



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu
*Ministerie van Volksgezondheid,
Welzijn en Sport*

**Contra-expertise op bepalingen van
radioactiviteit van afvalwater en
ventilatielucht van Urenco
Nederland B.V.**

Periode 2010

RIVM rapport 610330109/2012

P.J.M. Kwakman | R.M.W. Overwater



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu
*Ministerie van Volksgezondheid,
Welzijn en Sport*

**Contra-expertise op bepalingen van
radioactiviteit van afvalwater en
ventilatielucht van Urenco
Nederland B.V.**

periode 2010

RIVM rapport 610330109/2012

Colofon

© RIVM 2012

Delen uit deze publicatie mogen worden overgenomen op voorwaarde van bronvermelding: 'Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), de titel van de publicatie en het jaar van uitgave'.

De heer dr. P.J.M. Kwakman (Senior Wet. Medew. Chemie), RIVM
De heer dr. R.M.W. Overwater (Senior Wet. Medew. Fysica), RIVM

Contact:

De heer dr. P.J.M.Kwakman
Laboratorium voor Stralingsonderzoek
pieter.kwakman@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van VROM-Inspectie Kernfysische
Dienst, in het kader van project 610330, Site Monitoring Straling

Rapport in het kort

Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van Urenco Nederland B.V. Periode 2010.

Het RIVM controleert achtmaal per jaar de metingen van de verrijkingsfabriek Urenco te Almelo. Het gaat hierbij om lozingen van radioactiviteit in water en lucht. De contra-expertise onderbouwt de betrouwbaarheid van de analyses die Urenco uitvoert. Uit de metingen blijkt dat er in het afvalwater doorgaans een (zeer) lage totaal alfa en totaal bèta activiteit aanwezig is. De totaal alfa analyses in afvalwater komen goed overeen, zo ook in 2010. Indien de totaal bèta resultaten gecorrigeerd worden voor verval van ^{234}Th dan verbetert de overeenkomst naar redelijk.

De radioactiviteit in ventilatielucht ligt zeer dicht bij het niveau van de hoeveelheid radon die van nature in buitenlucht aanwezig is. In drie gevallen, twee bij CSB en één bij SP4, is er een kleine vrijzetting voorgekomen van uraan in ventilatielucht. Voor totaal alfa is een activiteitsconcentratie van 0,6 – 3,4 mBq.m⁻³ gevonden en voor totaal bèta 0,5 – 3,5 mBq.m⁻³. De overeenstemming met de meetwaarden van Urenco was goed.

Het RIVM heeft in acht afvalwatermonsters en 33 monsters van ventilatielucht, die verspreid over het jaar 2010 door Urenco zijn afgenomen, de totaal alfa en totaal bèta activiteit bepaald. Deze bepaling is een snelle manier om een eventuele lozing van uraan naar het milieu aan te tonen. Opdrachtgever is de Kernfysische Dienst van het ministerie van VROM.

Trefwoorden:

Urenco, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

Abstract

Contra-expertise on determination of radioactivity of waste water and ventilation air of Urenco Nederland B.V. Period 2010

Within the framework of a monitoring programme, the RIVM measures the release of radioactivity into the waste water and atmosphere of the Urenco uranium enrichment plant in Almelo. Measurements are carried out eight times per year. This form of counter-expertise is aimed at verifying and supporting the reliability of the analyses carried out by the Urenco plant.

As a rule, the waste water contains very low levels of gross alpha and gross beta activity. The two different sets of measurements of gross alpha in waste water are generally in agreement, as is also the case in 2010. After correction of the gross beta results for the decay of ^{234}Th the agreement improves to reasonable. Radioactivity levels in the ventilation air are very close to those levels expected due to the natural presence of radon in the outside atmosphere. In three cases, two at CSB and one at SP4, some gross alpha and gross beta activity in ventilation air was observed. For gross alpha $0,6 - 3,4 \text{ mBq.m}^{-3}$ was found and for gross beta $0,5 - 3,5 \text{ mBq.m}^{-3}$. The agreement with the measurement results of Urenco was good.

The RIVM determined the gross alpha and gross beta activity in eight waste water samples and 33 samples of ventilation air. The samples were taken by Urenco at time points dispersed throughout 2010. This procedure provides the RIVM with a method for determining the release of artificial alpha emitters into the environment.

The analyses were carried out on behalf of the Department of Nuclear Safety, Security and Safeguards of the Dutch Ministry of Housing, Spatial Planning and the Environment (VROM).

Keywords:

Urenco, radioactivity, discharges, waste water, ventilation air

Inhoud

Samenvatting—6

1 Inleiding—7

2 Monsters en analyse—8

3 Analysemethoden—9

3.1 Tweevoudbepalingen—9

3.2 Bepaling van de totaal alfa- en bèta activiteitsconcentratie in afvalwater—9

3.3 Bepaling van het gehalte aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater—9

3.4 Bepaling van de totaal alfa en bèta activiteitsconcentratie in ventilatielucht—10

3.5 Bepaling van het gehalte aan gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht—10

3.6 Foutenberekening—11

3.7 Kwaliteitsborging—11

3.8 Presentatie van resultaten en vergelijking—11

4 Resultaten en discussie—13

4.1 Meetresultaten—13

4.2 Vergelijking van de resultaten—13

4.3 Discussie—14

4.4 Algemeen oordeel over de contra expertise resultaten—17

5 Referenties—18

Bijlage A Vergelijking meetresultaten—19

Bijlage B Gegevens van Urenco : Analyse van afvalwatermonsters voor lozing op het riool—21

Bijlage C Gegevens van Urenco - Het off-line analyseren van bestofte glasfaserfilters op alfa en beta totaalactiviteit met behulp van een "groot oppervlak" ArCH₄ Proportionele telkamer meetopstelling—24

Bijlage D Schatting van radon exhalatie van Urenco fabriekshallen; situatie in 2010.—25

Samenvatting

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek (LSO) van RIVM voert in opdracht van de VROM-Inspectie (VI) radioactiviteitsmetingen uit van lozingsmonsters afkomstig van een vijftal nucleaire installaties. Het doel is het leveren van contra-expertise op de metingen die door de installaties zelf zijn uitgevoerd. Dit rapport gaat over de periode januari – december 2010.

De contra-expertisemonsters waar het voorliggende rapport over gaat, zijn afkomstig van Urenco Nederland B.V. te Almelo. Het betreft zowel afvalwatermonsters als filters waarmee buitenlucht en uitgaande ventilatielucht van verschillende gebouwen is bemonsterd. Het RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van totaal alfa, totaal bèta en gammastralers in afvalwatermonsters en ventilatielucht.

De mate van overeenstemming van de resultaten van RIVM met die van de nucleaire installaties wordt ingedeeld in vier categorieën, in afnemende volgorde A1, A2, B en C.

Voor de afvalwatermonsters is de overeenkomst van de totaal alfa data in de bemonsteringsperiode goed. Voor totaal alfa is alleen A1 en A2 aangetroffen. De totaal bèta data geven na correctie voor verval tussen monsternamen en meting een duidelijke verbetering in de overeenkomst.

De resultaten voor de totaal alfa bepalingen op luchtstoffilters zijn in deze rapportage vergeleken met de meetresultaten van Urenco goed: 12-maal A1 en éénmaal A2.

De vergelijkingsresultaten van de totaal bèta bepalingen op luchtstoffilters waren redelijk: tweemaal A1, vijfmaal A2, vijfmaal B en vijfmaal een C. Door een ruwe schatting te maken van de radonexhalatie van de fabriekshallen van Urenco is het mogelijk om een ondergrens te berekenen voor de totaal bèta waarde die het gevolg is van de radon-dochter ^{210}Pb , een bèta/gammastraler. Wordt hiervoor gecorrigeerd dan blijven slechts enkele verhogingen over die een geringe uraanlozing betreffen: tweemaal bij CSB en éénmaal bij SP4. In deze drie gevallen is er een kleine vrijzetting voorgekomen van uraan in ventilatielucht. Voor totaal alfa is een activiteitsconcentratie van 0,6 – 3,4 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ gevonden en voor totaal bèta 0,5 – 3,5 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$. Hierbij is de overeenstemming tussen de meetresultaten van Urenco en RIVM A1, A2 en een C.

