

Chapitre
Kapitel
7

Mesures de
nucléides spéciaux

Messung von
Spezialnukliden

Carbone-14, Krypton-85, Argon-37
Plutonium et Américium

Kohlenstoff-14, Krypton-85, Argon-37
Plutonium und Americium

2021

7.2

Mesures de plutonium et d'américium dans l'environnement

P. Froidevaux, F. Barraud, C. Pilloud, P.-A. Pittet, A. Bonnin, M. Straub
Institut de radiophysique, CHUV, Grand Pré 1, Lausanne

Résumé

Nous avons mesuré le plutonium (Pu) et l'américium (Am) dans des échantillons de sol, de sédiments, de filtres à air, de poissons, de plantes aquatiques, d'eau de surface et d'eau souterraine. 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, qui montrent des activités très faibles, mais représentatives de la remise en suspension de particules de sol par le vent. Lors de l'épisode de tempête de sable saharien du 06 et du 24 février 2021, les mesures de Pu et Am sur les filtres à air collectés durant le mois de février n'ont pas révélé de contamination autres que celles provenant des retombées des essais nucléaires des années soixante. Les mesures des plantes aquatiques prélevées dans les rivières en aval des centrales nucléaires montrent que l'activité présente dans les plantes est probablement liée au dépôt de particules de sédiments contenant Pu et Am sur les feuilles. Les poissons n'ont pas présenté d'activité en Pu et Am mesurable au-dessus de la limite de détection de la méthode, à l'exception de ^{241}Am dans un prélèvement dans l'Aar à Däniken (2.0 ± 0.8 mBq/kg ms). L'activité en Pu des eaux de rivières prélevées en aval des centrales nucléaires ne dépasse pas 4.7 mBq/m³, soit dans l'ensemble des valeurs très proches de celles mesurées les années précédentes. L'analyse détaillée des données en Pu et Am disponibles pour les filtres à air entre 2013 et 2021 montre que l'activité de l'air (en nBq/m³) est proportionnelle à la masse de particules de sol présentes sur les filtres (en µg/m³), ce qui confirme que l'activité dans l'air provient uniquement de la resuspension de particules de sol, et qu'il n'y a pas eu de contamination aérienne supplémentaire durant cette période, malgré la tempête de sable saharien de février. En transformant l'activité des filtres à air de mBq/µg cendre en Bq/kg de masse sèche, on constate que l'activité (0.178 Bq/kg) est très proche de celle de sols mesurés en plaine en Suisse ($0.108 - 0.259$ Bq/kg), ce qui confirme l'origine de la contamination comme provenant de resuspension de particules à partir des sols.

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, Fukushima) ainsi qu'à des émissions (notamment dans l'eau) autorisées. Ces deux radioéléments représentent un risque radiologique s'ils sont incorporés dans l'organisme via l'inhalation ou à travers la chaîne alimentaire. Dans un programme de surveillance nationale de la radioactivité, on recherche

ces radioéléments dans différents compartiments de l'environnement, car la mesure de Pu et Am, qui sont des émetteurs de particules alpha, est très sensible (par ex: quelques mBq/kg dans le sol). On possède ainsi un bon indicateur de contamination possible de l'environnement par l'industrie nucléaire.

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. L'américium,

existant uniquement sous forme de cation Am^{3+} , se comporte plutôt comme un cation Ln^{3+} et est fortement hydrolysé aux valeurs environnementales de pH (6 - 8). Sur mandat de l'OFSP, l'IRA mesure depuis plus de vingt ans ces deux radioéléments dans différents compartiments de l'environnement à proximité des centrales nucléaires suisses et dans certains sites de référence. L'image principale que l'on peut tirer de ces mesures est que la présence de Pu et Am dans ces échantillons est essentiellement due aux retombées des essais nucléaires atmosphériques des années soixante avec, parfois, la présence d'ultratraces de Pu et d'Am (parfois aussi ^{244}Cm) dont l'origine peut être attribuée aux rejets des centrales nucléaires ou à des événements particuliers, comme l'éruption du volcan Eyjafjallajökull en 2010, qui a entraîné du Pu encore présent dans la stratosphère dû aux essais nucléaires jusque dans les couches basses de l'atmosphère [1]. L'intégration des dépôts de Pu et Am dans le sol, dont l'origine sont les essais nucléaires, donne des rapports isotopiques de $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0.028 ± 0.003 et $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0.41 ± 0.05 pour l'année 2021. On verra au cours de ce travail que ces indicateurs de contamination sont parfaitement respectés pour les sols, avec quelques variations liées aux larges incertitudes et au fractionnement des éléments pour certains types d'échantillons (eaux, poissons, etc.).

