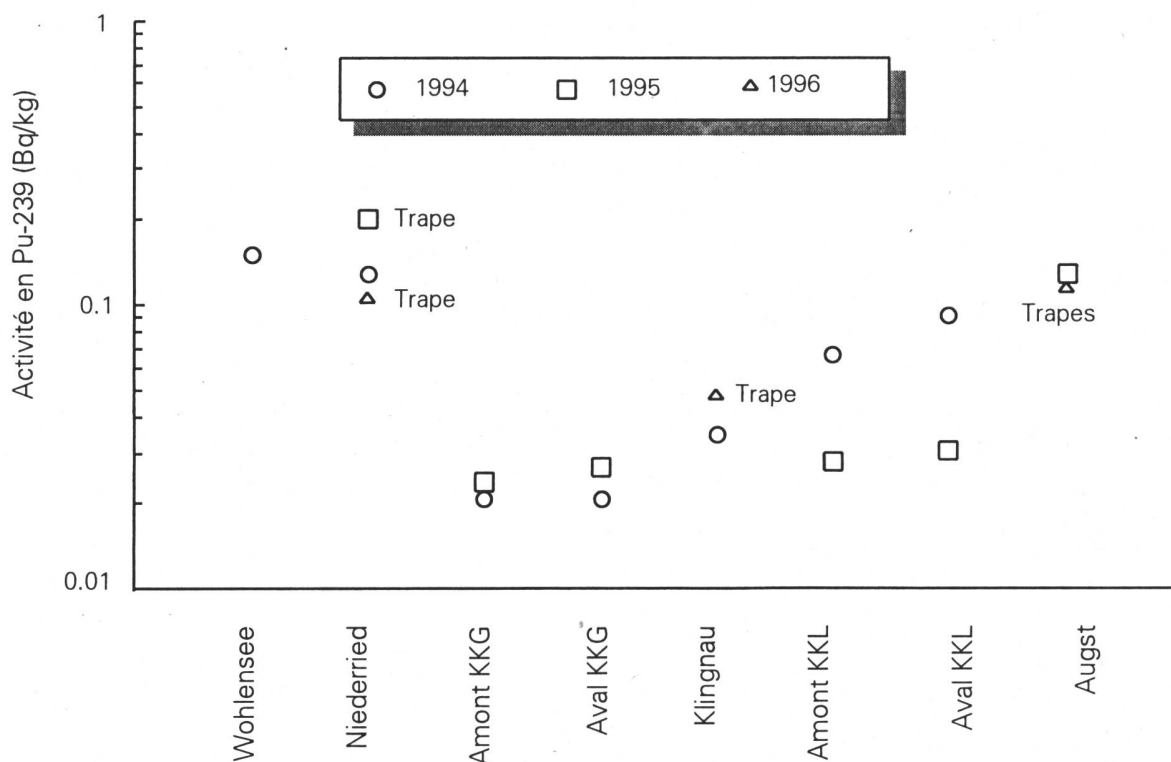
En 1996, les analyses de Pu ont porté sur 3 sédiments prélevés en aval des centrales nucléaires au moyen de trapes, permettant ainsi d'obtenir des résultats plus reproductibles et plus représentatifs qu'un prélèvement à la surface du sédiment. Les résultats sont présentés au Tableau 2.

Tableau 2: Concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ dans des sédiments en 1996

Centrales nucléaires:	Période de prélèvement	Concentration (Bq /kg $^{239,240}\text{Pu}$)	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
Aval de Mühleberg Lac de Niederried	27.02-02.05.96	0,105±0,014	0,034±0,018
Aval de Gösgen et Beznau Lac de Klingnau	01.07-31.07.96	0,048±0,007	< 0,05
Aval de Leibstadt Rhin près d'Augst	01.07-31.07.96	0,114±0,013	0,024±0,011

Les activités mesurées en Pu confirment les résultats obtenus depuis 1994, que ce soit au moyen de trapes ou par prélèvement direct à la surface des sédiments.

