

# Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

Objektyp: **Group**

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**

Band (Jahr): - **(2007)**

PDF erstellt am: **22.07.2024**

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

# Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz

## Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse

Ergebnisse 2007

Résultats 2007

### Kapitel 7

#### Messung von Spezialnukliden

### Chapitre 7

#### Mesures de nucléides spéciaux

<b>Kapitel 7.1 Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85, Jahr 2007</b>	<b>72</b>
Zusammenfassung	72
Kohlenstoff – 14	72
Kernkraftwerk Leibstadt	73
Kernkraftwerk Gösgen	74
Kernkraftwerk Mühleberg	75
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau	76
Messungen in der Region Basel Stadt	76
Krypton-85 ( <sup>85</sup> Kr)	79
Argon-37 ( <sup>37</sup> Ar)	80
Tritium ( <sup>3</sup> H)	80
<b>Chapitre 7.2 Mesure de plutonium et d'américium dans l'environnement</b>	<b>84</b>
Résumé	84
Introduction	85
Résultats et discussion	85
Conclusions	88

# Kapitel 7.1

## Tritium, Kohlenstoff-14 und Krypton-85, Jahr 2007

**Th. Stocker, H. Bürki, R. Fischer, H. Loosli, M. Möll, R. Reber, R. Purtschert und U. Schotterer**

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

**F. Cartier und J. Löhle**

Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen, 5232 VILLIGEN-HSK

**H. Sartorius, C. Schlosser 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  $^{14}\text{C}$ -Gehalts an Knospen und Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Gösgen, Leibstadt, Mühleberg), Kehrlichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne, Thun, Zürich), des Paul-Scherrer-Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2007 weitergeführt. Aus  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen und -Verdünnungen wurde ein Referenzwert von  $54 \pm 3\%$  bestimmt.

Die 78 kontrollierten Stationen unterscheiden sich um höchstens 165% von diesem Referenzwert. Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von 0 bis  $3 \times 10^{-6}$  Sievert ( $10^{-6}$  Sievert = 1  $\mu\text{Sv}$ ). Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von 3000  $\mu\text{Sv/a}$  fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen nicht ins Gewicht.

Die  $^{85}\text{Kr}$ -Basiswerte sind bei den Stationen Freiburg i.B. und Jungfrauoch etwa gleich und betragen ca. 1.45 Bq/ $\text{m}^3$ . Dieser Hintergrundaktivität sind Aktivitätsspitzen überlagert.

Im Jahr 2007 haben die Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen zum ersten Mal seit längerer Zeit in vielen Gebieten wieder leicht zugenommen.

### Kohlenstoff – 14

Die  $^{14}\text{C}$  messungen wurden an der Uni Bern durchgeführt. Ausnahmen sind erwähnt.

#### Referenzwert

Der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  nimmt weiter ab, liegt aber gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

$$(1) \quad {}^{14}\text{A}_0 = (13.56 \pm 0.07) \text{ dpm/gC} = (0.226 \pm 0.001) \text{ Bq/gC}$$

Der noch vorhandene Anteil an durch Nuklearwaffentests vor allem zwischen 1955 und 1966 produziertem  $^{14}\text{CO}_2$  in der Atmosphäre wird durch die Verbrennung fossiler, d.h.  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe global noch nicht wettgemacht. Nur lokal manifestiert sich die als «Suess» - oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ .

Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem  $^{14}\text{C}$ -Gehalt im wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration.

Radiocarbon-Quellen und -Verdünnungen (KKW, KVA, Industrie, Autobahnen) können den  $^{14}\text{C}$ -Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich also als  $^{14}\text{C}$ -Monitor. Die für diesen Bericht gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Werte werden mit dem Radiocarbonstandard  $^{14}\text{A}_0$  verglichen:

$$(2) \quad \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} = ({}^{14}\text{A}_{\text{Probe}} / {}^{14}\text{A}_0 - 1) \times 1000 \quad [\text{‰}]$$

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit <sup>14</sup>C-Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale <sup>14</sup>C-Quellen oder -Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter, bzw. -knospen gesammelt. Ihr <sup>14</sup>C-Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit <sup>14</sup>A<sub>0</sub> verglichen (Fig. 1). Aus den resultierenden Δ<sup>14</sup>C-Werten wurde für das Jahr 2007 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis dienen die ausgewachsenen, im Juni und September gepflückten Blätter (Fig 2). Die März-Knospen sind hierfür weniger geeignet, da deren Bildung schon im Vorjahr begann.

$$(3) \quad \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2007}} = (54 \pm 3) \text{ [‰]}$$

Die Differenz

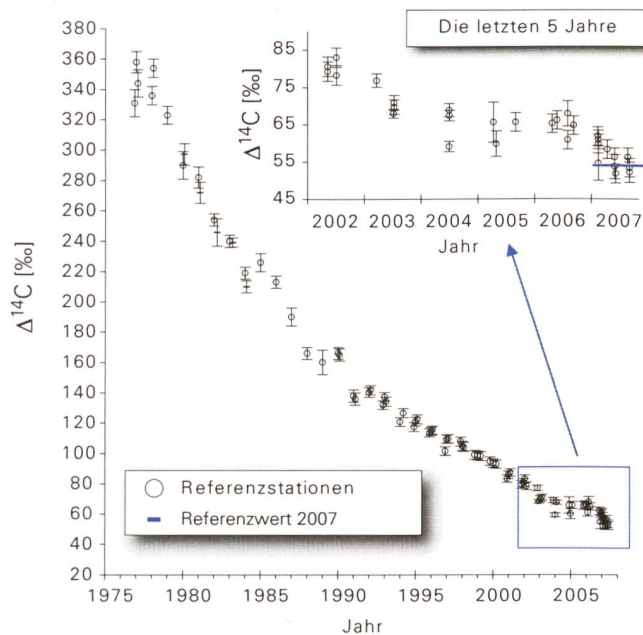
$$(4) \quad \text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2007}}$$

weist auf <sup>14</sup>C-Quellen (Netto Δ<sup>14</sup>C >> 0) oder -Verdünnungen (Netto Δ<sup>14</sup>C << 0) hin.

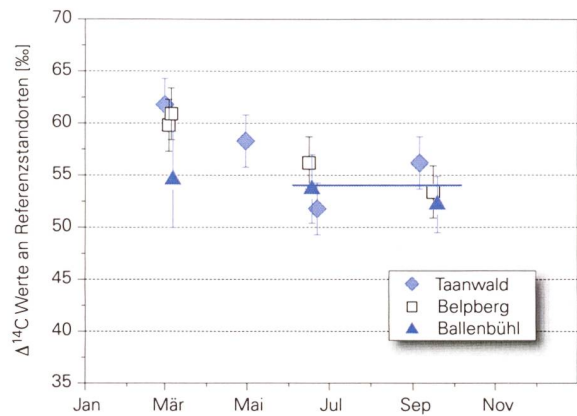
**Tabelle 1:**

Koordinaten der Referenzstationen

Ort	Koordinaten	müM	Baumart/Standort
Taanwald	601320/186150	938	Rotbuchen im Wald
Belpberg I+II	606050/190800	825	Rotbuchen auf Krete
Ballenbühl	612550/192800	852	Linden freistehend



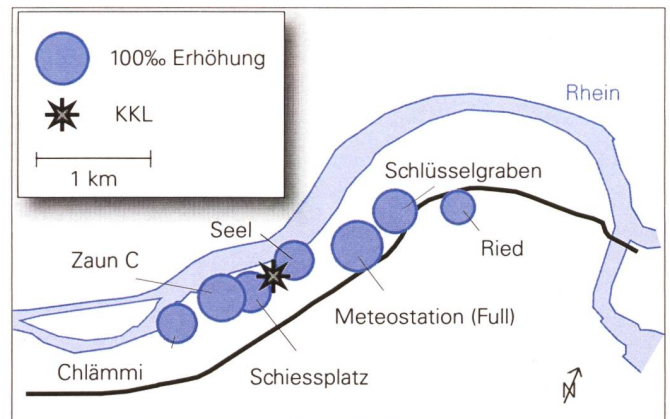
**Figur 1:** Δ<sup>14</sup>C Konzentrationen in Laubblättern von den Referenzstationen



**Figur 2:** Δ<sup>14</sup>C Konzentrationen in Laubblättern von den Referenzstationen Knospen (März) und im Jahr 2007. Die horizontale Linie gibt den für 2007 bestimmten Referenzwert an.

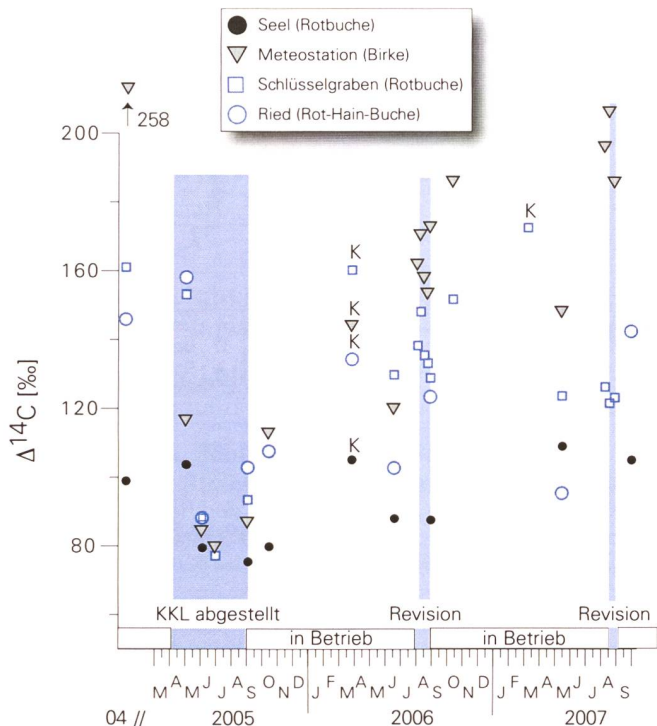
**Kernkraftwerk Leibstadt**

Während der Wachstumsphase wurden 2007 – wie in den Vorjahren – an verschiedenen Standorten in den beiden Hauptwindrichtungen Blätter gesammelt und gemessen. Die höchsten <sup>14</sup>C-Konzentrationen resultierten in beiden Richtungen in einer Distanz von 500-1000 m. In nordöstlicher Richtung betrifft es die Standorte Schlüsselgraben und Meteostation (Full), in südlicher Richtung Zaun C.

