

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: - (2013)

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: 18.03.2025

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 2013
Résultats 2013



7

Messung von Spezialnukliden Mesures de nucléides spéciaux

7.1 Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37	114
Zusammenfassung	114
Kohlenstoff-14 (^{14}C)	114
Kernkraftwerk Leibstadt	116
Kernkraftwerk Mühleberg	117
Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlager Würenlingen, Kernkraftwerk Beznau	118
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)	119
Krypton-85 (^{85}Kr)	121
Argon-37 (^{37}Ar)	122
7.2 Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement	123
Résumé	123
Introduction	123
Conclusions	127



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

Th. Stocker, P. Düring, R. Fischer, R. Purtschert und T. Wagner

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

C. Schlosser, M. Konrad und S. Schmid

Bundesamt für Strahlenschutz, Rosastrasse 9, D-79098 FREIBURG IM BREISGAU

J. Eikenberg, R. Siegwolf

Paul Scherrer Institut, 5232 VILLIGEN-PSI

Zusammenfassung

Die Messungen des ^{14}C -Gehalts an Laub von Bäumen aus der Umgebung von Kernkraftwerken (Beznau, Gösgen, Leibstadt und Mühleberg), Kehrichtverbrennungsanlagen (Bern, Lausanne, Thun und Zürich), des Paul Scherrer Instituts und an verschiedenen Standorten der Stadt Basel wurden 2013 weitergeführt. Aus ^{14}C -Werten von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C -Quellen und -Verdünnungen wurde aus den Werten während der Vegetationszeit (Mai – September) ein Mittelwert errechnet. Es resultierte für die Zeit der Probenahmen 2013 ein $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert von $28 \pm 3\text{‰}$.

Die 96 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -29‰ (KVA Lausanne L-2) bis maximal $+146\text{‰}$ (KKL Fullerfeld) von diesem Referenzwert. Im Industriegebiet der Stadt Basel lag der Höchstwert bei 64‰ (W-10A, St. Johann). Diese Werte entsprechen einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von -0.4 bis $+2 \mu\text{Sv}$ ($1 \mu\text{Sv} = 10^{-6}$ Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von $3'000 \mu\text{Sv/a}$ fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr kaum ins Gewicht.

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

Kohlenstoff-14 (^{14}C)

Die ^{14}C -Messungen wurden an der Universität Bern durchgeführt, Ausnahmen sind erwähnt.

Referenzwert

Der ^{14}C -Gehalt von atmosphärischem CO_2 nimmt weiter ab, liegt aber gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

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

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 (^{14}C -freier) Brennstoffe global noch nicht kompensiert. Nur lokal manifestiert sich die als „Süss“- oder „Industrie“-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen $^{14}\text{CO}_2$. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem ^{14}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}C -Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich also als ^{14}C -Monitor. Die für diesen Bericht gemessenen ^{14}C -Werte werden mit dem Radiocarbonstandard $^{14}\text{A}_0$ verglichen:

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

Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ^{14}C -Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ^{14}C -Quellen oder -Verdünnungen stammt.

Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter gesammelt. Ihr ^{14}C -Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit $^{14}\text{A}_0$ verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden $\Delta^{14}\text{C}$ -Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2013 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die im Juli, August und September gesammelten Blätter.

$$(3) \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2013}} = 28 \pm 3 \text{ [‰]}$$

Die Differenz

$$(4) \text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2013}}$$

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

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

Es gelangen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

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

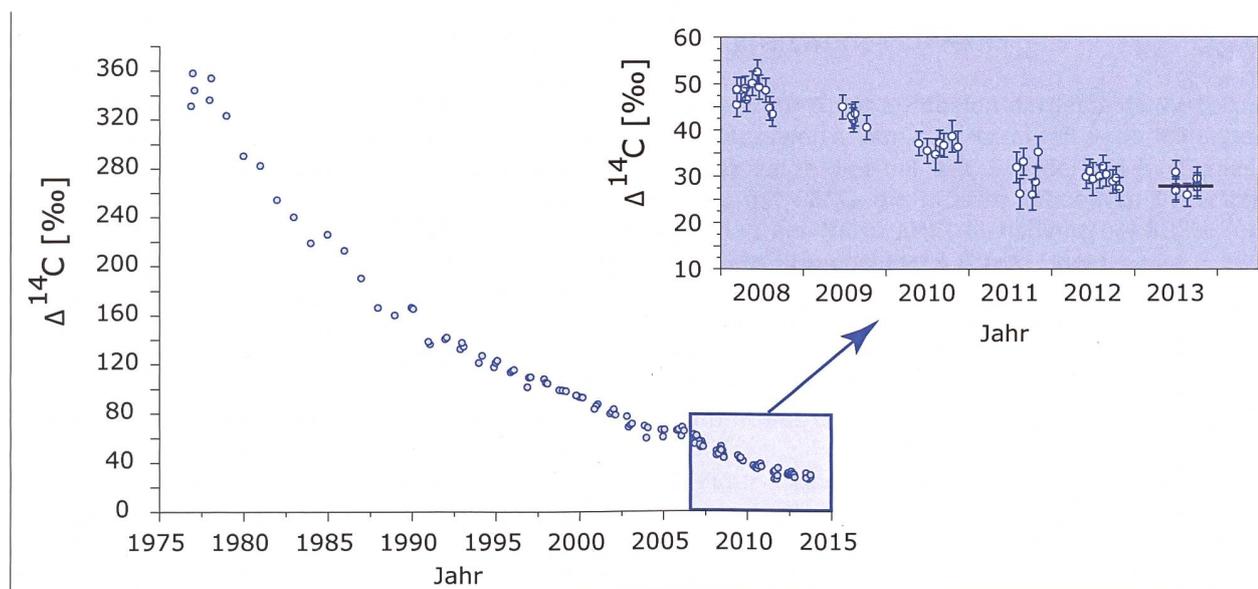
An der Referenzstation ergaben Messungen an der Blattkohle (Methode A) im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt (Methode B) Unterschiede von weniger als 4‰. An belasteten Standorten können die Unterschiede zwischen den Resultaten der nach den Methoden A und B aufbereiteten Proben jedoch grösser sein.