Dans ce travail, nous avons déterminé l'activité en Pu et Am de différents compartiments de l'environnement représentés par le sol, les sédiments de rivières, l'air, l'eau souterraine 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 elles rejettent leurs effluents liquides radioactifs. La compréhension des mécanismes de mobilité et de biodisponibilité du Pu et de l'Am est donc un prérequis indispensable à l'interprétation de ces données. L'année 2021 a été marquée par un événement de forte tempête de sable du Sahara, observable jusqu'en Suisse en février. On focalisera donc l'analyse sur de possibles répercussions de l'entraînement de sable contaminé par les essais nucléaires français de Reggane (Algérie) dans nos mesures de filtres à air.

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 [2]

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 2021 (incertitudes à 95%).

Lieu	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg MS	^{238}Pu Bq/kg MS	^{241}Am Bq/kg MS	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Arenenberg	0.174 ± 0.010	0.0044 ± 0.0013	0.072 ± 0.006	0.411 ± 0.043	0.025 ± 0.008
Bezau	0.184 ± 0.018	0.0056 ± 0.0025	0.077 ± 0.006	0.419 ± 0.052	0.030 ± 0.014
	0.174 ± 0.014	0.0043 ± 0.0018	0.069 ± 0.006	0.392 ± 0.048	0.024 ± 0.011
Cadenazzo	0.120 ± 0.009	0.0039 ± 0.0014	0.052 ± 0.005	0.437 ± 0.051	0.033 ± 0.012
Däniken	0.233 ± 0.023	0.0068 ± 0.0029	0.106 ± 0.007	0.454 ± 0.055	0.029 ± 0.013
	0.259 ± 0.017	0.0072 ± 0.0020	0.115 ± 0.012	0.444 ± 0.053	0.028 ± 0.008
Güttingen	0.155 ± 0.009	0.0039 ± 0.0012	0.058 ± 0.005	0.375 ± 0.041	0.025 ± 0.008
Leibstadt	0.201 ± 0.017	< LD	0.078 ± 0.007	0.387 ± 0.047	-
	0.197 ± 0.014	0.0053 ± 0.0018	0.079 ± 0.010	0.404 ± 0.059	0.027 ± 0.009
Meyrin	0.108 ± 0.011	< LD	0.039 ± 0.006	0.362 ± 0.063	-
Mühleberg	0.150 ± 0.016	< LD	0.060 ± 0.006	0.402 ± 0.060	-
	0.150 ± 0.012	0.0038 ± 0.0017	0.051 ± 0.007	0.342 ± 0.052	0.026 ± 0.011
Posieux	0.194 ± 0.015	0.0042 ± 0.0018	0.080 ± 0.008	0.394 ± 0.057	0.022 ± 0.009
	0.204 ± 0.022	0.0065 ± 0.0031	0.068 ± 0.010	0.352 ± 0.047	0.032 ± 0.016
Stabio	0.567 ± 0.026	0.0179 ± 0.0029	0.323 ± 0.015	0.569 ± 0.037	0.032 ± 0.005
Villigen-PSI	0.142 ± 0.015	< LD	0.049 ± 0.006	0.347 ± 0.054	-
	0.140 ± 0.012	0.0038 ± 0.0016	0.055 ± 0.005	0.395 ± 0.051	0.027 ± 0.012
Würenlingen	0.160 ± 0.010	0.0050 ± 0.0015	0.073 ± 0.006	0.460 ± 0.049	0.032 ± 0.010
moyenne				0.41 ± 0.05 (n=18)	0.028 ± 0.003 (n=14)