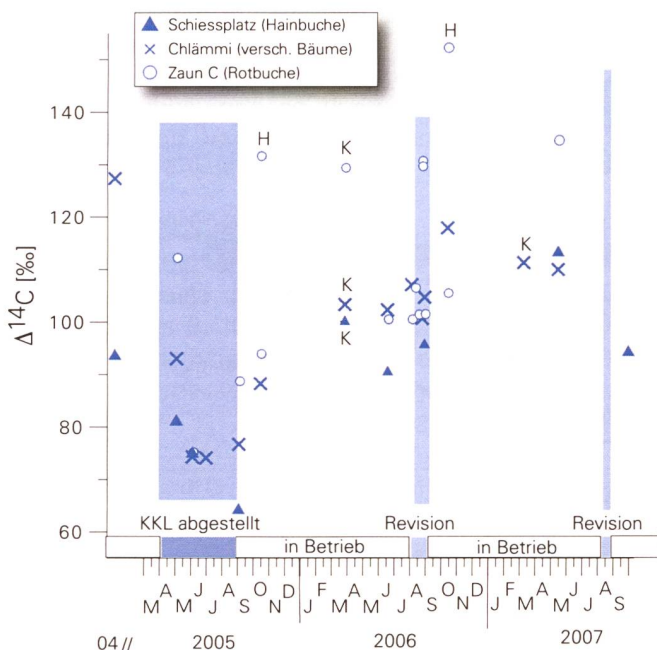


**Figur 3:** Netto Δ<sup>14</sup>C-Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL). Probenahme: 3. Mai 2007

Die Rotbuche am Standort Schlüsselgraben wird seit 1983 jährlich beprobt. 1999 wurde der bisher höchste Nettowert von 127‰ gemessen, 2007 lagen die Werte zwischen 68 und 118‰. Am Standort Meteostation werden seit 1996 Birkenblätter geprüft. Die Analyse ergab 2002 einen Nettowert von 238‰, 2007 von 94 -152‰. Am Standort Zaun C betrug der Nettowert der Rotbuchenblätter 81‰.



**Figur 4:** Zeitreihen für  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern und Knospen (K) nordöstlich des KKL. (Standorte siehe Figur 3)



**Figur 5:** Zeitreihen für  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern und Knospen (K) und Herbstknospen (H) südwestlich des KKL. (Standorte siehe Figur 3)

Im Jahre 2005 stand das KKL während 155 Tagen still. Dieser Betriebsunterbruch kam auch in den Messresultaten deutlich zum Ausdruck. Die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte sanken während dieser Zeit um ca. 50%.

Im Jahre 2006 dauerte der Betriebsunterbruch während der jährlichen Revision 21 Tage. Auch dieser Unterbruch wurde in den Blättern teilweise sichtbar. So sanken die Werte temporär um bis zu 10%.

Im Jahre 2007 war der 14 tägige Betriebsunterbruch zu kurz um einen signifikanten Rückgang der Messwerte zu erkennen. So sinkt der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte am Standort Schlüsselgraben nur um maximal 5%. Berücksichtigt man die statistische Messunsicherheit von  $\pm 3\%$ , so ist diese geringe Differenz nicht mehr interpretierbar, vor allem da die Assimilationsrate von  $\text{CO}_2$  durch den Baum noch von weiteren, nicht kontrollierbaren Parametern wie Wind und Wetter beeinflusst wird.

### Kernkraftwerk Gösgen

Das Langzeitüberwachungsprogramm des KKG wurde im Jahre 2007 weitergeführt und ergab die in den Figuren 6 und 7 dargestellten Werte.

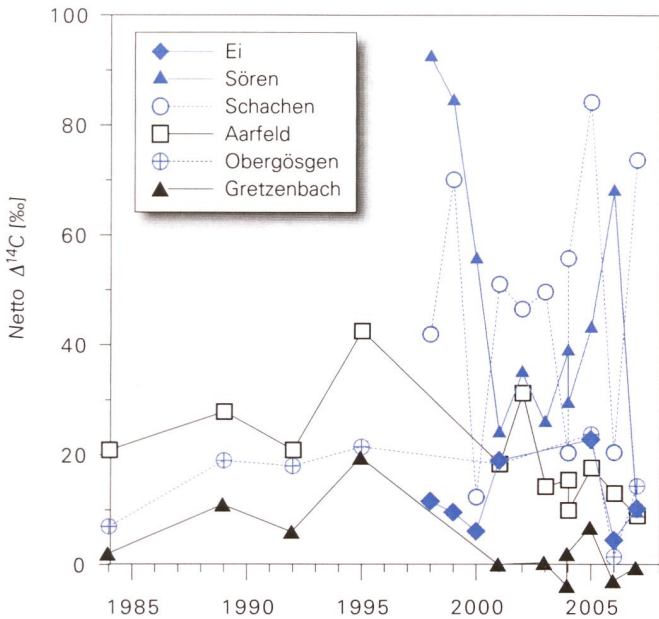


**Figur 6:** Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG)

In der Figur 6 sind die Resultate der am 17. Juli 2007 gewonnenen Blattproben gezeigt. Die Ausbreitung erfolgte vorwiegend in südwestlicher Richtung mit einem maximalen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 74‰ in Schachen. Im Vorjahr wurde der höchste Messwert in entgegengesetzter Richtung ermittelt. 2006 fand man am Standort Sören Netto 67‰.

Der Standort Chrummacher befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Hier finden wir keinen erhöhten Messwert. Die Differenz zum Messwert an der Referenzstation beträgt  $-2.5\%$  und liegt somit innerhalb der Messunsicherheit.

2007 wurden ähnliche Erhöhungen gemessen wie in früheren Jahren. Abgesehen vom Standort Schachen lagen alle Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte zwischen  $-2.5$  und 20‰. Der Wert von 74‰ für die Blätter von Schachen ist nicht aussergewöhnlich, ergaben doch die Messungen auch schon



**Figur 7:**  
Zeitliche Entwicklung der Netto Δ<sup>14</sup>C-Werte in der Umgebung des KKG. (Standorte siehe Figur 6)

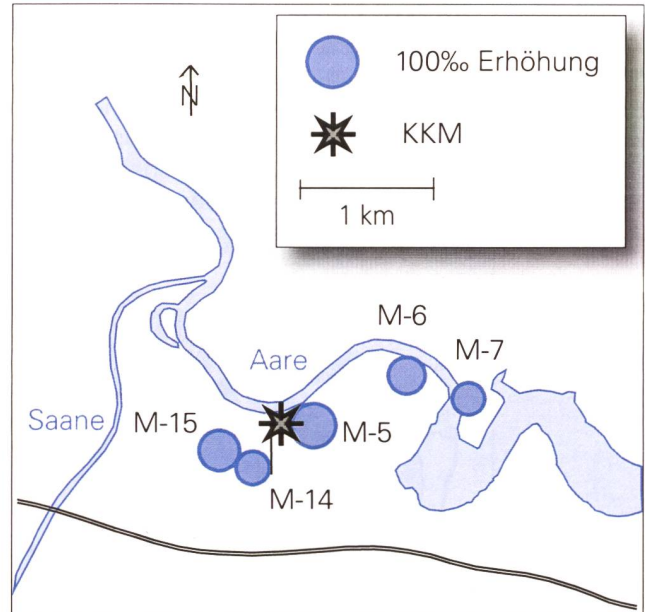
früher, dass sowohl Sören als auch Schachen in einer Entfernung von 800 bis 1000 m von der Emissionsquelle recht gut als kritische Geländepunkte gelten können (Fig. 7).

Die Probennahme an diesen zwei Stationen erfolgte in den Jahren 2005, 2006 und 2007 jeweils zwischen Ende Juni und Mitte Juli. Das Pendeln zwischen hohen und tiefen Werten am gleichen Standort von Jahr zu Jahr ist somit nicht saisonal bedingt, sondern hat seinen Grund eher in unterschiedlichen meteorologischen Lagen (Windrichtung).

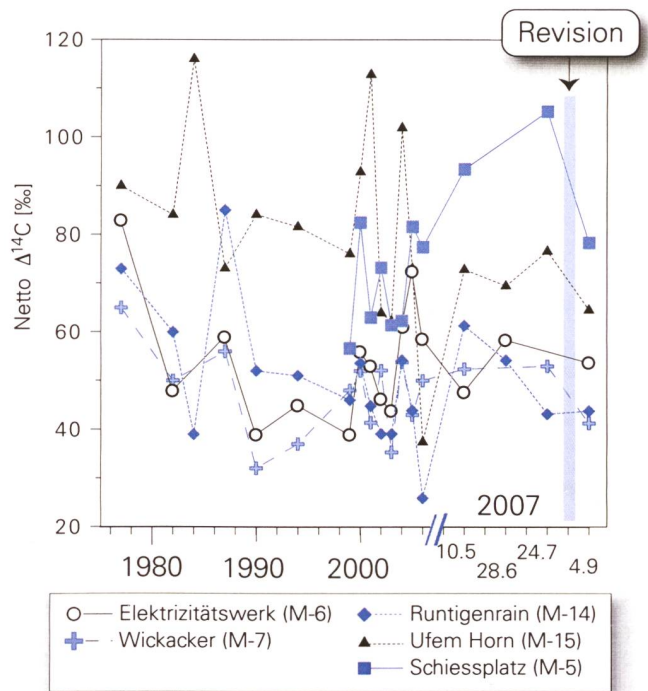
### Kernkraftwerk Mühleberg

Die Überwachung der <sup>14</sup>C-Aktivität in der Umgebung des Kernkraftwerks Mühleberg (KKM) im Jahr 2007 brachte mit Netto <sup>14</sup>C-Werten zwischen 41% (M-7 Wickacker 4.9.07) und 105% (M-5 Schiessplatz 24.7.07) gegenüber 2006 leicht erhöhte Extremwerte.

Die in Figur 8 symbolisch dargestellte Verteilung der Messwerte um das KKM zeigt ein der Darstellung für die Laubsammelkampagne 2006 ähnliches Bild: die grösste Erhöhung findet sich wieder in sehr kleinem Abstand von der Emissionsquelle beim Standort M-5 Schiessplatz. Nach der Revision des Werkes vom 5.8. bis 1.9.07 und dem damit verbundenen Stillstand zeigten die Messungen der Laubproben vom 4.9.07 an den Standorten M-5, M-6, M-7 und M-15 tiefere <sup>14</sup>C-Werte als am 24.7.07 (siehe Figur 9).



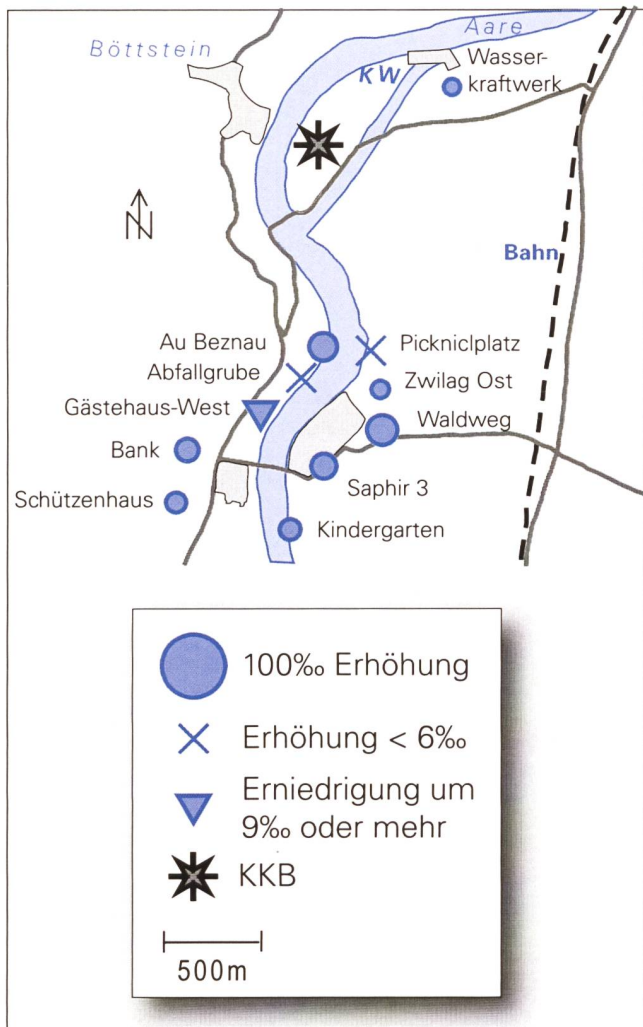
**Figur 8:**  
Netto Δ<sup>14</sup>C-Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) für die Probenahme vom 4. September 2007