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

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

Tabelle 1:
Messwerte 2013 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juli	Aug.	Okt.			
Taanwald	27	26	28	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald (Blätter)
Belpberg	31	23	28	606050 / 190800	825	Rotbuchen auf Krete (Blätter)
Ballenbühl	27	35	30	612550 / 192800	852	2 Linden freistehend (Blätter)
Taanwald	-	-	(37)	Holz nahe der Referenzstation (Jahrring 2013, Baumfällung Okt. 2013)		

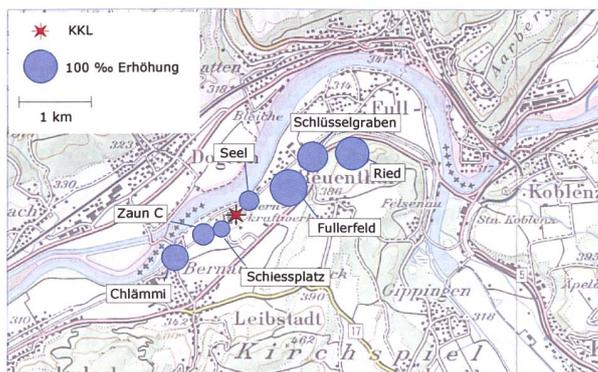


Figur 1:
 $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in Buchen- und Lindenblättern von den Referenzstationen. Die dunkle horizontale Linie zeigt den bestimmten Referenzwert während der Vegetationszeit.

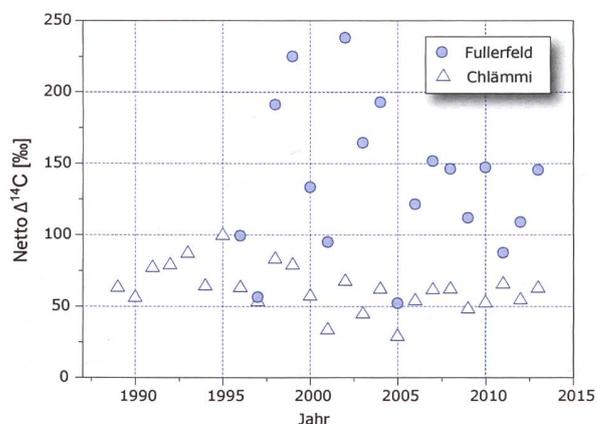
Mit $28 \pm 3\text{‰}$ ist der Referenzwert 2‰ geringer als in den beiden Vorjahren.

In den Jahren 2004 – 2006 wurde in den Blättern ein konstanter ^{14}C -Level gemessen. Dies wiederholt sich nun in den Jahren 2011 – 2013. Möglicherweise bremsen besonders warme Jahre die jährliche $^{14}\text{CO}_2$ -Abnahme in der Atmosphäre. Das könnte verursacht sein durch eine geringere Aufnahme von $^{14}\text{CO}_2$ im Ozean, der in wärmeren Jahren eine verstärkte Stratifizierung der obersten Wasserschichten aufweist. Man würde in diesem Fall auch einen verstärkten Anstieg von CO_2 in der Atmosphäre erwarten. Das ist konsistent mit der Beobachtung von verstärkten Anstiegsraten von CO_2 während El-Niño-Jahren und verringerten Raten bei Abkühlungen (z.B. Pinatubo Eruption).

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



Figur 2: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2013. Probenahme: 01.10.2013 (nach Revision). Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



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

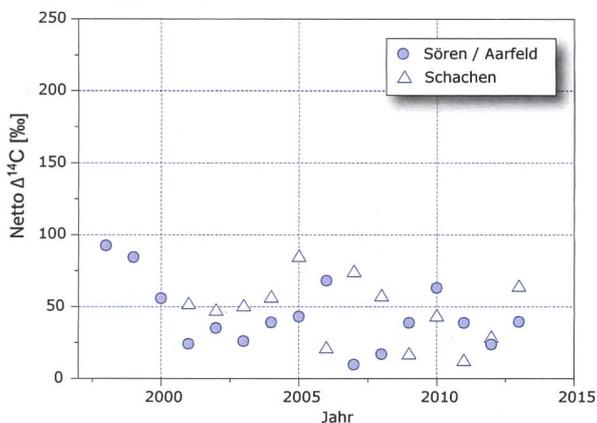
Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2013 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und gemessen. Damit werden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste ^{14}C -Konzentration ergab sich in 500 - 1000m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung bei den Birken vom Standort Fullerfeld und im Südwesten im Bereich der Friedhof-Linde an der Position Chlämmi (Figur 2).

Figur 3 zeigt die aufgetretenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte an diesen Standorten seit Messbeginn. Im Jahre 2005 musste das Atomkraftwerk während 5 Monaten stillgelegt werden. Der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwert verringerte sich gegenüber dem Vorjahr von 193‰ auf 52‰ . 2013 lag der höchste Wert bei 146‰ . Der grösste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ (2002).



Figur 4: Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Probenahme: 04.07.2013. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

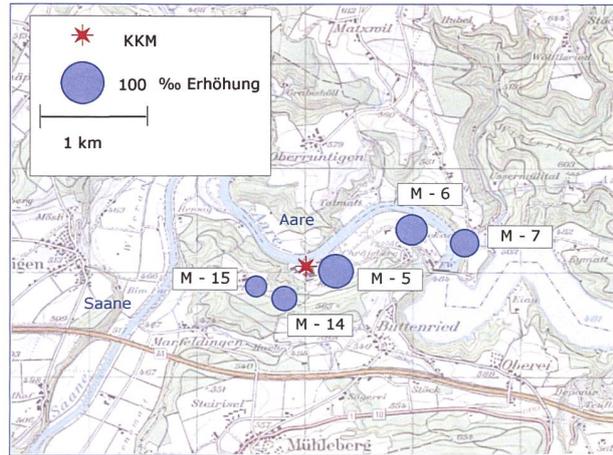


Figur 5: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Gösgen.

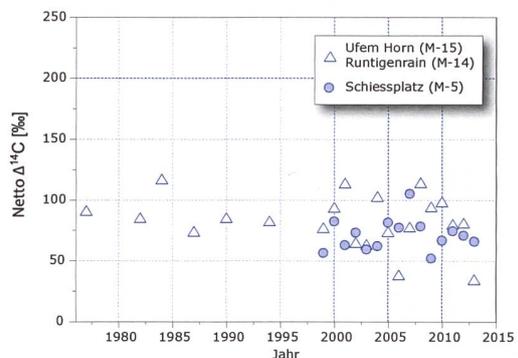
Kernkraftwerk Gösgen

In der Figur 4 sind die Resultate der am 4. Juli 2013 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen (KKG) dargestellt. Der höchste ^{14}C -Messwert resultierte in diesem Jahr mit 63‰ am Standort Schachen. Er ist 35‰ höher als der Höchstwert des Vorjahres (Standort ebenfalls Schachen). Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert bei Chrummacher ist identisch mit den Werten der unbelasteten Referenzstandorte.

In der Figur 5 sind die z.T. seit Messbeginn ermittelten höchsten Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Werte > 100‰ wurden in dieser Zeitspanne nie festgestellt. Höchstwerte resultierten jeweils in ähnlicher Distanz zum Kraftwerk, jedoch nicht immer in der gleichen Windrichtung.



Figur 6: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2013. Probenahme: 17.09.2013. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 7: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (Δ) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. (Standorte: siehe Figur 6).

