

**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:** - (2010)

**Rubrik:** Messung von Spezialnukliden = Mesures de nucléides spéciaux

### **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [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>**

# Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz

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

Ergebnisse 2010  
Résultats 2010



### 7

## Messung von Spezialnukliden Mesures de nucléides spéciaux

<b>7.1 Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37 und Tritium</b>	<b>90</b>
Zusammenfassung	90
Kohlenstoff-14	90
Kernkraftwerk Gösgen	92
Kernkraftwerk Mühleberg	93
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau	93
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	94
Messungen in der Region Basel Stadt	94
Argon-37 ( <sup>37</sup> Ar)	97
Tritium ( <sup>3</sup> H)	98
<b>7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement</b>	<b>100</b>
Résumé	100
Méthode de séparation chimique	101
Résultats	103



## 7.1

# Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37 und Tritium

**Th. Stocker, H. Bürki, R. Fischer, M. Hönger, R. Purtschert, U. Schotterer und T. Wagner**  
Abt. Klima und Umweltp Physik, Physikalisches Institut Universität Bern, Sidlerstrasse 5, 3012 BERN

**H. Sartorius, C. Schlosser und M. Konrad**  
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 Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Gösgen, Leibstadt, Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Giubiasco, Lausanne, Thun und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2010 weitergeführt. Aus  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen und -Verdünnungen wurde ein  $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert von  $36 \pm 3\%$  bestimmt.

Die 79 auf  $^{14}\text{C}$  untersuchten Standorte unterscheiden sich um höchstens 147‰ von diesem Referenzwert. Dies entspricht einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von 0 bis  $2 \mu\text{Sv/a}$  ( $10^{-6}$  Sievert =  $1 \mu\text{Sv}$ ). Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von  $3'000 \mu\text{Sv/a}$  fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr nicht ins Gewicht.

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

### 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:

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

Das durch Nuklearwaffentests vor allem zwischen 1955 und 1966 produzierte  $^{14}\text{CO}_2$  in der Atmosphäre ist nur noch in geringen Mengen vorhanden. Nur lokal manifestiert sich die als «Suess»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen  $^{14}\text{CO}_2$  durch die Verbrennung fossiler, d. h.  $^{14}\text{C}$ -freier, Brennstoffe.

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:

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

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit  $^{14}\text{C}$ -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale  $^{14}\text{C}$ -Quellen oder -Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter gesammelt. Ihr  $^{14}\text{C}$ -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit  $^{14}\text{A}_0$  verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für das Jahr 2010 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis dienten die ausgewachsenen, im Juni, August und Oktober gepflückten Blätter.

$$(3) \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2010}} = 36 \pm 3 \text{ [‰]}$$

Die Differenz

$$(4) \text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2010}}$$

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

**Aufbereitung von Laubproben für die  $^{14}\text{C}$ -Messung**

Es gelangen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

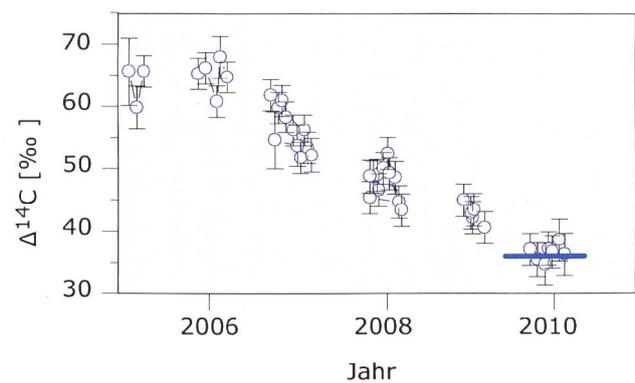
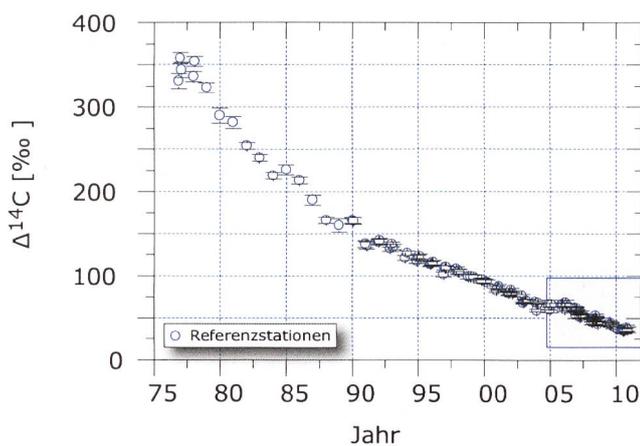
- **Methode A:**  $^{14}\text{C}$ -Bestimmung nur in der Blattkohle <sup>1</sup>
- **Methode B:**  $^{14}\text{C}$ -Bestimmung im ganzen Blatt

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

Bei der Messung am ganzen Blatt wird der gesamte Kohlenstoff erfasst. Diese zwar zeitaufwändigere, aber den wahren  $^{14}\text{C}$ -Gehalt der Blätter besser wiedergebende Methode B wird für Proben von Standorten verwendet, die bereits in den Vorjahren deutlich höhere Werte zeigten.

**Tabelle 1:**  
Messwerte 2010 und Koordinaten der Referenzstationen

Ort	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	34	35	-	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald
Belpberg I	-	37	36	606050 / 190800	825	Rotbuche auf Krete Ø 45cm
Ballenbühl	36	37	39	612550 / 192800	852	Linden freistehend



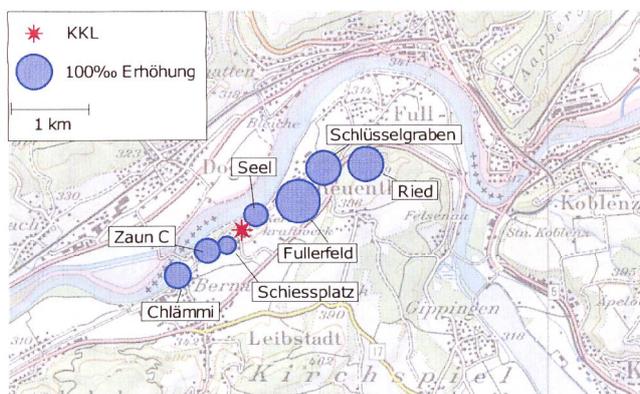
**Figur 1:**  
 $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Laubblättern von den Referenzstationen. Nach einem praktisch konstanten Level in den Jahren 2004 bis 2006 setzte sich der 2007 festgestellte Rückgang bis heute fort. Die blaue Linie zeigt den bestimmten Referenzwert für 2010 an.

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

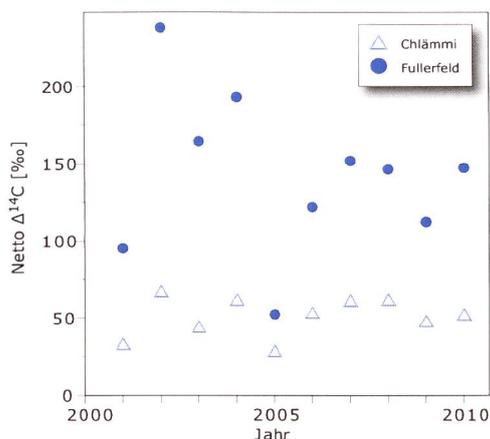
### Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2010 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste <sup>14</sup>C-Konzentration ergab sich in 500 - 1'000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung bei den Birken vom Standort Fullerfeld<sup>2</sup> und im Südwesten im Bereich der Rotbuche an der Position Zaun C und der Linde bei Chlämmi (Figur 2).

In der Figur 2 sind die in letzten 10 Jahren gemessenen, höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Im Jahre 2005 musste das Atomkraftwerk während 5 Monaten stillgelegt werden. Deutlich geringere <sup>14</sup>C-Konzentrationen waren die Folge. Die Werte von 2010 liegen im Mittel der letzten fünf Jahre.