Figure 3: Concentration du $^{239,240}\text{Pu}$ dans des sédiments de 1994 à 1996



La Figure 3 présente l'activité en $^{239,240}\text{Pu}$ mesurée dans les sédiments depuis 1994, du Wohlensee jusqu'à Augst. Le niveau d'activité du plutonium est déterminé principalement par les conditions locales de sédimentation. C'est ainsi que l'activité mesurée à Augst est comparable à celle du Wohlensee, en amont de la centrale de Mühleberg. On ne constate

pas de différence significative entre les deux types de prélèvement (trapes ou prélèvement en surface).

Eau du Rhin et du Rhône

Les résultats figurent dans le Tableau 3. A titre de comparaison, les valeurs mesurées en 1994 et 1995 ont également été reportées. En 1996, la détermination du plutonium dans l'eau du Rhin prélevée à Weil a été faite après coprécipitation préalable des actinides sur de l'hydroxyde de fer. L'activité en $^{239,240}\text{Pu}$ du résidu d'évaporation d'eau du Rhône, prélevée à Chancy en aval de Genève, est comparable à la valeur mesurée en 1995, plus basse qu'en 1994. Les activités en ^{238}Pu sont situées en-dessous de la limite de détection.

Tableau 3: Concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ dans des eaux du Rhin et du Rhône

Type de prélèvement	Lieu de prélèvement	Activité en $^{239,240}\text{Pu}$ mBq/m ³		
		1994	1995	1996
Particules en suspension	Reckingen	< 4	7,1 ± 1,0	-
	Village-Neuf	< 6	< 10	-
Coprécipitation	Weil-am-Rhein	-	-	12 ± 3
Evaporation	Chancy	18 ± 3	6,6 ± 0,8	4,8 ± 0,8

Filtres aérosols.

Le Tableau 4 présente les résultats de mesure dans l'air à Fribourg et au Weissfluhjoch sur Davos au moyen de filtres aérosols, comparés à ceux de 1994 et 1995 à Fribourg.

Tableau 4: Concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu dans l'air

Emplacement	Année	Activité (nBq/m ³)	
		$^{239,240}\text{Pu}$	^{238}Pu
Fribourg	1994	1.36 ± 0.25	1.47 ± 0.25
Fribourg	1995	1.23 ± 0.16	0.36 ± 0.07
Fribourg	1996	<1.6	<0.6
Weissfluhjoch	1996	1.9 ± 0.8	1.1 ± 0.2

Les valeurs mesurées en 1996 sont du même ordre de grandeur qu'en 1994 et 1995. Le niveau d'activité étant très bas, ces résultats sont entachés d'une grande incertitude de mesure.

Eau de pluie

L'activité du ^{239}Pu dans l'eau de pluie recueillie dans le pluviomètre de l'Institut de physique de l'Université de Fribourg en 1996, est de $10 \pm 1.3 \text{ mBq/m}^3$, qui est comparable aux résultats obtenus en 1994 (9.2 mBq/m^3) et 1995 (2.5 mBq/m^3). L'activité en ^{238}Pu reste en dessous du seuil de détection (0.2 mBq/m^3).

7.3.4. Evaluation des dépôts et interprétation

Archives naturelles

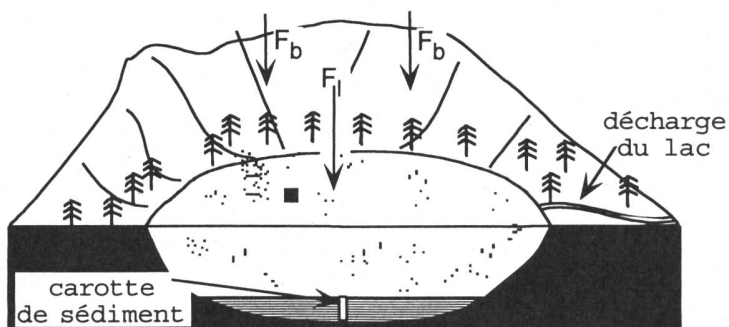
Les archives naturelles utilisées dans ce travail sont les carottes de sédiments et les profils de sols. Pour chaque archive il est nécessaire que les mesures de radioactivité ponctuelles soient complétées avec le rapport à la surface afin que le dépôt total puisse être restitué.