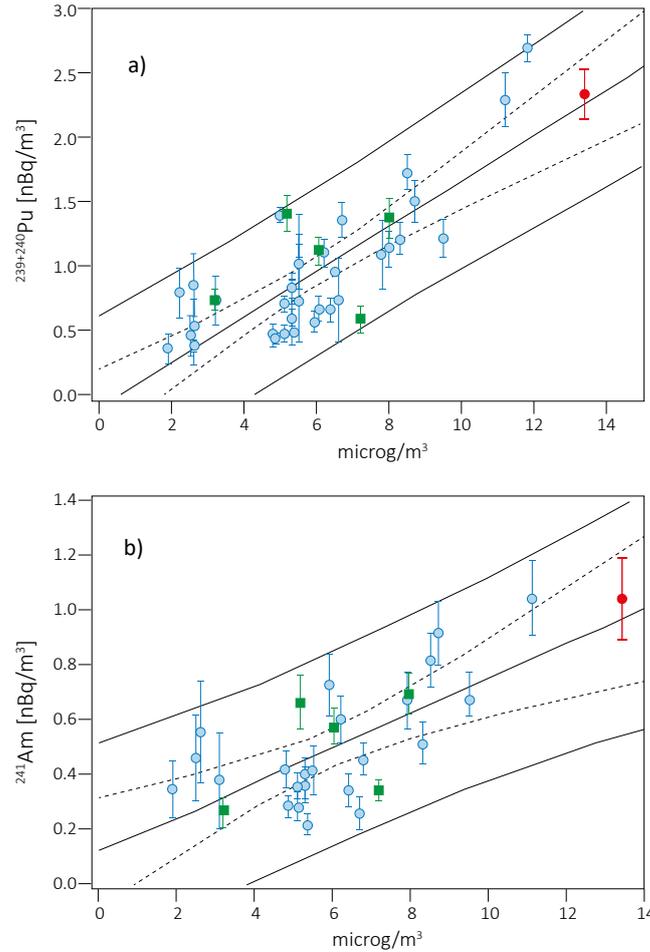


Figure 1 :

Activité en **a)** $^{239+240}\text{Pu}$ et **b)** ^{241}Am , des filtres à air (nBq/m^3) en fonction de la quantité de cendres sur les filtres, exprimée en $\mu\text{g}/\text{m}^3$, pour les années 2013-2021 et différentes stations de prélèvement du plateau suisse. En rouge, la valeur d'activité déterminée sur le mélange des filtres à air de Cadenazzo, du CERN, de Güttingen, de Klingnau, de Liebfeld et de Posieux durant les tempêtes de sable du Sahara, du 01.02.2021 au 24.02.2021. En vert, les valeurs obtenues en 2021.

Résultats et discussion

Le Tableau 1 présente les résultats obtenus dans la mesure des sols échantillonnés sur l'ensemble du territoire suisse, avec une focalisation sur les sites aux environs des centrales nucléaires suisses. Les activités sont très proches de celles obtenues les années précédentes, qui sont en diminution constante ces vingt dernières années, et ne montrent pas de marquage autre que par les retombées des essais nucléaires des années soixante. 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 des retombées des essais nucléaires des années soixante. Pour l'année 2021, ces rapports sont de 0.028 ± 0.003 ($n=14$) pour $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et de 0.41 ± 0.05 ($n=18$) pour $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$. Par comparaison, 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.

Nous avons répété certaines analyses afin d'évaluer la

reproductibilité des mesures pour ce type d'échantillon. Les résultats montrent que, dans la limite des incertitudes de mesure, les valeurs indiquées pour $^{239+240}\text{Pu}$ sont très reproductibles entre les aliquotes de mesure de 50 g chacun. On constate que l'activité en ^{238}Pu est très difficile à quantifier lorsque l'activité en $^{239+240}\text{Pu}$ est proche ou inférieure à 100 mBq/kg, ce qui correspond à une activité en ^{238}Pu de seulement 2.8 mBq/kg de sol sec. De plus, il est nécessaire que tout le processus de séparation chimique, qui est complexe et comporte au moins 6 étapes sensibles, se déroule avec un rendement total supérieur à 65% pour être en mesure de quantifier le ^{238}Pu pour des activités en $^{239+240}\text{Pu}$ d'environ 200 mBq/kg sol sec. Néanmoins, nous avons pu déterminer le ^{238}Pu au-dessus de la limite de détection pour 14 échantillons de sol et le rapport moyen est très proche de ce qui est attendu pour une contamination provenant uniquement des essais nucléaires des années soixante. Malgré une forte incertitude, ce rapport reste donc un excellent indicateur et nous maintiendrons la mesure de ^{238}Pu dans les sols comme objectif, nonobstant la difficulté de la mesure.

