

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: - (2016)

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: 02.02.2025

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

Chapitre / Kapitel 7

**Messung von
Spezialnukliden**

**Mesures de
nucléides spéciaux**

7.1

Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37

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

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

S. Szidat

Departement für Chemie und Biochemie, Universität Bern, Freiestrasse 3, 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 Gehalts an Kohlenstoff-14 (^{14}C) im 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 2016 weitergeführt. Als Referenzwert diente hierbei der ^{14}C -Gehalt von Laubbäumen an drei Standorten ohne lokale ^{14}C -Quellen und -Verdünnungen, an denen im Jahresverlauf je drei Messungen (im Mai, Juli und Oktober 2016) durchgeführt wurden. Aus diesen neun Messungen resultierte für 2016 der $\Delta^{14}\text{C}$ -Referenzwert $16 \pm 3\text{‰}$.

Die 100 auf ^{14}C untersuchten Standorte unterscheiden sich um -27‰ (L-126, Lausanne Ermitage) bis maximal $+134\text{‰}$ (Kernkraftwerk Leibstadt, Fullerfeld) von diesem Referenzwert. In der Stadt Basel lagen die Höchstwerte bei 1‰ (E-34, Solitude) bzw. 2‰ (W-06, Voltaplatz). Dies höchsten Werte bei den Kernkraftwerken entsprechen einer zusätzlichen Strahlendosis für die Bevölkerung von nicht mehr als $2 \mu\text{Sv}$ ($1 \mu\text{Sv} = 10^{-6}$ Sievert) in einem Jahr. Im Vergleich zur natürlichen Strahlenbelastung von ca. $3'000 \mu\text{Sv/a}$ fallen die gemessenen geringfügigen Erhöhungen im Berichtsjahr kaum ins Gewicht.

Die beiden Edelgas-Radionuklide Krypton-85 (^{85}Kr) und Argon-37 (^{37}Ar) 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 (¹⁴C)

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

Referenzwert

Zwischen 1955 und 1966 wurden im Rahmen von Nuklearwaffentests grosse Mengen an ¹⁴CO₂ in der Atmosphäre freigesetzt (so genannter Bomben-Peak). Zwar nimmt seitdem der ¹⁴C-Gehalt von atmosphärischem CO₂ durch Aufnahme von ¹⁴CO₂ durch die Ozeane und Verbrennung fossiler, d. h. ¹⁴C-freier, Brennstoffe weltweit wieder ab, doch liegt dieser Gehalt gegenwärtig immer noch über dem als Basis für die Radiocarbonatierung definierten Standardwert für das Jahr 1950:

$$^{14}A_0 = (13.56 \pm 0.07) \text{ dpm/gC} = (0.226 \pm 0.001) \text{ Bq/gC} \quad (1)$$

Auf lokaler Ebene lässt sich eine als «Süss»- oder «Industrie»-Effekt bekannte Verdünnung des atmosphärischen ¹⁴CO₂ nachweisen. Der von terrestrischen Pflanzen durch Assimilation aufgenommene Kohlenstoff widerspiegelt in seinem ¹⁴C-Gehalt im Wesentlichen den zeitlichen Verlauf der atmosphärischen ¹⁴CO₂-Konzentration.

Radiocarbon-Quellen und -Verdünnungen (KKW, KVA, Industrie, Autobahnen) können den ¹⁴C-Gehalt bei Knospen und Laub von Bäumen, die in deren Umgebung wachsen, insbesondere während der Blattwuchsphase beeinflussen. Laub und Knospen eignen sich somit als ¹⁴C-Monitor.

Die für diesen Bericht gemessenen ¹⁴C-Werte werden mit dem Radiocarbonstandard ¹⁴A₀ verglichen:

$$\Delta^{14}C_{\text{Probe}} = (^{14}A_{\text{Probe}} / ^{14}A_0 - 1) \cdot 1'000 \text{ [‰]} \quad (2)$$

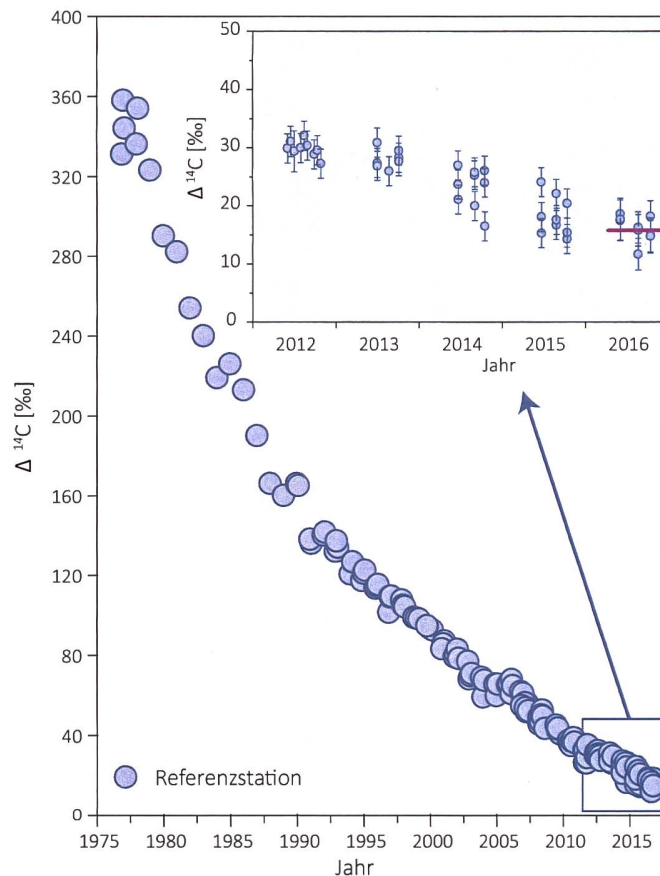
Sinnvoll ist auch ein Vergleich mit ¹⁴C-Werten von Laub, welches von Bäumen ohne lokale ¹⁴C-Quellen oder -Verdünnungen stammt. Zu diesem Zweck wurden an drei ländlichen Standorten Buchen- und Lindenblätter gesammelt. Ihr ¹⁴C-Gehalt wurde bestimmt und nach (2) mit ¹⁴A₀ verglichen (Figur 1). Aus den resultierenden $\Delta^{14}C$ -Werten wurde für die Zeit der Hauptprobenahmen 2016 ein Referenzwert für Laub in ungestörter Umgebung definiert. Als Basis hierzu dienten die Ende Mai sowie im August und Oktober gesammelten Blätter.

$$\Delta^{14}C_{\text{Ref, 2016}} = 16 \pm 3 \text{ [‰]} \quad (3)$$

Tabelle 1:

Messwerte 2016 und Koordinaten der Referenzstationen.

Ort	$\Delta^{14}C$ [‰]			Koordinaten	[m.ü.M.]	Baumart/Standort
	Juni	Aug.	Okt.			
Taanwald	24	17	14	601320 / 186150	938	Rotbuchen im Wald (Blätter)
Belpberg	15	18	15	606050 / 190800	825	Rotbuchen auf Krete (Blätter)
Ballenbühl	18	22	20	612550 / 192800	852	2 Linden freistehend (Blätter)



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

Die Differenz

$$\text{Netto } \Delta^{14}\text{C} = \Delta^{14}\text{C}_{\text{Probe}} - \Delta^{14}\text{C}_{\text{Ref, 2016}} \quad (4)$$

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 kommen zwei unterschiedliche Methoden zur Anwendung:

- Methode A: ^{14}C -Bestimmung nur in der Blattkohle¹
- Methode B: ^{14}C -Bestimmung im ganzen Blatt

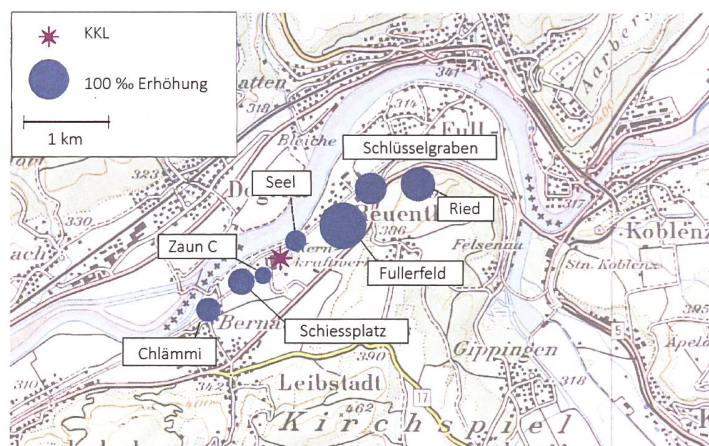
An den Referenzstationen ergaben Messungen an der Blattkohle (Methode A) im Vergleich zu Messungen am ganzen Blatt (Methode B) Unterschiede von weniger als 4%. An belasteten Standorten können die Unterschiede zwischen den Resultaten der nach den Methoden A und B aufbereiteten Proben jedoch grösser sein.

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 in den Vorjahren deutlich höhere Werte zeigten bzw. bei denen ein erhöhtes Interesse am Fortführen der bestehenden Zeitreihen besteht.

Der ^{14}C -Gehalt von Blättern der Referenzstationen ist im Jahr 2016 gegenüber dem Vorjahr erneut abgefallen, nachdem er in den Jahren 2011 bis 2013 relativ konstant geblieben war. Mit $16 \pm 3\%$ liegt der Referenzwert für das Jahr 2016 um 2% unter dem Wert des Vorjahres.