Sédiments

Le stockage des radionucléides dans les sédiments peut être représenté par le modèle suivant (Figure 4). Une portion des radionucléides est directement déposée dans le lac (F_l), tandis qu'une autre portion se dépose sur le bassin versant (F_b). Les radionucléides de type F_l peuvent soit être adsorbés sur les particules présentes dans l'eau du lac ou se déposer au fond du lac.

Figure 4:

Illustration de la différence de dépôt atmosphérique direct (F_l) et indirect (F_b) et du transfert des radionucléides dans les sédiments par les particules en suspension



Les radionucléides de type F_b sont soit adsorbés à la matrice organo-minérale du sol, soit ils rejoignent le lac par l'intermédiaire de la solution du sol. La partie adsorbée à la matrice du sol peut également être transportée vers le lac en cas d'érosion. Dans le lac, l'efficacité du transfert des radionucléides vers les sédiments dépend principalement du temps de résidence de l'eau dans le lac. Ces processus rendent la détermination de la surface représentative de l'échantillon dans les sédiments difficile. Cette surface doit néanmoins être connue pour transformer l'activité par unité de masse en activité par unité de surface. La surface de la carotte serait représentative à elle seule de la surface étudiée uniquement dans le cas où toute la radioactivité provenait directement de l'atmosphère et si la répartition dans les sédiments était homogène, ce qui n'est pratiquement jamais le cas dans la nature. Il est donc nécessaire pour déterminer le flux des radionucléides d'avoir recours à des archives, telles que les sols. L'avantage certain de l'utilisation des sédiments réside dans le fait qu'elle fournit une résolution temporelle et bien qu'il ne soit pas possible

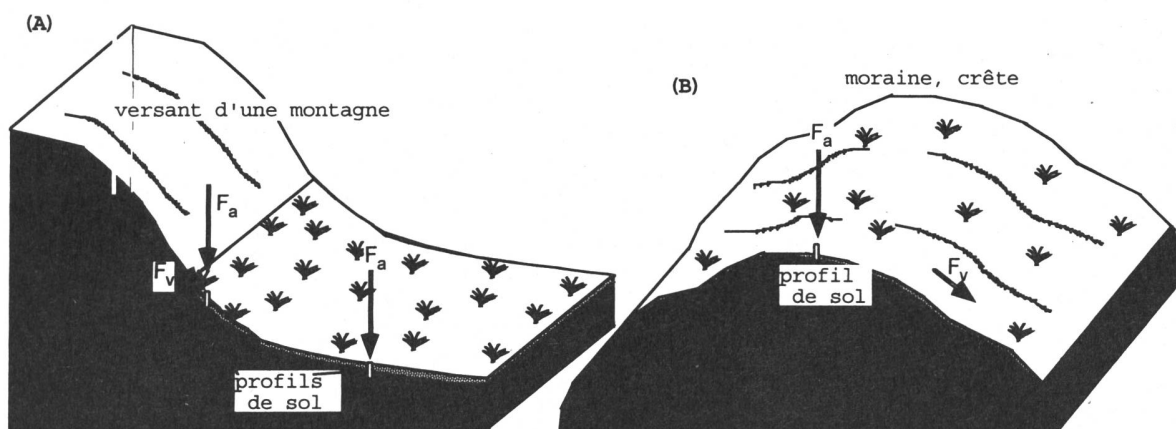
de calculer avec certitude le dépôt, il est toutefois possible d'évaluer la période durant laquelle les radionucléides ont été déposés.

Sols

L'utilisation de profils de sols comme archives pour la détermination des dépôts radioactifs est fortement recommandée lorsque: (1) l'apport des radionucléides provient uniquement des dépôts atmosphériques, (2) le sol n'a pas été labouré et l'érosion est faible et (3) les radionucléides se trouvent intégralement dans le profil échantillonné.

L'influence du mode d'échantillonnage peut être illustré à l'aide des 2 schémas de profils de sols (Fig. 5).

Figure 5: Illustration de l'échantillonnage des profils de sol et de la distinction entre apport atmosphérique direct et latéral.