Kernkraftwerk Mühleberg

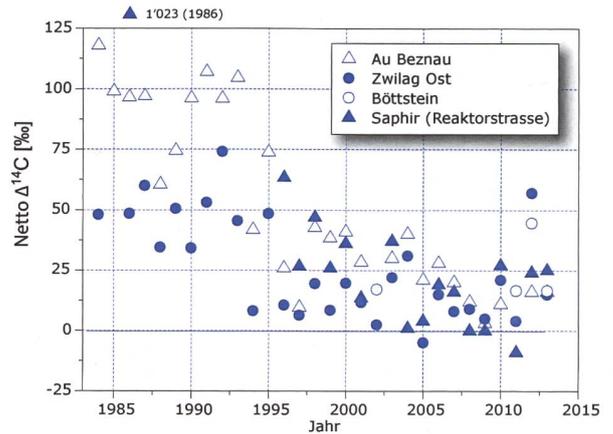
Die in Figur 6 mit Symbolen dargestellte Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM) zeigt diesmal am Standort M-5 (Schiessplatz) mit 66‰ die grösste Erhöhung. Im letzten Jahr lag der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwert bei 80‰, und zwar am Standort M-15 (Ufem Horn).

Alle 2013 gemessenen Proben liegen deutlich unter den seit Messbeginn im Jahre 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem Jahre 1984.

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



Figur 8: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerks Beznau (KKB) im Jahre 2013 (J. Eikenberg, R. Siegwolf, PSI in Zusammenarbeit mit der Universität Bern). Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

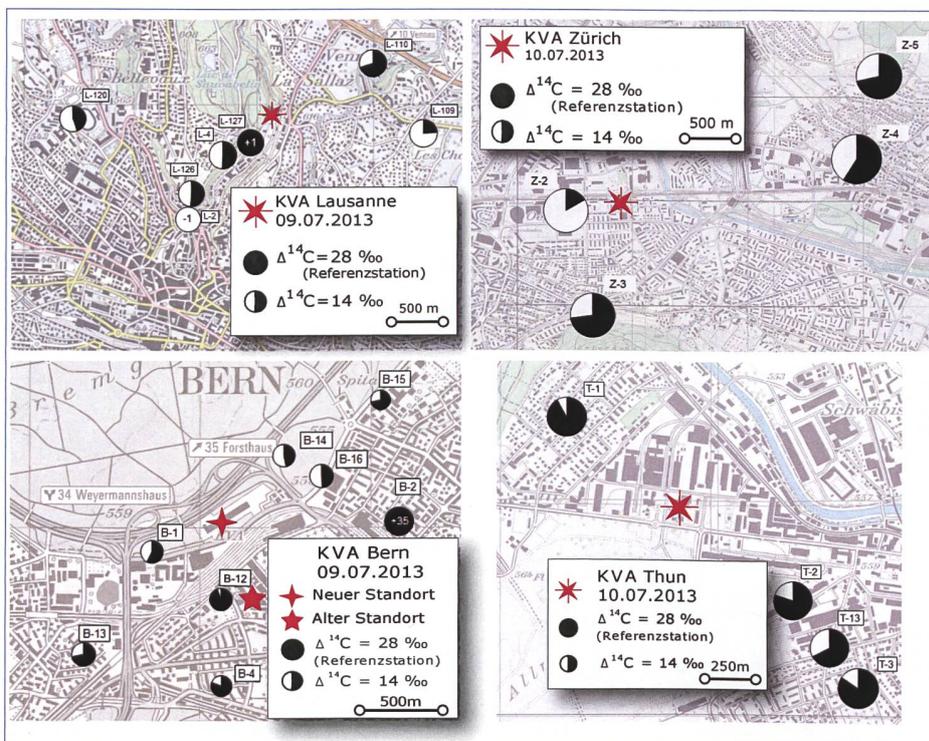


Figur 9: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●▲) und westlich (○△) des PSI/Zwilag sowie des Kernkraftwerks Beznau seit Messbeginn (Standorte: siehe Figur 8).

Paul Scherrer Institut,
Zentrales Zwischenlager Würenlingen,
Kernkraftwerk Beznau

Die zu diesen Standorten gehörenden ^{14}C -Messungen in den Blattproben wurden am PSI sowie an der Universität Bern durchgeführt. Die Messunsicherheit für die $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte beträgt 3 bis 6‰. Alle Werte in der Umgebung PSI/ZWILAG sind 2013 im Vergleich zum Vorjahr vermindert. Der höchste Messwert seit Messbeginn stammt aus dem Jahre 1986. Damals ist am Standort Saphir ein um 1'023‰ erhöhter Wert festgestellt worden.

In Figur 9 sind Zeitreihen von Standorten mit erhöhten Messwerten aufgezeigt. Gegenüber dem Referenzwert sind sie maximal 25‰ erhöht. Der grösste negative Wert wurde mit -15‰ am Standort Gästehaus-West ermittelt.



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

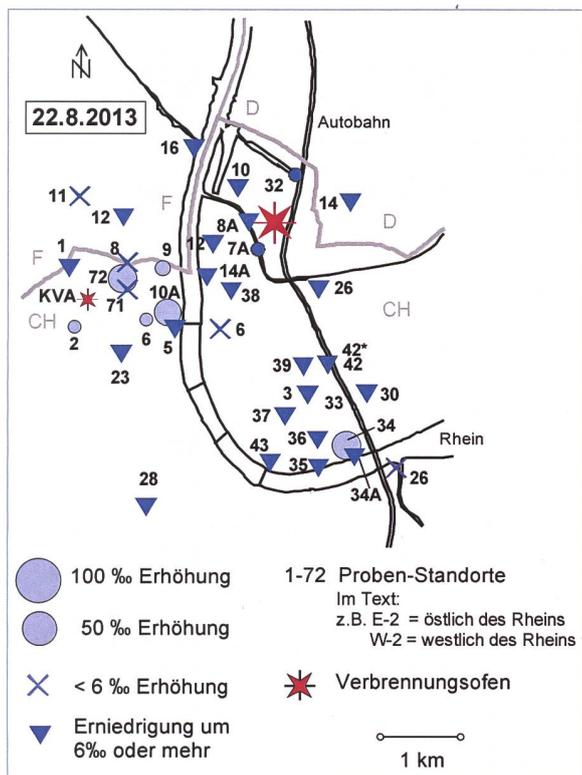
Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA)

Es wurden in Blättern von Bäumen im Umfeld der Verbrennungsanlagen nur an einem Standort in Bern (B-2) eine gering erhöhte ^{14}C -Konzentrationen festgestellt. Mit 35‰ liegt dieser Wert 7‰ über 28‰, dem Referenzwert für 2013. Alle weiteren Messpunkte weisen Werte <28‰ auf. Dies als Folge der Abgase aus fossilen Brenn- und Treibstoffen («Süss»-Effekt, vgl. S. 2).