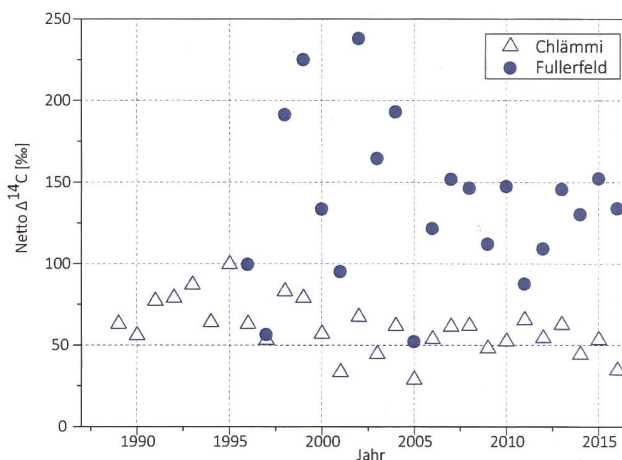
^{14}C im Umfeld der Schweizer Kernkraftwerke

Gemäss Jahresrückblick des Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorats ENSI [1] kam es 2016 in der Schweiz zu keinen Reaktorschnellabschaltungen. Das Jahr war aber geprägt von den langen Unverfügbarkeiten zweier Kernkraftwerke: Beznau 1 war aufgrund von lang anhaltenden Sicherheitsüberprüfungen das ganze Jahr über nicht am Netz, und am Kernkraftwerk Leibstadt wurden gemäss einer Medienmitteilung der Kernkraftwerk Leibstadt AG [2] während der Hauptrevision Oxidationserscheinungen an Hüllrohren von Brennelementen festgestellt, sodass der Reaktor im Anschluss an die Revision mehrere Monate lang abgeschaltet blieb und erst im Februar 2017 wieder ans Netz ging.



Figur 2:

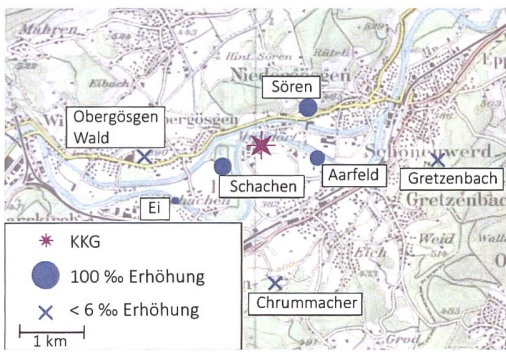
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Leibstadt (KKL) im Jahr 2016. Revisionsabschaltung: 02.08.2016 bis 27.09.2016 (Abschaltung verlängert bis 18.02.2017). Probenahme: 18.08.2016. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



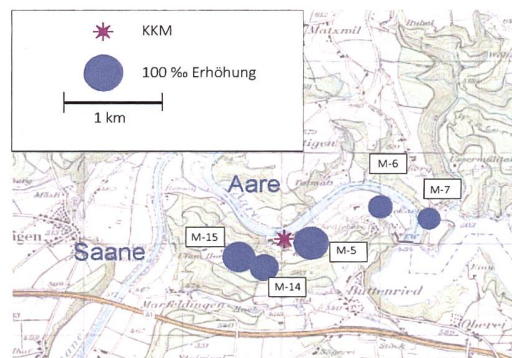
Figur 3:

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

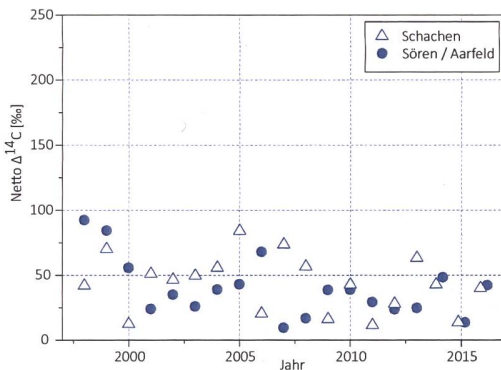
¹ Die Probe wird im Stickstoffstrom pyrolysiert. Dabei verflüchtigen sich gewisse Kohlenstoffverbindungen, die somit für die Analyse ihres ^{14}C -Gehaltes verloren sind.



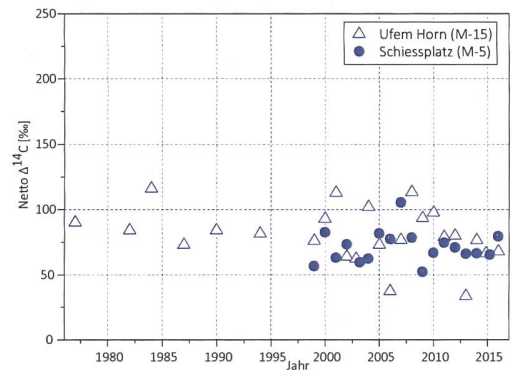
Figur 4:
Örtliche Verteilung der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Druckwasserreaktors Gösgen (KKG). Revisionsabschaltung: 04.06.2016 bis 23.06.2016. Probenahme: 22.06.2016. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.



Figur 6:
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Siedewasserreaktors Mühleberg (KKM) im Jahr 2016. Revisionsabschaltung: 14.08.2016 bis 08.09.2016. Probenahme: 14.09.2016. Die Kreisflächen sind proportional zur Erhöhung gegenüber den unbelasteten Referenzstationen.

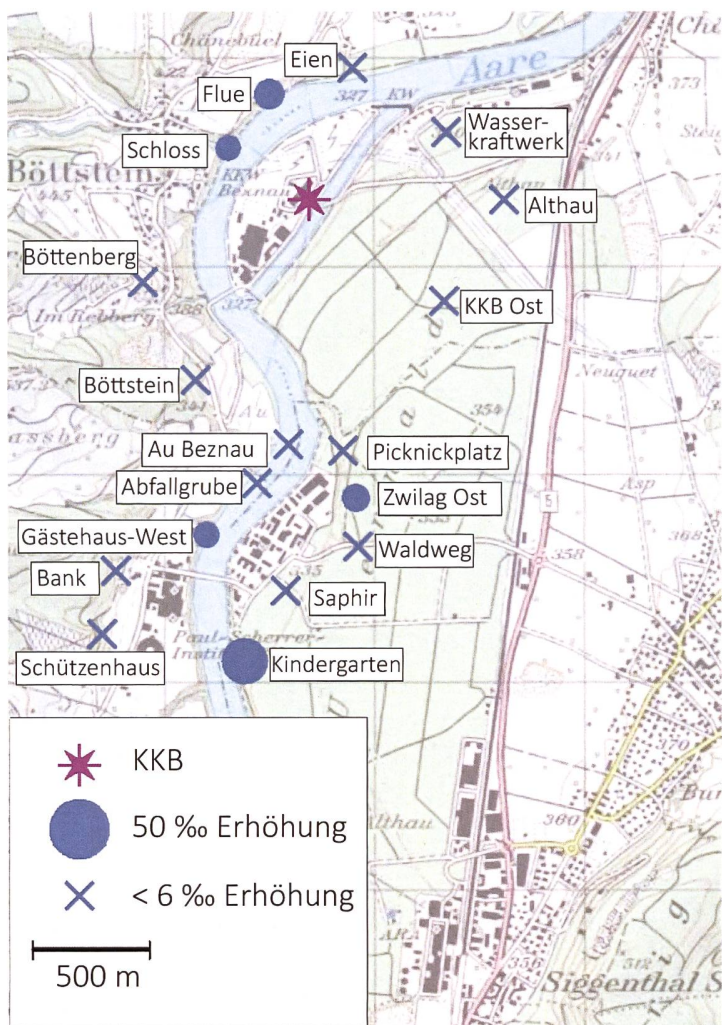


Figur 5:
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte (●) und westlich (△) des Kernkraftwerkes Gösgen. Standorte: siehe Figur 4.

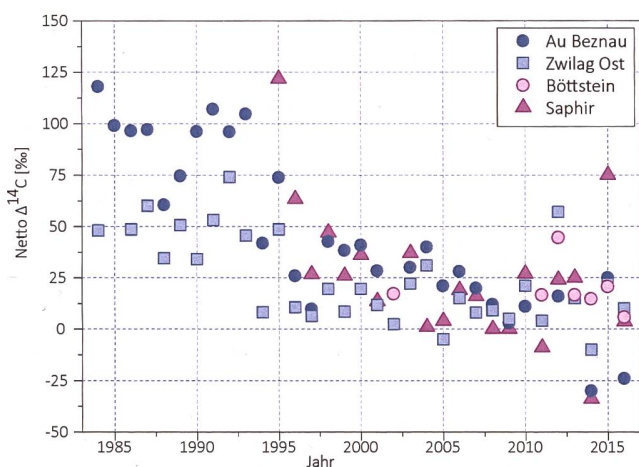


Figur 7:
Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte östlich (●) und westlich (△) des Kernkraftwerkes Mühleberg seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 6.

Die Probenahmen im Umfeld der Kernkraftwerke erfolgten im Allgemeinen während oder nach der Jahresrevision der entsprechenden Kernkraftwerke, um auch mögliche ^{14}C -Abgaben der Kernkraftwerke während des Revisionsstillstands erfassen zu können.



Figur 8: Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte in der Umgebung des Paul Scherrer Instituts (PSI), des Zentralen Zwischenlagers Würenlingen (ZWILAG) und des Kernkraftwerkes Beznau (KKB) im Jahr 2016 (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 Kernkraftwerkes Beznau seit Messbeginn. Standorte: siehe Figur 8.