**Figur 2:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) für 2010 Probenahme: 28.7.2010. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 3:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (●) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Leibstadt. In den letzten 10 Jahren gemessene Werte (Standorte: siehe Figur 2).

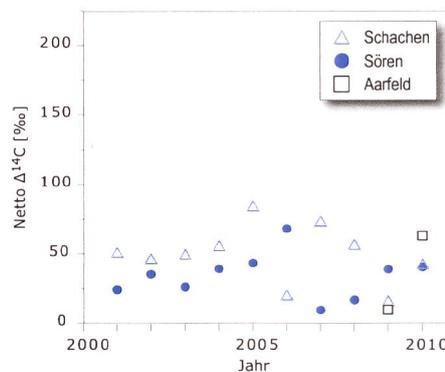
### Kernkraftwerk Gösgen

In der Figur 4 sind die Resultate der am 22. Juni 2010 gewonnenen Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste Messwert resultierte in diesem Jahr nicht am Standort Schachen, sondern östlich des KKG am Standort Aarfeld (Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 63‰). Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert bei Chrummacher ist gegenüber dem Referenzwert nur um 6‰ erhöht, d. h. er weicht nur um  $2\sigma$  vom unbeeinflussten Referenzwert ( $36 \pm 3 \text{ ‰}$ ) ab.

In der Figur 5 sind die in den letzten 10 Jahren gemessenen, höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. In dieser Zeitspanne lagen die Höchstwerte jeweils in derselben Grössenordnung. Sie resultierten jeweils in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer an gleichen Ort. So wurde beispielsweise in den Jahren 2006, 2008 und 2010 die höchsten Werte östlich des KKG gemessen. In den übrigen Jahren wurden Höchstwerte am südwestlich gelegenen Standort Schachen festgestellt.



**Figur 4:** Örtliche Verteilung der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Probenahme: 22.6.2010. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



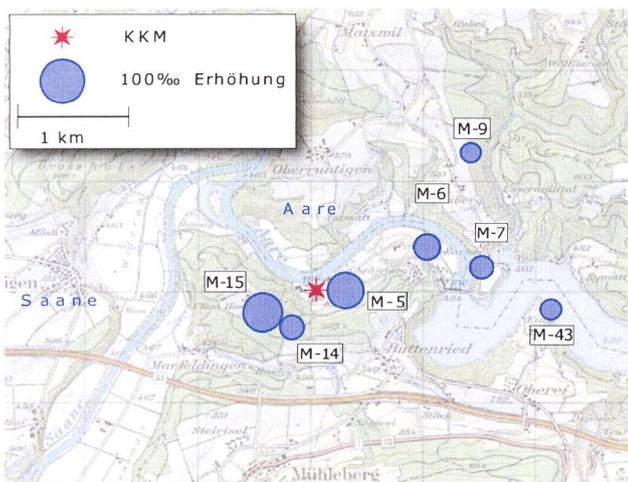
**Figur 5:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte nordöstlich (● bzw. □) und südwestlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen. In den letzten 10 Jahren gemessene Werte (Standorte: siehe Figur 4).

<sup>2</sup> Frühere Bezeichnung: «Meteostation»

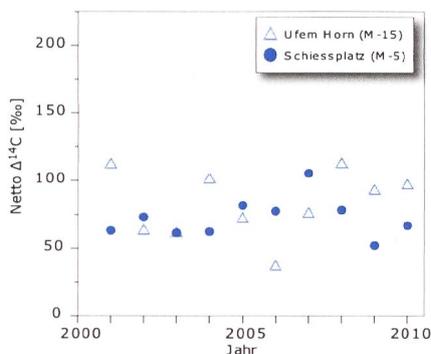
## Kernkraftwerk Mühleberg

Die in Figur 6 symbolisch dargestellte Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) zeigt ein ähnliches Bild wie im Vorjahr. Die grösste Erhöhung findet sich wieder am Standort M-15 Ufem Horn (Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert von 98‰ am 22.6.2010 sowie 78‰ am 15.9.2010). Mit Ausnahme des Standorts M-15 liegen alle Werte deutlich unter den seit Messbeginn im Jahre 1977 registrierten Höchstwerten. Die am weitesten vom Kraftwerk entfernten Punkte M-9 und M-43 weisen auch die geringsten Erhöhungen auf.

In der Figur 7 sind die in den letzten 10 Jahren gemessenen, höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. In dieser Zeitspanne datiert der geringste gemessene Höchstwert aus dem Jahre 2003, dem Jahr mit den heissen Sommermonaten.



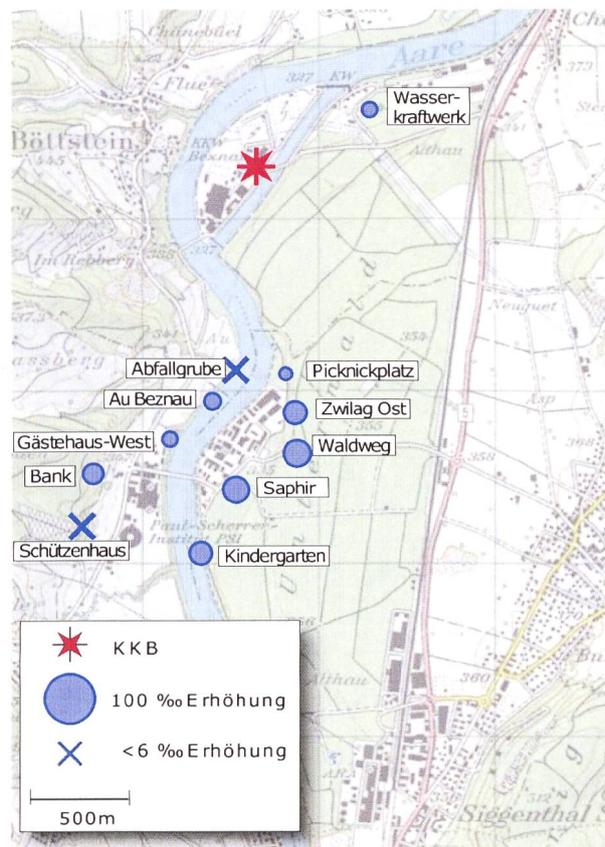
**Figur 6:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM). Probenahme 15.9.2010. Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



**Figur 7:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Mühleberg. In den letzten 10 Jahren gemessene Werte (Standorte: siehe Figur 6).

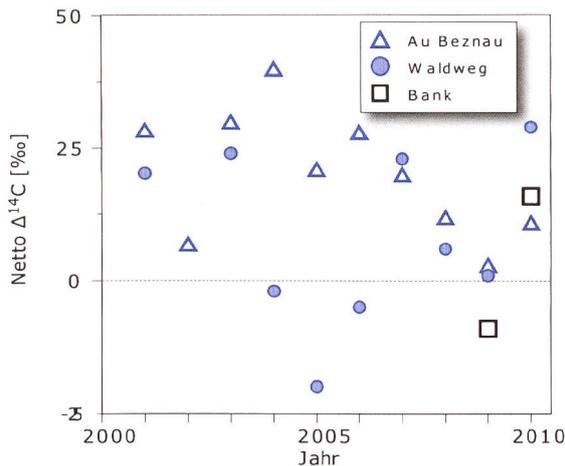
## Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, KKW Beznau

Die zu diesen Standorten gehörenden  $^{14}\text{C}$ - und  $\delta^{13}\text{C}$ -Messungen in den Blattproben wurden am PSI durchgeführt. Die Messunsicherheit für die  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte beträgt 6 bis 7‰. In der Umgebung des PSI wurden nur vereinzelt erhöhte  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte gemessen (bis maximal 29‰). Der höchste Messwert stammt aus dem Jahre 1986. Damals wurden am Standort Saphir ein um 1023‰ erhöhter Wert festgestellt.