In Figur 10 sind die Messwerte als Kreise dargestellt. Die weisse Kreisfläche entspricht der Absenkung gegenüber der Referenzstation. Am Standort Lausanne (L-2) konnte erstmals ein Wert gemessen werden, der den atmosphärischen Verhältnissen von 1890 resp. dem Standardwert vor den atmosphärischen Atombombentests, d. h. dem Jahr 1950, entspricht. An einem weiteren Standort in Lausanne (L-127) war der Messwert identisch mit demjenigen der Referenzstation. Dieser Punkt liegt abseits von Strassen und Häusern in einem Waldstück nahe der KVA und offenbar im Windschatten der Abluftfahne.

Messungen in der Region Basel-Stadt

Wie üblich fand die Hauptprobenahme 2013 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, am 22.08.2013 gemessenen Werte

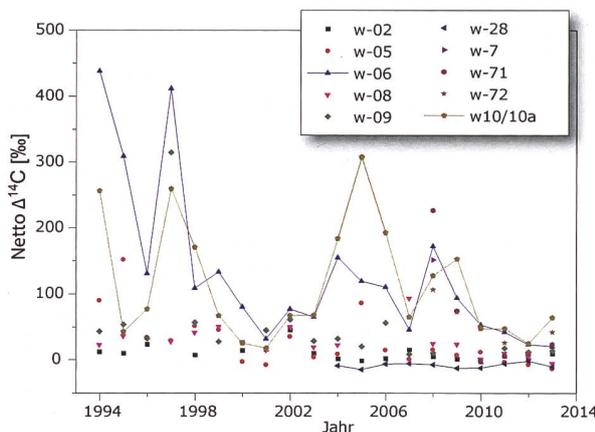


Figur 11: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte für Blattproben aus dem Raum Basel.

betragen westlich des Rheins +42‰ (Standort W-72) und östlich +25‰ (Standort E-34). Später, am 02.10.2013, wurde mit +64‰ (Standort W-10A) ein noch höherer Wert registriert. Alle 2013 gemessenen Erhöhungen fallen jedoch im Vergleich zu der um einen Faktor 1'000 grösseren natürlichen Strahlenbelastung kaum ins Gewicht.

Auf der französischen wie auch auf der deutschen Seite wurden im Raum Basel keine Erhöhungen registriert. Auffallend ist zudem, dass sich die Anzahl der Erniedrigungen um >6‰ in den letzten 3 Jahren von 6 und 14 auf 23 erhöht hat (siehe Figur 11 / Symbol ▼).

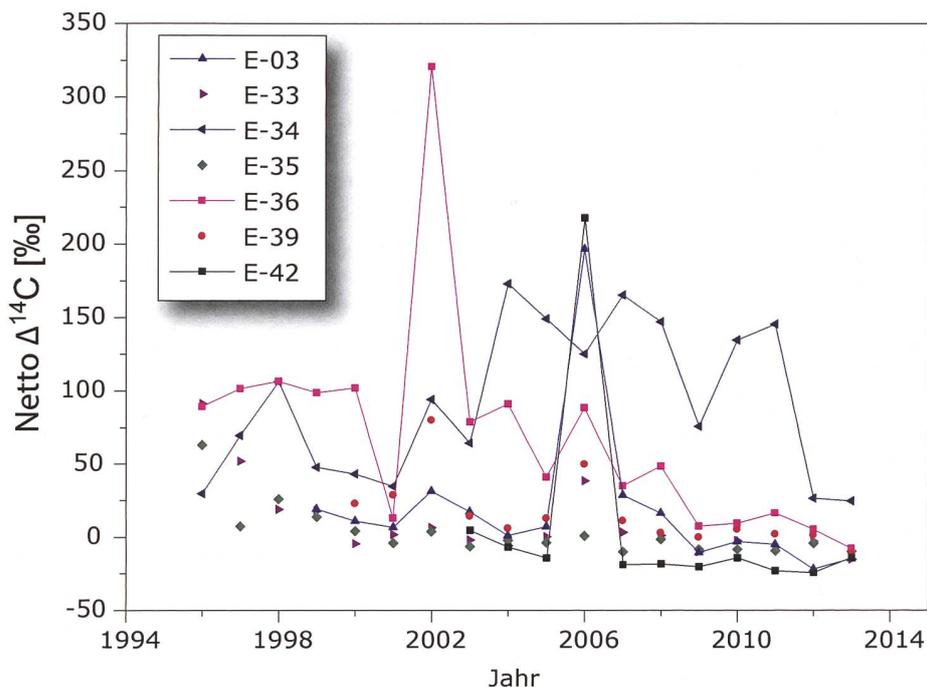
Zusätzlich wurden die Jahrringe 2011 - 2013 eines im Februar 2013 gefällten Baumes in unmittelbarer Nähe vom Gebäude des Verbrennungsofens beprobt. Die Werte lagen 0 - 7‰ unter den Werten der unbelasteten Referenzstationen.



Figur 12: Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte westlich des Rheins (östlich der KVA). Am Standort W-28 wird die ^{14}C unbelastete Stadtluft gemessen. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.

Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohnten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt. Bei der Blattverkohlungen allenfalls flüchtige Kohlenwasserstoffe werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewendet, wo Höchstwerte zu erwarten sind (siehe Tabelle 2).

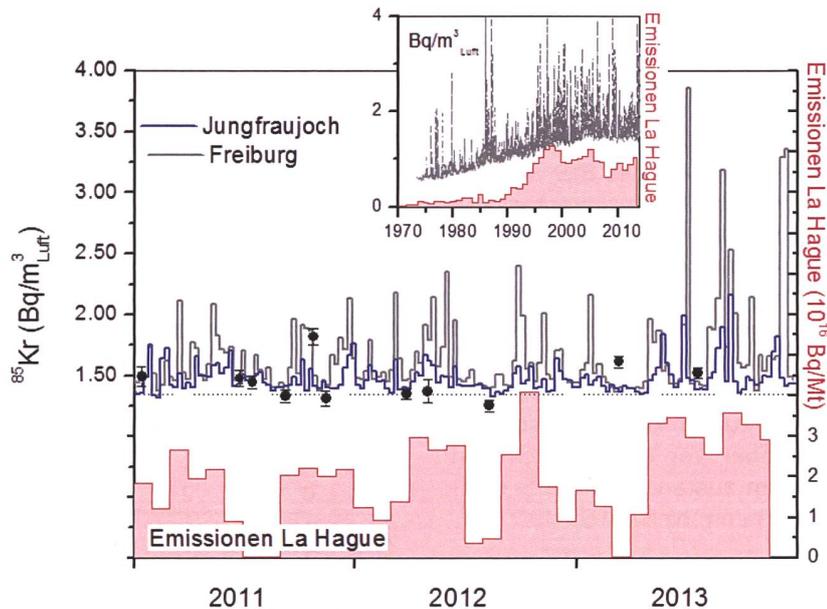
Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Westlich des Rheins blieb der Höchstwert von Netto 438‰ (Standort W-06) aus dem Jahr 1994 die Ausnahme. Dasselbe kann östlich des Rheins am Standort E-36 festgestellt werden. Hier wurde der 2002 gemessene Höchstwert von 320‰ (E-36) in den letzten Jahren jeweils deutlich unterschritten.