Kernkraftwerk Leibstadt

Im Sommer 2016 wurden beim Kernkraftwerk Leibstadt (KKL) Blätter an verschiedenen Standorten in beiden Hauptwindrichtungen gesammelt und auf ihren ^{14}C -Gehalt hin untersucht. Damit wurden die z. T. seit 1984 geführten Zeitreihen fortgesetzt. Die höchste ^{14}C -Konzentration ergab sich wiederum in ca. 1'000 m Distanz vom KKL in nordöstlicher Richtung am Standort Fullerfeld (Figur 2). In südwestlicher Richtung wies der Standort Schiessplatz die höchsten Werte auf.

Figur 3 zeigt die gemessenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte der Standorte Fullerfeld und Chlämli seit Messbeginn. Es sind dies die beiden Standorte mit den traditionell höchsten Werten in der jeweiligen Windrichtung. 2016 lag der höchste Messwert bei 134‰ (Fullerfeld). Der grösste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert seit Messbeginn beträgt 238‰ (2002), ebenfalls am Standort Fullerfeld. In südwestlicher Richtung wurde 2016 am Standort Schiessplatz ein geringfügig höherer Wert gemessen als am Standort Chlämli.

Kernkraftwerk Gösgen

In Figur 4 sind die Resultate der am 22. Juni 2016 gesammelten Blattproben in der Umgebung des Kernkraftwerkes Gösgen (KKG) dargestellt. Sämtliche Messwerte liegen nahe bei den langjährigen Mittelwerten bzw. darunter. Die höchsten ^{14}C -Messwerte resultierten in diesem Jahr mit einer Erhöhung von je ca. 40‰ an den Standorten Sören und Schachen. Der Standort Chrummacher (408 m.ü.M.) befindet sich quer zu den topographisch bedingten Hauptwindrichtungen. Der Messwert dieses Standorts ist praktisch identisch mit den Werten von unbelasteten Referenzstandorten. Dasselbe gilt im Jahr 2016 auch für die an einem Waldrand gelegenen Standorte Gretzenbach und Obergösgen Wald.

In 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 derselben Windrichtung.

Kernkraftwerk Mühleberg

Figur 6 zeigt die Verteilung der Messwerte um das Kernkraftwerk Mühleberg (KKM). Die grössten Erhöhungen wurden am Standort M-15 (Ufem Horn) mit 68‰ sowie am Standort M-5 (Schiessplatz) mit 79‰ gemessen. Die Probenahme erfolgte am 14. September 2016, d. h. eine Woche nach dem Hochfahren des Kraftwerkes im Anschluss an die jährliche Revision.

Die 2016 gemessenen Proben liegen unter den seit Messbeginn im Jahr 1977 registrierten Höchstwerten. Der mit 116‰ höchste Wert stammt aus dem Jahr 1984.

In Figur 7 sind die seit Messbeginn jährlich gemessenen höchsten Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte aufgeführt. Die Messwerte aus dem Jahr 2016 liegen in der Bandbreite des langjährigen Mittels.

Paul Scherrer Institut, Zentrales Zwischenlage 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 6‰.

Das Kernkraftwerk Beznau (KKB) war 2016 nur mit reduzierter Leistung im Einsatz: Block 1 war das ganze Jahr über ausser Betrieb, Block 2 war vom 07.08.2016 bis zum 17.08.2016 für Revisionszwecke heruntergefahren. Dies spiegelt sich in den relativ geringen Erhöhungen der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Höchstwerte im Umfeld des KKB wider. Die höchsten Werte wurden am Ufer der Aare gegenüber dem KKB-Gelände gemessen. Der höchste Messwert aus dem Umfeld des Paul Scherrer Instituts (PSI) stammt vom Süden des Areals (Standort Kindergarten).

In Figur 9 sind Zeitreihen der Standorte aufgeführt, für die historisch gesehen die höchsten Messwerte ermittelt wurden. Alle hier dargestellten Messungen ausser dem Standort Böttstein (Symbol \circ) erfolgten durch das PSI.

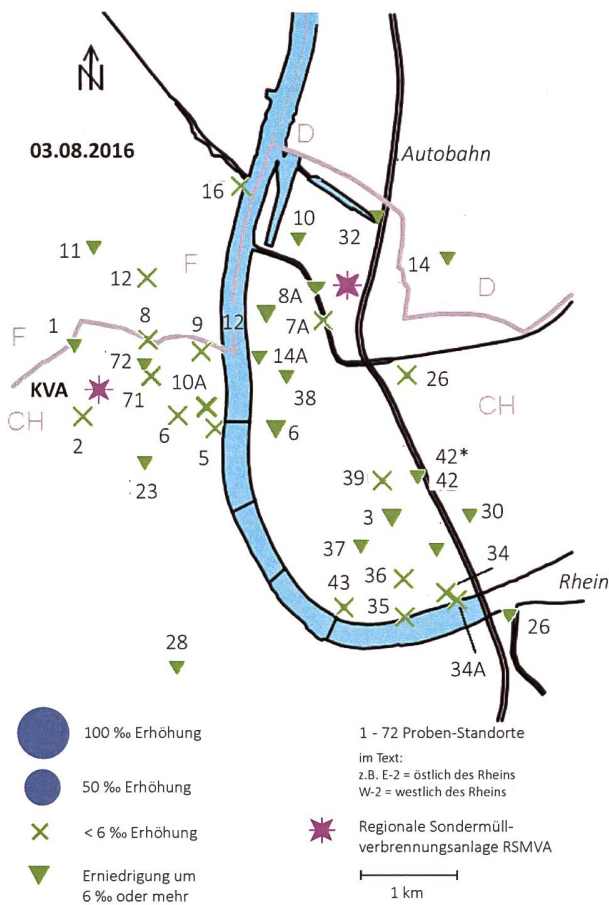


Figur 10:
 $\Delta^{14}\text{C}$ -Messungen in der Umgebung der KVA Lausanne, Zürich, Bern und Thun.

Kehrichtverbrennungsanlagen

In Blättern von Bäumen, die im Umfeld von Kehrichtverbrennungsanlagen (KVA) gesammelt wurden, konnte an keinem Standort eine erhöhte ^{14}C -Konzentration festgestellt werden. Sämtliche Messpunkte wiesen Werte $\leq 16\text{‰}$ auf. Dies als Folge der Abgase aus fossilen Brenn- und Treibstoffen, welche von den Bäumen im Stadtgebiet aufgenommen werden.

In Figur 10 sind die Messwerte als Kreise dargestellt. Die weisse Kreisfläche entspricht jeweils der Absenkung gegenüber den Referenzstationen (siehe «Süss»-Effekt, Seite 105). Diese Absenkung ist vor allem im Zentrum von Lausanne (an den Standorten L-2 und L-126) sowie im Stadtgebiet von Zürich (an



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

Tabelle 2:

Im Jahre 2016 gemessene höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Messwerte von Blättern im Vergleich mit Messungen früherer Jahre (1994 bis 2015) am Standort Basel östlich (E-nn) und westlich (W-nn) 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	
	2016 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	1994-2015 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2016 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]	2004 - 2015 Höchster Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert [‰]
E-03	-9	197 (2006)	-	23 (2007)
E-26	-1	169 (1996)	-	-
E-34	0	106 (1998)	1	173 (2004)
E-42	-23	4 (2003)	-	-
E-42*	-8	218 (2006)	-	-
W-06	2	438 (1994)	-1	172 (2008)
W-10A	-6	259 (1997)	-7	308 (2005)
W-28	-8	-6 (2007)	-11	-13 (2013)
W-71	-11	227 (2008)	-14	75 (2009)
W-72	-22	107 (2008)	-12	115 (2010)

den Standorten Z-2, Z-3 und Z-4) stark ausgeprägt und beträgt zum Teil mehr als 16‰. Dies bedeutet, dass die ^{14}C -Konzentration in diesen städtischen Umgebungen wieder auf ähnliche Werte wie vor dem so genannten Bomben-Peak abgefallen ist. An verkehrssarmen Standorten wie den am Waldrand gelegenen Probenahmeorten L-110 oder Z-5 bzw. im Zentrum des Berner Bremgartenfriedhofs (B-3) oder am Thuner Kasernenareal (T-2) ist die Absenkung deutlich schwächer ausgeprägt.

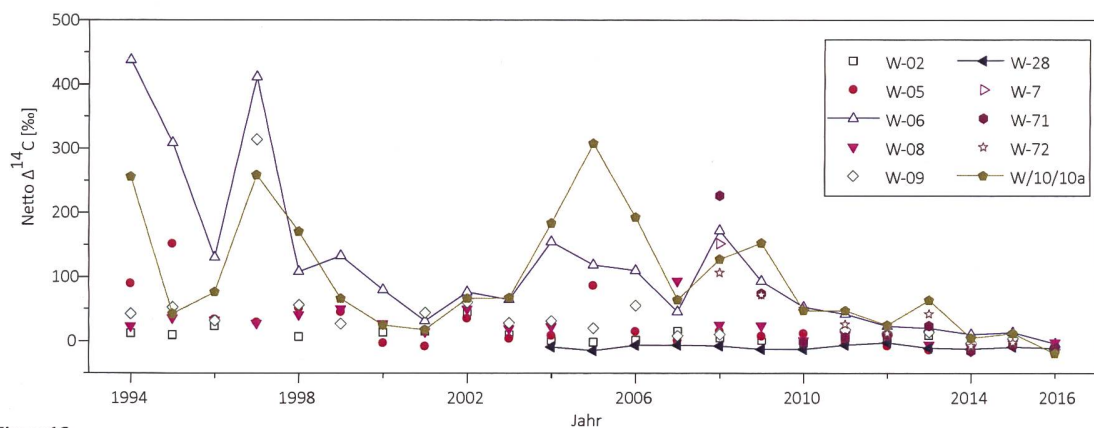
Messungen in der Region Basel-Stadt

Auch im Jahr 2016 fand die Hauptprobenahme in Basel im August statt. Im Westen des Stadtgebiets befinden sich die Standorte im und um das Novartis-Werk St. Johann, im Osten diejenigen um das Areal der Firma F. Hoffmann-La Roche, ganz im Norden diejenigen um das Areal der regionalen Sondermüllverbrennungsanlage (RSMVA). Die höchsten am 03.08.2016 gemessenen Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte betragen westlich des Rheins +2‰ (Voltaplatz, Standort W-06) und östlich +1‰ (Solitude, Standort E-34). Allfällige Erhöhungen der $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration werden also durch den «Süss»-Effekt in den meisten Fällen mehr als kompensiert, sodass an praktisch allen Standorten eine Verdünnung der $^{14}\text{CO}_2$ -Konzentration relativ zu den unbelasteten Referenzstationen festgestellt wurde.