**Figur 9:**  
Langzeitreihen an Stichproben aus der Umgebung des KKM (Standorte : siehe Figur 8)

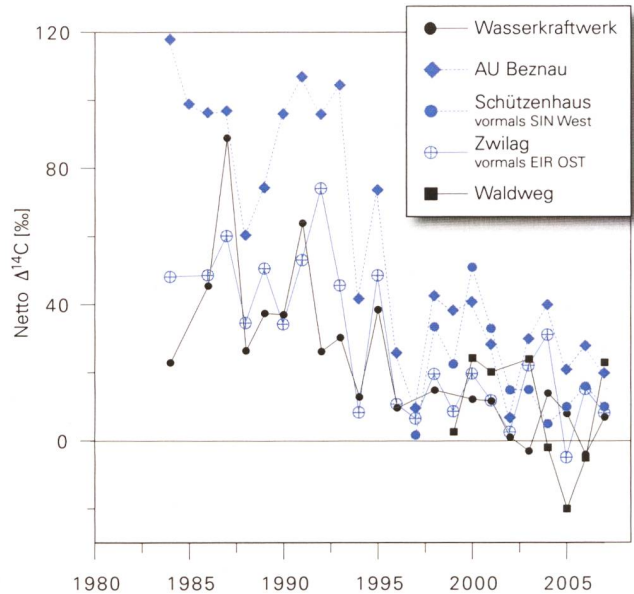
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager  
Würenlingen, KKW Beznau

Die  $^{14}\text{C}$ - und  $\delta^{13}\text{C}$ -Messungen in den Blattproben wurden am PSI durchgeführt. Der statistische Fehler für die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte beträgt 6 bis 7‰. Die  $\delta^{13}\text{C}$ -Werte liegen alle zwischen -28.1‰ und -33.3‰. Die Probenahme erfolgte am 6. Juni 2007.



**Figur 10:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahre 2007. (Jost Eikenberg, R. Siegwolf, PSI)

Leicht erhöhte  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte um bis zu 23‰ wurden in der Umgebung des PSI gemessen. An den Standorten Abfallgrube und Picknickplatz stimmen die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte innerhalb des Fehlers mit den Werten der Referenzstationen (Figur 2) überein. Der im Vergleich zur Referenzstation um 13‰ tiefere Wert am Standort Gästehaus-West, könnte durch erhöhte Abgaskonzentrationen im Bereich des Gästehaus-Parkplatzes erklärt werden.



**Figur 11:** Zeitreihen der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Blättern aus der Umgebung des PSI, des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen und des KKB. (Standorte: siehe Figur 10)

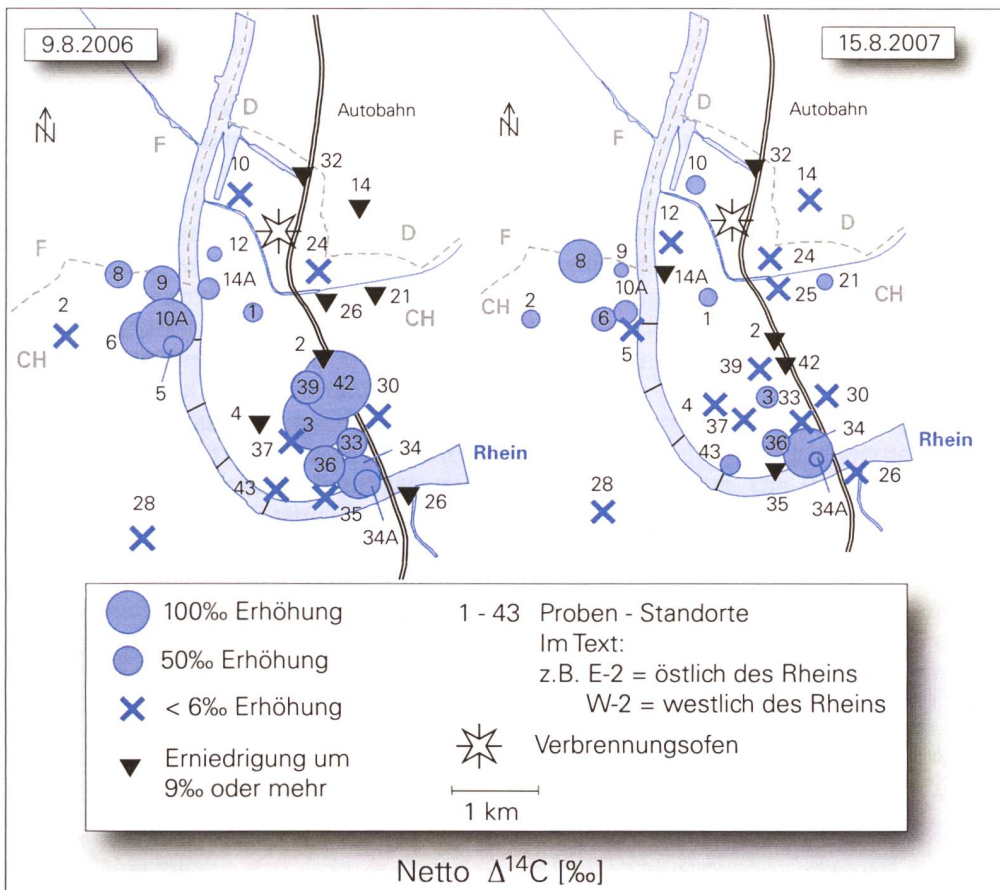
Die Messungen für die Blattproben, die im Jahre 2007 genommen wurden, ergaben ähnliche Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte wie in den früheren 10 Jahren (Fig. 11). Daraus kann auf ziemlich konstante Emissionsraten geschlossen werden. Die Variationen sind primär auf veränderliche Ausbreitungsbedingungen während des Wachstums der Blätter zurückzuführen.

Messungen in der Region Basel Stadt

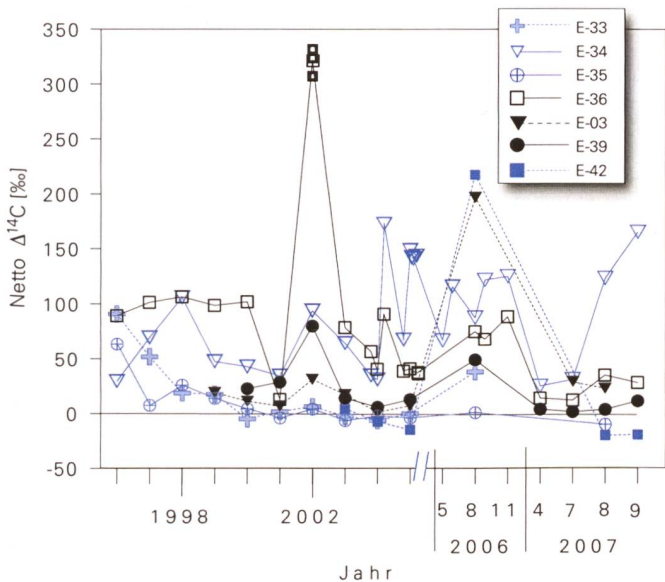
Die Hauptprobenahme in Basel fand sowohl 2006 als auch 2007 im August (9.8., bzw. 15.8.) statt. Beim Vergleich der graphischen Darstellungen der Standorte der Bäume und der zugehörigen Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte für beide Jahre (Figur 12) wird offensichtlich, dass die 2006 in der Umgebung des Sygenta Werkes Rosental gemessenen erhöhten Werte von bis zu +200‰ bei E-03, E-39 und E-42 im Folgejahr fehlen. Auch um das Areal der Firma Roche sind im August 2007 ausser bei E-34 Solitude tiefere  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen auszumachen (E-33, E-34A, E-35, E-36).

Längs der Autobahn weichen E-02, E-32 und E-42 um mindestens -9‰ vom Referenzwert von  $54 \pm 3\%$  ab, was angesichts der Menge von aus fossilen Treibstoffen stammendem  $\text{CO}_2$  plausibel ist.

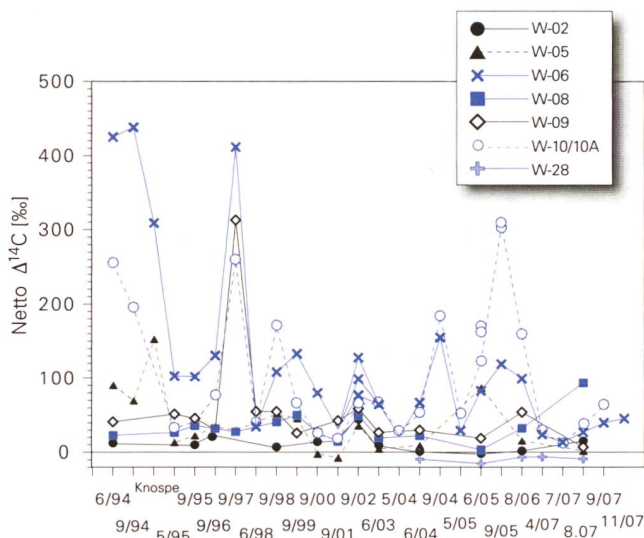
2007 wurden auch tiefere  $^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins in und um das Gelände des Werks St.Johann von Novartis gefunden: W-05, W-06, W-09 und W-10A. Nur W-08 ist mit Netto  $\Delta^{14}\text{C} = +94\%$  deutlich erhöht, und es ist wohl sinn-



**Figur 12:**  
Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel



**Figur 13:**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte östlich des Rheins beim Areal der Firma Roche und der Firma Syngenta. (Standorte: Figur 12)