1 Inleiding

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek (LSO) van RIVM voert in opdracht van de VROM-Inspectie (VI) radioactiviteitsmetingen uit van lozingsmonsters afkomstig van een vijftal nucleaire installaties. Het doel is het leveren van contra-expertise op de metingen die door de installaties zelf zijn uitgevoerd. Dit rapport gaat over de periode januari – december 2010.

De contra-expertisemonsters waar het voorliggende rapport over gaat, zijn afkomstig van Urenco Nederland B.V. te Almelo. Het betreft zowel afvalwatermonsters als filters waarmee buitenlucht en de uitgaande ventilatielucht van verschillende gebouwen is bemonsterd.

De indeling van dit rapport is als volgt. Na deze inleiding volgt hoofdstuk 2 met een beschrijving van de voor de contra-expertise gebruikte monsters en de hiervan bepaalde radioactieve eigenschappen. In hoofdstuk 3 staat een beschrijving van de door RIVM toegepaste analysemethoden en de wijze waarop de resultaten van RIVM met die van het onderzochte bedrijf zijn vergeleken. Hoofdstuk 4 bevat een korte bespreking van de resultaten van het contra-expertiseonderzoek. De meetresultaten zelf zijn – naast de resultaten van het onderzochte bedrijf – opgenomen in Bijlage A. De bemonstering wordt door de onderzochte bedrijven uitgevoerd. Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast door het onderzochte bedrijf, zijn gereproduceerd in Bijlage B.

2 Monsters en analyse

Het RIVM haalt periodiek afvalwater- en ventilatieluchtmonsters op bij Urenco Nederland B.V. Van het afvalwater bewaart Urenco circa 1 liter ongegeleerd water voor contra-expertise door RIVM. Voor het bepalen van de radioactiviteit in uitgaande ventilatielucht gebruikt Urenco aerosolfilters. Deze zijn beschikbaar voor het RIVM nadat de metingen door Urenco verricht zijn. Tabel 1 bevat een overzicht van het vooraf afgesproken aantal monsters en de te verrichten analyses [RI10]. In *Tabel 2* staan gegevens van de opgehaalde afvalwatermonsters.

Tabel 1 : Overzicht van het vooraf afgesproken aantal monsters en analyses

Monsters	Aantal	Soort monster	Analyses
Afvalwater	8	Batchmonster	Totaal alfa**, totaal-bèta**, gammastralers*
Ventilatie-lucht	32	Aerosolfilters acht maal van vier lozingspunten	Totaal alfa**, totaal-bèta**, indien totaal bèta op filter > 0,5 Bq dan ook bepaling gamma-emitters**

* Analyse in enkelvoud

** Analyse in tweevoud

Het RIVM heeft Urenco zesmaal bezocht voor het ophalen voor de monsters uit 2010. Met ingang van 2004 is het analyseren van ventilatieluchtmonsters van het monsternamepunt 'Buiten' gestopt. Met ingang van najaar 2005 is de verrijkingfabriek SP3 gesloten. Met ingang van mei 2009 is SP2 niet meer in gebruik. De vier monsternamepunten in 2010 zijn dus SP4, SP5 en CSB. Aan het eind van 2008 is monsternamepunt 2MA5 van de SP5 hallen 5-8 in gebruik genomen. Van SP5 wordt dus zowel een filter beschikbaar gesteld van hal 1-4 (monstername punt 1MA5), als van hal 5-8 (2MA5).

Tabel 2 : Monstergegevens afvalwater; de ophaaldata voor de ventilatieluchtfilters zijn gelijk aan de ophaaldata van afvalwater

Nr	Datum afvalwatermonster*	Ophaaldatum	Analysedatum alfa/beta	Analysedatum gammaspectrometrie	Fabriek
1	26 januari 2010	18 maart 2010	13 april 2010	22 maart 2010	CSB
2	17 februari 2010	18 maart 2010	13 april 2010	22 maart 2010	CSB
3	18 mei 2010	2 juni 2010	18 juni 2010	2 juni 2010	SP5
4	15 juni 2010	30 juni 2010	19 juli 2010	5 juli 2010	CSB
5	21 juli 2010	8 september 2010	20 september 2010	14 september 2010	CSB
6	28 juli 2010	8 september 2010	20 september 2010	14 september 2010	CSB
7	12 oktober 2010	20 oktober 2010	20 december 2010	25 oktober 2010	SP5
8	9 november 2010	17 november 2010	20 december 2010	22 november 2010	CSB

* dit is de datum op de monsterfles. De datum die Urenco rapporteert is de lozingsdatum en die is meestal een paar dagen later. RIVM gebruikt altijd de datum op de fles als referentiedatum.

3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast door Urenco in 2010, zijn gereproduceerd in Bijlage B. Deze methoden zijn gelijk aan de door Urenco toegepaste methoden in het voorafgaande jaar [Kw09]. In opdracht van VROM-Inspectie KFD worden de randvoorwaarden uit de Kerntechnische Ausschuss (KTA, [KT02] en [KT06]) voor de uitvoering van de analyses aangehouden. Dit betreft bijvoorbeeld de samenstelling van de nuclidenbibliotheek en de detectiegrenzen die gehaald moeten kunnen worden.

3.1 Tweevoudbepalingen

LSO voert sommige analyses in tweevoud uit. Wanneer het verschil tussen de twee meetwaarden van een tweevoudbepaling groter is dan $4s$ (waarbij s de totale fout van de grootste van de twee meetwaarden is) wordt een tweevoudbepaling afgekeurd. In zo'n geval volgt een aanvullende controle, bijvoorbeeld een controle van de berekeningen, een herhaling van een meting of een nieuwe analyse met achtergehouden monstermateriaal. Het laatste gebeurt indien mogelijk bij afkeuring van een analyse op ^{60}Co of ^{137}Cs . Bij andere gammastralers dan ^{60}Co en ^{137}Cs worden in geval van een afgekeurde tweevoudbepaling de twee meetresultaten afzonderlijk gerapporteerd. Wordt het resultaat van een tweevoudbepaling niet afgekeurd, dan wordt het gemiddelde van de twee meetwaarden gerapporteerd. De analyses waarvan gedurende een langere periode gebleken is dat er weinig of geen afkeuringen plaatsvinden, worden uit oogpunt van efficiency in enkelvoud uitgevoerd. Welke analyses in enkelvoud en welke in tweevoud worden uitgevoerd, staat in hoofdstuk 2.

3.2 Bepaling van de totaal alfa- en bèta activiteitsconcentratie in afvalwater

Na krachtig schudden wordt van het gehomogeniseerde monster in twee verschillende flesjes elk 10,0 ml gepipetteerd. Aan één van de flesjes wordt 0,100 ml van een natuurlijk uraniumoplossing met bekende sterkte toegevoegd en goed gemengd. De twee oplossingen worden in gedeelten op roestvast stalen, geschuurde en ontvette telplaatjes met een diameter van 50 mm overgebracht en drooggedampt in een stoof bij 60-80 °C. De metingen aan beide telschaaltjes worden uitgevoerd met proportionele gasdoorstroomtellers die zijn voorzien van een dun venster ($< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$). De tellers hebben een lage achtergrond. De telopbrengst wordt berekend uit het verschil in de resultaten van de beide telpreparaten en de toegevoegde activiteit aan natuurlijk uraan. Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0121; Handboek Gasdoorstroomtelling.