Auch im französischen und deutschen Grenzgebiet nördlich des Novartis-Werks St. Johann bzw. östlich der RSMVA wurden keine Erhöhungen registriert. An 26 Standorten wurden aufgrund des «Süss»-Effekts Erniedrigungen um 6‰ oder mehr ermittelt (Figur 11, Symbol ▼).

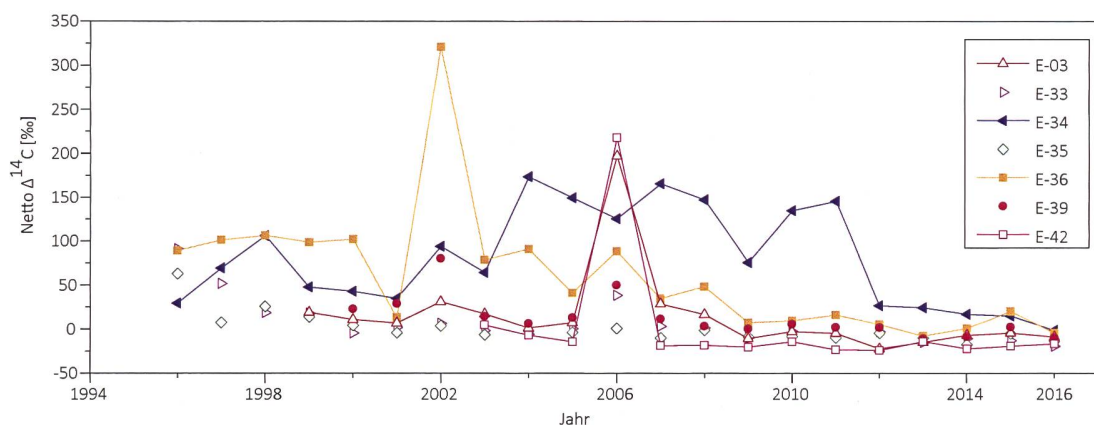
Im Juni, August und Oktober wurden an einigen Standorten sowohl in der Blattkohle als auch an unverkohlten, ganzen Blättern Messungen durchgeführt (siehe Tab. 2). Kohlenwasserstoffe, die sich bei der Blattverkohlungs möglicherweise verflüchtigen würden, werden bei der Messung von ganzen Blättern vollständig miterfasst. Da die Messung an ganzen Blättern jedoch zeitaufwändiger ist, wird sie nur dort angewendet, wo in der Vergangenheit Höchstwerte aufgetreten sind oder Interesse an der Fortsetzung der bisherigen Zeitreihen besteht.

Die Figuren 12 und 13 zeigen die Messergebnisse seit Messbeginn an ausgewählten Standorten. Die Netto-Messwerte haben sich auf einem sehr niedrigen Niveau stabilisiert. Westlich des



Figur 12:

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



Figur 13:

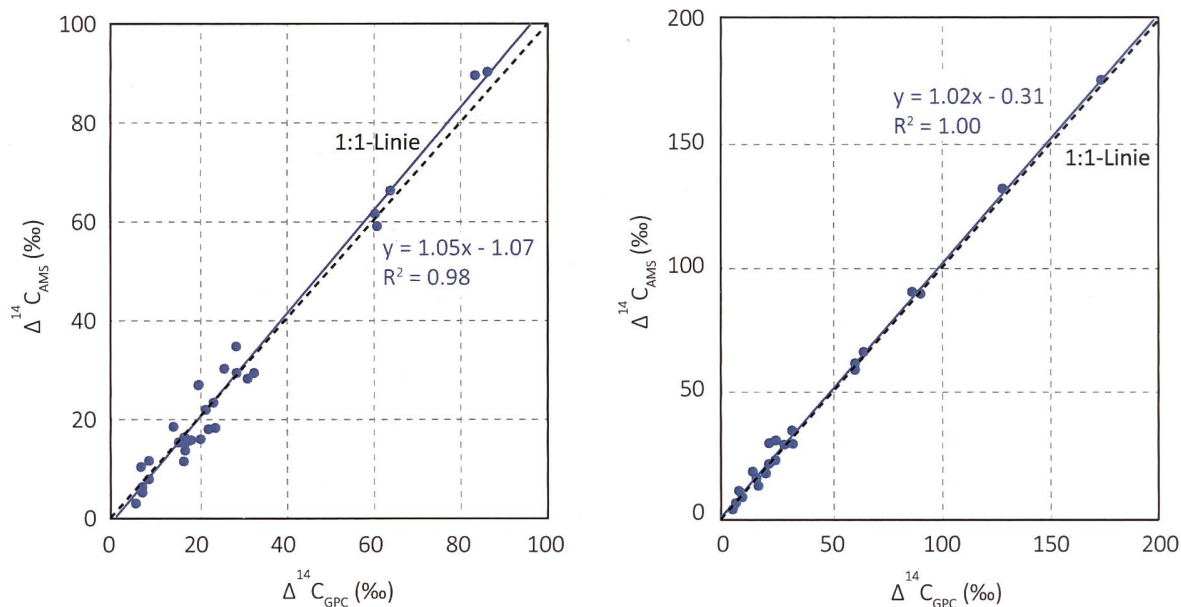
Zeitreihe der Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Werte östlich des Rheins. Liegen von einem Standort mehrere Messungen vor, so ist der höchste Netto $\Delta^{14}\text{C}$ -Wert eingetragen.

Rheins wurden die historischen Netto-Höchstwerte (Standorte W-06 und W-10) bereits seit einigen Jahren nicht mehr erreicht. Dasselbe gilt für die Standorte E-34 und E-36 östlich des Rheins: hier wurde der 2002 gemessene Höchstwert von 320‰ (E-36) in den letzten Jahren jeweils deutlich unterschritten.

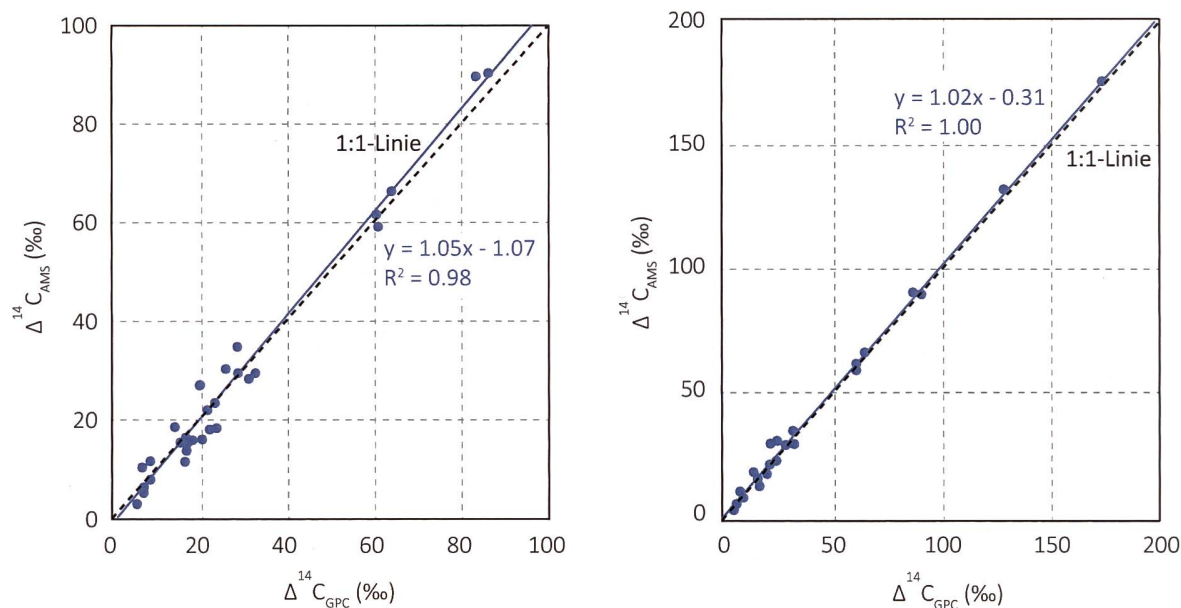
Vergleichsmessungen im Jahr 2016

Die ^{14}C -Vergleichsmessungen ausgewählter Laubproben zwischen dem ^{14}C -Labor am Physikalischen Institut der Universität Bern (GPC: gas proportional counting) und dem Labor zur Analyse von Radiokohlenstoff mit AMS, LARA (AMS: accelerator mass spectrometry) am Departement für Chemie und Biochemie der Universität Bern wurden 2016 fortgesetzt. In einem ersten Schritt wurden Nachmessungen an vier Proben aus dem Jahr 2015 durchgeführt, bei denen es im Vorjahr zu den grössten Differenzen der Messergebnisse gekommen war (>5‰). Hierbei wurden die Ursachen dieser Differenzen, die in beiden Labors identifiziert werden konnten, grösstenteils eliminiert (siehe Figur 14).

