



Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu

*Ministerie van Volksgezondheid,  
Welzijn en Sport*

**Contra-expertise op bepalingen  
van radio-activiteit van afvalwater  
en ventilatielucht van Urenco  
Nederland BV.**

*Periode 2009*

RIVM rapport 610330130/2012

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 2009

RIVM Rapport 610330130/2012

## 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 2009.**

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 2009. Indien de totaal bèta resultaten gecorrigeerd worden voor verval van  $^{234}\text{Th}$  dan verbetert de overeenkomst van matig naar redelijk.

De radioactiviteit in ventilatielucht ligt zeer dicht bij het niveau van de hoeveelheid radon die van nature in buitenlucht aanwezig is. In 2009 is er in SP4 een vrijzetting geweest van een geringe hoeveelheid  $\text{UF}_6$ . Dit is zowel in de totaal alfa als de totaal bèta activiteit in de betreffende week (6-11 september) goed waarneembaar. De overeenkomst in de meetresultaten is goed.

Het RIVM heeft in acht afvalwatermonsters en 32 monsters van ventilatielucht, die verspreid over het jaar 2009 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 2009.**

Within the framework of a monitoring programme, the RIVM measures the release of radioactivity into the waste water and atmosphere of the Urenco uraan 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 was also the case in 2009. After correction of the gross beta results for the decay of  $^{234}\text{Th}$  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 2009, a release of  $\text{UF}_6$  occurred in SP4. This was well observed in both gross alpha and gross beta measurements of the week in question (6-11 september). The agreement in the results was good.

The RIVM determined the gross alpha and gross beta activity in eight waste water samples and 36 samples of ventilation air. The samples were taken by Urenco at time points dispersed throughout 2009. 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—12

**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 totaal-activiteit met behulp van een "groot oppervlak ArCH<sub>4</sub> Proportionele telkamer meetopstelling—24**

**Bijlage D Schatting van radon exhalatie van Urenco fabriekshallen; situatie in 2009—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 2009.

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 2009.

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. 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 van  $^{234}\text{Th}$  tussen monstername en meting een verbetering in de overeenkomst. Er blijft echter nog meer verbetering in de overeenkomst mogelijk, bijvoorbeeld door het corrigeren van de totaal bèta meetwaarden voor de bijdrage van  $^{40}\text{K}$ .

De resultaten voor de totaal alfa bepalingen op luchtstoffilters zijn in deze rapportage vergeleken met de meetresultaten van Urenco overwegend goed. De vergelijkingsresultaten van de totaal bèta bepalingen op luchtstoffilters waren redelijk: zevenmaal A1, tweemaal A2, en achtmaal 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  $^{210}\text{Pb}$ , een bèta/gammastraler. Worden de totaal bèta waarden onder die ondergrens weggelaten dan verbetert het vergelijkingsresultaat zich van achtmaal een C naar tweemaal 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 2009.

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 [RI09]. 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 2009. Met ingang van 2004 is het analyseren van ventilatieluchtmonsters van het monsternamepunt 'Buiten' gestopt. Met ingang van najaar 2005 is de verrijkingfabriek SP3 gesloten. De vier monsternamepunten in 2009 zijn dus SP2, 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	Analyse alfa/beta	Analyse gammaspectrometrie	Fabriek
1	28 januari 09	11 februari 09	11 mei 09	12 februari 09	CSB
2	17 februari 09	11 maart 09	11 mei 09	12 maart 09	CSB
3	29 april 09	19 mei 09	24 juli 09	27 mei 09	SP5
4	9 juni 09	17 juni 09	24 juli 09	24 juni 09	SP5
5	31 juli 09	26 augustus 09	19 oktober 09	1 september 09	CSB
6	1 augustus 09	26 augustus 09	19 oktober 09	1 september 09	SP5
7	23 april 09	7 oktober 09	19 oktober 09	8 oktober 09	CSB
8	27 september 09	7 oktober 09	19 oktober 09	8 oktober 09	SP5

\* 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 2009, zijn gereproduceerd in Bijlage B. Deze methoden zijn gelijk aan de door Urenco toegepaste methoden in voorafgaande jaren [Kw08a en KW12]. Ten tijde van het gereedkomen van dit briefrapport is Urenco bezig met het reviseren van de beschrijving van de analysemethodes. Deze nieuwe beschrijving zal na interne goedkeuring opgenomen worden in de Bijlagen. 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  $^{60}\text{Co}$  of  $^{137}\text{Cs}$ . Bij andere gammastralers dan  $^{60}\text{Co}$  en  $^{137}\text{Cs}$  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 gegeleerde 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<sup>e</sup> 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 <sup>7</sup>Be, <sup>40</sup>K, <sup>60</sup>Co en <sup>137</sup>Cs. 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 <sup>234</sup>Th gegeven.