3.3 Bepaling van het gehalte aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater

Per analyse wordt van het afvalwater één monster van 250 ml afgemeten. Dit monster wordt in een teldoos gemengd met behangplaksel en geschud tot een homogene stijve massa verkregen is. Dit 'geleren' dient ter voorkoming van het uitzakken van de radioactieve componenten bij gammaspectrometrische analyses met lange teltijden. Van het ontstane gezeleerde telpreparaat wordt over het energiebereik van 80 keV tot 2 MeV een gammaspectrum opgenomen met behulp van een P-type halfgeleiderdetector met hoge energieresolutie in combinatie met een pulssorteerder met 8192 kanalen. De meettijd is 1000

minuten. Het spectrum wordt geanalyseerd met behulp van het analyseprogramma GammaVision (eerste helft 2009) en Genie2000 (2^e helft van 2009) aan de hand van een nuclidenbibliotheek. In Bijlage A (Tabel A2) zijn de in de nuclidenbibliotheek opgenomen nucliden gegeven. In de gammabibliotheek zijn nucliden uit de uranium- en thoriumreeksen opgenomen, met daaraan toegevoegd de nucliden ⁷Be, ⁴⁰K, ⁶⁰Co en ¹³⁷Cs. Daarnaast wordt door het analyseprogramma melding gemaakt van pieken die wel gedetecteerd zijn in het spectrum maar die niet aan één van de in de bibliotheek opgenomen nucliden toe te wijzen zijn. Is dit het geval dan vindt een nadere analyse van het spectrum plaats. Het RIVM corrigeert voor radioactief verval door de activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar de dag van bemonstering. Indien door het RIVM geen enkele gammastraler wordt aangetoond, wordt slechts de detectielimiet voor ²³⁴Th gegeven.

Formeel vereist KTA 1504 [KT06] dat bij het meten van gammastraling uitzendende radionucliden in gedestilleerd water de detectielimiet voor ⁶⁰Co kleiner is dan 1 kBq m⁻³. Bij het meten van afvalwater van Urenco is er echter voor gekozen om de detectiegrens te geven van ²³⁴Th, de snel ingroeiende dochter van ²³⁸U.

Voor kalibratie van de gammaspectrometrieopstelling wordt gebruik gemaakt van een bekende hoeveelheid activiteit overgebracht in preparaatvormen van eenzelfde vorm, afmeting, mate van homogeniteit en dichtheid als de te meten monsters.

Deze methode is vastgelegd in LSO-0238 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gamma-spectrometrie.

3.4 Bepaling van de totaal alfa en bèta activiteitsconcentratie in ventilatielucht

Per analyse wordt uit een luchtstoffilter een schijf met een diameter van 46 mm geponst. Met behulp van een proportionele gasdoorstroomteller met een lage achtergrond, die van een dun venster (< 0,5 mg·cm⁻²) is voorzien, wordt hiervan de alfa- en bèta-telsnelheid gemeten. In afwijking van de Nederlandse voornorm inzake de analyse van luchtstoffilters wordt voor de bepaling van de totaal alfa en de totaal bèta activiteitsconcentratie natuurlijk uraan als referentienuclide toegepast [NE06]. Aangezien de invloed van de stofbelading op de totaal alfa efficiëntie aanzienlijk kan zijn en per monster onbekend, is in deze rapportage een onzekerheid van 30% in de waarde voor de totaal alfa activiteitsconcentratie in ventilatielucht opgenomen.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0121; Handboek Gasdoorstroomtelling.

3.5 Bepaling van het gehalte aan gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht

Bij (eventueel) gammaspectrometrisch onderzoek van luchtstoffilters wordt gebruikgemaakt van de filterschijfjes die voor de totaal alfa- en totaal bèta activiteitsconcentratie zijn gebruikt. Het telpreparaat wordt gemeten zoals beschreven in paragraaf 3.3. Voor radioactief verval van de gedetecteerde nucliden wordt gecorrigeerd naar het midden van de monsterperiode.

Voor de meetgevoeligheid wordt gerefereerd aan KTA 1503.1 [KT02]. Deze eist dat bij het meten van gammastralers in ventilatielucht de detectielimiet voor ⁶⁰Co minder dan 20 mBq m⁻³ bedraagt.

Deze methode is vastgelegd in LSO-0238 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gamma-spectrometrie.

3.6 Foutenberekening

De door RIVM opgegeven fout is het 1σ -schattinginterval. Voor het bepalen hiervan is gebruik gemaakt van NEN 1047 (Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen) en NEN 3114 (Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities) [NE90, NE91]. Indien de analyse in tweevoud is uitgevoerd wordt het gemiddelde en de fout daarin gerapporteerd. Bij het schatten van de totale fout worden telfouten, kalibratiefouten en experimentele fouten meegenomen. Onder experimentele fouten vallen bijvoorbeeld fouten in wegingen en volumebepalingen.

Waar van toepassing, is voor de volumebepaling in de hoeveelheid bemonsterde lucht een fout van 1% opgenomen in de experimentele fout.

Een correctie voor de achtergrond is in alle gevallen meegenomen in de activiteitsberekening en in de foutenberekening.

- *Bepaling van de totaal alfa en bèta activiteitsconcentratie in afvalwater*
Hier wordt per analyse gebruikgemaakt van een preparaat zonder en een preparaat met een standaard, ieder met de eigen tel- en experimentele fouten. De totale fout in de totaal alfa-activiteitsconcentratie, respectievelijk totaal bèta activiteitsconcentratie, is dan samengesteld uit een telfout van het preparaat bestaande uit het monster, een telfout van het preparaat bestaande uit het monster inclusief de standaard, een kalibratiefout en een experimentele fout.
- *Bepaling van de totaal alfa en bèta activiteitsconcentratie in ventilatielucht*
Omdat bij de totaal alfa bepaling de invloed van de stoflaag op de telefficiëntie groot kan zijn en per monster verschillend wordt een onzekerheid van 30 % in de berekening van de totale fout verwerkt. De totale fout in de totaal alfa en totaal bèta activiteitsconcentratie in luchtstof is samengesteld uit een telfout van beide deelpreparaten, een kalibratiefout, een experimentele fout (inclusief de 1% onzekerheid als gevolg van het ponsen van een deel uit het gehele filter), en alleen voor totaal alfa de stoflaagonzekerheid van 30%.
- *Gammaspectrometrie*
Voor de gammastraling uitzendende nucliden vindt rapportage plaats met een aangegeven fout voortkomend uit telstatistiek, kalibratie, achtergrond, onzekerheid in de yield en monstervoorbehandeling. Indien er sprake is van cascadeverval dan is een extra fout toegevoegd aan de gerapporteerde activiteitsconcentraties.

3.7 Kwaliteitsborging

In het kader van de bewaking van de kwaliteit van de gebruikte analyse- en meetmethoden neemt RIVM jaarlijks deel aan het ringonderzoek 'Abwasser', georganiseerd door het Duitse Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) [Bf10]. Voor ventilatieluchtmonsters wordt indien mogelijk deelgenomen aan relevante ringonderzoeken.

3.8 Presentatie van resultaten en vergelijking

De bepaalde activiteitsconcentraties werden afgerond overgenomen uit de opgave van Urenco [UR10].

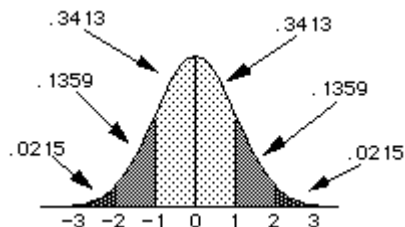
De overeenkomst tussen de meetresultaten van RIVM en die van de onderzochte nucleaire installatie (NI) wordt ingedeeld in één van de categorieën A1, A2, B, of C, die gekoppeld zijn aan een waarschijnlijkheid. Vergelijking vindt alleen plaats

als zowel RIVM als het onderzochte bedrijf een activiteit hebben aangetoond en opgegeven.

Het vergelijken van de gemeten waarden x_{NI} en x_{RIVM} is ook te verwoorden als het bepalen van het verschil $\Delta = x_{NI} - x_{RIVM}$. Het verschil tussen de meetwaarden wordt berekend uit de getallen zoals deze worden weergegeven, dus na afronding van de meetwaarde van RIVM (volgens NEN 1047 [NE91]). De fout¹ in dit verschil is: $s_{\Delta} = \sqrt{(s_{NI}^2 + s_{RIVM}^2)}$. Indien de NI geen opgave doet van de onzekerheid in het analyseresultaat, wordt verondersteld dat de fout in de meetwaarde van de NI, s_{NI} , gelijk is aan de fout in de meetwaarde van RIVM, s_{RIVM} .