**Figur 8:** 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 2010 (Jost Eikenberg, R. Siegwolf, PSI). Die Kreisflächen sind proportional der Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

In der Figur 9 sind die in den letzten 10 Jahren gemessenen, höchsten Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. In dieser Zeitspanne lagen die Höchstwerte jeweils in ähnlicher Höhe. Allerdings wurde 2010 der höchste Wert westlich der Aare erstmals am Standort Bank und nicht wie in den Vorjahren am Standort Au Beznau registriert (Bank 16‰, Au Beznau 11‰). Der Standort Waldweg liegt nahe einer Durchgangsstrasse. In den Jahren 2004 - 2006 waren hier die Werte negativ (Suess-Effekt).



**Figur 9:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (•) und westlich ( $\Delta$ ) der Anlagen PSI/Zwischenlager/KKB. In den letzten 10 Jahren gemessene Werte (Standorte: siehe Figur 8).

Bei der Blattverkohlung allenfalls flüchtige Kohlenwasserstoffe werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewendet, wo Höchstwerte zu erwarten sind (siehe Tabelle 2).

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

Alle 2010 gemessenen Erhöhungen fallen im Vergleich zu der um einen Faktor 1'000 grösseren natürlichen Strahlenbelastung nicht ins Gewicht.

### Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

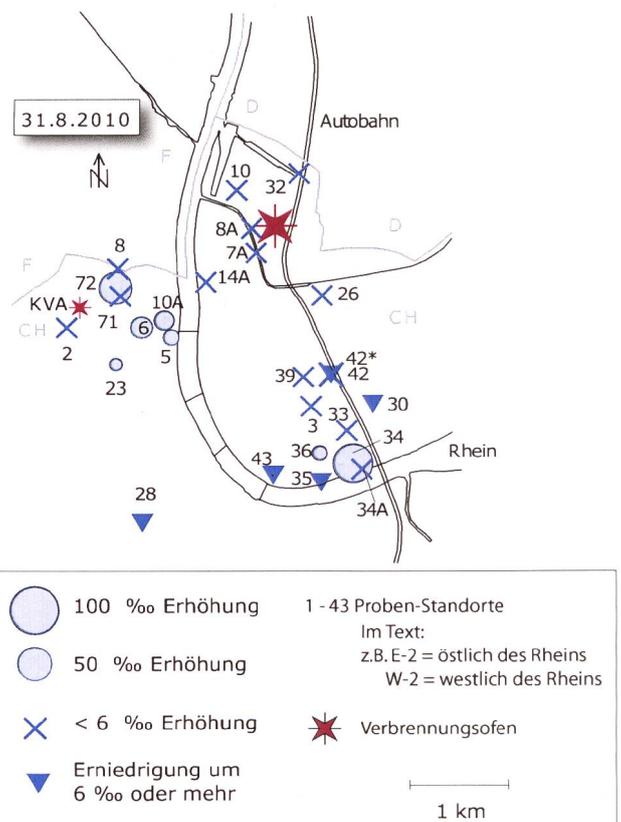
2010 wurde in Giubiasco die erste KVA auf der Alpensüdseite in Betrieb genommen.  $^{14}\text{C}$ -Messungen sowohl vor Inbetriebnahme (1.10.2009) wie auch während des Betriebes ergaben keine signifikanten Unterschiede. In beiden Fällen wurden keine erhöhten  $^{14}\text{C}$ -Werte gemessen. Dasselbe Bild zeigt sich bei den übrigen, bereits seit mehreren Jahren betriebenen Anlagen. Es wurden bei keiner der Anlagen im Laub nachweisbare Mengen von  $^{14}\text{C}$  bestimmt.

Die gegenüber den Referenzstationen erniedrigten  $^{14}\text{C}$ -Konzentrationen stammen aus den Abgasen fossiler Brenn- und Treibstoffe (Suess-Effekt). Die grösste Absenkung konnte in Lausanne (Standort L-2) mit  $-22\text{‰}$  gemessen werden, gefolgt von Zürich (Z-4) mit  $-17\text{‰}$  und Giubiasco (G-1) mit  $-11\text{‰}$  (siehe Figur 10).

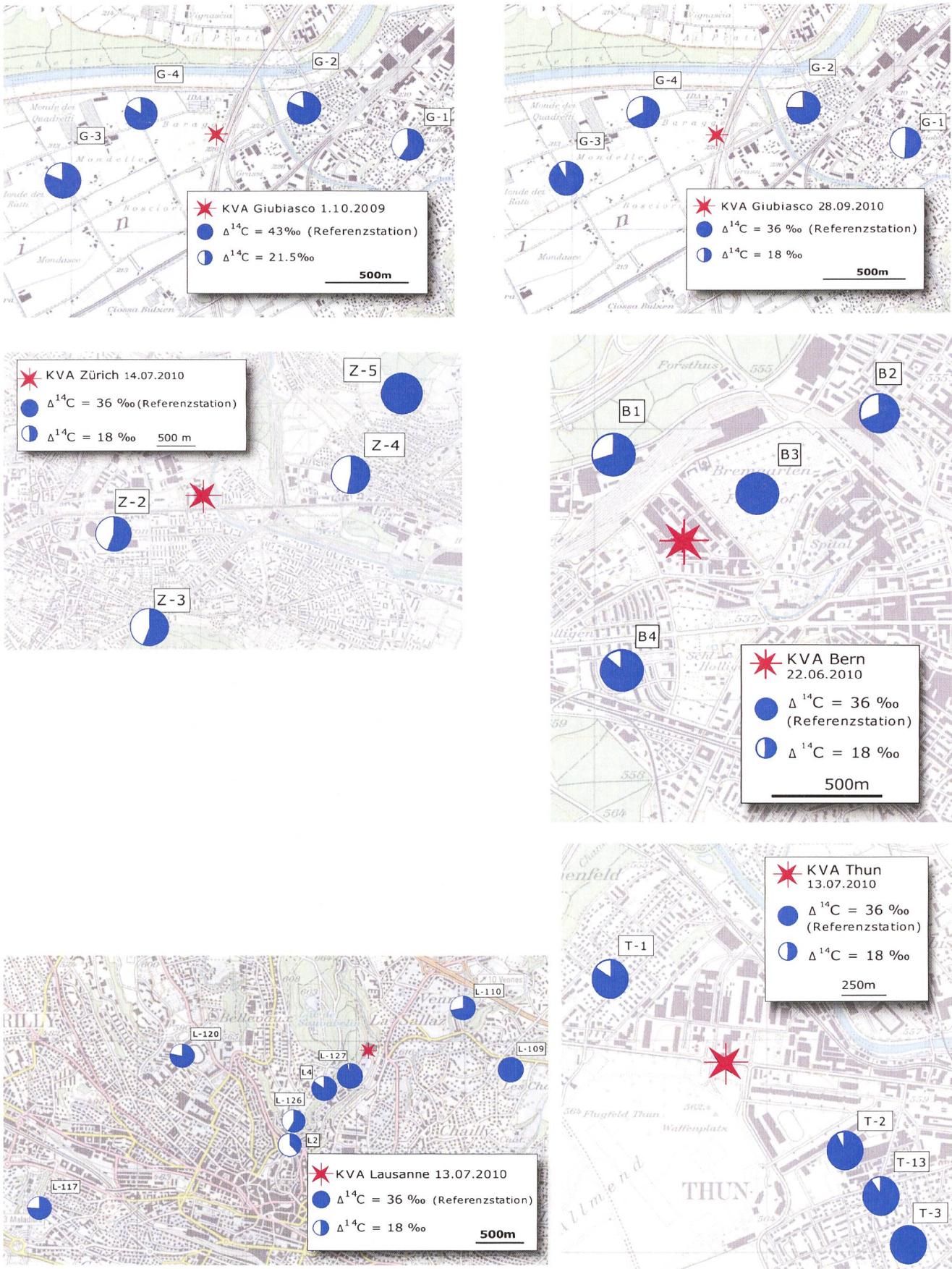
### Messungen in der Region Basel Stadt

Wie bereits im Vorjahr fand die Hauptprobenahme 2010 in Basel im August statt. Im Westen befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten um das Areal der Firma Roche. Die höchsten Werte wurden im Oktober gemessen, und zwar bei W-72 mit  $+115\text{‰}$  und bei E-34 mit  $+135\text{‰}$ . Die Werte an den Standorten W-06 und W-10A sind gegenüber dem Vorjahr deutlich abgesunken.