Pour un sol situé au versant d'une colline ou d'une montagne l'apport de radioactivité peut être à la fois atmosphérique (F_a) et latéral (F_v). Ceci est d'autant plus probable lorsque les couvertures pédologiques qui filtrent l'eau de surface sont minces. Un sol qui aurait la position topographique idéale (Fig. 5B), ne devrait pas avoir d'apport d'eau latéral, ce qui est le cas par exemple sur une moraine terminale ou une crête aplatie.

Résultats et discussion

Les résultats sont présentés dans le Tableau 5 en fonction du type d'archives utilisées (sédiment ou sol) et du lieu d'échantillonnage (Fig. 1). Y figurent également la profondeur à laquelle chaque échantillon a été prélevé dans la carotte ou dans le profil de sol, la densité et l'activité de $^{239,240}\text{Pu}$ et de ^{238}Pu , et la période représentative des échantillons de sédiments. Le flux de Pu a été calculé à partir des activités en Bq/kg (A_m) en utilisant l'équation $A_f = A_m \rho \Delta h$, où ρ indique la densité, et Δh l'épaisseur de l'échantillon.

Sédiments

Les activités des isotopes de Pu varient considérablement selon le type de lac et la profondeur de l'échantillonnage. Les maxima de $4.6 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ }^{239,240}\text{Pu}$ ont été mesurés pour des échantillons en provenance du Muttsee et du Brienzensee. Les 2 échantillons sont représentatifs de la période de flux atmosphérique radioactif maximal du début des années

soixante. Pour le Brienzensee le flux total s'élève à 189 Bq m^{-2} , et pour le Muttsee à 70 Bq m^{-2} . Pour le lac de Bienne des échantillons représentant la période de dépôt maximal ainsi que les périodes antérieures et postérieures aux essais nucléaires ont été prélevés. Dans l'échantillon représentatif de la période 1948-1958 seules des traces de $^{239,240}\text{Pu}$ ont été détectées (0.02 Bq kg^{-1}). Deux échantillons représentatifs des années soixante montrent une augmentation de l'activité par un facteur 100. Dans les sédiments qui ont été déposés pendant les années 80, l'activité ne redescend pas au niveau bas des années 50, mais persiste à un niveau de 0.2 Bq kg^{-1} , ce qui démontre un apport en continu en Pu du bassin versant vers le lac, même 20 ans après sa déposition initiale.

C'est surtout cet apport latéral qui rend l'interprétation des flux de Pu difficile. Dans le lac de Brienz, par exemple, le flux élevé de 189 Bq m^{-2} peut-être expliqué par son bassin versant alpin, en partie exempt de couverture pédologique.

La différence entre les deux carottes du lac de Bienne s'explique par leurs différentes proportions en particules apporté par l'Aar (Albrecht et al., 1997b). La carotte BS_9401/02 est plus fortement dominée par des particules érodées du bassin versant de l'Aar, et ainsi caractérise un flux de $^{239,240}\text{Pu}$ plus élevé. En se basant sur ces résultats, il est possible d'estimer un flux de $^{239,240}\text{Pu}$ pour la Suisse entre 50 et 150 Bq m^{-2} , mais pour avoir une valeur plus exacte il a fallu se servir des profils de sol.