Het is hierbij in het bijzonder van belang, dat alle partijen (RIVM en NI's) een gedegen foutenberekening uitvoeren. In het ideale geval², bij een voldoende groot aantal metingen van hetzelfde monster, ligt het gemiddelde ten opzichte van de toevallige variaties zeer dicht bij de 'ware waarde' en komt de standaarddeviatie van de meetwaarden overeen met de opgegeven fouten. Als de spreiding benaderd kan worden met de normale verdeling (zie figuur), dan kunnen de volgende frequenties of waarschijnlijkheden van voorkomen van de categorieën verwacht worden:

A1: $ \Delta \leq s_{\Delta}$	$\sim 68\%$, ofwel circa 2 uit 3
A2: $s_{\Delta} < \Delta \leq 2 s_{\Delta}$	$\sim 27\%$, ofwel circa 1 uit 4
B: $2 s_{\Delta} < \Delta \leq 3 s_{\Delta}$	$\sim 4,3\%$, ofwel circa 1 uit 20
C: $3 s_{\Delta} < \Delta $	$\sim 0,26\%$, ofwel circa 1 uit 400



In de praktijk wijkt de verdeling vaak af van de normale verdeling waardoor rekening gehouden moet worden met iets meer voorkomen van de categorie C dan hierboven wordt gesuggereerd. Veel vaker dan verwacht voorkomen van B's en C's is echter een aanwijzing voor niet onderkende, mogelijk systematische, fouten.

¹ (als $s_{NI} = s_{RIVM}$ dan $s_{\Delta} = s_{RIVM} \times \sqrt{2}$)

² Waarbij de systematische fouten klein zijn t.o.v. de toevallige fouten

4 Resultaten en discussie

4.1 Meetresultaten

De resultaten van de metingen door het RIVM en Urenco zijn te vinden in Bijlage A. In de tabellen staan tevens de meetonzekerheden (fouten) in de meetwaarden van het RIVM (zie paragraaf 3.6). Urenco gaf fouten op in de totaal alfa- en totaal bèta activiteitsconcentraties in afvalwater, maar niet in ventilatielucht.

4.2 Vergelijking van de resultaten

Het resultaat van de vergelijking (indien van toepassing) zoals beschreven in paragraaf 3.8 is in de tabellen van Bijlage A vermeld onder de kop 'V'. De vergelijking van de resultaten van Urenco met die van het RIVM is samengevat in *Tabel 3* en *Tabel 4*. In deze tabellen is tevens tussen haakjes het volgens een normale verdeling verwachte voorkomen aan categorieën A1-A2-B-C te zien. Zo is af te lezen of er significant meer of minder resultaten in een categorie vallen dan verwacht.

Afvalwater

De vergelijking van de totaal alfa, totaal bèta en gammaspectrometrie resultaten in afvalwater is gegeven in *Tabel 3*. Op basis van het betrekkelijk gering aantal vergelijkingsparen, namelijk acht, worden er alleen maar vergelijkingsresultaten van de categorie A1 en A2 verwacht.

In de totaal alfa resultaten is zesmaal A1 behaald. De totaal bèta resultaten gaven een A2, driemaal een B en driemaal een C te zien.

De gamma-activiteit wordt door Urenco bepaald met gammaspectrometrie met een GeLi detector; dit is beschreven in de tekst in Bijlage B. Urenco rapporteert in vier monsters een gamma-activiteit, RIVM in één monster. RIVM rapporteert de detectiegrens voor ^{234}Th , de kortlevende dochter van ^{238}U .

Tabel 3 : Overeenkomst van meetresultaten totaal alfa, totaal bèta en gammastralers in afvalwater

	Totaal- α	Totaal- β	gamma-stralers
1 CSB	A1	B	
2 CSB	A1	B	
3 SP5		B	
4 CSB	A1	C	A1
5 CSB	A1	C	
6 CSB	A1	C	
7 SP5			
8 CSB	A1	A2	

Door het geringe aantal vergelijkingsparen is er geen verwachting van het aantal A1-A2-B-C gegeven. Er wordt slechts categorie A1 en A2 verwacht.

Ventilatielucht

Tabel 4 bevat een samenvatting van de vergelijkingsresultaten van de totaal alfa en totaal bèta bepalingen in ventilatieluchtmonsters. Er konden 30 vergelijkingen worden gemaakt: 14-maal A1, zesmaal A2, vijfmaal B en vijfmaal C.

Tabel 4 : Overeenkomst van meetresultaten activiteitsconcentraties totaal alfa en totaal bèta in ventilatielucht

Periode	SP4		SP5-1MA5		SP5-2MA5		CSB		
	alfa	bèta	alfa	bèta	alfa	bèta	alfa	bèta	
07 feb - 14 feb	A2	A1					A1	B	
21 feb - 28 feb		A2					A1	A1	
02 mei - 09 mei		A2							C
30 mei - 06 jun		B					A1	C	
01 aug - 08 aug	A1	B					A1	C	
08 aug - 15 aug	A1	A2					A1	C	
26 sep - 03 okt	A1	A2					A1	B	
24 okt - 31 okt	A1	A2					A1	B	som
31 okt - 07 nov							A1	C	
ΣA1	4	1	0	0	0	0	8	1	14
ΣA2	1	5	0	0	0	0	0	0	6
ΣB	0	2	0	0	0	0	0	3	5
ΣC	0	0	0	0	0	0	0	5	5
Totaal	5	8	0	0	0	0	8	9	30

Er is duidelijk te zien dat de totaal alfa meetresultaten zich volgens de meetverwachting gedragen: 20-maal A1/A2. De totaal bèta resultaten laten met zevenmaal A1/A2, vijfmaal een B en vijfmaal een C zien dat de vergelijking bemoeilijkt wordt door het feit dat de activiteitsconcentraties in de buurt liggen van de natuurlijke achtergrond. Zie ook paragraaf 4.3 bij 'ventilatielucht' en de 'radon-exhalatie van de betonnen verrijkingshallen'.

4.3

Discussie

Afvalwater

De goede overeenkomst in de totaal alfa data van deze periode zet de bevindingen in de voorgaande perioden voort.

De vergelijkingsresultaten in de totaal bèta data worden beïnvloed door de monsters 1, 2, 5 en 7, waarin van een bèta overschot sprake is. Dit bèta overschot wordt veroorzaakt door de kortlevende dochters van ^{238}U : ^{234}Th ($T_{1/2} = 24,1$ d) en $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ($T_{1/2} = 1,1$ min). Het overschot vervalt in de tijd tussen monsternamen en meting bij benadering naar de totaal alfa waarde. Bij het uitvoeren van een ^{234}Th -vervalcorrectie is van de veronderstelling uitgegaan dat bij radiologisch evenwicht de totaal alfa en totaal bèta activiteit (ongeveer) gelijk aan elkaar zijn. Dit is bij afwijkingen van de natuurlijke verhouding van $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ niet het geval. Aangezien het onduidelijk is in welke mate de daadwerkelijke $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ verhouding in het monster afwijkt van de natuurlijke verhouding is het onredelijk om een 'perfecte' overeenkomst, een A1, te verwachten.

In Tabel 5 zijn de ^{234}Th correcties in alle monsters behalve 7 weergegeven. Corrigeren voor verval van ^{234}Th doet de overeenkomst tussen de waarde van Urenco en het RIVM drastisch verbeteren: van $A2 + 3xB + 3xC$ naar $4xA1 + 2xA2$ en één C. Zie tabel 5.

Hierbij is aangenomen dat Urenco de meting uit heeft gevoerd op de dag van monsternamen. De correcties zijn uitgevoerd uitgaande van :

- het aantal dagen verschil tussen de monsterdatum van Urenco en de meetdatum van het RIVM
- het verschil in totaal alfa en totaal bèta activiteit in de Urenco-data
- de halfwaardetijd van ^{234}Th (24,1 dagen).