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

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 procedure LSO-0169 (GammaVision) en LSO-0238 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gammaspectrometrie.

### **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<sup>-2</sup>) 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 <sup>60</sup>Co minder dan 20 mBq m<sup>-3</sup> bedraagt.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0169 (GammaVision) en LSO-0238 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gammaspectrometrie.

### 3.6 Foutenberekening

De door RIVM opgegeven fout is het  $1\sigma$ -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

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek van het RIVM is voor een aantal verrichtingen geaccrediteerd volgens NEN-ISO-17025. Deze verrichtingen hebben betrekking op monsternamen en metingen die worden uitgevoerd in het kader van het toezicht op nucleaire installaties, het Nationaal Meetnet Radioactiviteit, en milieumonitoring in het kader van het Euratom verdrag, artikel 35 en 36.

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) [Bf09]. Voor ventilatieluchtmonsters wordt indien mogelijk deelgenomen aan relevante ringonderzoeken.

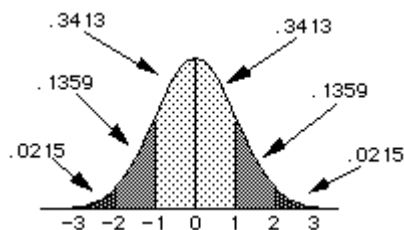
### 3.8 Presentatie van resultaten en vergelijking

De bepaalde activiteitsconcentraties werden afgerond overgenomen uit de opgave van Urenco [UR09].

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 fout<sup>1</sup> 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 geval<sup>2</sup>, 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.

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

<sup>2</sup> 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 0 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 driemaal A1 en een A2 behaald. De totaal bèta resultaten gaven een A2, 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 geen enkel monster een gamma-activiteit. Het RIVM treft ook in geen enkel monster gamma-activiteit aan en rapporteert de detectiegrens voor  $^{234}\text{Th}$ , de kortlevende dochter van  $^{238}\text{U}$ .

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

Fabriek	Totaal- $\alpha$	Totaal- $\beta$	$\gamma$ -stralers
1 CSB	A1	C	
2 CSB	A1	C	
3 SP5			
4 SP5			
5 CSB	A1	A2	
6 SP5			
7 CSB	A2	C	
8 SP5			

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: 16-maal A1, zesmaal A2, en achtmaal C.

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

Periode	SP2*		SP4		SP5-1		SP5-2		CSB	
	alfa	bèta	alfa	bèta	alfa	bèta	alfa	bèta	alfa	bèta
11 jan - 18 jan		A1	A1	A1					A1	C
01 feb - 08 feb			A2	A1					A1	C
19 apr - 26 apr	A1	A1	A1	A2					A1	C
17 mei - 24 mei			A2	A2					A1	
26 jul - 02 aug			A1	C						C
02 aug - 09 aug			A2	A1						C
13 sep - 20 sep			A1	A1					A1	C
22 nov - 29 nov			A2	C						

\* Bij SP2 betreft het 2<sup>e</sup> monster een gebroken week. Het tweede deel van 3-8 februari is geanalyseerd.

Er is duidelijk te zien dat de totaal alfa meetresultaten zich volgens de meetverwachting gedragen: 14-maal A1/A2. De totaal bèta resultaten zesmaal A1/A2 en achtmaal een C zien dat er nog wel wat ruimte is voor verbetering.