Im Jahr 2016 wurden Laubproben an denselben Probenahmepunkten entnommen wie im Vorjahr und erneut von beiden ^{14}C -Labors gemessen. Die mittlere Abweichung der $\Delta^{14}\text{C}$ -Messergebnisse liegt mit 0.7‰ innerhalb der Messunsicherheiten beider Verfahren von ca. 2.5 ‰. Wiederholungsmessungen wurden an fünf Proben durchgeführt, bei denen die höchsten Abweichungen (≥ 4.2 ‰) der Messergebnisse aufgetreten sind (siehe Figur 15).



Figur 14: Erstmessungen (links) vs. Wiederholungsmessungen (rechts) durch die beiden ^{14}C -Labore der Universität Bern an Proben aus dem Jahr 2015. Erstmessungen: 30 Proben. Wiederholungsmessungen: zwei zusätzliche Proben mit relativ hohen Messwerten (bitte Skalierungsänderung beachten).



Figur 15: Erstmessungen (links) vs. Wiederholungsmessungen (rechts) durch die beiden ^{14}C -Labore der Universität Bern an 32 Proben aus dem Jahr 2016.

Argon-37 (^{37}Ar) und Krypton-85 (^{85}Kr)

Die beiden Edelgas-Radionuklide ^{85}Kr und ^{37}Ar werden in der Atmosphäre auf natürliche Weise nur in sehr geringen Mengen produziert. ^{85}Kr , freigesetzt bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstäben, konnte sich wegen der vergleichsweise langen Halbwertszeit von 10.76 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.

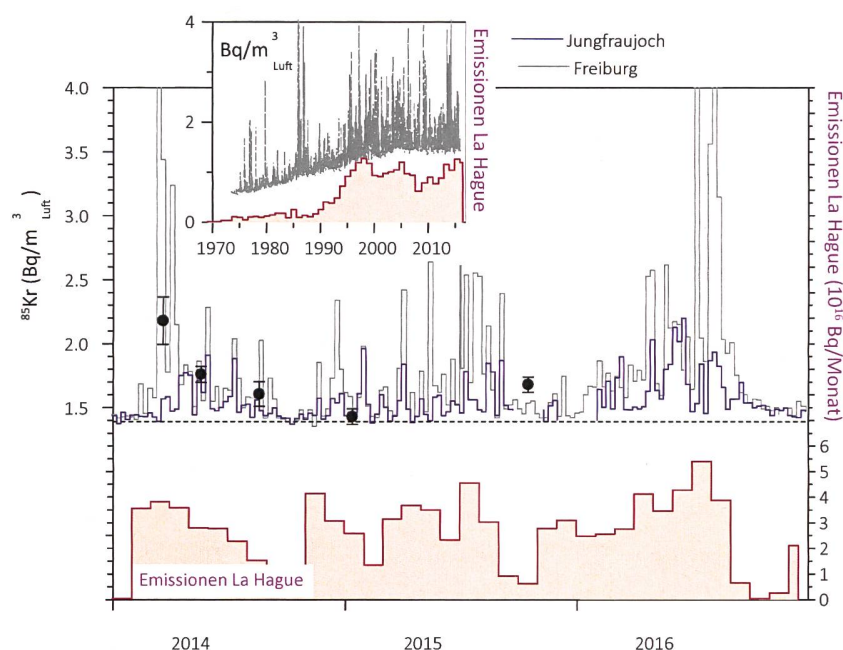
Krypton-85 (^{85}Kr)

Das radioaktive Edelgasisotop ^{85}Kr ist ein Beta-Strahler mit einer Halbwertszeit von 10.76 ± 0.02 Jahren. Natürliches atmosphärisches ^{85}Kr hat seinen Ursprung in dem Einfang kosmischer Neutronen durch ^{84}Kr in der Atmosphäre und durch die Spaltung von Uran und anderen Aktiniden in der Lithosphäre. Die beiden Prozesse führen zu einem natürlichen atmosphärischen ^{85}Kr -Inventar von etwa $9 \cdot 10^{11}$ Bq oder einer spezifischen Aktivitätskonzentration von ca. $0.2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$. 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 16). Durch radioaktiven Zerfall nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6.2% ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von ^{85}Kr übertroffen, was zu einem Anstieg der atmosphärischen Basisaktivitätskonzentration führte (Figur 16, kleines Bild). In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von $1.4 - 1.5 \text{ Bq}/\text{m}^3_{\text{Luft}}$ in Mitteleuropa zu beobachten.

In der Schweiz wird ^{85}Kr an kumulativen Wochenproben gemessen, die auf dem Jungfrau-joch (JFJ) gesammelt und im Edelgaslabor des BfS in Freiburg analysiert werden (Fig. 16). Zum Vergleich sind auch die entsprechenden Werte von Freiburg im

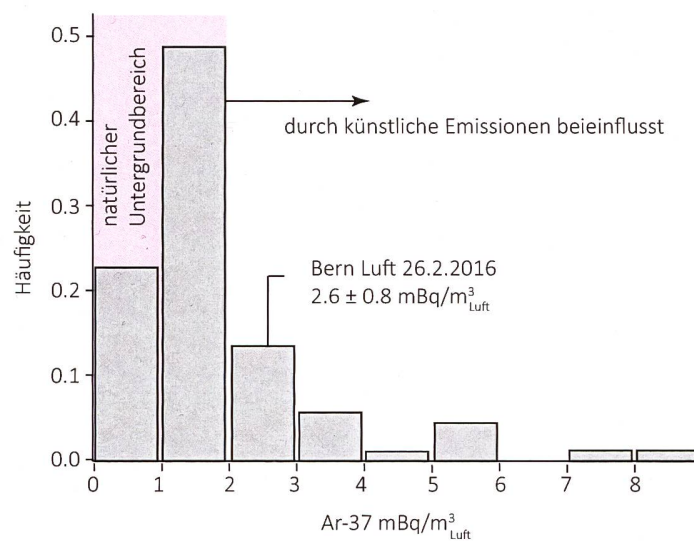
Breisgau dargestellt. Die Zeitperioden von gehäuften Aktivitätsspitzen, die den Basiswert bei der Station Freiburg um bis zu einem Faktor 3 übersteigen, stimmen bei beiden Stationen überein mit Zeiten erhöhter Emissionsraten von La Hague [3]. Wegen der erhöhten Lage der Station JFJ wird diese Station aber weniger von bodennahen Emissionen beeinflusst und weist Aktivitätsspitzen geringerer Amplitude auf. Im Herbst 2016 war die Aufarbeitungsaktivität von La Hague besonders hoch, was sich sehr deutlich an den Messwerten von Freiburg aber auch vom JFJ widerspiegelt. Nach dem Emissionsstopp konvergierten die Messwerte wieder gegen den Basiswert. Die durch den ^{85}Kr -Untergrundpegel verursachte jährliche effektive Dosis beträgt ca. $11 \text{ nSv}/\text{Jahr}$ ($8 \cdot 10^{-9} \text{ Sv}/\text{Bq m}^{-3} \text{ Jahr}$ [4]) und ist damit gering in Relation zur Strahlenbelastung von etwa 3.2 mSv , welche durch natürlich vorkommendes Radon verursacht wird.

Stichproben, genommen in wenigen Minuten und gemessen am Physikalischen Institut der Universität Bern, bestätigen den Aktivitätsbereich, der in Freiburg oder auf dem Jungfrau-joch beobachtet wird. Die Streuung kommt durch die geografische Distanz, aber vor allem durch den kürzeren Sammelzeitraum zustande.



Figur 16:

Atmosphärische ^{85}Kr -Aktivitätskonzentrationen der Stationen Jungfrau-joch (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: Aktivitätskonzentration an der Station Freiburg i. Br. über die letzten 39 Jahre; die Messungen der Proben aus Freiburg und vom Jungfrau-joch 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).



Figur 17:

Atmosphärische ³⁷Ar-Aktivitätskonzentrationen gemessen an 67 Luftproben, die über die letzten 6 Jahre in Bern gesammelt wurden. Werte über 2 mBq/m³ Luft sind geringfügig durch anthropogene Quellen beeinflusst. Die im Jahr 2016 gemessene Probe liegt innerhalb der Unsicherheit im Bereich des natürlichen Untergrunds.

Argon-37 (³⁷Ar)

³⁷Ar 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 mBq/m³ Luft, in guter Übereinstimmung mit den über die letzten 6 Jahre am häufigsten gemessenen Werten (Fig 17). Diese Messungen wurden an Luftproben aus Bern durchgeführt. Der am 26.2.2016 gemessene Wert von 2.6 ± 0.8 mBq/m³ Luft liegt innerhalb der Unsicherheit im Bereich des natürlichen Untergrunds. Gelegentlich beobachtete Werte im Bereich 2 - 10 mBq/m³ Luft sind möglicherweise durch Emissionen vom Kraftwerk Mühleberg oder vom Zyklotron-Teilchenbeschleuniger am Berner Inselspital beeinflusst. Im Vergleich zu ⁸⁵Kr sind diese Aktivitätskonzentrationen nochmals um einen Faktor 1'000 geringer und führen deshalb zu keiner zusätzlichen Strahlenbelastung.