Tableau 2:
Activités (nBq/m³) en plutonium et américium dans les filtres à air collectés sur différents sites en Suisse en 2021. Incertitudes à 95%.

Lieu	Volume m ³	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu nBq/m ³	²³⁸ Pu nBq/m ³	²⁴¹ Am nBq/m ³	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Klingnau	5'148'565	0.73 ± 0.09	< 0.06	0.26 ± 0.05	0.36 ± 0.09
Posieux	4'353'659	1.41 ± 0.14	< 0.07	0.66 ± 0.10	0.47 ± 0.12
Liebefeld, semestre 1	3'651'014	0.58 ± 0.10	< 0.10	0.34 ± 0.04	0.59 ± 0.15
Liebefeld, semestre 2	3'651'014	1.38 ± 0.15	< 0.08	0.69 ± 0.08	0.50 ± 0.13
Meyrin	4'016'003	1.12 ± 0.11	0.059 ± 0.023	0.57 ± 0.07	0.51 ± 0.13
Mélange février 2021, «tempête de sable du Sahara »	2'445'127	2.33 ± 0.21	0.08 ± 0.03	1.04 ± 0.14	0.45 ± 0.06
moyenne					0.48 ± 0.07

Tableau 3:
Activités (mBq/m³) en plutonium et américium des eaux collectées en Suisse durant l'année 2021. (Incertitudes à 95%).

Type	Lieu	Volume [l]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mBq/m ³	²³⁸ Pu mBq/m ³	²⁴¹ Am mBq/m ³	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Eau de rivière	Rhône, Chancy	154	< 2.3	< 2.3	< 2.8	-
	Aar (Hagneck), janvier - février	240	2.5 ± 0.5	< 0.5	< 1.0	-
	Aar (Hagneck), mars	185	< 1.8	< 1.8	< 1.8	-
	Aar (Hagneck), mai - juin	350	2.1 ± 0.4	< 0.4	< 0.6	-
	Aar (Klingnau), janvier	185	4.7 ± 1.1	< 1.4	< 1.3	-
	Rhin (Pratteln), janvier	175	3.9 ± 1.0	< 1.3	< 2.9	-
Eau souterraine	Aarberg, 18.10.2021	145	< 2.0	< 2.0	< 1.4	-
	Däniken, 17.11.2021	160	< 1.4	< 1.4	< 1.1	-
	Döttingen, 18.10.2021	165	< 1.3	< 1.3	< 1.1	-
	Pratteln, 18.10.2021	160	< 2.5	< 2.5	< 1.0	-
Eau de pluie	Posieux	1'367	n.m.	n.m.	0.66 ± 0.11	-
	Mühleberg	811	2.2 ± 0.6	< 1	0.86 ± 0.03	0.40 ± 0.17
	Leibstadt	1'526	1.27 ± 0.37	< 0.6	0.28 ± 0.08	0.22 ± 0.09

Tableau 4:
Activités (mBq/kg Matières Sèches - MS) en plutonium et américium de différents échantillons aquatiques prélevés en 2021 en aval des centrales nucléaires suisses (Incertitudes à 95%).