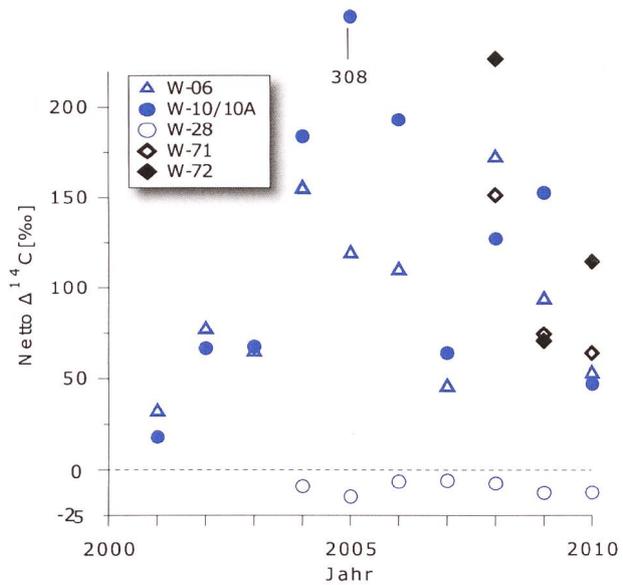
Im August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt.



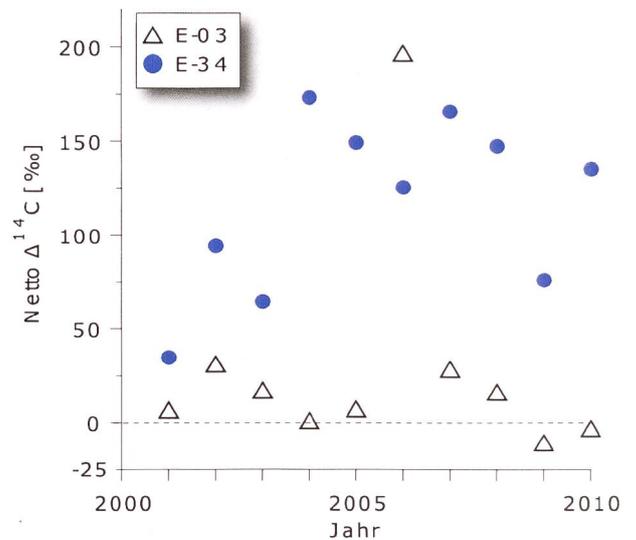
**Figur 11:** Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.



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



**Figur 12:**  
Zeitreihe der Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte eingetragen.



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

**Tabelle 2:**

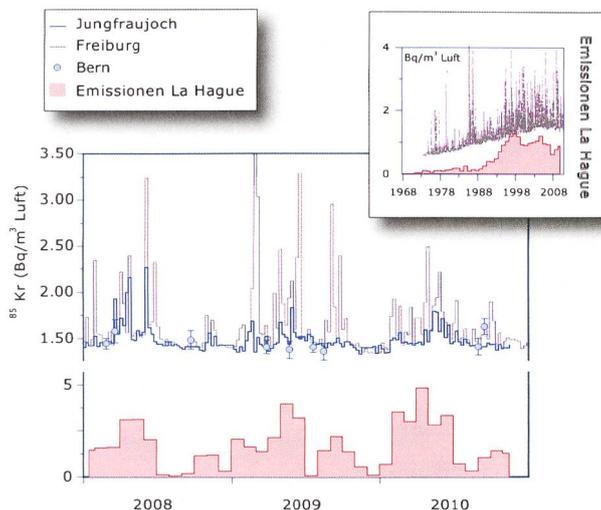
Im Jahre 2010 gemessene höchste Netto  $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2008) am Standort Basel östlich (E-...) und westlich (W-...) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42\*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von  $^{14}\text{C}$ -Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 2010 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 1994 - 2009 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 2010 [‰]	Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert 2005 - 2009 [‰]
E-03	-3	197 (2006)	-	23 (2007)
E-10	-1	251 (1997)	-	-
E-26	-1	169 (1996)	-	-
E-34	73	173 (1996)	135	165 (2007)
E-42	-14	4 (2003)	-	-
E-42*	5	218 (2006)	-	-
W-06	22	438 (1994)	53	172 (2008)
W-10A	17	259 (1997)	48	308 (2005)
W-28	-12	-6 (2007)	-	-
W-71	6	227 (2008)	65	75 (2009)
W-72	51	107 (2008)	115	115 (2010)

## Krypton-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )

$^{85}\text{Kr}$  wird überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Fig. 14). Insgesamt nahmen die globalen Freisetzungsraten von  $^{85}\text{Kr}$  in den letzten Jahren erstmals seit Jahrzehnten wieder ab, was zu einer Stabilisierung oder leichten Abnahme der atmosphärischen Basisaktivität von derzeit  $1.45 \text{ Bq/m}^3$  Luft geführt hat (Figur 14, kleines Bild). Dies zeigen Messungen von Wochenproben der Sammelstationen Freiburg i. Br. und auf dem Jungfrauoch (Figur 14). Die besonders bei der Station Freiburg i. Br. beobachteten Aktivitätsmaxima können zum grossen Teil Abluftfahnen aus der Wiederaufbereitungsanlage La Hague zugeordnet werden. Dies wird auch durch die hohe Korrelation zwischen den publizierten Emissionsraten von La Hague und der Intensität und Frequenz der Aktivitätsspitzen unterstrichen (Figur 14: rote Balken). Wegen der erhöhten Lage des Jungfrauochs, die vor allem in den Wintermonaten über der planetaren Grenzschicht liegt, wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst.

Auch am Physikalischen Institut der Universität Bern werden Stichprobenmessungen der Aktivitätskonzentration von  $^{85}\text{Kr}$  durchgeführt (20 Liter Luft, die innert einiger Minuten gesammelt werden;



**Figur 14:**

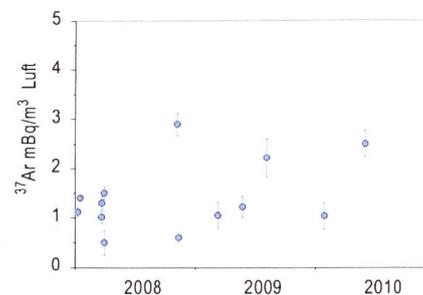
Atmosphärische  $^{85}\text{Kr}$  Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfrauoch (3500 m. ü. M.), Freiburg i. Br. (276 m. ü. M.) sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Uni Bern) über die letzten drei Jahre. Kleines Bild: Aktivitätsverlauf bei der Station Freiburg i. Br. über die letzten 38 Jahre; die Messungen der Proben aus Freiburg und vom Jungfrauoch wurden am Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg i. Br. durchgeführt. Zum Vergleich ist der Verlauf der Emissionsraten der Aufbereitungsanlage von La Hague dargestellt (rote Balken); Einheiten in der Grössenordnung  $10^{16} \text{ Bq/Monat}$ .

Figur 14). Diese Werte stimmen innerhalb der Messfehler gut mit jenen vom Jungfrauoch und Freiburg i. Br. überein, welche am BfS in Freiburg gemessen wurden.