**Figur 14:**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins in Basel. (Standorte: Figur 12)



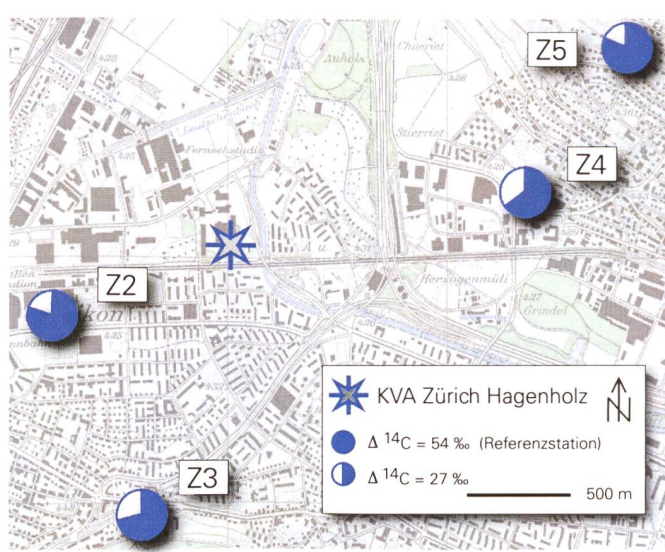
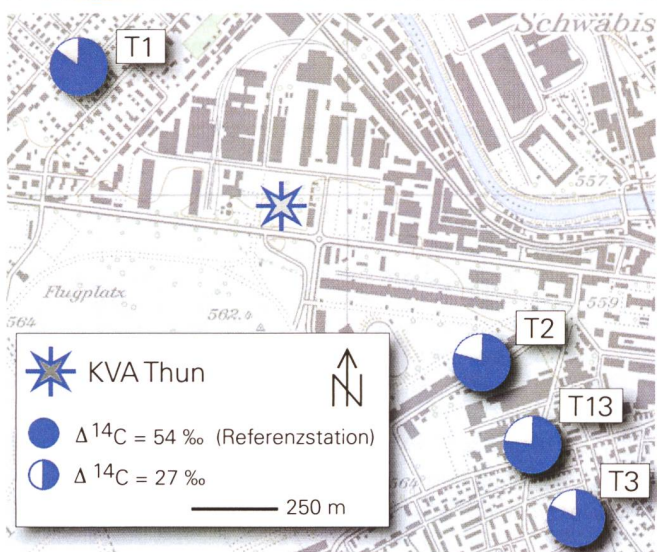
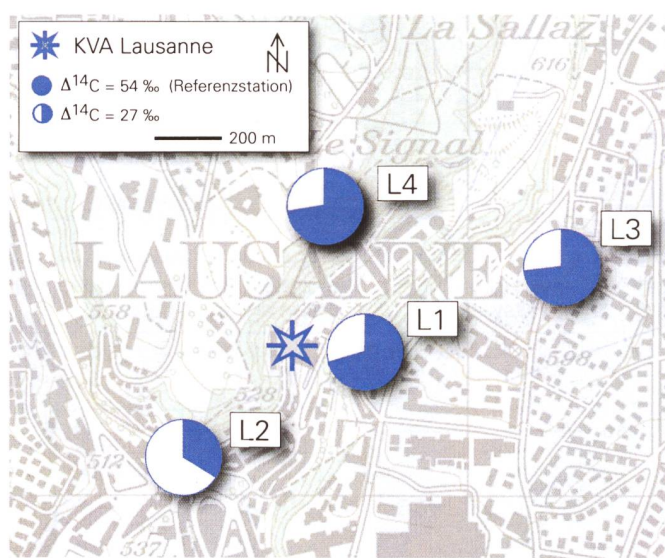
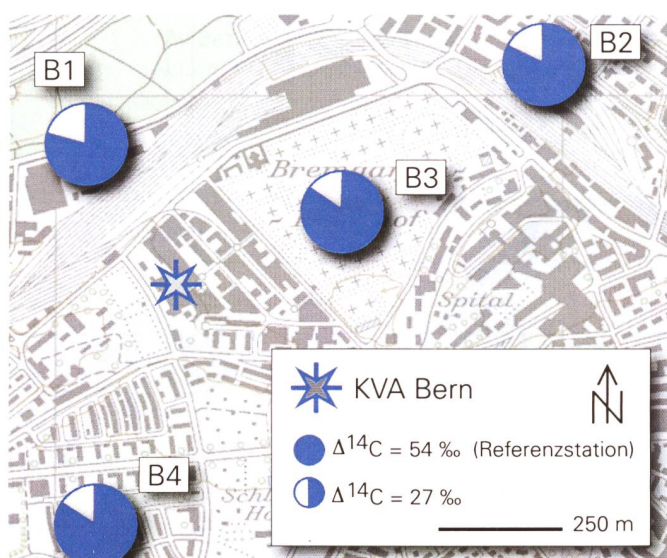
voll, 2008 ein spezielles Augenmerk auf diesen Standort zu richten.

Die Zeitreihen der Basler Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte wurden im September 2007 östlich des Rheins um Proben an vier, westlich an zwei Standorten ergänzt (Figuren 13 und 14). Der Anstieg der  $^{14}\text{C}$ -Konzentration bei E-34 Solitude während der 2. Jahreshälfte ist offensichtlich (Figur 13).

### Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

Werden in KVA grössere Mengen  $^{14}\text{C}$ -angereicherter Abfälle verbrannt, so führt das zu erhöhten  $^{14}\text{C}$ -Werten in der Umgebungsluft. Andernfalls sind die Verbrennungsgase aus KVA eher  $^{14}\text{C}$  reduziert, da in den Abfällen enthaltene Kunststoffe aus  $^{14}\text{C}$ -freiem Erdöl stammen.

Seit dem Jahr 2003 werden im Umfeld der KVA Bern, Thun, Lausanne und Zürich Blätterproben gesammelt und analysiert. Im Berichtsjahr 2007 ergibt sich dasselbe Bild wie in den Vorjahren: alle Messwerte sind geringer als am Referenzstandort. Am Standort L2 (KVA Lausanne) wurde mit einem  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 18.2‰ (= Netto -35.8‰) der tiefste Wert gefunden, am Standort T1 (KVA Thun) mit Netto -8‰ die geringste Absenkung gemessen. Fazit: Die vier überprüften KVA sind im Berichtsjahr keine  $^{14}\text{C}$ -Quellen.



**Figuren 15 und 16:**  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in der Umgebung der KVA Bern, Thun, Lausanne, Zürich

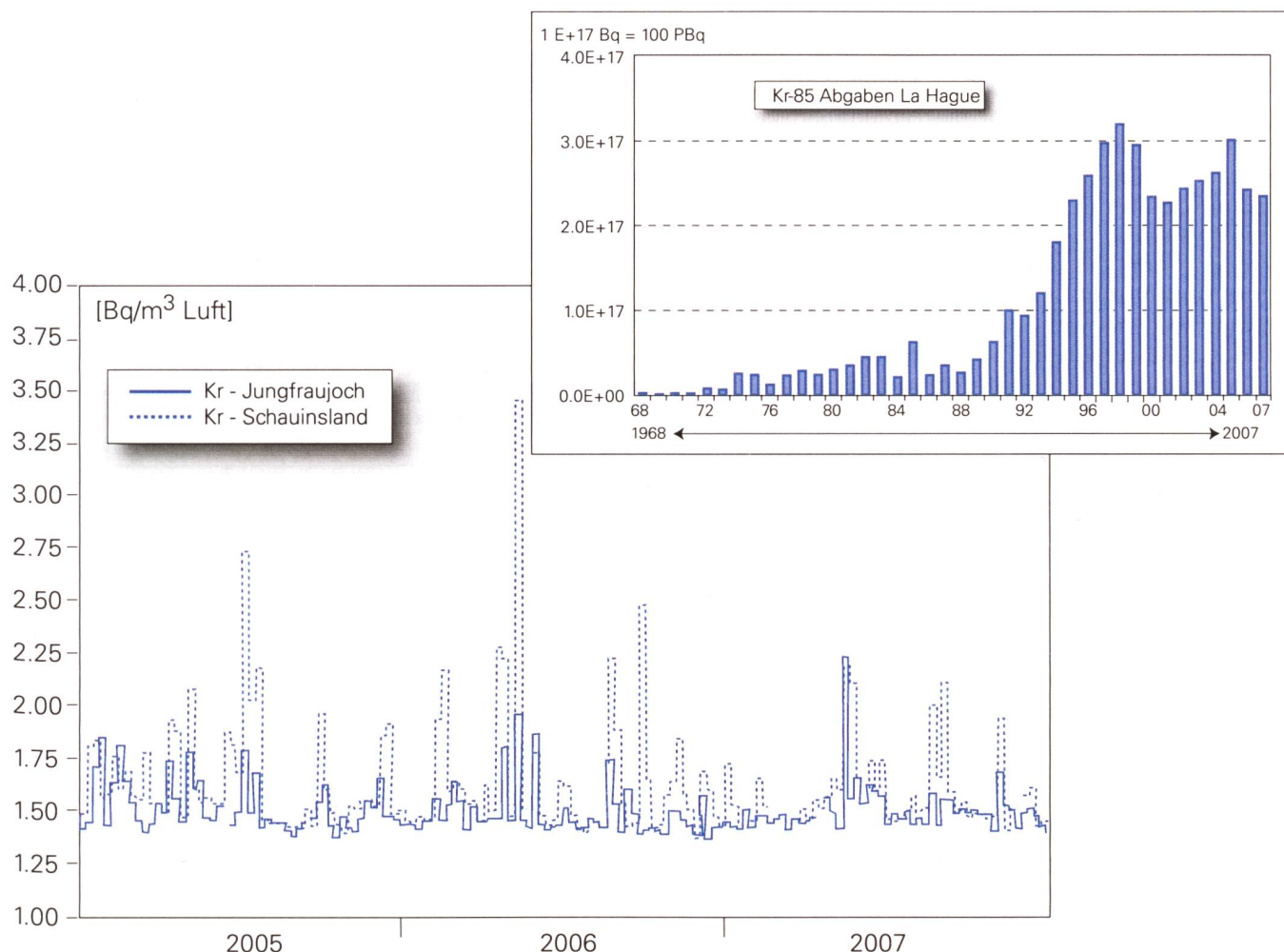
### Krypton-85 (<sup>85</sup>Kr)

Die atmosphärischen <sup>85</sup>Kr Aktivitätskonzentrationen der Messstationen Freiburg i. B. und auf dem Jungfrauoch sind in Figur 17 dargestellt. Die Basiswerte sind bei beiden Stationen etwa gleich und betragen ca. 1.45 Bq/m<sup>3</sup>. Dieser Hintergrundaktivität sind Aktivitätsspitzen überlagert, die dann zu beobachten sind, wenn Abluffahnen von den Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (GB) und La Hague (F) die Probennahmestation passieren. Diese beiden Anlagen sind zur Zeit die Hauptemittenten von <sup>85</sup>Kr in die Atmosphäre. Die geographische Lage von Freiburg erhöht die Wahrscheinlichkeit der Detektion von Abluffahnen im Vergleich zur Station Jungfrauoch, welche auf einer Höhe von 3450 m.ü.M liegt. Die mittlere Anstiegsrate von <sup>85</sup>Kr in der Atmosphäre betrug über die letzten 20 Jahre ca. 0.03 Bq/m<sup>3</sup> Jahr. Die aktuell konstanten Freisetzungsraten z.B. von La Hague (Fig. 17 kleines Bild) führen zu einem konstanten Gleichgewichtswert in der Atmosphäre von ca. 1.44 Bq/m<sup>3</sup>. Das heisst, dass die Verluste durch radioaktiven Zerfall durch die Emissionen gerade kompensiert

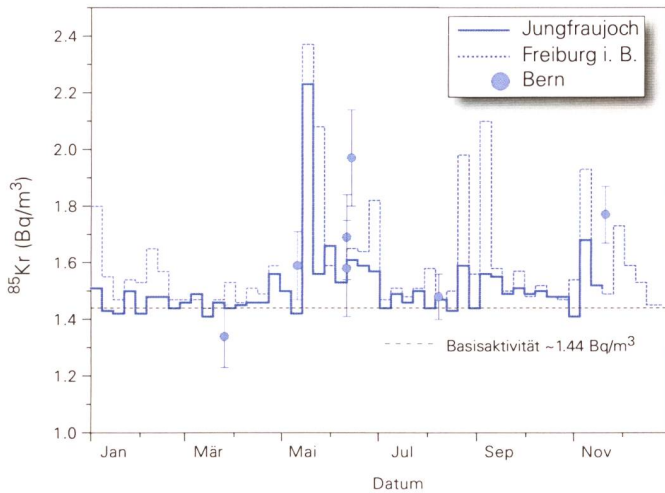
werden. Demnach werden zur Zeit jährlich ca. 300–400 PBq emittiert. Die Messungen der nächsten Jahre werden zeigen, ob die Inbetriebnahme einer neuen Wiederaufarbeitungsanlage in Japan zu einem weiteren Anstieg von <sup>85</sup>Kr in der Atmosphäre führt.