Referenzen

- 1) <https://www.ensi.ch/de/2017/01/10/rueckblick-auf-2016-tiefere-kkw-verfuegbarkeit-hat-sicherheit-nicht-beeintraechtigt>, besucht am 15. Februar 2017
- 2) <https://www.kkl.ch/unternehmen/medien/medienmitteilungen/aktuelle-medienmitteilungen/rueckblick-auf-das-betriebsjahr-2016.html>, besucht am 15. Februar 2017
- 3) <http://www.aveva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-aveva-la-hague-plant.htm>, besucht am 15. März 2017
- 4) ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.). Table C.1., p. 61

7.2

Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

P. Froidevaux, P.-A. Pittet, F. Barraud, F. Bochud

Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, 1007 Lausanne

Résumé

Nous avons mesuré le Pu et l'Am dans des échantillons de sol, de sédiments, de filtres à air, de poissons, de plantes aquatiques, d'eau de pluie et d'eau de rivière. Les résultats sont compatibles avec une contamination provenant essentiellement des retombées des essais nucléaires des années soixante. Ce dépôt est bien fixé dans le sol, comme en attestent les mesures des filtres à air et des eaux de pluie, qui montrent des activités très faibles ou inférieures à la limite de détection. Les mesures des plantes aquatiques et des poissons prélevés dans les rivières en aval des centrales nucléaires montrent que l'activité présente dans les plantes est probablement liée au dépôt de carbonate de Ca ou de particules de sédiments enrichis en Pu sur les feuilles. Les poissons ne présentent pas d'activité en Pu et Am mesurables au-dessus de la limite de détection, à l'exception d'un seul échantillon, où de ^{241}Am a pu être décelé (4.8 mBq/kg ms). Les activités en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépassent pas 5.3 mBq/m³, soit des valeurs très proches de celles mesurées récemment par AMS dans deux rivières du karst jurassien, non impactées par les rejets des centrales nucléaires. Dans ce rapport, nous analysons les résultats des milieux aquatiques en regard de nos travaux récents sur la biodisponibilité du plutonium dans les milieux aquatiques telle que déterminée par la technique de diffusion dans des films minces (DGT).

Introduction

Le plutonium et l'américium sont deux radioéléments artificiels dont l'origine dans l'environnement remonte aux essais d'armes nucléaires en atmosphère durant les années soixante, à différents accidents nucléaires (Windscale, Tchernobyl, Mayak) ainsi qu'à des émissions (notamment dans l'eau) autorisées.

Le plutonium possède une chimie d'oxydoréduction complexe et existe sous des formes physico-chimiques variées dans l'environnement. En conséquence, déterminer son comportement géochimique (dont sa mobilité) et sa biodisponibilité représente un véritable défi. Pu peut être présent simultanément dans ses formes réduites (+III et +IV) et oxydées (+V et +VI), bien que les formes Pu(IV) et Pu(V) soient les plus représentées. Pu(IV) est fortement hydrolysé en $\text{Pu}(\text{OH})_4$ insoluble mais peut être remobilisé lors de l'oxydation en Pu(V), une forme de Pu moins sensible à l'hydrolyse et à l'adsorption sur des particules colloïdales. Pu peut également former des complexes avec la matière organique (NOM) dissoute dans l'eau, ce qui va jouer un rôle important dans sa biodisponibilité.

Depuis 15 ans, la technique de diffusion dans des films minces (DGT) est utilisée pour mesurer la fraction libre et la fraction labile des complexes de métaux lourds avec la matière organique (NOM) dans les milieux aquatiques. Les modèles montrent que la technique DGT permet la mesure intégrée sur le temps de la fraction bio-disponible de ces cations métalliques. Le principe de la technique DGT consiste à exposer dans l'eau un système comprenant un gel-résine capable de fixer les ions métalliques qui auront pu diffuser à travers un gel de polyacrylamide (APA) contenant plus de 80% d'eau. Cet assemblage imite l'interface entre l'eau et un système vivant, comme les plantes ou des organismes simples. Nous avons récemment adapté cette technique pour la mesure de la biodisponibilité du plutonium dans les systèmes aquatiques [1-4].

L'américium possède une chimie en tout point similaire à celle des lanthanides et le meilleur analogue stable pour Am(III) est l'Eu(III). De ce point de vue Am est également facilement hydrolysable mais ne possède qu'un degré d'oxydation stable (+III). Comme les Ln(III), il forme des complexes forts avec des ligands comme EDTA ou des ligands naturels comme les acides carboxyliques ou le citrate.

Dans ce travail, nous avons déterminé l'activité en Pu et Am de différents compartiments de l'environnement tels que le sol, les sédiments de rivières, l'air, l'eau de pluie et l'eau de rivière ainsi que les plantes aquatiques et les poissons. Les sites de prélèvements sont principalement les environs des centrales nucléaires suisses, et plus particulièrement les rivières dans lesquelles sont déversés leurs effluents radioactifs liquides. La compréhension des mécanismes de mobilité et de biodisponibilité du Pu et de l'Am est donc un pré-requis indispensable à l'interprétation de ces données. Pour cela nous avons analysé les résultats de ce travail en regard des résultats obtenus récemment sur la biodisponibilité du Pu dans les systèmes aquatiques telle que mesurée par DGT à l'aide de la spectrométrie de masse par accélération (AMS) adaptée aux actinides, grâce à une collaboration fructueuse avec le laboratoire de physique des faisceaux d'ions de l'ETHZ.

Méthodes

Les méthodes d'analyses du plutonium et de l'américium dans les différents compartiments de l'environnement sont décrites en détail dans la référence [5].

Résultats et discussion

Le tableau 1 présente les résultats des mesures des sols échantillonnés sur l'ensemble du territoire suisse, avec une focalisation sur les sites aux environs des centrales nucléaires suisses. En plaine, les activités en Pu ne dépassent pas 170 mBq/kg de sol sec. La mesure du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et du rapport isotopique $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ permet de déterminer l'origine de la contamination par comparaison avec les mêmes rapports de différentes

sources potentielles. Ainsi, ces rapports sont proches de 0.03 pour $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et de 0.4 pour $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ si la contamination a pour origine les retombées des essais nucléaires. Le combustible irradié d'une centrale nucléaire montre en général des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ supérieurs à 1. Dans ce travail, la plupart des mesures de ^{238}Pu sont restées en dessous de la limite de détection, à l'exception d'un site plus contaminé par la déposition des essais d'armes atomiques des

Tableau 1:

Activités (Bq/kg de matière sèche MS) en plutonium et américium dans les échantillons de sol (0 - 5 cm) collectés sur le territoire suisse en 2016 (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg MS	^{238}Pu Bq/kg MS	^{241}Am Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}/$ $^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/$ $^{239+240}\text{Pu}$
Bezau	0.124 ± 0.013	<0.004	0.059 ± 0.007	0.47 ± 0.08	< 0.032
Cadenazzo	0.084 ± 0.008	< 0.003	0.031 ± 0.004	0.37 ± 0.06	< 0.035
CERN (Meyrin)	0.100 ± 0.009	< 0.003	0.041 ± 0.006	0.40 ± 0.07	< 0.030
Gösgen (Däniken)	0.168 ± 0.014	< 0.005	0.071 ± 0.009	0.43 ± 0.06	< 0.029
Güttingen	0.093 ± 0.009	< 0.003	0.038 ± 0.004	0.41 ± 0.06	< 0.032
Leibstadt	0.141 ± 0.011	< 0.004	0.069 ± 0.008	0.48 ± 0.08	< 0.028
Mühleberg	0.083 ± 0.011	< 0.003	0.037 ± 0.006	0.44 ± 0.06	< 0.036
Posieux	0.108 ± 0.013	< 0.003	0.047 ± 0.005	0.44 ± 0.07	< 0.027
Villigen (PSI)	0.112 ± 0.014	< 0.003	0.042 ± 0.006	0.38 ± 0.07	< 0.027
Würenlingen (ZWILAG)	0.125 ± 0.014	< 0.004	0.049 ± 0.006	0.39 ± 0.07	< 0.032
Caslano	0.071 ± 0.007	< 0.003	0.034 ± 0.004	0.47 ± 0.08	< 0.042
Stabio	0.408 ± 0.025	0.0138 ± 0.0005	0.179 ± 0.012	0.44 ± 0.04	0.034 ± 0.002
			moyenne	0.43 ± 0.03	

Tableau 2:

Activités (nBq/m³) en Pu et Am des filtres à air de grands volumes collectés d'octobre 2015 à septembre 2016 en Suisse. Les filtres hebdomadaires sont rassemblés pour former un échantillon annuel pour les mesures de plutonium et d'américium, ou dans le cas de Liebefeld, un échantillon semestriel (incertitudes à 95%).