Die Kryptonaktivität macht zwar den grössten Anteil der künstlichen Radioaktivität in der Atmosphäre aus. Die Strahlendosis ist mit  $10^{-2} \mu\text{Sv/a}$  per  $\text{Bq/m}^3$  aber vernachlässigbar klein im Vergleich zu derjenigen von Radonfolgeprodukten.

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

$^{37}\text{Ar}$  wird in der Atmosphäre durch die Spallationsreaktion  $^{40}\text{Ar}(n, 4n)^{37}\text{Ar}$  produziert. Theoretische Abschätzungen der durch kosmische Strahlung erzeugten troposphärischen Gleichgewichtsaktivität ergeben ca.  $0.5 - 1.2 \text{ mBq/m}^3$  Luft<sup>3,4</sup>, in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 3 Jahre gemessenen Basiswerten (Figur 15). Die sehr geringe  $^{37}\text{Ar}$  Hintergrundaktivität, die keinerlei Strahlenschutzrelevanz hat, ist bedingt durch die kurze Halbwertszeit von 35 Tagen und die kleine troposphärische Produktionsrate. Leicht erhöhte Werte (Figur 15) sind möglicherweise durch lokale Einbrüche von stratosphärischen Luftmassen bedingt.



**Figur 15:**

$^{37}\text{Ar}$  Aktivität in Troposphärenluft in Bern.

Künstlich produziertes  $^{37}\text{Ar}$  in messbaren atmosphärischen Konzentrationen bedarf hoher Neutronenflüsse, wie sie nur bei nuklearen Testexplosionen auftreten. Insbesondere bei unterirdischen Tests können grosse Mengen  $^{37}\text{Ar}$  durch die  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$  Reaktion erzeugt werden, die durch Spalten oder Klüfte an die Erdoberfläche und schliesslich in die Atmosphäre gelangen können. Dies ist die Grundlage für den Gebrauch von  $^{37}\text{Ar}$  zur Überwachung des Vertrags über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Kernwaffenteststopvertrag, CTBT).

<sup>3</sup> Lal, D.; Peters, B. Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth; Springer-Verlag, 1967; Vol. 46.

<sup>4</sup> Oeschger, H.; Houtermans, H. J.; Loosli, H. H.; Wahlen, M. In Nobel Symposium 12, Radiocarbon Variations and Absolute Chronology, 1970; pp 471-496.

### Tritium (<sup>3</sup>H)

Wie bereits in früheren Berichten erwähnt, setzt sich die Tritiumkonzentration in den Niederschlägen der Schweiz aus mehreren Komponenten zusammen und zwar aus der natürlichen Tritiumproduktion über die kosmische Strahlung, dem Rest aus der Kernwaffenproduktion, der noch in der Stratosphäre verblieben ist und dem Industrietritium.

Die höheren Sommerwerte im Tritium sind auf den Austausch Stratosphäre - Troposphäre zurückzuführen, der hauptsächlich im Frühsommer stattfindet. Da die natürliche Tritiumproduktion kaum schwankt, sind die im Beobachtungsnetz von Zeit zu Zeit auftretenden Erhöhungen der Tritiumkonzentration auf Emissionen von Industrietritium zurückzuführen, die durch den Niederschlag ausgewaschen werden.

Für hydrologische Anwendungen ist eine Datierung mit Tritium allein wegen der annähernd gleich bleibenden Konzentrationen in den Niederschlägen nur mehr als grobe Abschätzung möglich. Deshalb hat das Bundesamt für Umwelt aus Kostengründen die Messungen im Oberflächenwasser bereits ab 2006 auf einen 2-Monats-Rhythmus reduziert. Ab 1.1.2010 wurden die Tritiummessungen ganz eingestellt.

Auf Vorschlag des Bundesamts für Gesundheit wurde das Tritium im Jahr 2010 nur mehr an 8 Stati-

onen durch die KUP gemessen und zwar an sechs Niederschlags- und zwei Flusswasserstationen. Ab 2011 werden diese präzisen Messungen aus Kostengründen ebenfalls ganz eingestellt. Um einen besseren Vergleich der Erhöhungen durch Industrietritium zwischen der Aare bei Brienzwiler und der Aare bei Brugg noch einmal zu ermöglichen, wurden die Daten für letztere Station für das Jahr 2010 zusätzlich gemessen.

Die Einsparung der Tritiummessungen durch die Bundesämter bedeutet weiter, dass der Internationalen Atomenergiebehörde in Wien die präzisen Tritiumwerte im Niederschlag aus der Schweiz für internationale Vergleiche nicht mehr zur Verfügung stehen werden. Dies wurde an einer kürzlich stattgefundenen Tagung der IAEA sehr bedauert (International Symposium on Isotopes in Hydrology, Marine Environments and Climate Change Studies, Monaco 27 March – 1 April 2011), da die internationalen Tritiummessungen wegen der Diskussion um die Kernenergie wieder an Bedeutung gewinnen.

Die Monatsmittel der 2010 gemessenen Niederschlagsstationen sind in Tabelle 3 aufgelistet. Eine gewisse regionale Konzentrationsverteilung ist weiterhin feststellbar. Aus dem Norden, dem Osten und dem Mittelland stehen allerdings keine Werte mehr zur Verfügung.

Weitere Angaben zum Tritium finden sich in Kapitel 4.1 und 4.3

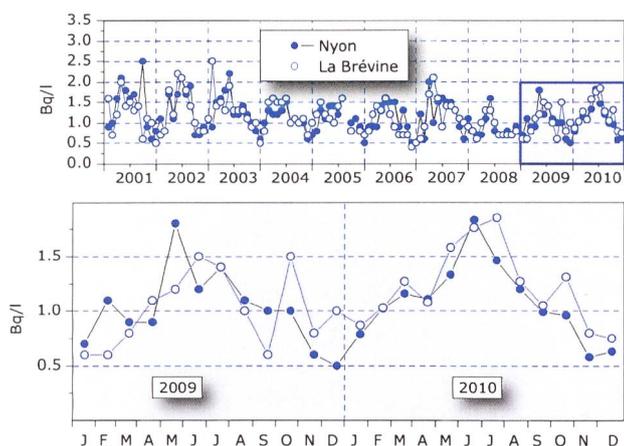
**Tabelle 3:**  
Tritiumkonzentrationen im Niederschlag; Monatsmittelwerte für 2010 [Bq/l].

	Basel	Grimsel	Pontresina	Meiringen	Locarno	Nyon*	La Brévine*	Aare Brugg
<b>J</b>		1.14 ±0.07	0.57 ±0.08	1.13 ±0.07	0.80 ±0.06	0.79 ±0.06	0.87 ±0.06	1.6 ± 0.08
<b>F</b>		1.37 ±0.07	0.79 ±0.08	1.28 ±0.07	1.13 ±0.07	1.02 ±0.06	1.03 ±0.06	1.5 ± 0.08
<b>M</b>		0.87 ±0.07	0.60 ±0.08	0.97 ±0.06	0.66 ±0.06	1.16 ±0.07	1.27 ±0.07	1.4 ± 0.08
<b>A</b>	Messung URA	1.31 ±0.07	1.04 ±0.41	1.87 ±0.08	1.08 ±0.07	1.11 ±0.07	1.08 ±0.07	19.3 ± 0.41
<b>M</b>	(Juni 2010)	1.26 ±0.07	1.04 ±0.15	1.26 ±0.07	1.03 ±0.07	1.33 ±0.07	1.58 ±0.08	5.5 ± 0.15
<b>J</b>	2.1 ± 0.6	1.59 ±0.07	1.50 ±0.10	1.92 ±0.08	1.18 ±0.07	1.83 ±0.08	1.76 ±0.08	3.1 ± 0.10
<b>J</b>	1.8 ± 0.7	1.61 ±0.08	1.36 ±0.10	1.53 ±0.08	1.45 ±0.08	1.46 ±0.08	1.85 ±0.08	1.5 ± 0.10
<b>A</b>	1.6 ± 0.8	1.24 ±0.07	1.27 ±0.08	1.19 ±0.07	keine Probe	1.20 ±0.07	1.27 ±0.07	1.3 ± 0.08
<b>S</b>	0.9 ± 0.8	0.97 ±0.06	0.78 ±0.08	1.19 ±0.06	keine Probe	0.99 ±0.06	1.05 ±0.06	1.5 ± 0.08
<b>O</b>	1.3 ± 0.8	1.03 ±0.07	0.59 ±0.08	0.95 ±0.06	0.92 ±0.06	0.96 ±0.07	1.31 ±0.07	1.6 ± 0.08
<b>N</b>	< 2	1.09 ±0.07	0.42 ±0.08	0.76 ±0.07	0.50 ±0.06	0.58 ±0.06	0.80 ±0.06	1.5 ± 0.08
<b>D</b>	0.9 ± 0.8	0.92 ±0.06	0.50 ±0.08	1.78 ±0.07	0.48 ±0.06	0.63 ±0.06	0.75 ±0.06	1.5 ± 0.08