Type	Lieu	MS [g]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mBq/kg MS	²³⁸ Pu mBq/kg MS	²⁴¹ Am mBq/kg MS	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Plantes aquatiques	Aar (Hagneck), 13.10.2021	44	28.9 ± 11.7	< 27	6.4 ± 2.3	0.22 ± 0.12
	Aar (Klingnau), 13.10.2021	22	31.9 ± 7.4	< 11	18.1 ± 7.1	0.57 ± 0.26
	Rhin (Pratteln), 13.10.2021	35	40.5 ± 7.5	< 8	31.4 ± 14.2	0.77 ± 0.38
	Aar (Däniken), 17.11.2021	23	56.6 ± 10.3	< 11	22.4 ± 9.4	0.40 ± 0.18
Sédiments	Aar (Hagneck), mai 2021	52	38.2 ± 4.4	< 3.1	n.m.	-
	Aar (Hagneck), mars- avril 21	25	68.5 ± 10.4	< 8.8	77.8 ± 9.2	1.13 ± 0.43
	Aar (Hagneck), février 2021	52	31.0 ± 4.1	< 3.3	n.m.	-
	Aar (Klingnau), janvier 2021	54	88.6 ± 7.40 85.3 ± 31.3	< 3.3 < 45.0	38.5 ± 5.4 34.9 ± 5.2	0.41 ± 0.16 0.43 ± 0.07
	Rhin (Pratteln), mai 2021	53	61.9 ± 5.7	2.1 ± 0.07	35.0 ± 6.0	0.56 ± 0.11
Poissons	Aar (Mühleberg), 10.02.2021	70	< 8	< 8	< 4.1	-
	Aar (Däniken), 03.09.2021	113	< 7.4	< 7.4	2.0 ± 0.8	-
	Aar (Beznau), 09.05.2021	98	n.m.	n.m.	< 3.6	-
	Rhin (Leibstadt), 03.11.2021	45	< 7.2	< 7.2	< 7.2	-

S'il n'y a pas d'émission accidentelle de radioactivité dans l'atmosphère, l'activité en Pu et Am des filtres à air reflète la remise en suspension de particules de sol par abrasion par le vent. Les résultats pour quatre stations de prélèvement à haut volume sont présentés dans le Tableau 2. Nous avons aussi inclus dans ce rapport l'analyse de filtres à air collectés sur les stations de Cadenazzo, du CERN, de Güttingen, de Klingnau, de Liebfeld et de Posieux durant les tempêtes de sable du Sahara, du 01.02.2021 au 24.02.2021. L'analyse de Pu et Am s'est portée sur un mélange de 24 filtres HV, collectés sur une semaine chacun, soit un volume de 2'445'127 m³, afin d'obtenir une sensibilité de mesure suffisante pour pouvoir quantifier ces deux radioéléments indicatifs de fission/activation nucléaire. En effet, la zone de tempête saharienne englobait la région algérienne de Reggane, région dans laquelle la France a effectué quatre essais nucléaires atmosphériques et 13 essais nucléaires souterrains au début des années soixante. Cette zone est donc susceptible d'être contaminée par les retombées de ces tirs. Les résultats montrent que la quantité de particules de sable collectées sur les filtres était légèrement supérieure à ce qui est habituellement mesuré en Suisse, soit 13.4 µg/m³ (Suisse : 1.9 - 11.8 µg/m³). L'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu était de 2.34 ± 0.20 nBq/m³ et celle en ²⁴¹Am de 1.04 ± 0.15 nBq/m³. Ces activités s'intègrent parfaitement parmi celles mesurées habituellement en Suisse, comme démontré dans la Figure 1. De plus, les rapports isotopiques ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu de 0.035 ± 0.015 et ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu de 0.45 ± 0.08 sont très représentatifs des retombées des essais nucléaires des années soixante, comme discuté ci-dessus.