Lieu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu nBq/m ³	²³⁸ Pu nBq/m ³	²⁴¹ Am nBq/m ³	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Leibstadt	0.39 ± 0.16	< 0.05	0.23 ± 0.10	0.59 ± 0.34	< LD
Mühleberg	0.54 ± 0.20	< 0.05	0.20 ± 0.06	0.37 ± 0.14	< LD
Klingnau	0.47 ± 0.09	< 0.05	0.41 ± 0.07	0.88 ± 0.23	< LD
Posieux	1.35 ± 0.15	< 0.05	0.67 ± 0.02	0.50 ± 0.06	< LD
Liebefeld (semestre 1)	1.03 ± 0.22	< 0.05	0.41 ± 0.09	0.40 ± 0.12	< LD
Liebefeld (semestre 2)	0.83 ± 0.12	< 0.05	0.36 ± 0.07	0.43 ± 0.10	< LD
			moyenne	0.53 ± 0.17	

années soixante (Stabio). En conséquence, pour les mesures à venir, nous allons doubler la quantité de l'aliquote de l'échantillon, afin de pouvoir quantifier l'activité en ²³⁸Pu, dont le rapport avec les isotopes ²³⁹⁺²⁴⁰Pu permet de déterminer l'origine de la contamination. Toutefois, la moyenne calculée en bas de tableau pour le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu montre que l'origine du Pu et Am mesurés dans ce travail est bien les retombées des essais nucléaires pour tous les sites étudiés, avec un rapport moyen de 0.43 ± 0.06 (n=12, k=2). Les activités sont inférieures à 0.5 Bq/kg pour l'ensemble des mesures avec moitié moins d'activité en ²⁴¹Am par rapport à ²³⁹⁺²⁴⁰Pu.

Les activités des filtres à air, autant aux abords des centrales nucléaires que des sites de référence (Posieux et Liebefeld), sont inférieures à 1.5 nBq/m³ pour le ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et à peine supérieures à 0.6 nBq/m³ pour ²⁴¹Am (Tableau 2). Malgré ces faibles activités, les méthodes utilisées permettent une détermination assez précise de ces valeurs (incertitudes <50%). Ce résultat est obtenu grâce à l'utilisation de collecteurs d'aérosols à haut débit par l'OFSP, avec un volume d'air d'au moins 500'000 m³/an par analyse. Malgré cela, la mesure de ²³⁸Pu est restée systématiquement au-dessous de la limite de détection car cet isotope représente à peine 3% de l'activité totale en Pu si l'origine de la contamination est uniquement les retombées des essais nucléaires des années soixante. En absence d'un rejet accidentel de radioactivité dans l'atmosphère, l'activité de l'air mesurée dans ce travail représente l'activité des particules de sol très fines remises en suspension par l'érosion et le vent et accumulées sur les filtres à air. Les activités exprimées en nBq/m³ pour le Pu et l'Am sont ainsi légèrement inférieures à celles mesurées en 2015 car l'année 2016 a été significativement plus pluvieuse que 2015, et totalement dépourvue de périodes très chaudes et sèches (à l'exception du mois de décembre 2016 qui se situe hors de la période de collecte considérée), contrairement à 2015. Ainsi, les mesures semestrielles effectuées sur le site de Liebefeld montrent des activités identiques dans les limites des incertitudes pour les deux semestres, alors que 2015 avait résulté en un doublement de l'activité pour le semestre de la saison sèche qui s'étalait de juin à novembre, par rapport au premier semestre. Le rapport moyen ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu de 0.53 ± 0.17 (n=6, k=2) indique également que la contamination est due à la resuspension de la contamination issue des essais atmosphériques d'armes atomiques réalisés durant les années soixante.

Les activités des eaux de pluie et de rivière sont présentées dans le tableau 3. En absence de rejet accidentel de radioactivité dans l'atmosphère, l'activité des eaux de pluie représente l'activité des particules de sol resuspendues dans l'air et redéposées au sol par la pluie. Comme l'année précédente, ces activités sont restées au-dessous de la limite de détection, autant pour Pu que pour Am. Par contre, les activités en Pu et Am des eaux de rivière sont parfois mesurables au-dessus de la limite de détection; ces activités sont toutefois restées au-dessous de 6 mBq/m³. De plus, l'activité du ²³⁸Pu est restée inférieure à la limite de détection dans tous les cas. Dans une rivière du plateau suisse, Pu peut être présent sous forme de complexes carbonatés et de complexes associés à la matière organique dissoute. A partir d'un pH neutre, l'hydrolyse est aussi une réaction importante, produisant Pu(OH)₄ insoluble qui s'adsorbe fortement aux colloïdes organiques ou minéraux. Dans ce travail, la fraction analysée est la fraction filtrée à 0.45 µm par une membrane de filtration lors du prélèvement. Cette fraction peut contenir des radioéléments associés à des colloïdes organiques ou minéraux ou encore des radioéléments sous forme de complexes de faible poids moléculaires. De la distribution de ces espèces dans l'eau va dépendre sa biodisponibilité pour les espèces aquatiques comme les plantes ou les poissons.

Tableau 3:

Activités (mBq/m³) en plutonium et américium des eaux collectées en Suisse en 2016 (incertitudes à 95% / LD=0.1 mBq/m³).

Type	Lieu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mBq/m ³	²³⁸ Pu mBq/m ³	²⁴¹ Am mBq/m ³	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Eau de pluie	Mühleberg	< 0.8	< 0.8	< 0.2	< LD	< LD
	Leibstadt	< 0.5	< 0.5	< 0.1	< LD	< LD
	Posieux	< 0.3	< 0.3	< 0.2	< LD	< LD
Eau de rivière	Rhône (GE)	1.8 ± 0.5	< 0.5	< 0.6	< LD	< LD
	Aar (Hagneck), juin	5.3 ± 1.9	< 3	< 6	< LD	< LD
	Aar (Klingnau), juin	< 22	< 22	p.a.	< LD	< LD
	Rhin (Pratteln), juin	4.7 ± 3.0	< 5	p.a.	< LD	< LD
Eau souterraine	Aarberg	3.0 ± 1.4	< 4	< 20	< LD	< LD
	Döttingen	< 50	< 50	5.8 ± 1.5	< LD	< LD
	Pratteln	3.9 ± 2.0	< 5	3.2 ± 1.4	0.8 ± 0.5	< LD
Eau de rivière	Venoge (réf. 4) Filtrée 0.45 µmCDGT	0.43- 3.4 1.5				
	Noiraigue (réf. 4) Filtrée 0.45 µmCDGT	0.39- 3.4 1.3				

p.a: problème lors de l'analyse

Tableau 4:

Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2016 en aval des centrales nucléaires suisses (incertitudes à 95%, LD= 1 mBq/kg).

Type	Lieu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mBq/kg MS	²³⁸ Pu mBq/kg MS	²⁴¹ Am mBq/kg MS	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Plantes aquatiques	Aar (Hagneck)	121 ± 45	< 4	< 36	< 0.30	< LD
	Aar (Klingnau)	84 ± 25	< 3	< 26	< 0.31	< LD
	Rhin (Pratteln)	95 ± 35	< 3	< 38	< 0.4	< LD
Sédiments	Aar (Hagneck), juin	22.4 ± 6.1	< 1	9.6 ± 3.2	0.43 ± 0.18	< LD
	Aar (Klingnau), juin	57.0 ± 10.6	< 1	24.5 ± 5.4	0.43 ± 0.12	< LD
	Rhin (Pratteln), juin	29.8 ± 8.2	< 1	12.9 ± 2.9	0.43 ± 0.15	< LD
Poissons	Rhin (Dogern)	< 2	< 2	< 2	< LD	< LD
	Aar (Döttingen)	< 8	< 8	< 4	< LD	< LD
	Rhin (Leibstadt)	< 3	< 3	< 2	< LD	< LD
	Aar (Beznau)	< 10	< 10	4.8 ± 0.1	< LD	< LD
	Aar (Mühleberg)	< 10	< 10	< 4	< LD	< LD

Dans une étude récente des rivières du karst jurassien [3-4], nous avons montré que la concentration en plutonium mesurée par DGT(CDGT) était équivalente à la concentration en plutonium mesurée dans des échantillons filtrés à 0.45 µm dans la source minérale de la Venoge, indiquant que le plutonium était sous une forme libre ou très labile dans cet environnement. Ces mesures, réalisées par spectrométrie de masse par accélération (AMS) à l'ETHZ, ont données des valeurs entre 0.43 et 3.4 mBq/m³ dans les échantillons filtrés à 0.45 µm, pour une moyenne à 1.35 mBq/m³ (n = 10). Ces activités dépendaient fortement du régime de la rivière. La concentration moyenne intégrée mesurée par DGT était de 1.5 mBq/m³ (n = 8). CDGT représente donc une valeur moyenne plus réaliste que les valeurs mesurées ponctuellement, grâce à l'effet intégratif du prélèvement DGT (entre deux et trois semaines). Les mesures effectuées dans la fraction filtrée à 0.45 µm des eaux de la Noiraigue, qui contiennent jusqu'à 20 ppm de matière organique dissoute, donnent des résultats entre 0.39 et 3.4 mBq/m³, pour une moyenne à 2.1 mBq/m³ (n = 4), soit des valeurs comparables à celles de la Venoge. Toutefois, les mesures DGT donnent une valeur moyenne CDGT de 1.3 mBq/l (n = 3), soit seulement 60% de la valeur moyenne des échantillons filtrés. Cette observation est à mettre en relation avec la présence

de matière organique, qui va former des complexes avec le Pu. Bien que labiles [3], ces complexes vont diffuser moins rapidement que les ions libres à travers le gel du système DGT, montrant ainsi une biodisponibilité moindre. D'une manière générale, les activités mesurées par AMS dans les eaux de la Venoge et de la Noiraigue sont très proches des activités mesurées par spectrométrie alpha dans ce travail (voir Tableau 3).