### 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 bepaald 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 <sup>238</sup>U: <sup>234</sup>Th ( $T_{1/2} = 24,1$  d) en <sup>234m</sup>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 <sup>234</sup>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 <sup>235</sup>U / <sup>238</sup>U niet het geval. Aangezien het onduidelijk is in welke mate de daadwerkelijke <sup>235</sup>U / <sup>238</sup>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 <sup>234</sup>Th correcties in de monster 1, 2, 5 en 7 weergegeven. Corrigeren voor verval van <sup>234</sup>Th doet de overeenkomst tussen de waarde van Urenco en het RIVM verbeteren van C-C-A2-C naar B-B-A1-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 <sup>234</sup>Th (24,1 dagen).

Op basis van de tweede kwartaalrapportage van Urenco [Ur09] heeft RIVM Urenco verzocht om het monster van 23 april 2009 beschikbaar te stellen voor contra-expertise. Dit monster bevatte namelijk een duidelijk hogere totaal bèta activiteit dan de monsters 3 t/m 6. Vandaar dat het 7<sup>e</sup> monster niet chronologisch past tussen de monsters 6 en 8. Opmerkelijk is dat de totaal bèta activiteit in het 7<sup>e</sup> monster niet het verval van <sup>234</sup>Th volgt. Er resteert na 179 dagen tussen monsternamen en meting nog steeds een bèta overschot. Dit zou met de halfwaardetijd van <sup>234</sup>Th al ruimschoots vervallen moeten zijn.

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

Nr.	totaal-beta ongecorrigeerd			Urenco waarde voor totaal-beta met verval Th-234	
	RIVM	V	Urenco	V	
1	$2,06 \pm 0,16$	C	$26,6 \pm 1,9$	$2,8 \pm 0,2$	B
2	$4,6 \pm 0,3$	C	$21,5 \pm 1,6$	$5,7 \pm 0,4$	B
3	$< 0,4$		$< 1,4$		
4	$0,40 \pm 0,06$		$< 1,5$		
5	$2,06 \pm 0,16$	A2	$3,1 \pm 0,8$	$1,9 \pm 0,5$	A1
6	$< 0,4$		$< 1,3$		
7	$20,1 \pm 1,3$	C	$28 \pm 2$	$2,15 \pm 0,15$	C
8	$0,39 \pm 0,06$		$< 1,5$		

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

Overleg met Urenco over de totaal bèta waarde in het 7<sup>e</sup> monster leverde op dat het aannemelijk is dat er  $^{40}\text{K}$  in het afvalwater aanwezig is. Dat heeft nader onderzoek van de gammaspectra door zowel Urenco als RIVM opgeleverd [Ur11a]. Voor de lozingsopgave van Urenco is het van nature voorkomende nuclide  $^{40}\text{K}$  niet van belang, zodat het in de gammaspectrometrische resultaten doorgaans genegeerd wordt. Het is echter aannemelijk dat  $^{40}\text{K}$  door de toepassing van chemicaliën of wasmiddelen toch in het afvalwater terechtkomt en de totaal bèta activiteit beïnvloedt.

#### 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 2009 is éénmaal de grens van  $0,1$  Bq voor de totaal alfa activiteit in Bq/filter overschreden. In het derde kwartaal van 2009, periode 6-11 september, is er een incident geweest in SP4, waarschijnlijk veroorzaakt door een voorval bij het aankoppelen van een ampul [UR09]. RIVM heeft Urenco verzocht om juist de SP4-filters ten tijde van dit incident in week 37 ter beschikking te stellen. Er is door beide instituten een licht verhoogde totaal alfa en totaal bèta activiteit waargenomen met een A1 in beide gevallen. Nader alfa-spectrometrisch onderzoek aan het filter met de roosterionisatiekamer toonde aan dat de rechterflank (=hoogenergetische kant) van de alfapijk lag bij  $4,8$  MeV. Dit komt overeen met de alfa-energie van  $^{234}\text{U}$ .

Er is in 2009 geen overschrijding van de totaal bèta grens van  $0,5$  Bq/filter geweest. Er is geen nader gammaspectrometrisch onderzoek uitgevoerd aan de ventilatieluchtfilters.