Tabel 5 : Overeenkomst van meetresultaten (kBq.m^{-3}) activiteitsconcentraties totaal bèta in afvalwater na correctie voor ingroei of verval van ^{234}Th

Nr.	totaal-beta ongecorrigeerd			Urenco waarde voor totaal-beta met verval Th-234 V	
	RIVM	V	Urenco		
1	2,7 ± 0,2	B	4,8 ± 1,0	2,4 ± 0,5	A1
2	2,22 ± 0,17	B	4,7 ± 1,1	2,1 ± 0,5	A1
3	0,55 ± 0,09	B	2,2 ± 0,8	1,1 ± 0,4	A2
4	13,4 ± 0,9	C	23 ± 2	15,6 ± 1,4	A2
5	11,5 ± 0,8	C	16,7 ± 1,3	8,1 ± 0,6	C
6	7,0 ± 0,6	C	11,1 ± 1,1	7,6 ± 0,7	A1
7	< 0,4		< 1,4		
8	2,43 ± 0,18	A2	3,6 ± 0,9	1,9 ± 0,5	A1

* de fout van Urenco is ingeschat op basis van de relatieve fout in de eerste meting.

Ventilatielucht

Volgens afspraak met VI-KFD onderwerpt het RIVM de luchtfilters aan een nader onderzoek indien de totaal alfa activiteit > 0,1 Bq/filter of de totaal bèta activiteit > 0,5 Bq/filter. In 2010 is het enkele malen voorgekomen dat deze grenzen zijn overschreden; zie tabel A3. Er is door beide instituten een licht verhoogde totaal alfa activiteit waargenomen met een A1 in twee CSB-filters en één SP4 filter.

In de CSB filters van de perioden 21 - 28 feb en 31 okt - 7 nov zijn hermetingen met de roosterionisatiekamer voor een nadere analyse van de alfa-activiteit uitgevoerd: resultaat $1,21 \text{ mBq.m}^{-3}$, respectievelijk $2,81 \text{ mBq.m}^{-3}$. In beide gevallen was de maximum alfa-energie ca. 4,8 MeV, hetgeen overeenkomt met de alfa-energie van ^{234}U .

Er is in 2010 tweemaal (bij CSB in dezelfde weken als bij hierboven bij totaal alfa) een overschrijding van de totaal bèta grens van 0,5 Bq/filter geweest. Er is nader gamma-spectrometrisch onderzoek uitgevoerd aan de ventilatielucht-filters. In de periode 21 - 28 feb is $(1,1 \pm 0,1) \text{ mBq.m}^{-3}$ van de beta/gamma-straler ^{234}Th aangetoond, en in de periode 31 okt - 7 nov $(2,9 \pm 0,2) \text{ mBq.m}^{-3}$ aan ^{234}Th en $(0,08 \pm 0,02) \text{ mBq.m}^{-3}$ ^{235}U .

In het SP4 filter van week 24-31 okt is een hermeting uitgevoerd met de roosterionisatiekamer voor een nadere analyse van de alfa-activiteit: resultaat resultaat $0,44 \text{ mBq.m}^{-3}$. Uit het alfa-spectrum bleek de alfa-activiteit voor het grootste deel door uraan-isotopen (< 4,8 MeV) en een klein deel waarschijnlijk door Po-210 veroorzaakt te zijn (ca. 5,3 MeV).

Radonexhalatie van de betonnen verrijkingshallen

RIVM heeft aannemelijk gemaakt dat de totaal alfa en totaal bèta activiteit op de ventilatieluchtfilters van CSB hoogstwaarschijnlijk te wijten is aan radonochters afkomstig van radon in de buitenlucht [Kw04]. Radon emaneert echter ook uit de betonnen oppervlakken van de verrijkingshallen. Het is mogelijk om een schatting te maken van de som van radon uit de buitenlucht + uit beton geëmaneerd radon. Dit radonniveau, en niet de detectiegrens van de apparatuur, beïnvloedt in grote mate de bepaalbaarheidsgrens voor totaal alfa en totaal bèta afkomstig van uraan. Deze zogenaamde radonruis kan omgerekend worden naar een realistische ondergrens voor de bepaling van totaal alfa en totaal bèta op de ventilatieluchtfilters.

Toelichting

Radon vervalft via een aantal kortlevende dochternucliden naar ^{210}Pb + dochter ^{210}Bi . Dit nuclide is een bèta/gammastraler en vervalft naar de (relatief langzaam) ingroeïende alfastraler ^{210}Po . Dit heeft als logisch gevolg dat de aanwezigheid van het edelgas radon in ventilatielucht uiteindelijk leidt op het filter tot een lage totaal alfa en totaal bèta activiteit die niet het gevolg is van een uraanlozing.

Schatting van totaal bèta als gevolg van radon in ventilatielucht

Met de aannames die gemaakt zijn in het bovengenoemde rapport [Kw04] is voor SP2, SP4, SP5 en CSB een schatting gemaakt van de radonexhalatie uit betonnen oppervlakken. Dit leidt tot de productie van de bètastralers ^{210}Pb + ^{210}Bi . De daaruit volgende ^{210}Po -alfa activiteit is na 30 dagen voor 14% ingegroëid ; dit houdt in dat de tijd tussen meting door Urenco en het RIVM van groot belang is voor de vergelijking van totaal alfa. Deze tijd kan in praktijk variëren tussen 10 en meer dan 80 dagen waardoor het vergelijken van totaal alfa data weinig zin heeft bij lange wachttijden voor het meten. In de onderstaande tabel worden de geschatte totaal bèta waarden vergeleken met daadwerkelijk aangetroffen totaal bèta waarden; de totaal alfa data zijn om de bovengenoemde reden buiten de tabel gehouden.

Tabel 6: Totaal bèta als gevolg van radon en reëel gemeten waarden (mBq.m⁻³)

Plant	Totaal bèta gemeten (RIVM)	Totaal bèta gemeten (Urenco)	Totaal bèta (berekend uit radon)	Ondergrens (berekend uit radon)
SP4	0,04 – 0,19	0,12 – 0,3	0,09	0,18
SP5	< 0,02	< 0,5	0,016	0,03
CSB	0,02 – 0,12	< 0,027- 0,2	0,01	0,02 (0,06)
Buitenlucht – Bilthoven*		0,2 – 1,0		

* De waarde voor totaal bèta in luchtstof bemonsterd te Bilthoven is bepaald met de High Volume Sampler. Per week wordt circa 50.000 m³ aangezogen en geanalyseerd.

De onzekerheden in de berekende totaal bèta waarden zijn groot. Dit komt door o.a. door onzekerheden in de schattingen van het betonoppervlak, in de radon exhalatie uit beton en schattingen van de flow door het betreffende gebouw. Ook de natuurlijke variatie van radon in de buitenlucht speelt een rol. Een overall onzekerheid laat zich lastig kwantificeren, maar het is aannemelijk dat een bandbreedte van een factor 2 ongeveer het minimum is. Dit is namelijk de spreiding in de radonexhalatie in betonnen oppervlakken die volgens het Basisdocument Radon kan variëren tussen 0,5 en 1 mBq.m⁻².s⁻¹ [Ba91].

Vaststelling van ondergrens voor totaal-bèta

Met de data uit Tabel 6 en een ruime marge van een factor 2 is een ondergrens voor totaal bèta eenvoudig berekend. Onder deze grens heeft het uitvoeren van contra expertise geen nut omdat er feitelijk radondochters met elkaar worden vergeleken. Voor CSB valt de berekende ondergrens van 0,02 mBq.m⁻³ precies op de detectiegrens. Het lijkt realistisch om de totaal bèta ondergrens voor CSB minimaal een factor 3 daarboven te kiezen: 0,06 mBq.m⁻³.