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

Den Wochenproben von Freiburg und dem Jungfrauoch sind in Figur 18 Stichprobenmessungen von Bern-Luft gegenübergestellt. Die Basisaktivität ist, wie in den Vorjahren, innerhalb der Messgenauigkeit identisch für alle drei Stationen. Die Streubreite der Bernluftproben ist aber grösser, weil die 20 Liter Luftproben am Physikalischen Institut einer Momentaufnahmen entsprechen, wohingegen auf dem Joch und in Freiburg über eine Probennahme-Zeitspanne von einer Woche gemittelt wird.



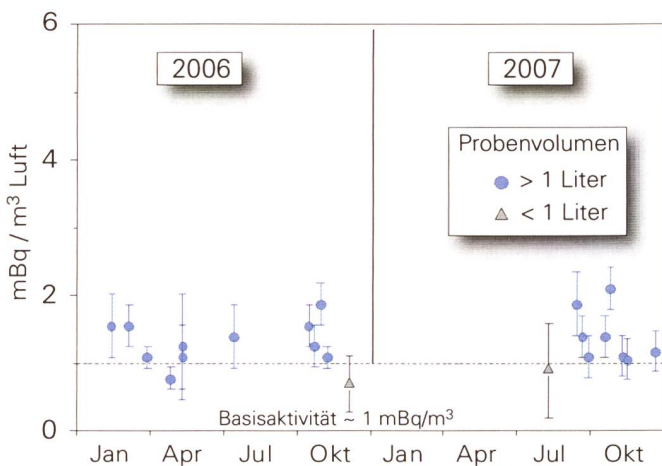
**Figur 17:** Atmosphärische <sup>85</sup>Kr Aktivitäten der Stationen Jungfrauoch (3450 müM.) und Freiburg i.B. (Schauinsland, 1205 müM) über die letzten drei Jahre. Kleines Bild: Emissionsraten der Wiederaufarbeitungsanlage in La Hague (F) in Bq/Jahr über den Zeitraum 1968–2007 (Messungen durchgeführt am Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg i. B., D)



**Figur 18:**  
 $^{85}\text{Kr}$  Aktivitäten von Stichproben in Bern-Luft im Vergleich zu Wochenproben aus Freiburg i. B. und vom Jungfrauoch.

### Argon-37 ( $^{37}\text{Ar}$ )

An der Universität Bern (und weltweit nur dort) wird die Argon-37 Aktivität in der Atmosphäre periodisch überwacht. Die Messungen der Jahre 2006 und 2007 sind in Figur 19 dargestellt. Demnach beträgt die Hintergrundaktivität in Troposphärenluft in mittleren Breiten ca. 1  $\text{mBq/m}^3$ . Dies entspricht der Gleichgewichtsaktivität durch radioaktiven Zerfall und der Produktion durch kosmische Strahlung. Die wichtigste Reaktion ist hierbei Spallation durch schnelle Neutronen  $^{40}\text{Ar}(n, 4n)^{37}\text{Ar}$ . Die Hintergrundaktivität ist wegen der kurzen Halbwertszeit von 35 Tagen und der vergleichsweise kleinen Produktionsrate sehr niedrig und aus Sicht des Strahlenschutzes irrelevant. Hingegen ist  $^{37}\text{Ar}$ , im Gegensatz etwa zu  $^{85}\text{Kr}$ , ein sehr sensibler Indikator für den Nachweis von unterirdischen nukleare Explosionen,



**Figur 19:**  
 $^{37}\text{Ar}$  Aktivität in Troposphärenluft (Probenaufarbeitung durch die Firma Carba AG)

wo  $^{37}\text{Ar}$  durch Neutronenaktivierung von Calcium entsteht  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$ . Die Messungen der letzten beiden Jahre zeigen keine signifikante Aktivitätsspitzen und repräsentieren die natürliche Variabilität.

### Tritium ( $^3\text{H}$ )

Die hier dokumentierten  $^3\text{H}$  Messungen wurden an der Uni Bern durchgeführt.

Im Jahr 2007 haben die Tritiumkonzentrationen in den Niederschlägen zum ersten Mal seit längerer Zeit in vielen Gebieten wieder leicht zugenommen. Ausgenommen davon ist das Gebiet der Berner Alpen vor allem, wenn man die mit den Niederschlagsmengen gewichteten Jahresmittel in Betracht zieht. Zugenommen haben auch die Tritiumkonzentrationen im Flusswasser der Aare bei Brugg (Tabellen 2 und 3).

**Tabelle 2:**

Gewichtete Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen für die Jahre 2006 und 2007

	Basel	Bern	Vaduz*
	(Bq/l)		
Mittel 2007	2.03	3.71	1.72
Mittel 2006	1.66	2.86	
	Meiringen	Guttannen	Grimsel
	(Bq/l)		
Mittel 2007	1.25	1.12	1.12
Mittel 2006	1.29	1.36	1.01
	La Brévine*	Nyon*	Locarno
	(Bq/l)		
Mittel 2007	1.33	1.30	0.85
Mittel 2006	1.07	1.12	0.52
	Aare Brugg		
	(Bq/l)		
Mittel 2007	3.62		
Mittel 2006	1.65		

**Tabelle 3:**

Tritiumkonzentrationen im Niederschlag; Monatsmittelwerte für 2007 [Bq/l]

	Basel		Bern		Grimsel		Guttannen		Meiringen		Locarno	
JAN	1.59	± 0.09	4.12	± 0.13	1.08	± 0.05	0.85	± 0.07	1.15	± 0.09	Keine	Probe
FEB	1.93	± 0.10	7.69	± 0.20	0.75	± 0.04	0.87	± 0.07	0.88	± 0.07	0.63	± 0.04
MAR	1.67	± 0.09	3.10	± 0.12	1.02	± 0.04	0.98	± 0.08	0.92	± 0.07	0.85	± 0.04
APR	3.68	± 0.11	2.55	± 0.11	1.89	± 0.10	1.71	± 0.08	1.85	± 0.09	1.28	± 0.06
MAI	2.03	± 0.09	3.18	± 0.09	1.07	± 0.08	1.09	± 0.08	1.36	± 0.06	0.90	± 0.05
JUN	2.06	± 0.09	3.06	± 0.11	1.28	± 0.09	1.61	± 0.09	1.69	± 0.09	0.86	± 0.06
JUL	1.76	± 0.09	2.69	± 0.10	1.20	± 0.09	0.96	± 0.09	1.24	± 0.09	0.82	± 0.05
AUG	1.57	± 0.09	2.38	± 0.10	1.27	± 0.08	1.28	± 0.09	1.31	± 0.09	0.94	± 0.08
SEP	1.57	± 0.09	3.53	± 0.12	1.38	± 0.08	1.34	± 0.09	1.55	± 0.09	0.86	± 0.05
OKT	2.46	± 0.10	3.98	± 0.12	1.39	± 0.08	1.12	± 0.09	1.25	± 0.08	0.99	± 0.06
NOV	1.21	± 0.09	5.25	± 0.15	1.16	± 0.08	1.02	± 0.09	1.22	± 0.08	0.41	± 0.04
DEZ	1.11	± 0.09	6.57	± 0.17	0.88	± 0.05	0.92	± 0.09	0.69	± 0.08	Keine	Probe

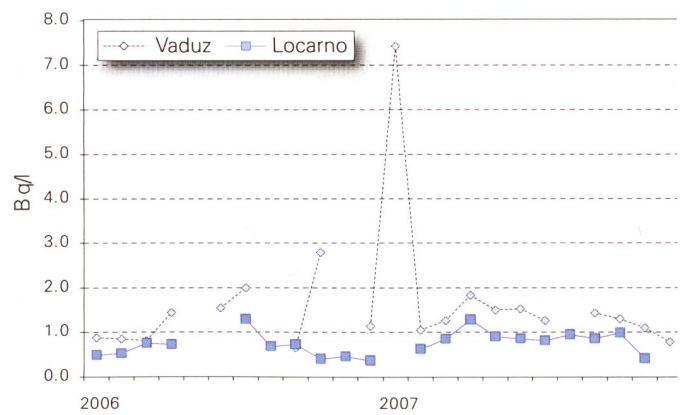
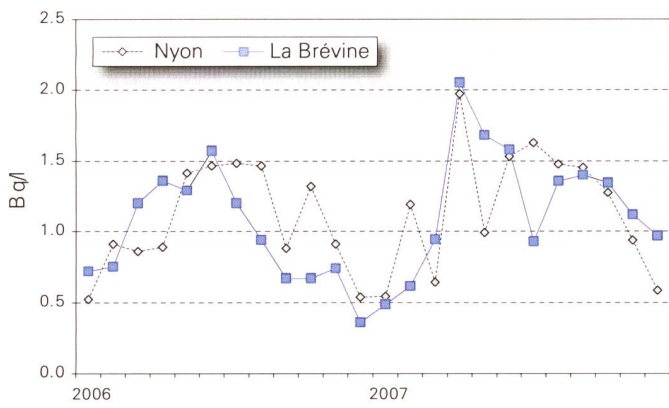
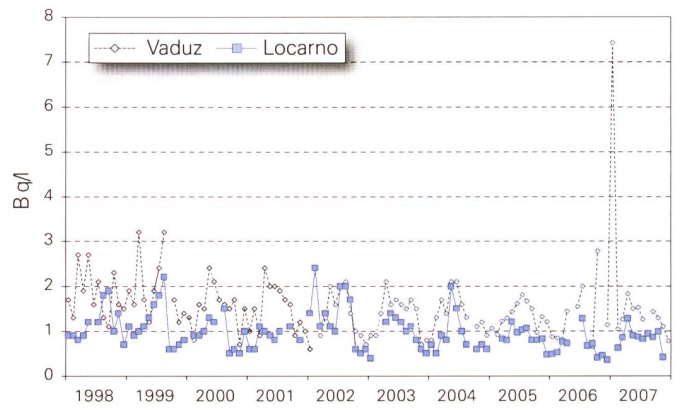
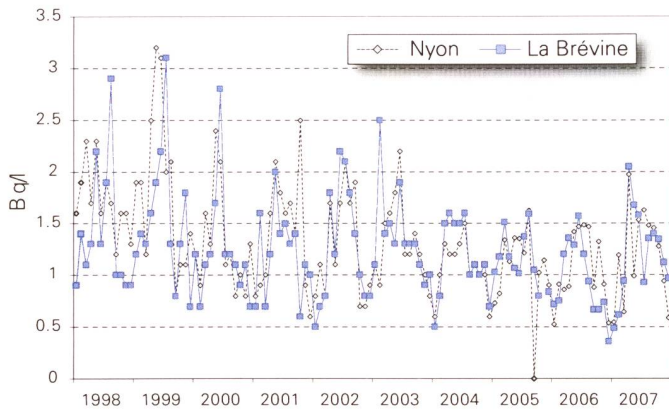
	Vaduz*		Nyon*		La Brévine*		Säntis*	
JAN	7.43	± 0.19	0.54	± 0.08	0.49	± 0.04	0.68	± 0.08
FEB	1.05	± 0.08	1.19	± 0.06	0.62	± 0.04	0.84	± 0.08
MAR	1.26	± 0.06	0.64	± 0.05	0.95	± 0.09	1.14	± 0.09
APR	1.83	± 0.09	1.97	± 0.09	2.08	± 0.09	1.43	± 0.09
MAI	1.50	± 0.09	0.99	± 0.08	1.68	± 0.09	1.18	± 0.09
JUN	1.53	± 0.08	1.53	± 0.09	1.58	± 0.08	1.64	± 0.08
JUL	1.26	± 0.08	1.63	± 0.09	0.93	± 0.09	1.10	± 0.08
AUG	Keine	Probe	1.48	± 0.09	1.36	± 0.09	1.28	± 0.08
SEP	1.43	± 0.09	1.45	± 0.09	1.40	± 0.09	1.39	± 0.09
OKT	1.30	± 0.08	1.27	± 0.08	1.27	± 0.09	1.06	± 0.08
NOV	1.10	± 0.09	0.94	± 0.07	1.05	± 0.09	1.04	± 0.08
DEZ	0.78	± 0.08	0.59	± 0.07	0.96	± 0.09	0.81	± 0.08