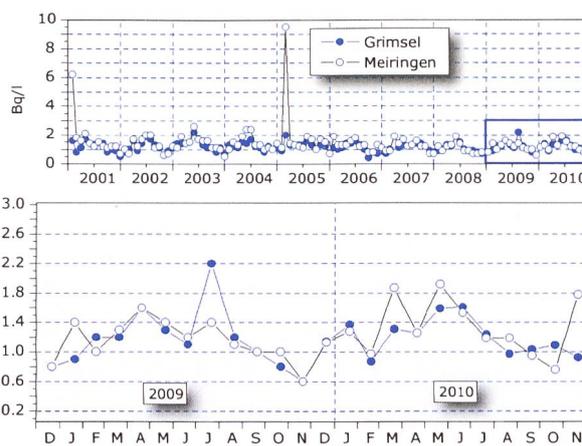
**Tabelle 4:**  
Gewichtete Jahresmittel der Tritiumkonzentrationen im Niederschlag und in den Flüssen für die Jahre 2009 und 2010.

	Grimsel	La Brévine*	Nyon*	Locarno	Meiringen	Aare Brugg	Rhein Diep.	Aare Brienzw.
	(Bq/l)							
Mittel 2010	1.11	1.30	1.06	0.89	1.31	3.43	0.91	0.95
Mittel 2009	1.11	1.20	0.95	0.91	1.20	3.04	0.98	0.90

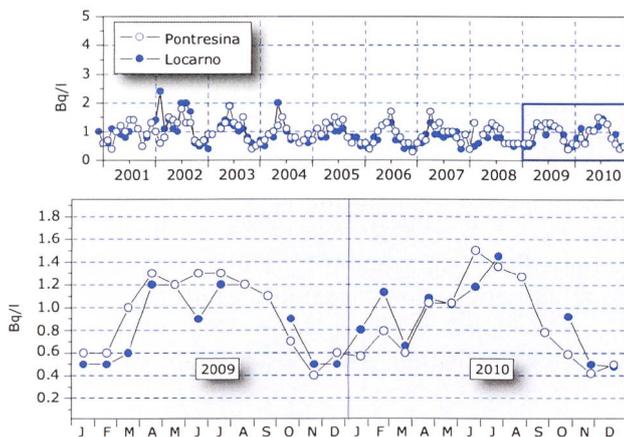
\* ISOT - Stationen (nationales Netz zur Beobachtung der Isotope im Wasserkreislauf)



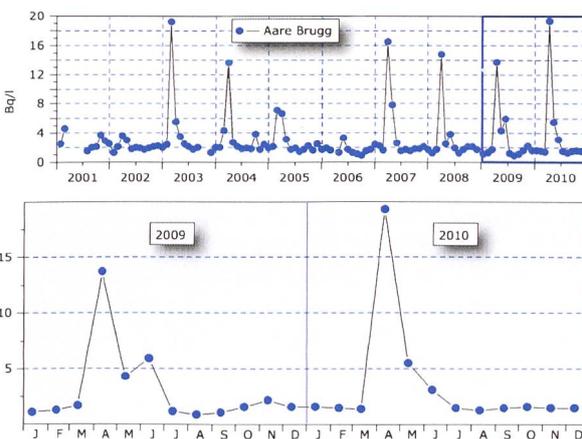
**Figur 16:** Tritiumkonzentrationen in der Westschweiz im zehnjährigen Verlauf und im Vergleich 2009 und 2010.



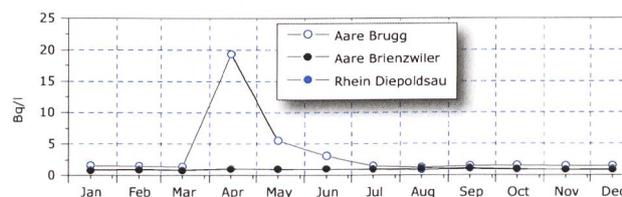
**Figur 18:** Tritiumkonzentrationen im Berner Oberland im zehnjährigen Verlauf und im Vergleich 2009 und 2010.



**Figur 17:** Tritiumkonzentrationen in der Südschweiz im zehnjährigen Verlauf und im Vergleich 2009 und 2010.



**Figur 19:** Tritiumkonzentrationen in der Aare bei Brugg im zehnjährigen Verlauf und im Vergleich 2009 und 2010. Die Spitze der jährlichen Abgaben aus dem Kernkraftwerk Gösgen war verglichen mit den letzten Jahren etwas höher.



**Figur 20:** Vergleich der Tritiumkonzentrationen in der Aare und im Rhein für 2010. Während die Konzentrationen in der Aare bei Brienzwiler und im Rhein bei Diepoldsau das ganze Jahr über praktisch gleich verlaufen, weist die Aare bei Brugg aufgrund der Abgaben des Kernkraftwerk Gösgen erhöhte Werte auf.

## 7.2

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

**J.A. Corcho Alvarado, P. Froidevaux, F. Barraud, A. Savary, F. Bochud**

Institut de Radiophysique, Rue du Grand Pré 1, 1007 Lausanne, Suisse

### Résumé

Les mesures de plutonium et d'américium ont été effectuées sur des sols, des sédiments, des filtres à air et des eaux. En plaine, les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  pour les échantillons de sol (0 - 5 cm) prélevés en 2010 se situent entre 0.09 et 0.16 Bq/kg. En montagne, elles sont significativement plus élevées, entre 0.3 et 0.95 Bq/kg. Aux alentours des centrales nucléaires suisses les activités des actinides dans les sols et les sédiments ne dépassent pas 0.2 Bq/kg ( $^{239+240}\text{Pu}$ ) et 0.1 Bq/kg ( $^{241}\text{Am}$ ), et montrent un rapport d'activité d'environ 0.028 pour  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  et 0.42 pour  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ . La moyenne du rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  de  $0.028 \pm 0.05$  indique une contamination provenant des essais d'armes atomiques effectués durant les années soixante et de la chute du satellite SNAP-9A. Cette origine est confirmée par le rapport  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  qui est de  $0.42 \pm 0.05$  en moyenne.

L'activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  des eaux de pluie, de rivière et de surface ne dépasse pas les valeurs des années précédentes ( $< 5 \text{ mBq/m}^3$ ). L'activité en  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  des filtres à air analysés en 2010 est très faible ( $< 4 \text{ nBq/m}^3$ ).