Toepassing op ventilatieluchtdata 2010

Indien we de in Tabel 6 genoemde ondergrens voor totaal bèta toepassen op de data van 2010 dan blijven de waarden boven die ondergrens over. Er blijft dan voor SP4 één waarde (A2), en voor SP5 1MA en 2MA geen waarde over. Voor CSB resteren de waarden van periode 21-28 feb (A1), 26 sep – 3 okt (B), 24 okt – 31 okt (B) en 31-okt-7 nov (C). De CSB waarden van 26 sep – 3 okt en 24 okt – 31 okt zijn enigszins afwijkend van de overige verhogingen bij CSB. De twee overschrijdingen van de berekende ondergrens voor totaal bèta ($> 0,06 \text{ mBq.m}^{-3}$) gaan namelijk niet gepaard met een verhoging bij totaal alfa, terwijl dat bij de CSB filters van 21-28 feb en 31 okt -7 nov wel het geval is. RIVM zal het beoordelen van overschrijdingen van de totaal bèta ondergrens voortaan koppelen aan een verhoging in de totaal alfa activiteitsconcentratie. Is er geen sprake van een gelijktijdige totaal alfa verhoging, dan wordt de totaal bèta verhoging als radon-ruis beoordeeld.

Het blijft een probleem dat de geschatte radon-exhalatie van de betonoppervlakken hoogst onzeker is, dat de concentratie aan radon in buitenlucht wel degelijk een rol speelt, en dat die concentratie sterk kan variëren. Het is in praktijk echter erg bewerkelijk om continu de buitenluchtconcentratie aan radon te monitoren alleen maar om de totaal bèta ondergrens nauwkeuriger vast te stellen.

4.4 Algemeen oordeel over de contra expertise resultaten

De trend van deze contra expertise is dat de afvalwater resultaten in activiteitsconcentratie erg laag zijn en daardoor een grote statistische spreiding vertonen. De totaal alfa resultaten in afvalwater vertonen net als in de voorgaande jaren een goede vergelijking met de RIVM resultaten. Logische uitzondering zijn de totaal bèta resultaten in afvalwater, veroorzaakt door verval van de kortlevende ^{234}Th -dochter van ^{238}U .

Schattingen tonen aan dat radon exhalatie uit de betonnen oppervlakken van de fabriekshallen een aanzienlijk deel van de totaal alfa en totaal bèta-activiteit op ventilatieluchtfilters veroorzaakt. Wordt hiervoor gecorrigeerd dan blijven slechts enkele verhogingen over die een geringe uraanlozing betreffen: tweemaal bij CSB en éénmaal bij SP4. Hierbij is de overeenstemming tussen de meetresultaten van Urenco en RIVM A1, A2 en een C.

5 Referenties

- [Bas91] Basisdocument radon. LH Vaas, et al., RIVM rapport 710401014, Bilthoven
- [Bf10] I. Krol, Ch. Hohmann, A. Labahn. Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2010", August 2010, SW 1 – 03/2010, Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich SW, Berlin/München, Duitsland.
- [KT02] KTA 1503.1. Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffen gebundener radioaktiver Stoffe. Teil 1: Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminfortluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb, KTA, 2002.
- [KT06] KTA 1504. Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Wasser. KTA, 2006.
- [Kw04] Kwakman PJM en P. Stoop. Evaluatie van controlemetingen door het RIVM van luchtzijdige emissies van Urenco Nederland B.V. RIVM/LSO rapport 231/04.
- [Kw09] Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van Urenco Nederland B.V. Periode 2009. RIVM rapport 610330130/2012.
- [NE90] NEN 3114. Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, augustus 1990.
- [NE91] NEN 1047. Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen. Nederlands Normalisatie Instituut, 1991.
- [NE06] NEN 5636: 2006. Radioactiviteitsmetingen. Bepaling van de kunstmatige totaal alfa-, kunstmatige totaal bèta-activiteit en gammaspectrometrie van luchtfilters en berekening van de volumieke activiteit van de bemonsterde lucht. Nederlands Normalisatie Instituut, 2006.
- [UR10] Urenco Nederland B.V. Rapportage Lucht- en waterlozingen (brieven):
2010 kwartaal 1 COM/10/0985, 29 april 2010.
2010 kwartaal 2 en 3, COM/11/0238, 8 februari 2011.
2010 kwartaal 4, COM/11/0889, 3 mei 2011.
- [Ur11a] Milieujaarverslag Urenco 2010 (com/11/0612).
- [Ur11b] Urenco notitie d.d. 27 juli 2011 met kenmerk COM/11/1377 van F. Tuenter aan KFD (Breas, Rozema) en RIVM (Kwakman):
"Reactie op RIVM rapportages nav overleg KFD / RIVM / Urenco".
- [RI10] Jaarplan project 610330 - 2010. Brief H.A.J.M. Reinen van RIVM/LSO aan P.J.W.M Müskens van VROM-Inspectie KFD, briefnr. LSO 007/10 REI/Kwa/ak d.d. 11 januari 2010.
- [VI07] Brief van R.D. Woittiez, directeur sector RIVM-MEV, aan P.J.W.M. Müskens, directeur VROM-KFD, kenmerk VI/KFD/2007069434.526, datum 30 juli 2007.

Bijlage A Vergelijking meetresultaten

Tabel A1 : Vergelijking activiteitsconcentraties totaal alfa, totaal bèta en gammastralers in afvalwater ($\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$)

Nr.	Datum	Plant	Totaal- α			Totaal- β			γ -stralers		
			RIVM	V	Urenco	RIVM	V	Urenco	RIVM	V	Urenco
1	26 januari 10	CSB	$1,67 \pm 0,18$	A1	$2,1 \pm 0,5$	$2,7 \pm 0,2$	B	$4,8 \pm 1,0$	< 7		$2,4 \pm 1,2$
2	17 februari 10	CSB	$1,50 \pm 0,16$	A1	$1,4 \pm 0,3$	$2,22 \pm 0,17$	B	$4,7 \pm 1,1$	< 40		< 0,5
3	18 mei 10	SP5	< 0,11		< 0,3	$0,55 \pm 0,09$	B	$2,2 \pm 0,8$	< 9		< 1,1
4	15 juni 10	CSB	$10,3 \pm 1,0$	A1	11 ± 2	$13,4 \pm 0,9$	C	23 ± 2	8 ± 4	A1	14 ± 6
5	21 juli 10	CSB	$5,8 \pm 0,7$	A1	$6,3 \pm 1,3$	$11,5 \pm 0,8$	C	$16,7 \pm 1,3$	< 7		9 ± 6
6	28 juli 10	CSB	$5,6 \pm 0,7$	A1	$6,6 \pm 1,2$	$7,0 \pm 0,6$	C	$11,1 \pm 1,1$	< 7		11 ± 4
7	12 oktober 10	SP5	< 0,11		< 0,3	< 0,4		< 1,4	< 8		< 0,5
8	9 november 10	CSB	$1,41 \pm 0,15$	A1	$1,2 \pm 0,3$	$2,43 \pm 0,18$	A2	$3,6 \pm 0,9$	< 19		< 0,5

* de detectiegrens gegeven door het RIVM betreft ^{234}Th .

De RIVM-detectiegrens voor de volgende gammastralers is : $0,7 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ voor ^{60}Co en ^{137}Cs , en $3 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ voor ^{235}U .