Op basis van de ervaringen opgedaan in de normvalidatie van NEN 5636, en met de onzekerheden die verbonden zijn met het kalibreren van een meetopstelling voor het meten van de totaal alfa activiteit op een type filter, kent het RIVM een onzekerheid van 30% toe aan de bepaling van de totaal alfa activiteit. Dit heeft uiteraard tot gevolg dat het afkeuringscriterium volgens paragraaf 0, dat gebaseerd is op  $s_{\Delta} = \sqrt{(s_{\text{NI}}^2 + s_{\text{RIVM}}^2)}$ , niet snel meer zal leiden tot een vergelijking type C. Dit blijkt ook wel uit Tabel 4 en Tabel A3. De vergelijking tussen de RIVM- en UNL-meetdata voor totaal alfa in ventilatielucht is goed: er worden alleen maar A1 en A2 vergelijkingswaarden aangetroffen. De totaal bèta meetresultaten liggen doorgaans onder de totaal bèta activiteitsconcentratie die in buitenluchtstof te Bilthoven wordt gevonden (circa



0,2 – 1,0 mBq/m<sup>3</sup>). De meetwaarden liggen allen onder de 0,3 mBq.m<sup>-3</sup> en dit betekent dat er hoogstwaarschijnlijk een natuurlijke achtergrond door beide laboratoria wordt gerapporteerd. Zie ook de volgende paragraaf.

#### *Radonexhalatie van de betonnen verrijkingshallen*

De totaal alfa en totaal bèta activiteit op de ventilatieluchtfilters van CSB is hoogstwaarschijnlijk te wijten 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 bepaalbaarheids grens 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 vervalt via een aantal kortlevende dochternucliden naar <sup>210</sup>Pb. Dit nuclide is een bèta/gammastraler en vervalt naar de (relatief langzaam) ingroeïende alfastraler <sup>210</sup>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. Het totaal aan radon leidt tot de productie van de bètastraler <sup>210</sup>Pb. De daaruit volgende <sup>210</sup>Po-alfa activiteit is na 30 dagen voor slechts 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 (berekend uit radon)	Totaal bèta gemeten (RIVM)	Totaal bèta gemeten (Urenco)
SP2	0,04	< 0,019 -0,08	< 0,02 – 0,08
SP4	0,09	0,04 – 0,31	0,11 – 0,31
SP5	0,001	< 0,12	< 0,3
CSB	0,01	< 0,013 – 0,068	< 0,04 – 0,15
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 m<sup>3</sup> 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<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> [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<sup>-3</sup> 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<sup>-3</sup>.

*Tabel 7 : Ondergrens voor totaal bèta als gevolg van radon (mBq.m<sup>-3</sup> )*

Plant	Totaal bèta (berekend uit radon)
SP2	0,08
SP4	0,18
SP5	0,002
CSB	0,02 (0,06)

#### *Toepassing op ventilatieluchtdata 2009*

Indien we de in Tabel 7 genoemde ondergrens voor totaal bèta toepassen op de data van 2009 dan blijven de waarden boven die ondergrens over. Er blijft dan voor SP2 één waarde (A1), voor SP4 vijf waarden (viermaal A1 en A2) en voor SP5 geen waarde over. Voor CSB resteren de waarden van periode 3 en 7 (tweemaal C). In de vergelijking voor de totaal bèta waardes in ventilatielucht vermindert het aantal C beoordelingen dus van acht naar tweemaal C.

Het blijft een probleem dat de concentratie aan radon in buitenlucht wel degelijk een rol speelt, en dat die concentratie soms 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 <sup>234</sup>Th-dochter van <sup>238</sup>U.

In ventilatielucht wordt doorgaans alleen de totaal alfa en totaal bèta activiteit waargenomen die afkomstig is van natuurlijk radon + dochters. In 2009 is er echter in SP4 een echte vrijzetting geweest van een geringe hoeveelheid UF<sub>6</sub>. Dit is zowel in de totaal alfa als de totaal bèta activiteit in de betreffende week (6-11 september) goed waarneembaar.