	Aare Brugg	
JAN	2.38	± 0.26
FEB	2.17	± 0.25
MAR	1.55	± 0.10
APR	16.54	± 0.38
MAI	7.79	± 0.25
JUN	2.61	± 0.28
JUL	1.49	± 0.29
AUG	1.75	± 0.36
SEP	1.50	± 0.35
OKT	1.82	± 0.29
NOV	1.76	± 0.26
DEZ	2.06	± 0.25

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

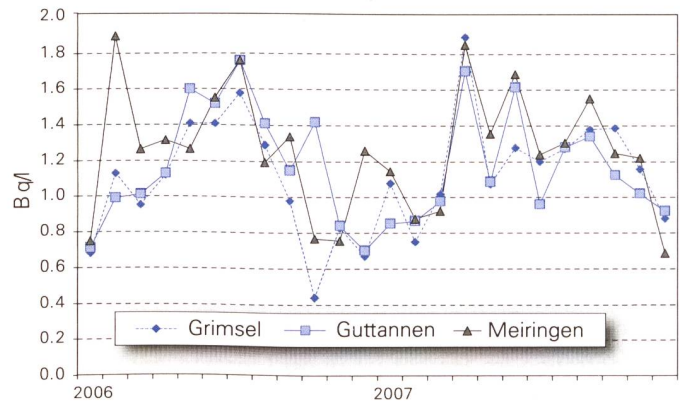
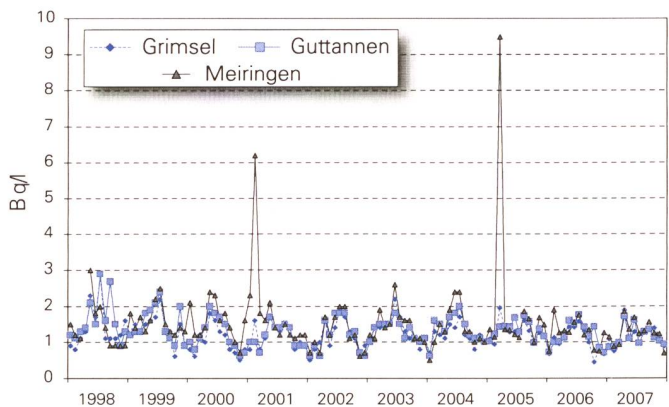
Bei den Monatsmitteln der einzelnen Stationen fällt auf, dass der Jahresverlauf unabhängig von den individuellen Konzentrationshöhen sehr ähnlich ist. Ein Maximum im April und eine für den Jahresverlauf atypisch erhöhte Konzentration im Herbst ist überall feststellbar; auch auf der Alpensüdseite. Das zeigt, dass die Ursachen dafür ausserhalb der Schweiz zu suchen sind. Lokal verursacht sind dagegen die generellen Konzentrationserhöhungen in Basel und Bern sowie das Tritiummaximum vom Januar 2007 in Vaduz. Die Erhöhung im Niederschlag von

Vaduz fand eine Entsprechung in der Tritiumkonzentration des Rheins bei Diepoldsau in der Mischprobe vom Januar (2.1 Bq/l gegenüber 1 Bq/l zuvor und danach). Ein Vergleich mit der Station Bregenz vom Österreichischen Isotopenmessnetz wird angestrebt, die entsprechenden Messwerte sind allerdings noch nicht erhältlich. Die Werte der ISOT Station St. Gallen wurden durch die Werte der KUP Station Säntis ersetzt, da Meteo Schweiz die Station automatisierte und den Standort verlegte. Ab März 2008 steht die Station St. Gallen wieder im Einsatz.

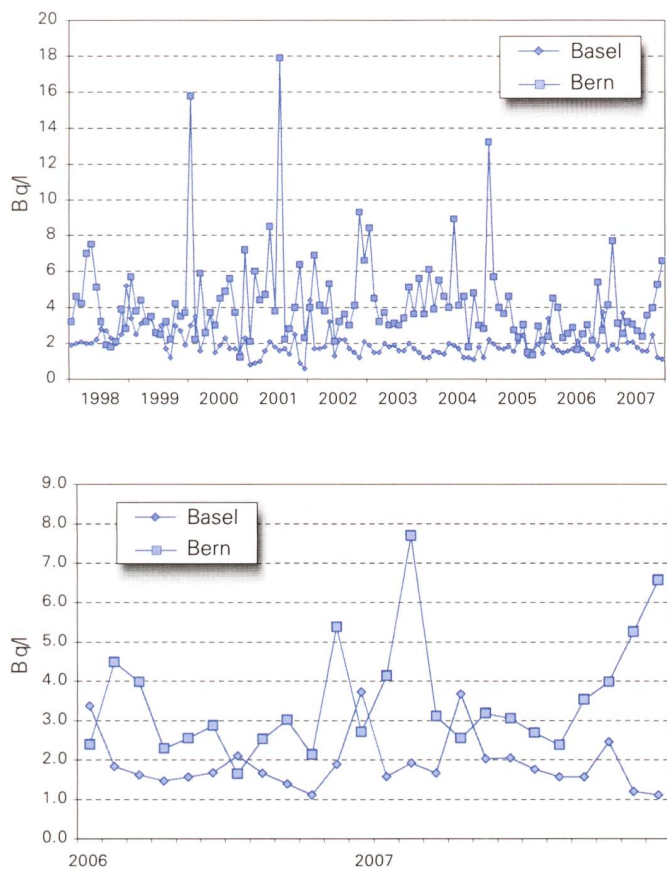


**Figur 20:**  
Tritiumkonzentrationen in der Westschweiz (Niederschlag)

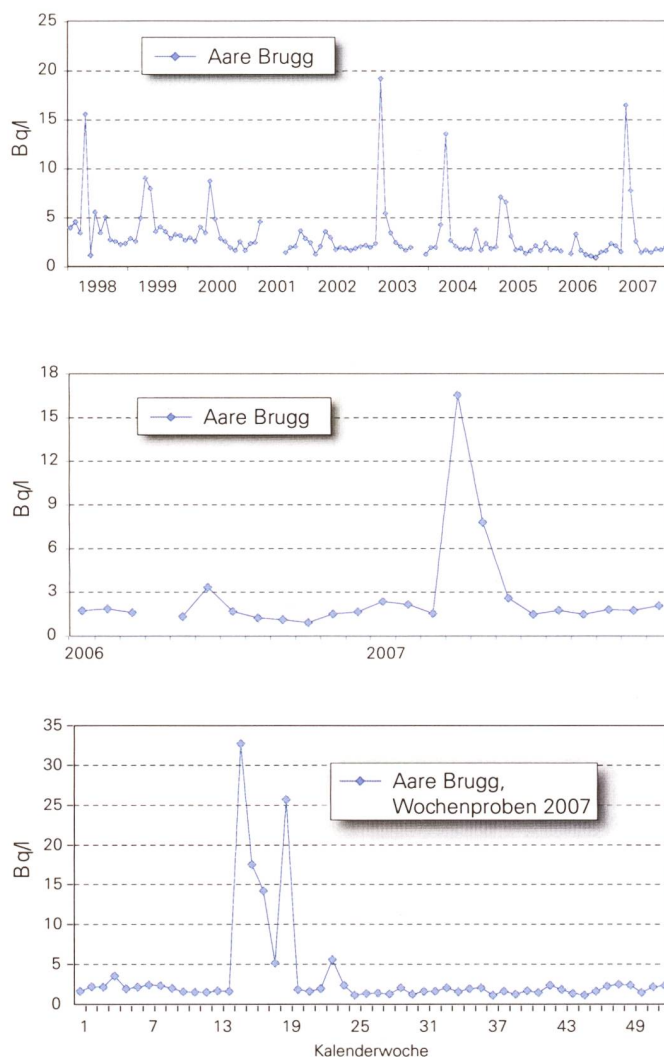
**Figur 21:**  
Tritiumkonzentrationen in der Südschweiz und im Fürstentum Liechtenstein. Die sprunghaften Erhöhungen in Vaduz werden von lokalen Emissionen verursacht.



**Figur 22:**  
Tritium im Niederschlag im Berner Oberland im Verlauf der letzten 10 Jahre und im Vergleich der beiden letzten Jahre. Der natürliche Jahresgang ist weitgehend erhalten und ist in Meiringen am stärksten von den Emissionen aus dem Raum Bern betroffen.



**Figur 23:** Tritiumkonzentrationen in Basel und Bern. Hier ist kein Jahresgang mehr erkenntlich. Die lokalen Emmisionen überdecken die natürlichen Konzentrationen im Niederschlag vollständig.



**Figur 24:** Tritiumkonzentrationen im Flusswasser der Aare bei Brugg. Die jährlichen Tritiumabgaben aus Gösgen sind an den Konzentrationspitzen gut erkennbar. Aus den Wochenproben von 2007 ist ersichtlich, dass sie über einen längeren Zeitraum erfolgen. Zudem ist die Tritiumkonzentration in der übrigen Zeit etwa 50 bis 100% höher als im übrigen Flusswasser der Schweiz. Diese liegt zur Zeit bei knapp 1 Bq/l.

## Chapitre 7.2

# Mesure de plutonium et d'américium dans l'environnement

**P. Froidevaux, P. Steinmann, F. Barraud, F. Luisier, J. Dlala et F. Bochud**

Institut Universitaire de Radiophysique Appliquée, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

### Résumé

Nous avons effectué des mesures de plutonium et d'américium sur des échantillons de sol, d'eau, de filtres à air, de sédiments et de mousses aquatiques. Les mesures sont réalisées par spectrométrie  $\alpha$  après séparation chimique du plutonium et de l'américium. Les résultats obtenus sur les échantillons de sol (0–5 cm) montrent que la contamination des sols provient des retombées des essais des armes nucléaires réalisées en atmosphère durant les années soixante. En effet, le rapport isotopique moyen  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.031 \pm 0.008$  et celui de  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.41 \pm 0.06$ . Ces rapports sont typiques des retombées de ces activités militaires. Le maximum d'activité pour les sols est observé pour un site du Tessin (Val Piora) avec des valeurs jusqu'à 4.5 Bq/kg. En plaine et aux abords des centrales nucléaires suisses, ces valeurs ne dépassent pas 0.2 Bq/kg. Nous avons à nouveau trouvé une activité anormale en  $^{241}\text{Am}$  dans les filtres à air du Weissfluhjoch ( $135 \pm 7$  nBq/m<sup>3</sup>) alors que cette activité ne devrait pas dépasser, comme pour les autres sites de contrôle, quelques nBq/m<sup>3</sup>.