Les rivières étudiées dans ce travail sont toutes fortement carbonatées et on peut s'attendre à trouver Pu sous forme de complexes carbonatés, ou alors associés à la matière organique dans des complexes relativement labiles, comme dans les deux rivières étudiées ci-dessus. Dans ce cas de figure, le mécanisme d'enrichissement en Pu par les plantes aquatiques consiste en un dépôt de carbonate de Ca enrichi en Pu [4]. On constate en effet que les activités en Pu des plantes aquatiques, très similaires à celles mesurées l'année précédente, sont supérieures à celles des poissons pour lesquels aucune activité supérieure à la limite de détection n'a été mise en évidence (Tableau 4). Am n'est malheureusement pas mesurable au-dessus de la limite de détection dans les plantes aquatiques car les quantités reçues par notre laboratoire étaient cette année très inférieures à l'année précédente (4 fois moins en moyenne). Il a par contre été décelé dans un poisson. Le fait que Pu soit mesurable au-dessus de la limite de détection dans les plantes aquatiques est dû en partie à son activité double de celle de l'Am (pour des retombées des essais nucléaires) mais probablement aussi à sa biodisponibilité probablement supérieure et à sa capacité à former un complexe carbonaté. Pour confirmer cette hypothèse, il faudra augmenter significativement la quantité lors du prélèvement de poissons et de plantes aquatiques dans le futur pour être en mesure de dépasser les limites de détection pour ces deux radioéléments. Les sédiments montrent des activités très semblables à celles de l'année précédente, avec également un rapport isotopique $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0.43, compatible avec celui des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible (< 0.5 Bq/kg) de Pu et Am dans les sols de Suisse. Cette activité est bien fixée dans le sol et résulte des retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante. En conséquence, les activités en Pu et Am des filtres à air n'ont jamais dépassé 1.4 nBq/m³, dans un rapport isotopique $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ identique par rapport au sol dans les limites des incertitudes de mesures. Ces activités sont négligeables en termes de santé publique. Les mesures dans les eaux de pluies sont restées inférieures à la limite de détection, autant pour Pu que pour Am. Ces mesures permettent de conclure à l'absence de rejet de radioactivité alpha dans l'atmosphère.

Les mesures dans les sédiments en aval des centrales nucléaires n'ont pas montré de marquage propre aux rejets de centrales; l'activité provient également des retombées des essais nucléaires. Les plantes aquatiques montrent une activité en Pu compatible avec la présence de dépôt carbonaté enrichi en Pu sur la surface des feuilles et/ou avec le dépôt de particules de sédiments sur la surface des feuilles.

Enfin, la technique DGT appliquée au plutonium dans une étude distincte de celle-ci apporte des avantages certains dans la mesure intégrée de l'activité lors du prélèvement, réalisé sur deux ou trois semaines, ainsi que des informations cruciales sur la spéciation du plutonium, notamment de son interaction avec la matière organique dissoute.

Remerciements

Nous remercions l'OFSP, les laboratoires cantonaux et l'EAWAG pour le prélèvement des échantillons.

Références

- [1] Cusnir et al. A DGT Technique for Plutonium Bioavailability Measurements. *Environ. Sci. Technol.* 2014, 48, 10829–10834.
- [2] Cusnir et al. Speciation and Bioavailability Measurements of Environmental Plutonium Using Diffusion in Thin Films. *JoVE-J. Visual. Exp.* 2015, e-53188.
- [3] Cusnir et al. Probing the kinetic parameters of Pu-NOM interactions in freshwaters using the DGT technique. *Environ. Sci. Technol.* 2016, 103, 5103-5110.
- [4] Cusnir et al. Evidence of plutonium bioavailability in pristine freshwaters of a karst system of the Swiss Jura Mountains. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 2017, 206, 30-37.
- [5] Luisier et al. A new method for the determination of plutonium and americium using high pressure microwave digestion and alpha-spectrometry or ICP-SMS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 2009, 281,425-432.

Interview avec le Dr. Pascal Froidevaux, Chef du groupe radioécologie à l'institut de Radiophysique (IRA), CHUV, Lausanne

OFSP: *Pour quel organisme travaillez-vous ?*

Je travaille à l'institut de radiophysique du CHUV, à Lausanne, et dirige le groupe de radioécologie de l'IRA depuis 2002.

OFSP: *Quels sont vos domaines d'expertise ?*

Je suis un chimiste (radio)-analyticien et j'ai développé au cours du temps, également des compétences dans le domaine de la contamination de l'environnement, de la chaîne alimentaire et de l'homme par des éléments radioactifs, notamment le Sr-90 et le plutonium.

OFSP: *De quel(s) chapitre(s) du rapport annuel êtes-vous contributeur ?*

Le groupe de radioécologie de l'IRA rédige les chapitres «Radioactivité du sol et de l'herbe», «Plutonium et Américium dans l'environnement» et « Mesures de ^{90}Sr , de ^{210}Po et de ^{226}Ra dans les vertèbres et de ^{90}Sr dans les dents de lait». Nous participons également au rapport radioactivité dans l'alimentation, principalement par la mesure d'échantillons de lait, de blé, de légumes, de fruits et de poissons.

OFSP: *A combien de rapports annuels de l'environnement avez-vous contribué ?*

En 2018, je franchirai le cap des 20 rapports annuels.

OFSP: *Actif dans le domaine depuis 1998. Quelles évolutions avez-vous constaté depuis vos débuts dans la surveillance de la radioactivité ?*

Il y a eu des changements importants dans le domaine de la surveillance de l'environnement en 20 ans. Le plan de prélèvement national, par exemple, a glissé d'une structure de prélèvement large, englobant l'ensemble du pays et issue de la menace nucléaire militaire, pour se centrer sur la surveillance du nucléaire civil, avec des sites de prélèvement sur lesquels tous les compartiments de l'environnement sont échantillonnés et un nombre plus important de radioéléments mesurés. Ceci permet à la fois une surveillance accrue et une meilleure compréhension des mécanismes de transfert de la radioactivité dans l'environnement et la chaîne alimentaire.

D'une manière générale, notre rôle a évolué à partir de notre capacité à effectuer des mesures précises et de qualité pour inclure également la capacité à interpréter ces mesures et à comprendre mieux les interactions entre les radioéléments et l'environnement. En ce qui concerne un de mes centres d'intérêts, cela peut aller jusqu'à la détermination de certains paramètres de l'interaction entre le plutonium et la matière organique dissoute dans les milieux aquatiques, par exemple.

OFSP: Quelles évolutions avez-vous constaté depuis vos débuts sur les niveaux de radioactivité dans l'environnement ?

Durant mes 20 ans d'activité dans ce domaine, j'ai pu constater une baisse constante de la radioactivité environnementale, de la chaîne alimentaire et de l'homme pour certains radioéléments de fission, comme le ^{90}Sr , issu presque exclusivement en Suisse des retombées radioactives des essais nucléaires des années soixante. Cette observation vaut aussi pour le ^{137}Cs , dont une proportion importante, notamment au Tessin, provient de l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl. Nos mesures à long terme de ^{90}Sr dans le sol, l'herbe, le lait, le blé, les vertèbres humaines et les dents de lait montrent que, tous les 12 ans, ce radioélément voit son activité diminuer de moitié depuis l'interdiction des essais atmosphériques (1963).

Nous avons également mis en évidence que le plutonium, incorporé dans l'organisme humain, principalement les os et le foie, par la population suisse durant la période des essais nucléaires atmosphériques (1955 - 1963), mets plus de 40 ans pour que son activité diminue de moitié dans les vertèbres. On voit alors tout l'intérêt de surveiller attentivement ce radioélément, qui est produit en quantités importantes dans les centrales nucléaires.

... et pour terminer quelles évolutions sur les technologies de mesure ?

Les technologies de radiochimie et de mesure des radioéléments ont fortement évoluées en 20 ans. Ces évolutions ont permis d'augmenter de manière importante le nombre d'analyses effectuées par notre laboratoire, ainsi que le type de compartiments environnementaux pouvant être analysés au-delà des limites de détection, précédemment insurpassables. La mise en solution des échantillons a énormément bénéficié de l'arrivée sur le marché de digesteurs micro-ondes sous pression de grand volume (jusqu'à 250 ml par échantillon). J'ai vu également arriver les techniques sélectives d'extraction en phase solide permettant par exemple la séparation séquentielle de Pu, Am, U et Th sur un même aliquote d'échantillon, mettant fin à la mesure d'alpha total pour se concentrer sur chaque radioélément. Dans ce domaine, notre laboratoire a mis au point une résine spécifique à l'analyse de ^{90}Sr en se basant sur des techniques nouvelles d'imprégnation d'ions dans des polymères, ce qui a conduit au doublement de nos capacités d'analyses pour ce radioélément.

Au niveau de la mesure proprement dite, c'est clairement le développement de la spectrométrie de masse dans la mesure des actinides, y compris la spectrométrie de masse par accélération, qui a bouleversé le domaine de la radioécologie. La plupart de nos travaux récents sur le plutonium n'aurait pas vu le jour sans le développement de ces techniques. Concernant les mesures radiométriques, le développement de spectromètres γ portables incluant un refroidissement électrique a libéré la spectrométrie de mesure sur site du fardeau et des limitations de l'apport en azote liquide. Les spectrométries α et γ et les mesures par comptage proportionnel ont bénéficié du développement de programmes orientés selon les normes d'un système qualité ; ainsi la gestion des étalonnages et du suivi des détecteurs, ainsi que la gestion des échantillons selon des procédures spécifiques préenregistrées et l'introduction de certificats pour les sources de contrôles des détecteurs par ces programmes facilitent grandement la tâche d'un laboratoire d'analyses de radioactivité accrédité.