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 $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.

Tabelle 2: Im Jahre 2013 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 - 2012) am Standort Basel östlich (E-..) und westlich (W-..) des Rheins. Am Standort E-42 wurde vor dem Gebäude (Strassenseite) und hinter dem Gebäude (E-42*, Hofseite) gemessen. W-28 ist stellvertretend für das von ^{14}C -Quellen unbeeinflusste Stadtgebiet.

Ort	In der Blattkohle		Im ganzen Blatt	
	2013 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2012 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2013 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2012 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]
E-03	-15	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	-13	169 (1996)	-	-
E-34	3	106 (1998)	25	173 (2004)
E-42	-14	4 (2003)	-	-
E-42*	-6	218 (2006)	-	-
W-06	0	438 (1994)	21	172 (2008)
W-10A	32	259 (1997)	64	308 (2005)
W-28	-11	-6 (2007)	-13	-
W-71	24	227 (2008)	-1	75 (2009)
W-72	42	107 (2008)	23	115 (2010)



Figur 14:

Atmosphärische ^{85}Kr Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfrauoch (3'500 m.ü.M.), Freiburg i. Br. (276 m.ü.M.) in der bodennahen Luft sowie stichprobenartige Messungen in Bern (gemessen durch Uni Bern) über die letzten drei Jahre. Kleines Bild: Aktivitätsverlauf bei der Station Freiburg i. Br. über die letzten 39 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).

Krypton-85 (^{85}Kr)

Das radioaktive Edelgasisotop Krypton-85 ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von 10.76 ± 0.02 Jahren. Natürliches atmosphärisches ^{85}Kr hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch ^{84}Kr in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen ^{85}Kr -Inventar von etwa $9 \cdot 10^{11}$ Bq² oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von $\sim 0.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$. Im Gegensatz dazu stammt das derzeitige ^{85}Kr in der Atmosphäre hauptsächlich aus der Wiederaufarbeitung von Brennstäben und wird lokal und zeitlich gepulst freigesetzt. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague (F) die weltweit grösste Emissionsquelle (Figur 14)³. Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6.5% ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von ^{85}Kr übertroffen, was

zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 14, kleines Bild). In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von $1.4 \text{ Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$ in Mitteleuropa zu beobachten (gestrichelte Linie in Figur. 14). Im Jahr 2013 liegen die Gesamtemissionen von La Hague wieder leicht höher im Vergleich zu den Vorjahren⁴. Amplitude und Frequenz von Emissionswolken von La Hague (und Sellafield) nehmen mit geographischer Distanz und Höhenlage ab. Dies wird auch deutlich beim Vergleich der Daten der Stationen vom Jungfrauoch und Freiburg i.B. (Figur 14). Die ^{85}Kr Aktivitätskonzentration in Darwin, Australien in den Jahren 2007 – 2010 zeigt, wie schon andere Messreihen in der Südhemisphäre, ein ähnliches Verhalten. Aufgrund des verzögerten interhemisphärischen Austausches und fehlender größerer Emissionsquellen auf der Südhalbkugel ist der mittlere Untergrundpegel während der Messkampagne in Darwin mit $1.31 \pm 0.002 \text{ Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$ etwas geringer als in der Nordhemisphäre und es fehlen auch die typischen kurzzeitig erhöhten Messwerte⁵. Für die Beurteilung der jährlichen effektiven Dosis ist jedoch der für die Stationen gültige mittlere Un-

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

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

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

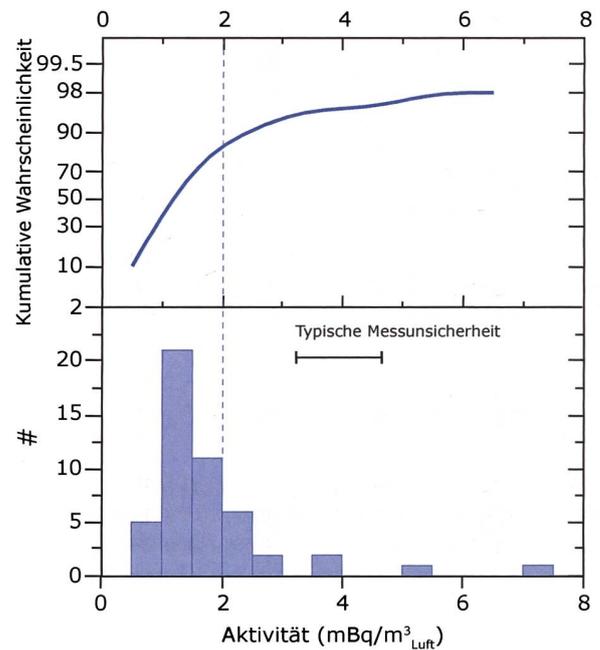
5 Bollhöfer, A., C. Schlosser, J. O. Ross, H. Sartorius, S. Schmid, Variability of atmospheric krypton-85 activity concentrations observed close to the ITCZ in the Southern Hemisphere, Journal of Environmental Radioactivity 127 (2014), pp. 111-118 DOI information: 10.1016/j.jenvrad.2013.10.003

tergrundpegel von ca. $1.4 \text{ Bq/m}^3_{\text{Luft}}$ relevant. Dieser führt zu einer Exposition von ca. 11 nSv/Jahr ($8 \cdot 10^{-9} \text{ Sv/Bq m}^{-3} \text{ Jahr}^6$) was wenig ist in Relation zur Strahlenbelastung von etwa 1.1 mSv . verursacht durch natürliche Radioaktivität (siehe Kap. 2.1). Mit Hilfe der ^{85}Kr Messreihen des BfS wird ein derzeitiges atmosphärisches Gesamtinventar von etwa $5 \cdot 10^{18} \text{ Bq } ^{85}\text{Kr}$ ermittelt was etwa 7 Grössenordnungen über dem natürlichen Niveau liegt.

Stichproben gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern bestätigen den Aktivitätsbereich, der in Freiburg oder auf dem Jungfraujoch beobachtet wird. Die Streuung kommt durch die geographische Distanz aber vor allem durch den kürzeren Sammelzeitraum zustande. Die BfS Messungen entsprechen Wochenmittelwerten.

Argon-37 (^{37}Ar)

^{37}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 liegen bei ca. $0.5 - 2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ ^{7,8}, in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 6 Jahre gemessenen Basiswerten (Figur 15). Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Einflüsse stratosphärischer Luftmassen in die Troposphäre, welche vor allem im Frühjahr zu erwarten sind, können zu leicht erhöhten ^{37}Ar Aktivitäten bis $8 - 10 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$ führen^{7,8}.