Enfin la mesure de plutonium et d'américium dans des échantillons d'eau de pluie, de rivière, de sédiments et de mousses aquatiques nous a permis de contrôler que l'activité est bien à nouveau due aux retombées des essais nucléaires. Des rapports isotopiques moyens  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  de 0.036 et de 0.031 ont en effet été obtenus d'une part pour les mousses et le sédiments et d'autre part pour les eaux. Cependant la mesure de rapports  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  extrêmement variables (0.03 à 0.8 dans les mousses et les sédiments, 0.02 - 1 dans les eaux) indique que les comportements de ces radioéléments dans ces compartiments de l'environnement sont très différents. L'étude de la migration du plutonium et de l'américium fait l'objet d'un travail particulier de notre part dans le Jura (col du Mollendruz) et sur un site alpin (val Piora).

### Tableau 1:

*Propriétés chimiques et radioactives des actinides dans l'environnement. Les constantes de stabilité correspondent à la première hydrolyse ( $\log K M(\text{OH})$ , col. 3) et à la formation du complexe 1:1 avec l'oxalate ( $\log K \text{Mox}$ , col. 4) [2]. Colonne 5 : tendance d'adsorption à des surfaces telles que les colloïdes. Dernière colonne : le "% du NWT-fallout-Pu" est donné en % de masse, le rapport "r" est donné en activité. NWT = nuclear weapon testing.*

Elément	Espèce aqueuse	$\log(K) M(\text{OH})$	$\log(K) \text{Mox}$	Sorption aux colloïdes	Radio-isotope	Demie-vie	Remarques
Plutonium	$\text{Pu}^{3+}$	7	6.5	+++	$^{238}\text{Pu}$	87.8 a	satellites (SNAP-9A) $r(^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu})=0.036$
	$\text{Pu}^{4+}$	13.3	10.9	+++	$^{239}\text{Pu}$	$2.41 \times 10^4$ a	84 % du NWT-fallout-Pu
	$\text{PuO}_2^+$	4.3	4.3	++	$^{240}\text{Pu}$	$6.57 \times 10^3$ a	15 % du NWT-fallout-Pu
	$\text{PuO}_2^{2+}$	8.4	7	++	$^{241}\text{Pu}$	14.1 a	fillette: $^{241}\text{Am}$ 0.7% du NWT-fallout-Pu
					$^{242}\text{Pu}$	$3.74 \times 10^5$ a	0.3% du NWT-fallout-Pu
Américium	$\text{Am}^{3+}$	7.5	6.5	+++	$^{241}\text{Am}$	433 a	fillette: $^{237}\text{Np}$ $r(^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu})=0.39$

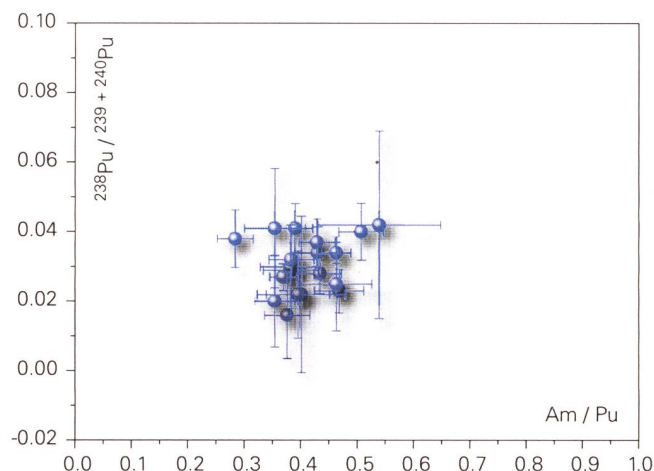
## Introduction

Le plutonium et l'américium ont été distribués dans l'environnement suite aux essais d'armes atomiques en atmosphère, au fonctionnement d'installations nucléaires et au cycle nucléaire (retraitement) ainsi qu'à divers accidents comme celui de la centrale nucléaire de Tchernobyl.

Le comportement du plutonium et de l'américium dans les systèmes naturels dépend de la solubilité, des réactions de sorption, du pH et de Eh (potentiel d'oxydoréduction), de l'hydrolyse et des réactions de complexation, notamment avec des ligands organiques présents dans les sols et les eaux (Choppin 1997 [1] et Tableau 1). La mesure du plutonium et de l'américium au niveau de traces dans l'environnement est indispensable à la compréhension de ces mécanismes de mobilisation et ce travail présente les résultats obtenus dans différents échantillons de l'environnement en Suisse. Les résultats obtenus sur des sites nécessitant une surveillance accrue (centrales nucléaires) sont comparés à ceux obtenus sur des sites où nous menons des études particulières, comme le Jura et le Val Piora. Cette manière de procéder devrait nous permettre d'utiliser les meilleurs indicateurs possibles de contamination accidentelle, et ce dès son apparition et à très faibles niveaux d'activité. Sauf indication contraire, les incertitudes des mesures sont reportées pour un intervalle de confiance de 95% ( $k=2$ ).

## Résultats et discussion

Les tableaux 2 à 4 reportent les principaux résultats de mesure obtenus en 2007. Le sol étant le réceptacle de toute contamination, à court comme à long terme, un effort particulier de mesure est effectué dans ce compartiment. Les premiers centimètres sont utilisés pour mettre en évidence une déposition potentielle récente. Les résultats du tableau 2 montrent que les niveaux d'activité mesurés en Suisse sont bas, particulièrement sur le plateau suisse ( $< 0.3$  Bq/kg). En montagne, les activités sont plus élevées car elles reflètent un phénomène bien connu d'accroissement des dépositions atmosphériques en altitude sous forme de pluie et de neige, plus importantes qu'en plaine (Pourcelot et al. 2007 [2]). Les activités mesurées peuvent alors être dix fois supérieures. Des rapports isotopiques caractéristiques des retombées des essais nucléaires des années soixante sont observés dans tous les échantillons. Ces rapports sont représentés dans la figure 1. Nous constatons en effet que le regroupement des points est bien situé sur la valeur (0.4; 0.030) représentative des rapports  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  des retombées des années soixante.



**Figure 1:**

Rapports isotopiques  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  en fonction du rapport  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  dans 20 échantillons de sol (0-5 cm) prélevés sur l'ensemble de la Suisse. Le rapport isotopique moyen  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.031 \pm 0.008$  et celui de  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.41 \pm 0.06$ .

Il faut toutefois spécifier que le rapport  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  représente un coefficient entre deux éléments de chimie différente dont l'un ( $^{241}\text{Am}$ ) est issu de la désintégration radioactive d'un des isotopes du plutonium ( $^{241}\text{Pu}$ , émetteur  $\beta$ ) qui n'est pas mesuré dans ce travail. Il est assez normal de retrouver ce rapport distinctif dans l'ensemble d'un profil de sol car les vitesses de migration dans ce compartiment de l'environnement ne sont pas sensiblement différentes (Solovitch-Vella et al. 2007 [3]). On peut toutefois observer dans d'autres compartiments de l'environnement des rapports très différents entre l'américium et le plutonium sans qu'il y ait un apport supplémentaire par une contamination d'origine accidentelle. Nous avons par exemple étudié les rapports de  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  dans des mousses et des eaux du karst jurassien, à la source vaclusienne de la rivière Venoge, qui capte une partie des eaux du bassin versant du col du Mollendruz. Une étude préliminaire avait confirmé la migration à longue distance du  $^{90}\text{Sr}$  et son apparition dans l'eau, les mousses et les sédiments de cette source. Les résultats du tableau 3 montrent 3 caractéristiques importantes des échantillons mesurés :

- Le plutonium provient des retombées des années soixante ( $R = 0.036 \pm 0.009$ ).
- Dans les mousses, le plutonium n'est pas associé à la fraction carbonatée (lavée par HCl 0.5 M) mais à la fraction végétale.
- L'américium est présent en proportion variable mais en général différente de celle observée dans les sols.

De ces mesures nous pouvons conclure que lors du processus de solubilisation du plutonium et de l'américium dans le sol, les propriétés physico-chimiques de chacun de ces éléments induisent des comportements différents dans les compartiments successifs de l'environnement.



**Tableau 2:**

Plutonium et américium (Bq/kg masse sèche) dans les sols (0-5 cm) prélevés en 2007 en Suisse.

 Les incertitudes sont indiquées pour  $\sigma=2$ .

Lieu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am} / ^{239,240}\text{Pu}$
<b>Plaine</b>				
Arenenberg	0.145 ± 0.014	0.051 ± 0.006	0.041 ± 0.018	0.354 ± 0.050
CERN	0.068 ± 0.010	0.037 ± 0.006	0.042 ± 0.025	0.539 ± 0.090
<b>Centrales nucléaires + PSI</b>				
Beznau	0.134 ± 0.014	0.051 ± 0.003	0.016 ± 0.012	0.376 ± 0.040
Gösgen	0.226 ± 0.018	0.087 ± 0.008	0.029 ± 0.014	0.382 ± 0.050
Leibstadt	0.191 ± 0.014	0.073 ± 0.008	0.030 ± 0.012	0.382 ± 0.060
Mühleberg	0.175 ± 0.016	0.069 ± 0.008	0.022 ± 0.012	0.395 ± 0.060
PSI (OASE)	0.143 ± 0.014	0.051 ± 0.003	0.020 ± 0.014	0.354 ± 0.040
PSI (ZWILAG)	0.154 ± 0.014	0.071 ± 0.008	0.025 ± 0.014	0.463 ± 0.060
<b>Sites de montagne</b>				
Diesse	0.583 ± 0.032	0.166 ± 0.016	0.038 ± 0.014	0.284 ± 0.030
Allmendhubel	0.855 ± 0.050	0.371 ± 0.024	0.028 ± 0.006	0.434 ± 0.040
Gimmelwald	0.451 ± 0.024	0.211 ± 0.0160	0.023 ± 0.006	0.468 ± 0.040
Fahrni	0.459 ± 0.024	0.197 ± 0.0160	0.034 ± 0.008	0.430 ± 0.040
Davos (vallée de la Dischma)	0.720 ± 0.120	0.289 ± 0.030	0.022 ± 0.022	0.401 ± 0.080
Davos (vallée de la Dischma, 4-10 cm)	2.71 ± 0.14	1.056 ± 0.070	0.041 ± 0.007	0.390 ± 0.032
Davos (Stillberg)	1.645 ± 0.090	0.687 ± 0.040	0.032 ± 0.005	0.417 ± 0.040
Val Piora, sol 1, 0-3 cm	3.75 ± 0.14	1.380 ± 0.070	0.27 ± 0.004	0.370 ± 0.025
Val Piora, sol 1, 3-9 cm	1.67 ± 0.08	0.672 ± 0.050	0.025 ± 0.006	0.402 ± 0.040
Val Piora, sol 2	3.58 ± 0.18	1.535 ± 0.090	0.037 ± 0.007	0.429 ± 0.032
Val Piora, sol 8	3.57 ± 0.12	1.653 ± 0.070	0.034 ± 0.003	0.463 ± 0.025
Val Piora, sol 8, 5-10 cm	4.49 ± 0.18	1.610 ± 0.090	0.029 ± 0.004	0.359 ± 0.026

Ainsi le plutonium est présent en excès par rapport à l'américium dans l'eau, les mousses et les sédiments à la source de la Venoge. Contrairement à notre hypothèse de départ associant le plutonium à la fraction de calcite déposée lors du dégazage de l'eau en sortie de karst, le plutonium est internalisé dans les cellules végétales et n'est pas lavé par HCl, à l'inverse du  $^{90}\text{Sr}$ .