Sols

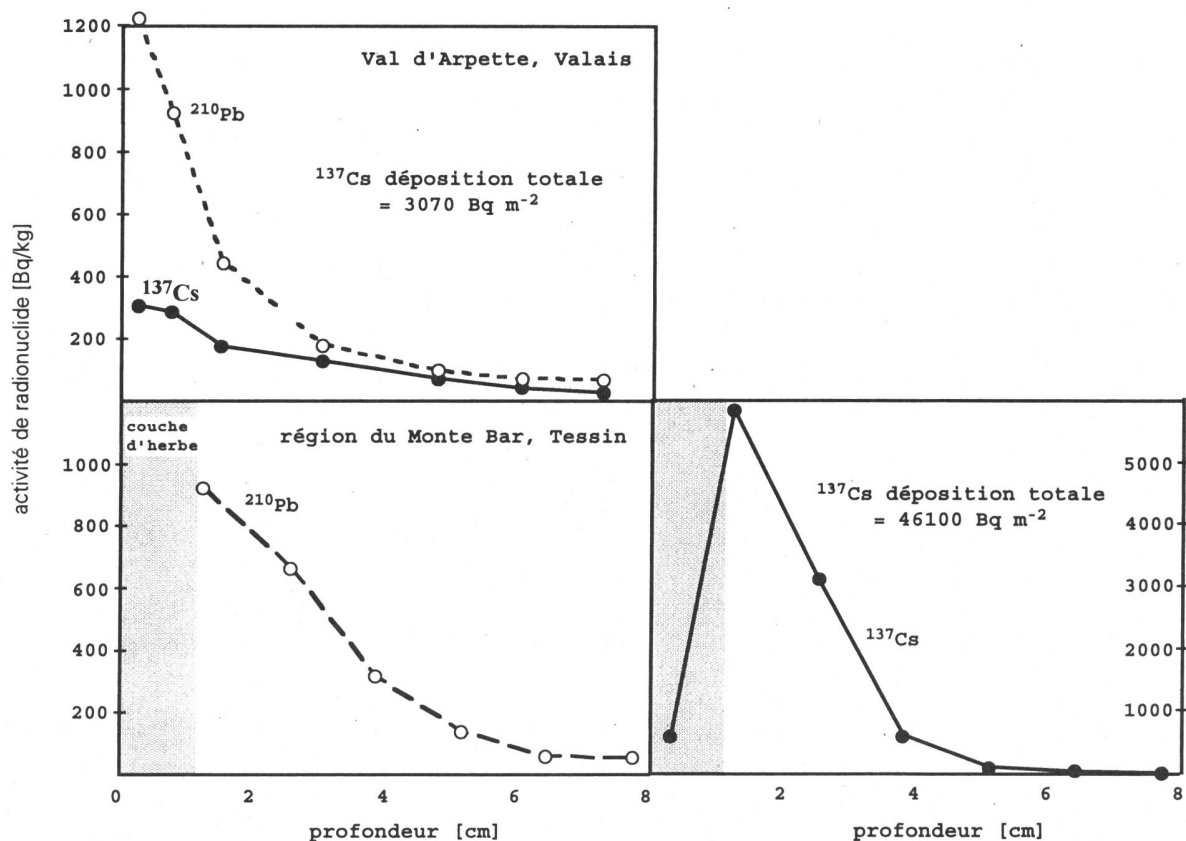
Plusieurs profils de sol ont été prélevés en 1995 et 1996 pour évaluer leur application en tant qu'archives naturelles. Deux ont été prélevés dans la région du Muttsee (Glaris), un dans le Val d'Arpette (Valais), et un quatrième dans la région du Monte Bar (Tessin, Fig. 1). Les profils du Muttsee se situent sur un versant de montagne avec un apport de radioactivité latéral considérable (cf. Fig. 5a). Ceci explique l'activité élevée (11 Bq/kg) dans ces échantillons, mais aussi pourquoi ils ne peuvent pas servir d'archives pour l'évaluation des flux atmosphériques.

Deux profils ont été pris dans des endroits idéaux (Fig. 5b). La distribution de ^{137}Cs et de ^{210}Pb montre la forte accumulation vers la surface, indiquant que ces profils contiennent la totalité des radionucléides déposés (Fig. 6). Pour le ^{137}Cs des flux totaux, corrigés à 1986, de 3100 et 46000 Bq m^{-2} ont été calculés, pour le Val d'Arpette et la région du Monte Bar, respectivement. Il est donc fort probable que ces deux profils vont aussi nous permettre de mieux estimer le flux de Pu dans ces régions. Pour le Val d'Arpette la géomorphologie, la pédologie et le comportement de métaux ont été étudiés en détail (Keller and Domergue, 1996; Keller and Vedy, 1994). Pour la région du Monte Bar nous ne sommes pas au courant d'une telle étude.