Tabel A2 : Nuclidenbibliotheek gebruikt voor bepaling van gammastralers

^{238}U reeks	^{232}Th reeks	^{235}U reeks	Overige nucliden
^{234}Th	^{228}Ac	^{235}U	^7Be
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{212}Pb	^{231}Pa	^{40}K
^{226}Ra	^{212}Bi	^{227}Th	^{60}Co
^{214}Pb	^{208}Tl	^{219}Rn	^{137}Cs
^{214}Bi			

Tabel A3 : Meetresultaten activiteitsconcentraties totaal alfa in ventilatielucht (mBq m⁻³)

Periode	SP4			SP5-1MA5			SP5-2MA5			CSB		
	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL
07 feb - 14 feb	0,030 ± 0,010	A2	0,016	< 0,04	< 0,06	< 0,06	< 0,04	< 0,06	< 0,06	0,013 ± 0,004	A1	0,010
21 feb - 28 feb	0,011 ± 0,004	< 0,006		0,036 ± 0,013	< 0,06	< 0,06	0,038 ± 0,014	< 0,06	< 0,06	1,5 ± 0,5	A1	2,2
02 mei - 09 mei	0,009 ± 0,003	< 0,006		< 0,03	< 0,06	< 0,06	< 0,03	< 0,06	< 0,06	0,006 ± 0,002	< 0,006	
30 mei - 06 jun	0,014 ± 0,005	< 0,005		0,030 ± 0,011	< 0,05	< 0,03	< 0,03	< 0,05	< 0,05	0,008 ± 0,003	A1	0,008
01 aug - 08 aug	0,017 ± 0,006	A1	0,013	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,06	0,011 ± 0,004	A1	0,014
08 aug - 15 aug	0,017 ± 0,006	A1	0,018	< 0,03	< 0,05	< 0,03	< 0,03	< 0,05	< 0,05	0,008 ± 0,003	A1	0,006
26 sep - 03 okt	0,017 ± 0,006	A1	0,012	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,03	< 0,06	< 0,06	0,010 ± 0,003	A1	0,010
24 okt - 31 okt	0,6 ± 0,2	A1	0,62	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,06	< 0,06	< 0,06	0,012 ± 0,004	A1	0,018
31 okt - 07 nov										3,4 ± 1,1	A1	4,8

- In het SP4 filter van 24-31 oktober is een hermeting uitgevoerd met de roosterionisatiekamer. Resultaat 0,44 mBq.m⁻³; de alfa pieken in het spectrum komen overeen met de E_{max} van uraanisotopen en ²¹⁰Po.

- In de CSB filters van 21-28 feb en 31 okt-7 nov is een hermeting uitgevoerd met de roosterionisatiekamer, Resultaat 1,21 mBq.m⁻³ resp., 2,81 mBq.m⁻³; de alfa pieken in het spectrum komen overeen met de E_{max} van uraanisotopen.

Tabel A4 : Vergelijking activiteitsconcentraties totaal bèta in ventilatielucht (mBq m⁻³)

Periode	SP4			SP5-1MA5			SP5-2MA5			CSB		
	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL
07 feb - 14 feb	0,17 ± 0,02	A1	0,19	< 0,11	< 0,3	< 0,3	< 0,12	< 0,3	< 0,3	0,042 ± 0,007	B	0,088
21 feb - 28 feb	0,074 ± 0,011	A2	0,108	< 0,11	< 0,3	< 0,3	< 0,12	< 0,3	< 0,3	1,39 ± 0,18	A1	1,34
02 mei - 09 mei	0,034 ± 0,008	A2	0,068	< 0,11	< 0,3	< 0,3	< 0,11	< 0,3	< 0,3	0,025 ± 0,005	C	0,089
30 mei - 06 jun	0,073 ± 0,011	B	0,14	< 0,10	< 0,2	< 0,3	< 0,11	< 0,3	< 0,3	0,055 ± 0,008	C	0,131
01 aug - 08 aug	0,076 ± 0,012	B	0,128	< 0,11	< 0,3	< 0,3	< 0,11	< 0,4	< 0,4	0,057 ± 0,008	C	0,16
08 aug - 15 aug	0,081 ± 0,012	A2	0,112	< 0,10	< 0,4	< 0,3	< 0,10	< 0,4	< 0,4	0,044 ± 0,007	C	0,126
26 sep - 03 okt	0,129 ± 0,018	A2	0,19	< 0,11	< 0,3	< 0,3	< 0,11	< 0,3	< 0,3	0,096 ± 0,013	B	0,15
24 okt - 31 okt	0,48 ± 0,06	A2	0,37	< 0,11	< 0,3	< 0,3	< 0,11	< 0,3	< 0,3	0,090 ± 0,012	B	0,16
31 okt - 07 nov										3,5 ± 0,5	C	1,6

In de CSB filters van 21-28 feb en 31 okt-7 nov is een hermeting uitgevoerd met gammaspectrometrie. Resultaat (1,1 ± 0,4) mBq.m⁻³ aan ²³⁴Th, respectievelijk (2,9 ± 1,2) mBq.m⁻³ ²³⁴Th en (0,08 ± 0,02) mBq.m⁻³ ²³⁵U.

Bijlage B Gegevens van Urenco : Analyse van afvalwatermonsters voor lozing op het riool

Uitgave 08, indiener B. Kamp. Ontvangen oktober 2010.

2 ALGEMEEN

Van de verschillende afvalwatertanks worden monsters aangeboden aan het chemisch laboratorium. Afvalwater bestemd voor het riool wordt, na controle en vrijgave op activiteit en door Compliance, geloosd op het riool.

3 TAKEN, BEVOEGDHEDEN EN VERANTWOORDELIJKHEDEN

Het is de taak en de verantwoordelijkheid van REC en SO zorg te dragen voor een correcte monstername.

Het is de taak van de Technician Chemistry de aangegeven werkzaamheden te volgen.

Het is de taak en de verantwoordelijkheid van Compliance om analyses van afvalwater bestemd voor het riool te controleren en binnen de limieten vrij te geven voor lozing op het riool.

4 BESCHRIJVING VAN DE WERKWIJZE

4.1 Apparatuur

- pH-meter.
- Droogstoof.
- Gammadetector.
- ICP-AES
- Alpha / beta detector
- Afvalwaterplaten Ø 22 cm

4.2 Werkwijze

4.2.1 pH

De pH van het monster wordt gemeten met behulp van een pH-meter.

Vervolgens wordt bepaald hoeveel NaOH respectievelijk HNO₃ moet worden toegevoegd om de pH van de oplossing tussen 6.5 en 9 te brengen (HNO₃ 65% en NaOH 33%).

4.2.2 Vaste stofgehalte

Het vaste stofgehalte wordt bepaald volgens voorschrift NEN 3235. In plaats van een indampschaal mag ook een bekersglas worden gebruikt of de plaat die wordt gebruikt voor alfa en beta analyse.

4.2.3 Bepaling van α en β

Aan een 2 liter monster wordt 30 ml HNO_3 (65%) toegevoegd (NVN 5625) waarna de monsterpot minimaal 16 uur in een stoof wordt verwarmd bij 60°C. Vervolgens wordt het monster warm opgesplitst en 900 ml ter beschikking gesteld aan het RIVM. De resterende 1100 ml wordt gebruikt voor de analyse van alfa, beta en gamma.

Per monster worden vervolgens 6 afvalwaterplaten gemaakt;

A) 3 platen met 100 ml monster en

B) 3 platen met 100 ml monster + 100 μl gecertificeerde standaard

(efficiency bepaling).

Tevens worden 2 blanco platen gemeten. De afvalwaterplaten worden minimaal 16 uur gedroogd in een stoof bij 60°C. De activiteit wordt bepaald, gebruik makend van de FHT-8000 en de gemiddelde waarden van zowel A als B.

Er dient een "Quality Control meting" uitgevoerd te worden met een "alfa wide area reference source UAR 17021 Uranium 238" bij iedere serie metingen.

4.2.4 Bepaling van gamma-activiteit

De gamma-activiteit wordt nuclidespecifiek bepaald op de germaniumdetector.

De totale activiteit wordt berekend door de activiteit in Bq/l van alle afzonderlijke aangetoonde nucliden te sommeren.

De totale fout in de activiteit wordt berekend met de volgende formule:

$$f_{\text{out in } \gamma\text{-activiteit}} = \sqrt{\sum f_{\text{out}}^2}$$

Indien geen nucliden zijn aangetoond wordt voor de totale gamma-activiteit de minimale detectie van ^{60}Co opgegeven.

4.2.5 Berekening en foutenberekening

4.2.5.1 α en β berekeningen

De resultaten worden volgens onderstaande formules uitgerekend.

$$\text{efficiency monster\%} = \left(\frac{(\text{countsS} - \text{countsM})}{(\text{Astd} \times \text{VolumeS}) \times 60} \right) \times 100\% \quad (1)$$

Met deze formule wordt de efficiency bepaald die nodig is om de activiteit te berekenen.