On constate ainsi que lorsque l'on s'éloigne du terme source, des phénomènes de spéciation peuvent provoquer le fractionnement des différents radioéléments et une analyse seule du rapport  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  peut induire une mauvaise interprétation des résultats. Ainsi dans le tableau 3, les rapports  $^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$  des sédiments en aval des centrales nucléaires s'éloignent significativement du rapport attendu ( $0.41 \pm 0.06$ ) sans pour autant indiquer une contamination par du combustible nucléaire, puisque

le rapport  $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$  reste proche de 0.030. Ce dernier rapport concerne, quant à lui, des isotopes du même élément qui ne subissent pas de fractionnement significatif au travers des différents compartiments de l'environnement.

L'activité en plutonium et en américium des filtres à air reflète en général le phénomène de resuspension des particules de sol (García-Olivares et al. 1997 [4]). En Suisse, nous étudions annuellement quatre sites (Fribourg, Klingnau, Mühleberg et Weissfluhjoch) sur lesquels des prélèvements de filtres à air sont effectués de façon hebdomadaire. Ces filtres sont ensuite réunis pour former un échantillon annuel par site, pour l'analyse du plutonium et de l'américium. Le volume d'air ainsi prélevé est d'au moins 300'000 m<sup>3</sup>, ce qui permet une analyse à très bas niveau d'activité (nBq/m<sup>3</sup>).

**Tableau 3 :**

Activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  (Bq/kg masse sèche) dans les mousses et les sédiments aquatiques de la Venoge et de la Malagne (Vaud) et dans les sédiments en aval des centrales nucléaires suisses. Les incertitudes sont indiquées pour  $\sigma=2$ .

Lieu	Type	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$
Venoge, Chauderon	Mousses <sup>a)</sup>	0.025 ± 0.006	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	0.003 ± 0.002	0.140 ± 0.030
Venoge, Chauderon	Mousses <sup>b)</sup>	0.552 ± 0.040	0.032 ± 0.010	0.014 ± 0.004	0.026 ± 0.008
Venoge, 50 m	Mousses <sup>a)</sup>	0.048 ± 0.010	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$		
Venoge, 50 m	Mousses <sup>b)</sup>	0.334 ± 0.008	0.022 ± 0.010	0.009 ± 0.002	0.027 ± 0.008
Venoge, 2 <sup>ème</sup> chute	Mousses <sup>a)</sup>	0.114 ± 0.020	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$		
La Malagne source	Mousses <sup>b)</sup>	0.337 ± 0.010	0.022 ± 0.010	0.048 ± 0.010	0.143 ± 0.030
Venoge	Mousses <sup>c)</sup>	0.202 ± 0.020	0.038 ± 0.015	0.057 ± 0.016	0.282 ± 0.080
Venoge	Mousses <sup>c)</sup>	0.271 ± 0.030	0.040 ± 0.020	0.043 ± 0.012	0.157 ± 0.050
Venoge	Sédiments <sup>d)</sup>	0.217 ± 0.015	0.040 ± 0.012	0.013 ± 0.004	0.058 ± 0.014
Venoge	Sédiments <sup>d)</sup>	0.662 ± 0.008	0.029 ± 0.008	0.149 ± 0.014	0.225 ± 0.024
Hagneck	Sédiments <sup>e)</sup>	0.064 ± 0.008	0.052 ± 0.030	0.041 ± 0.010	0.645 ± 0.150
Klingnau	Sédiments <sup>e)</sup>	0.173 ± 0.016	0.037 ± 0.018	0.031 ± 0.006	0.177 ± 0.044
Pratteln	Sédiments <sup>e)</sup>	0.071 ± 0.010	0.030 ± 0.024	0.062 ± 0.010	0.881 ± 0.180

<sup>a)</sup> Contenu dans la fraction lavée par HCl 0.5 M des mousses.

<sup>b)</sup> Contenu dans la fraction "végétale" des mousses, après lavage par HCl 0.5 M.

<sup>c)</sup> Mousses très carbonatées, entre le siphon (amont) et la source principale de la Venoge.

<sup>d)</sup> Sédiments déposés sur les galets de la Venoge, après la source.

<sup>e)</sup> Sédiments en suspension, en aval des centrales nucléaires, prélevés par des trappes à sédiments

**Tableau 4:**

Activité dans les eaux (mBq/m<sup>3</sup>) et les filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>) prélevés en Suisse en 2007.

Les incertitudes sont indiquées pour  $\sigma=2$ .

Lieu	Type	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{241}\text{Am} / ^{239+240}\text{Pu}$
Pratteln	Eau du Rhin <sup>a)</sup>	15 ± 4	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	8.0 ± 4.0	0.533 ± 0.300
Mühleberg	Eau de pluie	4 ± 2	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	2.0 ± 1.0	0.598 ± 0.280
Genève	Eau du Rhône <sup>b)</sup>	3 ± 1	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	4.0 ± 2.0	1.088 ± 0.520
Fribourg	Eau de pluie	8 ± 6	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	n.m.	
Venoge, juillet 06	Eau de source <sup>c)</sup>	23 ± 2	0.022 ± 0.014	2.0 ± 0.5	0.289 ± 0.120
Venoge, octobre 07	Eau de source <sup>c)</sup>	4 ± 2	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	3.0 ± 0.5	0.127 ± 0.030
Trimmis, GEVAG juin 06	Lavage de fumées <sup>d)</sup>	268 ± 19	0.032 ± 0.024	n.m.	n.m.
Trimmis GEVAG, août 06	Lavage des fumées <sup>d)</sup>	1937 ± 53	0.033 ± 0.008	344 ± 40	0.178 ± 0.042
Trimmis GEVAG, nov. 06	Lavage des fumées <sup>d)</sup>	831 ± 37	0.031 ± 0.014	63 ± 14	0.076 ± 0.030
Klingnau	Filtres à air	0.90 ± 0.14	0.029 ± 0.020	2.0 ± 0.4	2.2 ± 0.55
Mühleberg	Filtres à air	0.62 ± 0.15	$^{238}\text{Pu} < \text{LD}$	12.5 ± 2.0	20.4 ± 6.1
Fribourg	Filtres à air	1.03 ± 0.21	0.092 ± 0.060	1.7 ± 0.3	1.7 ± 0.5
Weissfluhjoch	Filtres à air	3.71 ± 0.40	0.090 ± 0.040	134 ± 13	36 ± 7.0

<sup>a)</sup> Précipitation des hydroxydes de fer (90 l)

<sup>b)</sup> Evaporation hebdomadaire (115 l)

<sup>c)</sup> Filtration à 0.45 µm (200 l)

<sup>d)</sup> Eau de lavage des fumées de la station d'incinération des déchets de Trimmis, GR (5 l)

Depuis le début de ces analyses (1994 pour le plutonium et 1998 pour l'américium), les activités mesurées en plutonium et américium sont toujours inférieures à 20 nBq/m<sup>3</sup>, sauf pour l'américium sur le site du Weissfluhjoch. Sur ce site on mesure des activités en américium supérieures à 100 nBq/m<sup>3</sup> depuis 2002, alors que les activités en plutonium sont restées inférieures à 10 nBq/m<sup>3</sup>. Ces activités en américium ne peuvent pas être expliquées par le phénomène de re-suspension. La seule utilisation industrielle de l'américium étant les détecteurs d'incendie, qui peuvent être accidentellement incinérés lors de la réfection de bâtiments, nous avons prélevé des échantillons d'eau de lavage de fumées de la station d'incinération de Trimmis, la seule station d'incinération proche du site de prélèvement d'air (30 km). Les résultats (< 1Bq/m<sup>3</sup>) ne peuvent pas justifier les activités déterminées dans les filtres à air du Weissfluhjoch. La mesure conjointe de plutonium sur ces échantillons indique la déposition des années soixante comme origine, le rapport isotopique <sup>238</sup>Pu / <sup>239+240</sup>Pu étant proche de 0.03 (tableau 4). On pense actuellement à la présence de détecteurs de fumée endommagés ou à un dispositif anti-statique (qui contiendrait de l'américium) à proximité immédiate de la station de pompage de l'air. Une étude spécifique du site de pompage sera effectuée en 2008 pour déterminer la source de l'américium. Il faut préciser que l'activité en excès dans l'air prélevé (env. 100–200 nBq/m<sup>3</sup>) n'est pas à même d'induire un excès de dose significatif à l'homme. Enfin les eaux de pluie, de rivière et de source indiquent toutes des activités en plutonium et américium très faibles, de l'ordre de quelques mBq/m<sup>3</sup>.

En comparaison, <sup>238</sup>U peut atteindre quelques dizaines à quelques centaines de mBq/l dans les eaux de consommation en Suisse (voir le chapitre dédié à ces analyses dans ce rapport).

## Conclusions

Les mesures de plutonium et d'américium dans des échantillons de sol sur l'ensemble de la Suisse montrent que la déposition est faible sur le plateau suisse et croît avec l'altitude du site de prélèvement. Cette relation entre le niveau d'activité et l'altitude ou encore le niveau de précipitation est maintenant un phénomène bien connu pour les dépositions de radioéléments suite aux essais des bombes atomiques en atmosphère (Mitchell et al. 1990 [5]; Pourcelot et al. 2007 [2]).

Les résultats obtenus dans des compartiments de l'environnement autres que le sol montrent que le rapport isotopique <sup>238</sup>Pu / <sup>239+240</sup>Pu est un bon indicateur de l'origine de la contamination mais que le rapport <sup>241</sup>Am / <sup>239+240</sup>Pu doit être utilisé avec précaution car ces deux éléments sont susceptibles de fractionnement au cours du processus de mobilisation. Enfin, de l'américium a de nouveau été mesuré en excès dans les filtres à air du site du Weissfluhjoch. La cause n'est pas connue mais l'incinération accidentelle de détecteurs d'incendie à la centrale d'incinération de déchets de Trimmis peut pratiquement être exclue comme en étant l'origine.

Dans différents types d'eaux, les activités en plutonium et en américium mesurées ne représentent qu'une fraction (<1/10'000) des activités en uranium naturel.

## Références

- [1] Choppin, G.R. and Morgenstern A. "Distribution and movement of environmental plutonium" in "Plutonium in the environment", chap. 3. A.Kudo ed., Elsevier 2001.
- [2] Pourcelot, L. et al. *Chemosphere* 2007; 66:1571.
- [3] Solovitch-Vella et al. *Appl. Geochem.* 2007; 22:2526.
- [4] Garcia-Olivares, A. et al. *J. Environ. Radioact* 1997; 37:101.
- [5] Mitchell, P.I. et al., *Rad Nucl Chem* 1990; 138:241.