### Introduction

Le plutonium a été distribué dans l'environnement suite aux essais d'armes atomiques en atmosphère, et suite à divers accidents comme celui de la centrale nucléaire de Tchernobyl ainsi que via le fonctionnement d'installations nucléaires et du cycle du combustible (retraitement / Tableau 1). L'américium est généré par la désintégration bêta du  $^{241}\text{Pu}$ , et a été introduit d'une façon non uniforme dans les deux hémisphères par les mêmes sources que le plutonium (Tableau 1). L'importance de la surveillance de ces deux radioéléments dans l'environnement se justifie par leur radiotoxicité et leur longévité dans les systèmes biologiques.

Le but de ce travail était d'évaluer tout d'abord la présence des radioéléments plutonium et américium dans l'environnement en Suisse, d'en attribuer l'origine et d'analyser leur comportement et leur devenir.

Le comportement du plutonium et de l'américium dans les systèmes naturels dépend de leur solubilité et des réactions de sorption, du couple pH-Eh, de l'hydrolyse et des réactions de complexation, notamment avec des ligands organiques présents dans les sols et les eaux (Tableau 2<sup>1</sup>). Par conséquent, 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. Pour cela, des sols, des sédiments, de l'eau et des filtres à air ont été analysés.

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

**Tableau 1:**

Propriétés radioactives des actinides et leurs sources dans l'environnement. Dernière colonne: le "% du NWT-fallout-Pu" est donné en % de masse, "r" correspond au rapport des activités. NWT = nuclear weapon testing.

Radio-isotope	Emission	Energie (MeV)	Période (a)	Remarques (origine)
<sup>238</sup> Pu	α	5.456, 5.499	87.8	Satellites SNAP, $r(^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu})=0.036$
<sup>239</sup> Pu	α	5.101, 5.143	2.41 10 <sup>4</sup>	84% du NWT-fallout Pu
<sup>240</sup> Pu	α	5.124, 5.168	6.57 10 <sup>3</sup>	15% du NWT-fallout Pu
<sup>241</sup> Pu	β	0.021	14.1	0.7% du NWT-fallout Pu, fille: <sup>241</sup> Am
<sup>242</sup> Pu	α	4.856, 4.900	3.74 10 <sup>5</sup>	0.3% du NWT-fallout Pu
<sup>241</sup> Am	α	5.443, 5.485	433	Fille: <sup>237</sup> Np, $r(^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu})=0.39$

## Méthode de séparation chimique

La méthode de séparation chimique utilisée pour les analyses de plutonium et d'américium consiste à séparer séquentiellement le plutonium et l'américium sur des résines TEVA® et DGA® respectivement, après la digestion micro-onde des échantillons<sup>2</sup>. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur des disques d'acier, et les sources sont mesurées sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS. La performance de la méthode en 2010 était excellente, avec des rendements élevés pour la séparation du plutonium (environ 85%) et de l'américium (environ 80%) dans les échantillons prélevés (sols, sédiments, filtres à air et l'eau).

**Tableau 2:**

Propriétés chimiques 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) [1]. Colonne 5: tendance d'adsorption à des surfaces telles que les colloïdes.

Elément	Espèce aqueuse	$\log(K) M(\text{OH})$	$\log(K) \text{Mox}$	Sorption aux colloïdes
Pu	Pu <sup>3+</sup>	7	6.5	+++
	Pu <sup>4+</sup>	13.3	10.9	+++
	PuO <sub>2</sub> <sup>+</sup>	4.3	4.3	++
	PuO <sub>2</sub> <sup>2+</sup>	8.4	7	++
Am	Am <sup>3+</sup>	7.5	6.5	+++

## Résultats

Les tableaux 3, 4 et 5 rapportent les principaux résultats obtenus en 2010. Sauf indication contraire, les incertitudes des mesures sont reportées pour un intervalle de confiance de 95% (k=2).

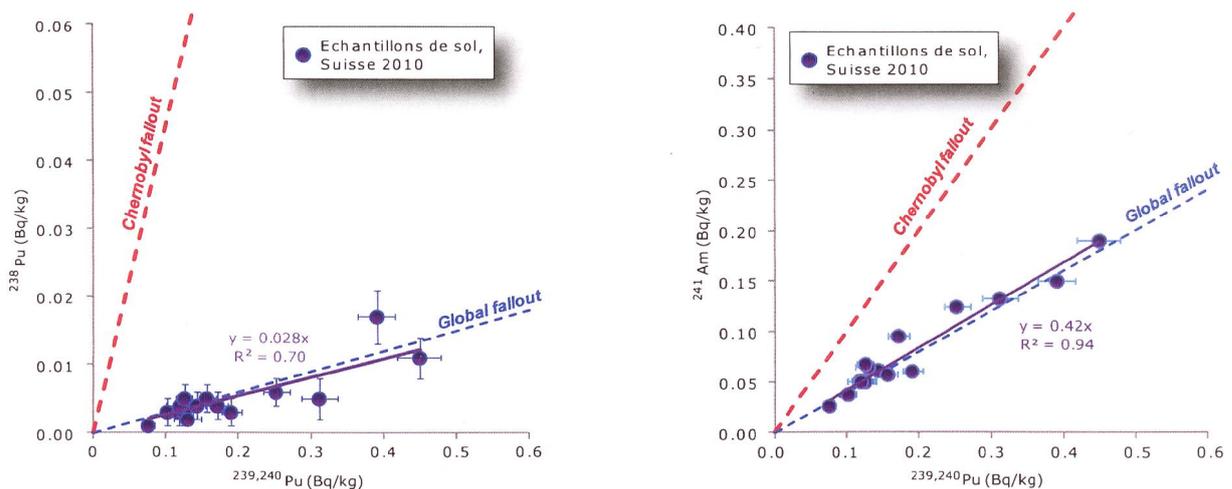
### Sols

Le tableau 3 présente les résultats dans différents sols de Suisse. La couche analysée est 0 - 5 cm. Lors de la mesure des sols, en plaine, l'activité en plutonium se situe entre 0.10 et 0.12 Bq/kg de sol, ce qui correspond bien à la gamme des valeurs observées dans les prélèvements des années précédentes. Aux alentours des centrales nucléaires suisses l'activité des actinides dans les sols et les sédiments ne diffère guère du reste du territoire et ne dépasse pas 0.19 Bq/kg (plutonium) et 0.10 Bq/kg (américium). En montagne, l'activité en Pu peut s'élever au-dessus de 0.2 Bq/kg avec un maximum de 0.45 Bq/kg dans un sol d'Allmendhubel. Les valeurs élevées en Pu des sols de montagne s'expliquent principalement par l'altitude des sites. Nous avons récemment pu mettre en évidence ce phénomène d'augmentation des dépôts de radioactivité (<sup>90</sup>Sr) avec l'altitude à l'échelle de l'Europe occidentale<sup>3</sup>.

La figure 1 illustre les rapports en <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu dans les sols et les sédiments. Tous les échantillons sont regroupés autour d'une valeur (0.03, 0.4) représentative des rapports des retombées des essais nucléaires réalisés dans les années soixante et de la chute du satellite (source de <sup>238</sup>Pu) SNAP-9A. Les moyennes observées en 2010 sont de 0.028 pour le rapport <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu et de 0.42 pour le rapport <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu. Il faut aussi préciser que le rapport <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu représente un coefficient entre deux éléments de chimie différente, donc de comportement potentiellement différent dans le sol. Néanmoins, comme l'américium est issu de

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

3 Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux, P., Chemosphere 66, 1571-1579 (2007).