Figur 15: ^{37}Ar -Aktivität in Troposphärenluft gemessen im Zeitraum 2006 - 2013. 85% der Messwerte liegen unter $2 \text{ mBq/m}^3_{\text{Luft}}$

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

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

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

7.2

Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

M. Straub, P. Froidevaux, F. Barraud, F. Bochud

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

Résumé

Les mesures de plutonium et d'américium ont été effectuées sur des échantillons de sols et sédiments, d'eaux de pluie, de surface et de rivière ainsi que sur des filtres aérosols, des plantes aquatiques et des poissons. En plaine, les activités en $^{239+240}\text{Pu}$ pour les échantillons de sol se situent entre 0.04 - 0.20 Bq/kg et les activités en américium entre 0.01 - 0.09 Bq/kg. Les échantillons de sol de montagne ont des activités plus élevées qui se situent entre 0.28 - 0.40 Bq/kg pour le $^{239+240}\text{Pu}$. La moyenne du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0.03 ± 0.02 dans les sols et les sédiments indique une contamination provenant des essais d'armes atomiques effectués en atmosphère 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 0.44 ± 0.09 .

Pour les eaux de pluie et de surface et les eaux de rivière, les valeurs ne dépassent pas les activités des années précédentes. Les activités mesurées dans la viande des poissons restent également très faibles. A cause d'un comportement chimique différent dans les compartiments de l'environnement pour ces divers types d'échantillons, les mesures des rapports $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ sont très variables. De plus, dans les poissons, l'américium est connu pour avoir un facteur de concentration supérieur à celui du plutonium. Les valeurs moyennes des filtres aérosols ne dépassent pas 3 nBq/m³ pour l'activité en $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am en 2013.

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}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. La mesure du plutonium et de l'américium au niveau de traces dans l'environnement est indispensable à la compréhension des mécanismes de mobilisation et d'absorption dans l'environnement. Pour cela, des sols, des sédiments, de l'eau, des plantes aquatiques, des poissons et des filtres aérosols prélevés en Suisse en 2013 ont été analysés.

Tableau 1:

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

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

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 [1]. Les actinides sont ensuite électrodéposés sur des disques d'acier [2] et sont mesurés sur une installation Canberra Alpha Analyst munie de détecteurs PIPS. La procédure est décrite en détails

dans la référence bibliographique [1]. La performance de la méthode se traduit par des sources isotopiquement très pures et par des rendements moyens de 65% et de 60% pour le Pu et l'Am respectivement. La méthode est validée annuellement par la participation à des intercomparaisons internationales comme PROCORAD en 2013, et par la mesure d'échantillons certifiés (IAEA-soil-6, IAEA-sediments-375, etc).

Tableau 2:

Plutonium et américium (Bq/kg de matière sèche) dans les sols (0 - 5 cm) et sédiments prélevés en 2013.

Lieu	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²³⁸ Pu / ^{239,240} Pu	²⁴¹ Am / ^{239,240} Pu
Sols plaine				
Arenenberg TG	0.10 ± 0.01	0.05 ± 0.01	0.06 ± 0.01	0.56 ± 0.13
Cadenazzo	0.06 ± 0.01	0.01 ± 0.00	0.05 ± 0.03	0.25 ± 0.07
Güttingen	0.10 ± 0.01	0.05 ± 0.01	< LD	0.45 ± 0.08
Posieux	0.08 ± 0.01	0.03 ± 0.01	< LD	0.37 ± 0.09
Sols centraux nucléaires + PSI + CERN				
Beznau	0.13 ± 0.01	0.05 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.36 ± 0.06
Gösgen	0.17 ± 0.02	0.09 ± 0.01	0.04 ± 0.02	0.51 ± 0.07
Leibstadt	0.17 ± 0.01	0.06 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.39 ± 0.05
Mühleberg	0.08 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.43 ± 0.08
ZWILAG	0.11 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.42 ± 0.07
PSI-OASE	0.09 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.42 ± 0.07
CERN 1	0.08 ± 0.01	0.04 ± 0.01	0.03 ± 0.02	0.53 ± 0.11
CERN 2	0.04 ± 0.01	0.02 ± 0.00	0.07 ± 0.04	0.50 ± 0.12
Sols sites d'altitude				
Allmendhubel	0.40 ± 0.02	0.14 ± 0.01	0.02 ± 0.01	0.35 ± 0.04
Diesse	0.39 ± 0.02	0.17 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.45 ± 0.04
Fahrni	0.28 ± 0.02	0.12 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.42 ± 0.05
Gimmelwald	0.35 ± 0.02	0.15 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.41 ± 0.04
Sédiments				
Pratteln	0.026 ± 0.005	0.015 ± 0.004	0.02 ± 0.03	0.56 ± 0.19
Klingnau	0.05 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.02 ± 0.02	0.68 ± 0.18
Hagneck	0.04 ± 0.01	0.012 ± 0.004	0.03 ± 0.03	0.29 ± 0.12

Résultats

Les tableaux 2, 3 et 4 rapportent les résultats principaux obtenus en Suisse en 2013. Les incertitudes des mesures sont reportées pour un intervalle de confiance de 95% (k=2)

Sols

Le tableau 2 présente les résultats dans différents sols et sédiments de Suisse. La profondeur analysée pour les sols est de 0 - 5 cm. Les activités en plutonium se situent entre 0.04 - 0.4 Bq/kg et les activités en américium entre 0.01 - 0.17 Bq/kg. Les valeurs les plus élevées sont observées dans les échantillons des sols situés en altitude (i.e. Allmendhubel, Diesse, Fahrni, Gimmelwald) et s'expliquent principalement par des précipitations plus importantes en montagne qu'en plaine. Cette observation est cohérente avec le phénomène d'augmentation des dépositions de radioactivité (⁹⁰Sr) avec l'altitude à échelle de l'Europe occidentale [3]).

La figure 1 illustre le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les sols et les sédiments. Tous les échantillons sont regroupés autour d'une valeur 0.4 (ligne rouge), représentative des rapports des retombées des essais nucléaires réalisés dans les années soixante. La figure 2 présente les mêmes résultats avec l'activité du ²³⁸Pu en fonction de l'activité du ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (a) et l'activité du ²⁴¹Am en fonction de l'activité du ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (b) en comparaison avec les rapports correspondant de l'accident de Tchernobyl (ligne rouge) et les retombées des essais nucléaires (ligne bleue). Aucune contribution significative de l'accident de Tchernobyl à l'activité en plutonium et américium n'a été mise en évidence, comme démontré dans la figure 2.