-B.7.3.10-

(B) sols	Muttsee, Glaris
profondeur [cm]	de
densité	[g/cm ³]
²³⁹ Pu	[Bq/kg]
²³⁸ Pu	[Bq/kg]
²³⁸ Pu ₁₉₆₄	[Bq/kg]
flux ²³⁹ Pu	[Bq/m ²]
²³⁹ Pu/ ²³⁸ Pu ₁₉₆₄	
Région du Monte Bar, Tessin	
profondeur [cm]	de - à
densité	[g/cm ³]
²³⁹ Pu	[Bq/kg]
²³⁸ Pu	[Bq/kg]
²³⁸ Pu ₁₉₆₄	[Bq/kg]
flux ²³⁹ Pu	[Bq/m ²]
²³⁹ Pu/ ²³⁸ Pu ₁₉₆₄	
Val d'Arpette, Valais	
profondeur [cm]	de - à
densité	[g/cm ³]
²³⁹ Pu	[Bq/kg]
²³⁸ Pu	[Bq/kg]
²³⁸ Pu ₁₉₆₄	[Bq/kg]
flux ²³⁹ Pu	[Bq/m ²]
²³⁹ Pu/ ²³⁸ Pu ₁₉₆₄	

Figure 6: Activité de ^{137}Cs et ^{210}Pb en fonction de la profondeur dans les profils de sol du Valais et du Tessin. Le ^{210}Pb dans les couches superficielles a été principalement formé en continu dans l'atmosphère, à partir du ^{222}Rn , son origine n'est donc pas la même que pour le ^{137}Cs , principalement due à l'accident de Tchernobyl.



Flux de Pu en Suisse et flux global

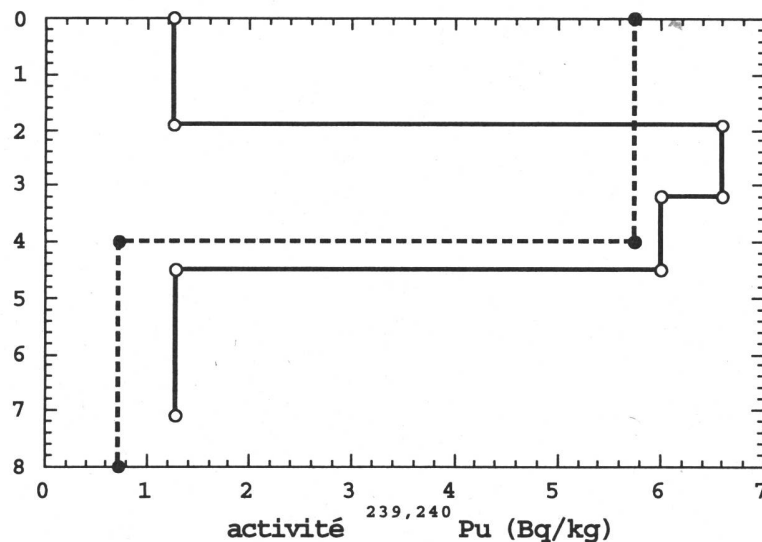
La concentration de $^{239,240}\text{Pu}$ en fonction de la profondeur (Tab. 5, Fig. 7) montre un maximum entre 0 et 4 cm pour le Val d'Arpette et 1.9 et 4.5 cm pour la région du Monte Bar. Dans les deux profils le Pu a donc migré vers la profondeur, mais relativement peu de Pu semble avoir migré au delà de l'épaisseur de nos profils. La supposition que la totalité du Pu déposé se trouve dans les profils apparaît justifiée. Il suffit donc de calculer le flux pour chaque tranche, puis de faire l'intégrale. Il en résulte une déposition de $^{239,240}\text{Pu}$ de 65 Bq m⁻² pour le Val d'Arpette contre 98 Bq m⁻² pour la région du Monte Bar, ce qui est comparable avec l'estimation globale (représentant la latitude 50-40 °N) de 81.4 ± 18.5 Bq m⁻² (Hardy et al., 1973).