La Figure 1 représente l'activité en nBq/m³ des filtres à air de différentes stations de prélèvement d'air en Suisse de 2013 à 2021, en fonction de la quantité de cendres, normalisée au volume, obtenue lors de la calcination des filtres collectés sur l'année en cours (environ 52 filtres). Cette grandeur est une bonne approximation de la quantité de particules de sol remises en suspension et collectées par les filtres. On constate que l'activité mesurée sur les filtres à air est directement proportionnelle à la quantité de cendres (exprimée en µg/m³) contenue sur le filtre. Les deux courbes cernant les points de mesure indiquent l'intervalle de confiance à 95%, dans lequel les mesures devraient se trouver. Si un point devait figurer significativement hors de ces limites, il y aurait matière à investiguer de manière plus approfondie la présence d'une éventuelle contamination de l'air ne provenant pas de la resuspension de particules de sol. En 2021, tous les points du plan de surveillance (carrés bleus, Figure 1 a et b) se trouvaient dans l'intervalle de confiance du modèle, ce qui indique qu'il n'y a pas eu de contamination atmosphérique autre que la resuspension de particules de sols. En divisant les activités exprimées en nBq/m³ par la quantité de cendres résiduelle des filtres à air (µg/m³) et en prenant un rapport de calcination moyen des sols en Suisse de 0.95, on obtient une estimation de l'activité des particules de sol resuspendus. Celle-ci est en

moyenne de 0.178 ± 0.067 Bq/kg ms en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu pour les 5 sites étudiés et confirme que les activités mesurées en 2021 proviennent bien uniquement de la resuspension de particules de sol, car figurant bien dans l'intervalle des mesures de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu sur le plateau Suisse en 2021 (moyenne = 0.195 ± 0.100 Bq/kg ms, n=18). Ces données confirment également que la tempête de sable saharien de février 2021 n'a pas contribué à un apport significatif de radioactivité dans l'air en Suisse.

Comme les années précédentes, le site de Posieux montre une activité en Pu légèrement plus élevée (1.41 nBq/m³) que les autres stations, toutefois très proche de la mesure du deuxième semestre pour le site de Liebfeld (1.38 nBq/m³). C'est aussi pour ces deux sites que la quantité de cendres après calcination des filtres à air est la plus élevée (5.2 et 7.9 µg/m³). D'une manière générale, et en accord avec les années précédentes, les activités n'ont pas dépassé 1.41 nBq/m³ pour ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et 0.69 nBq/m³ pour ²⁴¹Am. Le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu était de 0.48 ± 0.07, soit une valeur très proche de celui déterminé en 2021 pour les sols, ce qui confirme encore une fois que l'origine de la contamination de filtres à air par ces deux radioéléments provient de la resuspension de particules de sol uniquement.

Les activités des eaux de surface (eaux de rivière) et eaux souterraines sont présentées dans le Tableau 3. Les valeurs d'activité sont très proches de celles mesurées en 2020. L'activité du ²³⁸Pu est restée inférieure à la limite de détection dans tous les cas. Lorsqu'elle est quantifiable, l'activité en ²⁴¹Am est toujours plus basse que celle en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ce qui confirme que l'origine de la contamination est due aux retombées des essais nucléaires des années soixante.

Dans les eaux souterraines, l'augmentation du volume collecté, qui est passé d'environ 100L à 160L pour les trois stations a permis d'abaisser la limite de détection mais n'a pas permis de quantifier l'activité.

La plupart des résultats de mesure d'échantillons d'eau de surface ou souterraine se trouvent en dessous des limites de détection et montrent qu'il est nécessaire de prélever au moins 200L d'eau pour être en mesure de déterminer les activités en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am avec une sensibilité suffisante pour des mesures par spectrométrie alpha. En 2021, les volumes prélevés étaient en moyenne de 50-100L inférieurs aux volumes prélevés en 2020, ce qui s'est traduit par des activités mesurées le plus souvent en dessous des limites de détection. En joignant les prélèvements de deux mois en mai et juin sur le site de Hagneck, nous avons obtenus 350L d'eau de surface, permettant une mesure en dessus de la limite de détection, ce qui confirme de manière rassurante que seuls des prélèvements de grands volumes permettent une quantification de l'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am. La mesure des eaux de pluie représente une mesure indirecte de la contamina-

tion de l'air, les précipitations ayant pour effet d'entraîner les particules en suspension dans l'air vers le sol. Les eaux de pluie présentaient des activités en Pu et Am similaires à celles des eaux de surface, en moyenne inférieure à 2.5 mBq/m³ pour Pu et inférieure à 1 mBq/m³ pour Am.