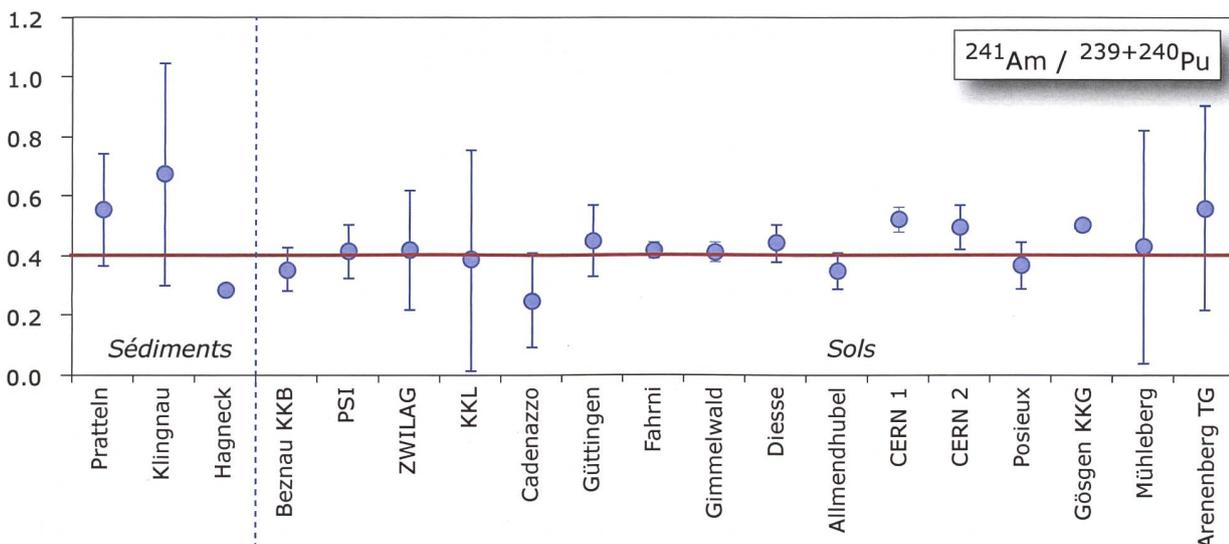


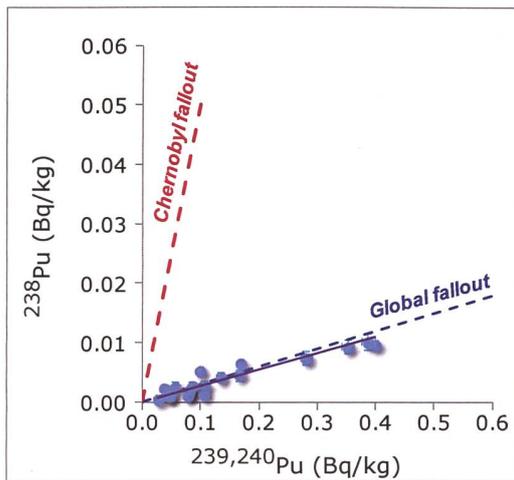
Figure 1: Rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les sols et les sédiments; la ligne rouge représente le rapport de retombées des essais nucléaires des années soixante (les incertitudes des mesures sont reportées à 2 sigma).

Eaux de pluie, de surface et de rivière, plantes aquatiques et viande de poisson

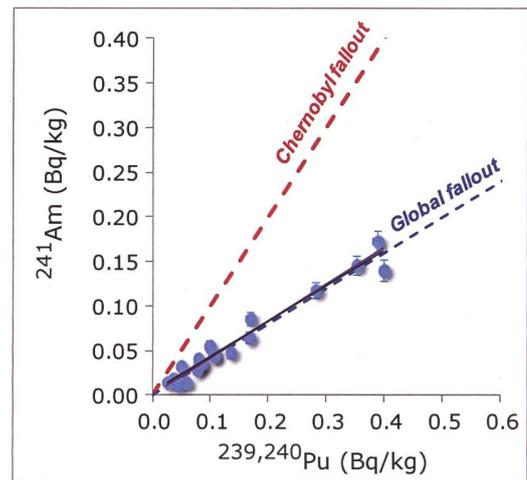
Pour l'analyse des eaux, au moins 65 litres par échantillon ont été prélevés. Dans les eaux de surface, les actinides sont présents en suspension dans la partie sédimentaire ou associés aux colloïdes organiques. Les activités en plutonium et en américium de l'eau de pluie et l'eau de rivière sont faibles et sont comprises dans la gamme observée lors des années précédentes (<10 mBq/m³). L'activité du plutonium et de l'américium dans l'eau du Rhône est plus élevée que l'activité mesurée dans les 3 échantillons de pluie (tableau 3), à cause d'une forte charge en sédiments dans l'eau du Rhône dans lesquels les radioéléments peuvent s'accumuler. Les trois eaux de surface montrent des activités situées entre 3.4 - 5.4 mBq/m³ pour le ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et entre 2.6 - 4.2 mBq/m³ pour l'activité en ²⁴¹Am. L'eau de surface de Hagneck a une activité en dessous de la limite de détection pour l'américium.

Les activités mesurées dans les plantes aquatiques sont faibles (< 80 mBq/kg de matière sèche). Les plantes aquatiques peuvent adsorber les radioéléments par transfert racinaire à partir des sédiments et par transfert foliaire à partir de l'eau. Le transfert de cations dans la partie intracellulaire des plantes implique des canaux sélectifs et non-sélectifs. Ainsi, l'accumulation de plutonium et d'américium n'est pas forcément identique et les rapports entre ces deux radioéléments ne seront pas similaires à ceux mesuré dans les sédiments, les sols ou dans l'eau (figure 3).

Les activités en plutonium et en américium dans la viande de poisson sont très faibles (tableau 3).


Figure 2a:

Activité du ^{238}Pu en fonction de l'activité du $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols et les sédiments en comparaison avec les rapports correspondant de l'accident de Tchernobyl (ligne rouge) et les retombées des essais nucléaires (ligne bleue), les incertitudes des mesures sont reportées à 1 sigma.


Figure 2b:

Activité du ^{241}Am en fonction de l'activité du $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols et les sédiments en comparaison avec les rapports correspondant de l'accident de Tchernobyl (ligne rouge) et les retombées des essais nucléaires (ligne bleue), les incertitudes des mesures sont reportées à 1 sigma.

Les organismes aquatiques peuvent accumuler des transuraniens lors de l'interaction avec de l'eau et l'alimentation, par assimilation ou par adsorption. En général, l'américium a montré une biodisponibilité plus élevée que le plutonium [4,5] et cela pourrait expliquer les rapports $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ plus élevés observés dans les poissons (Fig. 3).

Filtres aérosols

Nous étudions annuellement quatre sites standard (Mühleberg KKM, Leibstadt KKL, Klingnau et Posieux) et, en 2013, aussi un site à Liebefeld où l'on a pris les échantillons par saison, hiver et été.