En ce qui concerne le rapport $^{239,240}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ évalué sur la base de sols prélevés avant 1964, (année des retombées du satellite) les valeurs communiquées par Hardy et al. (1973) s'élevaient à 41.7. Depuis l'événement du satellite qui a engendré des dépôts de ^{238}Pu la valeur a été corrigée, l'ampleur du phénomène étant plus forte dans l'hémisphère S que dans l'hémisphère N. Pour la tranche de l'hémisphère N, dans laquelle se trouve la Suisse la portion du flux de ^{238}Pu , due aux bombes atomiques a été estimée à 1.96 Bq m⁻² et la portion due au satellite à 0.96 Bq m⁻², donc 33% du total. Un calcul semblable peut être

effectué pour les échantillons collectés en Suisse. La moyenne du rapport $^{239,240}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ (avec ^{238}Pu rapporté à 1964) de tous les échantillons (ceux à faible activité exclus) se situe à 30. Pour rapporter cette valeur à 41, il est nécessaire d'ajouter 38% de ^{238}Pu , dont l'origine est due au satellite.

Figure 7:

Distribution de $^{239,240}\text{Pu}$ dans un profil de sol du Val d'Arpette (cercle noir) et de la région du Monte Bar (cercles blancs)



7.3.5. Conclusion

Les déterminations de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ effectuées en 1996 dans des échantillons de sol, de sédiments, d'eaux de fleuve, de filtres aérosol et d'eau de pluie confirment les résultats obtenus en 1994 et 1995 et attestent que la concentration en $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'environnement est extrêmement faible, souvent proche de la limite de détection. Dans les sols et les sédiments, aucune augmentation significative de l'activité de ce nucléide n'a pu être mise en évidence au voisinage des centrales nucléaires par rapport aux autres sites de plaine.

Grâce à un nombre d'échantillons limités nous avons pu évaluer le flux total de $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu pour la Suisse. Il se situe entre 66 et 99 Bq m⁻² pour le $^{239,240}\text{Pu}$, avec un rapport $^{239,240}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ proche de 30. La correspondance entre nos résultats et les résultats publiés antérieurement, nous permet d'avoir confiance à la fois dans la procédure d'échantillonnage, et dans l'analyse et le traitement des résultats. Les sédiments datés ont démontré que l'apport de Pu du bassin versant au lac par l'érosion joue toujours un rôle important. Dans les profils de sol le Pu a migré vers la profondeur. Dans les profils de montagne cette migration s'est déroulée seulement à l'échelle de quelques centimètres.

Remerciements

Nous tenons à remercier les personnes qui nous ont procuré les échantillons: la section de surveillance de la radioactivité à Fribourg, le Groupement de l'armement à Spiez, ainsi que les laboratoires cantonaux de Thurgovie, des Grisons et du Tessin. Le poste de M. Albrecht est financé par la Division principale de la Sécurité des Installations Nucléaires (DSIN).

Références

Albrecht, A., R. Reiser, A. Lück and W. Giger, 1997a. Extending the radiocesium dating method from lake to river sediments. *Environmental Science and Technology*. [submitted].

Albrecht, A., G. Goudsmit, J. Qian, L. Sigg, H. Xue, D. Kobler, A. Lück and Y. Weidmann, 1997b. Transport von Kobalt im Bielersee; Dem Aarewasser auf der Spur. *EAWAG News*. 43: 21-24.

EML (1990) Procedures Manual", 27th Edition, US Department of Energy, New York. Graf, W.L., 1994. *Plutonium and the Rio Grande. Environmental Change and Contamination in the Nuclear Age*. Oxford, Oxford University Press.

Hardy, E.P., P.W. Krey and H.L. Volchok, 1973. Global inventory and distribution of fallout Pu. *Nature*. 241: 444-445.

Keller, C. and F.L. Domergue, 1996. Soluble and particulate transfers of Cu, Cd, Al, Fe and some major elements in gravitational waters of a Podzol. *Geoderma* 263-274. 71: 263-274.

Keller, C. and J.C. Vedy, 1994. Distribution of Copper and Cadmium in two forestsoils. *J. Environ. Qual.* 23: 987-999.

UNSCEAR Report (1972), United Nations Publication, Ionizing Radiation: Levels and Effects, New-York p. 54.