**Figure 1:**

a) Activité du  $^{238}\text{Pu}$  en fonction de l'activité du  $^{239+240}\text{Pu}$  dans 15 échantillons de sol (0 - 5cm) prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2010.

b) Activité de l' $^{241}\text{Am}$  en fonction de l'activité du  $^{239+240}\text{Pu}$  dans 15 échantillons de sol (0 - 5cm) prélevés sur l'ensemble de la Suisse en 2010. Le rapport isotopique moyen  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.028 \pm 0.005$ , et celui de  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  est de  $0.42 \pm 0.05$ . Les rapports de l'accident du Tchernobyl et du global fallout sont aussi montrés.

la désintégration radioactive bêta d'un isotope du plutonium ( $^{241}\text{Pu}$ ) on retrouve en général le même rapport entre ces isotopes (compris entre 0.3 - 0.5) en particulier dans les sols. On peut malgré tout parfois observer parfois des rapports  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  différents dans d'autres compartiments de l'environnement, en raison d'une migration différente de ces deux éléments, sans qu'il y ait pourtant d'apport supplémentaire par une contamination d'origine accidentelle.

### Eaux et filtres d'air

Pour l'analyse des eaux (Tableau 4), au moins 100 litres par échantillon ont été prélevés. Dans les eaux de surface, les actinides sont présents en suspension dans la partie sédimentaire ou associés aux colloïdes organiques. Leur présence dans les eaux de pluie est due à la resuspension de particules de sol sur lesquelles les actinides sont adsorbés. L'activité en plutonium ( $< 4 \text{ mBq/m}^3$ ) et en américium ( $< 3 \text{ mBq/m}^3$ ) des eaux de pluie, de rivière et de surface (Tableau 4)

**Tableau 3:**

Plutonium et américium (Bq/kg de matière sèche) dans les sols (0-5 cm) en Suisse prélevés en 2010.

Lieu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am} / ^{239,240}\text{Pu}$
<b>Sol plaine</b>				
Grangeneuve	$0.12 \pm 0.02$	$0.05 \pm 0.01$	$0.04 \pm 0.03$	$0.42 \pm 0.09$
Arenenberg	$0.10 \pm 0.01$	$0.04 \pm 0.01$	$0.03 \pm 0.02$	$0.40 \pm 0.07$
<b>Sols centrales nucléaires + PSI + CERN</b>				
Beznau	$0.14 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.01$	$0.03 \pm 0.01$	$0.43 \pm 0.07$
Gösigen	$0.17 \pm 0.02$	$0.10 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$	$0.56 \pm 0.07$
Leibstadt	$0.19 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$	$0.32 \pm 0.05$
Mühleberg	$0.13 \pm 0.02$	$0.06 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.02$	$0.49 \pm 0.05$
ZWILAG	$0.13 \pm 0.01$	$0.07 \pm 0.01$	$0.04 \pm 0.02$	$0.55 \pm 0.08$
PSI-OASE	$0.16 \pm 0.01$	$0.06 \pm 0.01$	$0.03 \pm 0.01$	$0.37 \pm 0.06$
CERN La Praille	$0.12 \pm 0.01$	$0.05 \pm 0.01$	$0.03 \pm 0.01$	$0.43 \pm 0.05$
CERN Maisonnex	$0.13 \pm 0.01$	$0.05 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$	$0.40 \pm 0.06$
CERN Booster	$0.08 \pm 0.01$	$0.03 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$	$0.35 \pm 0.08$
<b>Sols sites d'altitude</b>				
Allmendhubel	$0.45 \pm 0.03$	$0.19 \pm 0.02$	$0.02 \pm 0.01$	$0.42 \pm 0.04$
Diesse	$0.39 \pm 0.03$	$0.15 \pm 0.03$	$0.04 \pm 0.01$	$0.39 \pm 0.09$
Fahrni	$0.31 \pm 0.03$	$0.13 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$	$0.42 \pm 0.05$
Gimmelwald	$0.25 \pm 0.02$	$0.12 \pm 0.01$	$0.03 \pm 0.01$	$0.49 \pm 0.06$
	<b>Moyenne Suisse :</b>		<b>0.028 ± 0.05</b>	<b>0.42 ± 0.05</b>

**Tableau 4:**  
Mesures du plutonium et de l'américium dans les eaux (mBq/m<sup>3</sup>) et les filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>) prélevés en 2010.

Lieu	Type	<sup>239,240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>241</sup> Am/ <sup>239,240</sup> Pu
<b>Eaux (mBq/m<sup>3</sup>)</b>				
Mühleberg	eau de pluie	0.11 ± 0.06	< DL	< DL
Fribourg	eau de pluie	< DL	< DL	< DL
Rhône (Genève)	rivière	3.20 ± 0.90	2.70 ± 0.90	0.86 ± 0.38
<b>Filtres à air (nBq/m<sup>3</sup>)</b>				
Klingnau	V <sub>filtré</sub> = 2'102'570 m <sup>3</sup>	0.53 ± 0.09	0.27 ± 0.05	0.50 ± 0.12
Fribourg	V <sub>filtré</sub> = 963'960 m <sup>3</sup>	0.37 ± 0.05	3.10 ± 0.10	8.50 ± 1.30
Mühleberg	V <sub>filtré</sub> = 530'865 m <sup>3</sup>	0.57 ± 0.14	0.37 ± 0.10	0.65 ± 0.24
Jungfrauoch	V <sub>filtré</sub> = 212'777 m <sup>3</sup>	2.10 ± 0.70	1.60 ± 0.40	0.73 ± 0.28

sont faibles et sont comprises dans la gamme observée lors des années précédentes (< 5 mBq/m<sup>3</sup>). L'eau du Rhône présente une activité en plutonium et américium supérieure à l'eau de pluie car, de par la nature de son prélèvement, elle contient une forte charge en sédiments sur lesquels ces radioéléments sont adsorbés.

L'activité en plutonium et en américium des filtres à air (Tableau 4) reflète en général le phénomène de resuspension des particules de sol<sup>4</sup>. En Suisse, nous étudions annuellement quatre sites (Fribourg, Klingnau, Mühleberg et Jungfrauoch) 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 200'000 m<sup>3</sup>, ce qui permet une analyse à très bas niveau d'activité (nBq/m<sup>3</sup>).

On notera qu'une légère augmentation de l'activité en américium des filtres à air de Fribourg avait également été observée entre 2002 et 2007, probablement due au phénomène d'incinération involontaire de détecteurs d'incendie. Le plutonium, qui n'est pas utilisé dans des applications industrielles, ne présente pas d'augmentation d'activité dans les filtres à air. Son activité moyenne à Fribourg entre 1994 et 2005 est de 1.5 ± 0.5 nBq/m<sup>3</sup>. Ces valeurs sont représentatives d'une activité dans les filtres à air provenant de la resuspension de particules de sol dans l'air. Le site du Weissfluhjoch, analysé pendant les dix dernières années, a été abandonné car, d'une part, la station météo n'est plus en activité et d'autre part le système de prélèvement d'air présentait une contamination à l'américium due à l'incinération à proximité de la prise d'air de déchets de chantier contenant un (ou des) détecteurs d'incendie à l'américium<sup>5</sup>.

## Conclusions

Les analyses du plutonium et de l'américium dans l'environnement en 2010 n'ont pas relevé d'activité inattendue. Les mesures de plutonium et d'américium dans les échantillons de sol sur l'ensemble de la Suisse montrent que la déposition est faible sur le plateau suisse et croît avec l'altitude du site de prélèvement. Cette relation entre le niveau d'activité et l'altitude ou encore le niveau des précipitations est maintenant un phénomène bien connu pour les dépositions de radioéléments suite aux essais des bombes atomiques en atmosphère.

Pour tous les autres échantillons l'analyse des rapports isotopiques <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am/<sup>239+240</sup>Pu a montré que l'origine de la contamination provient des essais des armes atomiques réalisés en atmosphère durant les années soixante et de la désintégration dans l'atmosphère du satellite SNAP-9A contenant une source de <sup>238</sup>Pu. 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.

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

<sup>5</sup> Corcho Alvarado J.A., P. Froidevaux, F. Luisiser, F. Barraud, J. Dlala, A. Savary, F. Bochud (2008) Chapitre 7.3: Mesure de plutonium et d'américium dans l'environnement. Rapport «Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse», OFSP, 2009.