Les résultats des mesures effectuées sur différents échantillons de l'environnement aquatique collectés en aval des centrales nucléaires sont présentés dans le Tableau 4. ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am sont mesurables au-dessus des limites de détection dans les sédiments (phase suspendue) de rivière, dans un rapport d'activité proche de celui des sols (voir Tableau 1). Les faibles quantités de plantes aquatiques prélevées (22-44 g de masse sèche) sont un obstacle à la quantification systématique de Pu et Am si le rendement de séparation chimique n'atteint pas 65%. Comme pour les sédiments, les activités en Pu et Am des plantes aquatiques sont restées proches de celles des années précédentes. Le rapport ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu proche de 0.5 confirme qu'il n'y a pas eu d'apport significatif d'un des deux radioéléments aux plantes aquatiques autrement que par un dépôt foliaire de particules de sédiments contenant Pu et Am dans des rapports isotopiques proches de ceux des sols.

Dans les poissons, aucune activité quantifiable au-dessus de la limite de détection n'a été mesurée à l'exception de ²⁴¹Am dans un poisson de l'Aar à Däniken (2.0 ± 0.8 mBq/kg) dont la masse sèche disponible pour l'analyse était supérieure (113g) aux autres prélèvements. Ce fait est en soit positif, car il signifie un environnement sain du point de vue de la radioactivité artificielle résiduelle. Pour tous les échantillons aquatiques, ²³⁸Pu est resté en dessous des limites de détection.

Conclusions

Les mesures de Pu et Am effectuées dans ce travail ont montré la persistance, à un niveau d'activité très faible (< 0.567 Bq/kg) de Pu et (< 0.323 Bq/kg) 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 pas dépassé 1.41 nBq/m³ en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et 0.69 nBq/m³ en ²⁴¹Am. Les deux tempêtes de sable sahariennes du mois de février 2021 n'ont pas apporté de contribution significative à la contamination de l'air par Pu et Am et les valeurs mesurées sur un échantillon formé des filtres collectés dans les stations de Cadenazzo, du CERN, de Güttingen, de Klingnau, de Liebfeld et de Posieux sont comparables à ce qui est mesuré habituellement en Suisse. La masse de cendre est un bon estimateur de la quan-

tité de particules de sol remise en suspension dans l'environnement du collecteur d'air. Plus cette quantité est élevée, plus l'activité en Pu et Am des filtres à air est élevée, ce qui confirme que l'on observe bien un phénomène de remise en suspension du sol par le vent.

Les activités des eaux de surface et des eaux souterraines sont similaires aux années précédentes et n'ont pas dépassé 4.7 mBq/m³. Les mesures confirment qu'il est nécessaire de collecter plus de 200L d'eau pour fournir des résultats en dessous de la limite de détection de la mesure par spectrométrie alpha.

Les mesures dans les sédiments en aval des centrales nucléaires n'ont pas montré de marquage propre aux rejets des centrales nucléaires; l'activité provient également des retombées des essais nucléaires. Les plantes aquatiques montrent une activité en Pu compatible avec le dépôt de particules de sédiments sur la surface des feuilles. Ces activités sont très similaires à celles déterminées durant cette dernière décennie sur ces mêmes échantillons. Les activités dans les poissons sont restées en dessous des limites de détection, à l'exception d'une valeur très faible de ²⁴¹Am (2.0 ± 0.8 mBq/kg ms). Pour ces échantillons également, il est nécessaire d'augmenter la quantité échantillonnée si l'on désire quantifier les activités en Pu et Am.

Dans l'ensemble, toutes ces mesures montrent qu'il est nécessaire de prélever des masses ou des volumes importants d'échantillons pour être en mesure de déterminer le plutonium et l'américium au-dessus des limites de détection de la spectrométrie alpha. Ce point est rassurant et montre que l'environnement en Suisse est actuellement sain en ce qui concerne la dissémination de ces deux radioéléments fortement radiotoxiques. Une augmentation significative de ces radioéléments dans l'environnement, liée aux activités de l'industrie nucléaire, devrait être ainsi facilement détectée.

Remerciements

Nous remercions l'OFSP et l'EAWAG pour le prélèvement des échantillons.

Références

- [1] Corcho Alvarado et al. Nature Communications, 2014, 5, article n° 3030.
- [2] 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.