Tableau 3:

Plutonium et américium dans les eaux (mBq/m^3), les plantes aquatiques (mBq/kg) et la viande de poisson (mBq/kg) prélevés en 2013.

Lieu	Type	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$
Eaux (mBq/m^3)				
Mühleberg KKM	eau de pluie	0.17 ± 0.07	< LD	< LD
Posieux (Fribourg)	eau de pluie	0.22 ± 0.11	< LD	< LD
Leibstadt KKL	eau de pluie	1.83 ± 0.60	1.34 ± 0.58	0.73 ± 0.40
Rhône (Genève)	eau de rivière	2.30 ± 0.79	3.63 ± 1.17	1.58 ± 0.74
Pratteln	eau de surface	3.90 ± 0.97	2.61 ± 1.31	0.67 ± 0.38
Klingnau	eau de surface	3.37 ± 1.09	4.19 ± 2.11	1.24 ± 0.74
Hagneck	eau de surface	5.39 ± 1.96	< LD	< LD
Viande de Poisson (mBq/kg de matière sèche)				
Rhin KKL	poisson	20 ± 0.6	< LD	< LD
Beznau	poisson	1.3 ± 0.6	1.6 ± 0.7	1.2 ± 0.8
Gösgen	poisson	3.0 ± 1.4	4.4 ± 0.2	1.5 ± 0.7
Leibstadt	poisson	1.7 ± 0.9	< LD	< LD
Plantes Aquatiques (mBq/kg de matière sèche)				
Klingnau	plantes aquatiques	22.1 ± 4.5	4.6 ± 1.6	0.21 ± 0.08
Hagneck	plantes aquatiques	77.2 ± 16.5	34.6 ± 9.0	0.45 ± 0.08
Pratteln	plantes aquatiques	35.5 ± 4.3	26.0 ± 4.5	0.73 ± 0.16

Tableau 4:
Plutonium et américium dans les filtres à air (nBq/m³) prélevés en 2013.

Lieu	Type	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu
Filtres aérosols (nBq/m³)				
Mühleberg KKM	filtre aérosol FWP	0.55 ± 0.15	0.38 ± 0.14	0.69 ± 0.32
Leibstadt KKL	filtre aérosol FWP	0.67 ± 0.17	0.34 ± 0.13	0.51 ± 0.24
Klingnau	filtre aérosol HVS	1.42 ± 0.12	0.39 ± 0.07	0.28 ± 0.06
Posieux	filtre aérosol HVS	2.66 ± 0.22	1.25 ± 0.15	0.47 ± 0.07
Liebefeld (hiver)	filtre aérosol HVS	0.49 ± 0.08	0.22 ± 0.05	0.45 ± 0.12
Liebefeld (printemps)	filtre aérosol HVS	0.96 ± 0.12	0.47 ± 0.10	0.49 ± 0.12

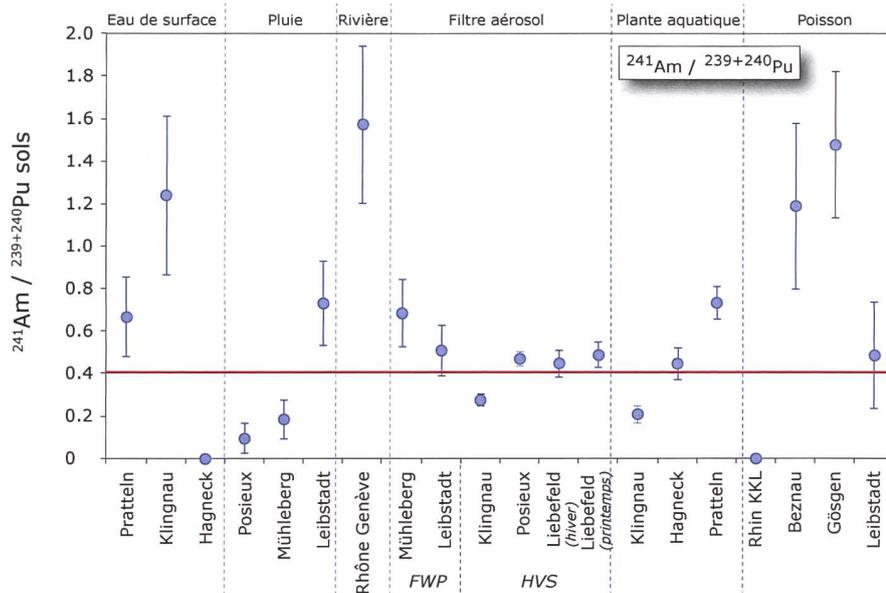


Figure 3:
Rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les échantillons dans lesquels le plutonium et l'américium peuvent être soumis à un fractionnement. La ligne rouge indique le rapport des retombées globales des essais nucléaires (les incertitudes des mesures sont reportées à 2 sigma).

Conclusions

Les analyses de plutonium et d'américium dans l'environnement en 2013 n'ont pas montré d'activité inattendue. Les activités en plutonium et en américium dans les échantillons de sols de montagne sont, comme d'habitude, plus élevées par rapport aux échantillons de sols de plaine. L'ensemble des mesures montre que la déposition est faible sur le plateau suisse et croît avec l'altitude du site du prélèvement. Cette relation est un phénomène bien connu pour les dépositions de radioéléments suite aux essais des bombes atomiques réalisés en atmosphère.

Nous n'avons pas observé de marquage dû aux centrales nucléaires suisses dans les échantillons de sols et les rapports isotopiques sont indicatifs des essais nucléaires des années soixante et de la désintégration dans l'atmosphère du satellite SNAP-9A contenant une source de ²³⁸Pu. En aval du rejet des centrales nucléaires suisses, l'analyse du rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans des échantillons prélevés en Suisse en 2013 confirme l'absence de marquage radioactif par les centrales.

Références

- [1] Luisier F., Corcho Alvarado J.A., Steinmann Ph., Krächler M., Froidevaux P. Journal Radioanal. Nucl. Chem. 281, 3: 425-432 (2009)
- [2] Bajo S., Eikenberg J., Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 242, 3, 745-751 (1999)
- [3] Pourcelot L., Steinmann P., Froidevaux, P. Chemosphere 66, 1571-1579 (2007)
- [4] Aarkrog A., Boelskifte S., Dahlgaard H., Duniec S., Holm E., Smith J. Journal Radioanal. Nucl. Chem.: 115: 39-50 (1987)
- [5] Livingstone H., Bowen V. In: Hardy E. (ed.) Health and Safety Laboratory Environmental Quarterly. HASL-315. Springfield, Virginia, National Technical Information Service (1977)
- [6] Corcho Alvarado J.A., Froidevaux P., Luisier F., Barraud F., Dlala J., Savary A., Bochud F. Rapport OFSP (2009).