CountsS is het aantal counts α en β per minuut voor de plaat met monster + ijkoplossing

CountsM is het aantal counts α en β per minuut voor de monsterplaat

Astd is de activiteit van de standaardoplossing in Bq/ml

VolumeS is het opgebrachte volume in ml

$$f_{\text{out in efficiency\%}} = \sqrt{\left(\frac{\text{countsM}}{\text{Mtijd}} + \frac{\text{countsS}}{\text{Stijd}} \right) * \frac{\sigma}{(\text{countsS} - \text{countsM})}} * 100 \quad (2)$$

De fout in efficiency wordt bepaald bij $\sigma = 1$

Mtijd is de teltijd van het monster in minuten

Stijd is de teltijd van het monster + ijkoplossing in minuten

$$\text{totale fout efficiency\%} = \sqrt{\left(f_{\text{out in efficiency}}^2 \text{ (zie 2)} + \text{Expfout}^2 + \text{bronfout}^2 \right)} \quad (3)$$

Bij de totale fout in efficiency wordt een experimentele fout van 3% meegenomen

Expfout is de experimentele fout, is 3%

Bronfout is fout in activiteit van de standaard, is 2.5% bij 1 sigma

$$activiteit \text{ kBq/m}^3 = \frac{\frac{countsM - countsNul}{efficiency \text{ monster (zie 1)}}}{\frac{volumeM}{0.6}} \quad (4)$$

Met deze formule wordt de activiteit berekend

CountsNul is het aantal counts α en β per minuut voor de nulmeting

VolumeM is het volume van ingedampde hoeveelheid afvalwater in liter

$$fout \text{ in activiteit} \% = \sqrt{\left(\frac{countsM}{Mtijd} + \frac{countsNul}{Ntijd}\right) * \frac{\sigma}{(countsM - countsNul)}} * 100 \quad (5)$$

De fout in activiteit wordt bepaald bij $\sigma = 1$

Ntijd is de teltijd van de nulmeting in minuten

Bij de totale fout moet tevens rekening gehouden worden met de spreiding die aanwezig is tussen de afvalwaterplaten. Deze fout is o.a. afhankelijk van de verdeling van de vaste stof over de plaat. Deze fout wordt ook wel de verdelingsfout genoemd.

$$totale \text{ fout activiteit} \% = \sqrt{\left(fout \text{ activiteit}^2 \text{ (zie 5)} + fout \text{ efficiency}^2 \text{ (zie 1)} + Expfout^2 + verdelingsfout^2\right)} \quad (6)$$

Bij de totale fout in activiteit wordt een experimentele fout van 3% meegenomen

4.2.5.2 Kwartaaloverzichten

Ieder kwartaal wordt een overzicht gemaakt van alle lozingen in de desbetreffende periode. Bij het sommeren van data tot kwartaaltotalen worden de fouten met behulp van onderstaande formule gesommeerd. (zie LSO/KD/0259, versie 3/2/98, hoofdstuk 8 aggregatie van data)

$$Kwartaalfout = \sqrt{\sum fout^2}$$

7 DOCUMENTATIE en ARCHIVERING

De resultaten van de uitgevoerde analyse worden gerapporteerd middels een analyseformulier aan de teamleader CS-PA en opgeslagen in een database bestand op het chemical laboratory. De monsters worden minimaal 1 jaar door CS-EA bewaard

Bijlage C Gegevens van Urenco - Het off-line analyseren van bestofte glasfaserfilters op alfa en beta totaalactiviteit met behulp van een "groot oppervlak" ArCH₄ Proportionele telkamer meetopstelling

2 WERKWIJZE

Analyse-voorbereiding:

De te analyseren filters dienen voor analyse tenminste 1 week opgeslagen te worden.

Op de analyse-envelop dienen de volgende gegevens aanwezig te zijn:

- plant en monitornummer
- beginstand flowmeter
- eindstand flowmeter
- data filterwisseling (ook aangegeven op het filter zelf)
- reden filterwisseling

Indien één of meer van deze voorwaarden niet aanwezig of onduidelijk is moet contact worden opgenomen met de operationeel beheerder.

Controleer of het filter onbeschadigd is en of het filter bestoft is aan één zijde. Controleer of het filter regelmatig over het oppervlak bestoft is.

Indien er een afwijking is, dient de operationeel beheerder gewaarschuwd te worden voor een correctieve actie.

Controleer of de beschikbare "ArCH₄ Proportionele Telkamer Meetopstelling" juist werkt:

- Er dient vooraf aan de meting een "nulmeting" uitgevoerd te zijn. Deze nulmeting mag niet ouder zijn dan één week. De teltijd voor deze meting is minimaal 200 minuten.
- Er dient een "Quality Control meting" uitgevoerd te worden met een "alfa wide area reference source UAR 17021 Uranium 238" bij iedere serie metingen.

Analyse:

Plaats de te meten filter(s) in de "ArCH₄ Proportionele Telkamer Meetopstelling".

Teltijd is minimaal 100 minuten. Start de meetsequence. Aan het eind van de analyse(s) dienen tenminste de volgende meetresultaten opgeslagen worden in een database bestand op het chemical laboratory:

- alfa pulsen in cpm (netto)
- beta pulsen in cpm (netto)
- monitor nummer
- datum analyse
- begindatum van filtermonster, einddatum van filtermonster

De analyseresultaten worden tenminste 5 jaar gearchiveerd in LIMS. Stuur de geanalyseerde filters naar CS-EA in de originele analyse-envelop. De geanalyseerde filters worden door CS-EA opgeslagen.

Bijlage D Schatting van radon exhalatie van Urenco fabriekshallen; situatie in 2010.

In de onderstaande tabel zijn de variabelen zoals door RIVM gedefinieerd in [Kw04] toegepast op de genoemde Urenco-fabriekshallen.

Tabel D1 : Schatting van radonexhalatie

variabelen (eenheid):	SP4	SP5 1MA	SP5 2MA	CSB
Area-beton (m2)	6.00E+03	8.00E+03	4000	3150
Exhalatie-beton (Bq/s per m2)	5.00E-04	5.00E-04	5.00E-04	5.00E-04
Productie-radon (Bq/s)	3.0	4.0	2.0	1.575
Flow door gebouw (m3/s)	15	60	30	24.5
Deelflow door UNL-filter (m3/week)	8000	1400	1400	14800
Deelflow door UNL filter (m3/s)	0.0132	0.0023	0.0023	0.0245
Deelflow door geponst filter (m3/week)	480	85	85	530
Deelflow door geponst filter (m3/s)	0.00079	0.00014	0.0001	0.0009
Volume van gebouw (m3)	4.46E+05	3.20E+05	1.60E+05	64512
Ventilatievoud (s-1)	3.43E-05	1.88E-04	1.88E-04	3.79E-04
Lambda radon (1/s)	2.10E-06	2.10E-06	2.10E-06	2.10E-06
lambda 210Pb (1/s)	1.00E-09	1.00E-09	1.00E-09	1.00E-09
lambda 210Po (1/s)	5.80E-08	5.80E-08	5.80E-08	5.80E-08
Act Rn (Bq/m3)	3.2	3.1	3.1	3.1
Act Rn-buiten (Bq/m3)	3.0	3.0	3.0	3.0
C_d Conc radondochters (N/m3)	9.32E+04	1.64E+04	1.64E+04	8.08E+03
Act (210Pb) [Bq/UNL-filter,week]	0.746	0.023	0.02	0.12
RIVM-filter (mBq/week)	44.7	1.4	1	4.3
RIVM-filter (berekend mBq/m3)	0.09	0.016	0.016	0.008
RIVM-filter (gemeten mBq/m3)	0,03 - 0,5	< 0,11	< 0,12	0,03 - 3,5

* Gegevens voor SP5 aangeleverd door F. Tuenter [Ur11b]

- Flow door gebouw = 54000 m3/h per hal
- SP5 filter 1 betreft 4 hallen
- SP5 filter 2 betreft 2 hallen (situatie 2011).
- Betonoppervlak SP5 is ~2000 m2 / hal
- Deelflow door SP5 UNL-filter : 1400 m³/week.

Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu**

Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven
www.rivm.nl