## 5 Referenties

- [Bas91] Basisdocument radon. LH Vaas, et al., RIVM rapport 710401014, Bilthoven
- [Bf09] I. Krol, Ch. Hohmann, Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2009", August 2009, SW 1 – 03/2009, 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.
- [Kw08] Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van Urenco Nederland B.V. Periode 2008. RIVM Rapport 610330129/2012.
- [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.
- [UR09] Urenco Nederland B.V. Rapportage Lucht- en waterlozingen (brieven):  
2009 kwartaal 1 COM/09/1187, 15 mei 2009.  
2009 kwartaal 2, COM/09/2218, 28 september 2009.  
2009 kwartaal 3, COM/10/0041, 7 januari 2010.  
2009 kwartaal 4, COM/10/0522, 4 maart 2010.
- [Ur11a] E-mail communicatie van B. Kamp (Urenco) aan P. Kwakman d.d. 16 juni 2011.
- [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".
- [RI09] Jaarplan project 610330 - 2009. Brief HAJM Reinen van RIVM/LSO aan P.J.W.M Muskens van VROM-Inspectie KFD, briefnr. 030/09 LSO Kwa/lvl d.d. 22 januari 2009.
- [VI07] Brief van R.D. Woittiez, directeur sector RIVM-MEV, aan P.J.W.M. Muskens, 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

Nr.	Datum	Plant	Totaal- $\alpha$			Totaal- $\beta$			$\gamma$ -stralers		
			RIVM	V	Urenco	RIVM	V	Urenco	RIVM*	V	Urenco
1	28 januari 09	CSB	1,49 $\pm$ 0,16	A1	1,5 $\pm$ 0,3	2,06 $\pm$ 0,16	C	26,6 $\pm$ 1,9	< 5	< 0,5	
2	17 februari 09	CSB	4,5 $\pm$ 0,5	A1	4,1 $\pm$ 0,8	4,6 $\pm$ 0,3	C	21,5 $\pm$ 1,6	< 5	45 $\pm$ 12	
3	29 april 09	SP5	0,21 $\pm$ 0,05		< 0,4	< 0,4		< 1,4	< 12	< 0,5	
4	9 juni 09	SP5	0,21 $\pm$ 0,05		< 0,4	0,40 $\pm$ 0,06		< 1,5	< 4	< 0,5	
5	31 juli 09	CSB	2,0 $\pm$ 0,2	A1	1,8 $\pm$ 0,4	2,06 $\pm$ 0,16	A2	3,1 $\pm$ 0,8	< 10	2,7 $\pm$ 1,3	
6	1 augustus 09	SP5	0,15 $\pm$ 0,04		< 0,3	< 0,4		< 1,3	< 8	< 0,5	
7	23 april 09	CSB	2,6 $\pm$ 0,3	A2	2,0 $\pm$ 0,5	20,1 $\pm$ 1,3	C	28 $\pm$ 2	< 13	2,1 $\pm$ 1,1	
8	27 september 09	SP5	< 0,15		1,6 $\pm$ 0,4	0,39 $\pm$ 0,06		< 1,5	< 7	< 0,5	

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

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

Tabel A2 : Nuclidenbibliotheek gebruikt voor bepaling van gammastralers

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

**Tabel A3 : Meetresultaten activiteitsconcentraties totaal alfa in ventilatielucht  
(mBq m<sup>-3</sup>)**

Periode	SP2*			SP4**			SP5-1MA5			SP5-2MA5			CSB				
	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL		
11 jan - 18 jan	0,012 ± 0,004	< 0,004		0,036 ± 0,011 A1	0,023		0,039 ± 0,013	< 0,06	< 0,03	< 0,05			0,017 ± 0,005 A1	0,015			
01 feb - 08 feb	0,006 ± 0,002	< 0,005		0,036 ± 0,011 A2	0,016	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,05				0,011 ± 0,004 A1	0,007			
19 apr - 26 apr	0,07 ± 0,02 A1	0,05		0,033 ± 0,010 A1	0,035	< 0,03	< 0,05	< 0,03	< 0,05				0,009 ± 0,003 A1	0,008			
17 mei - 24 mei				0,022 ± 0,007 A2	0,008	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,05				0,007 ± 0,002 A1	0,006			
26 jul - 02 aug	SP2 is vanaf 6 mei 2009 niet meer in gebruik.			0,029 ± 0,009 A1	0,018	0,037 ± 0,013	< 0,06	< 0,03	< 0,05				0,009 ± 0,003	< 0,005			
02 aug - 09 aug				0,022 ± 0,007 A2	0,008	0,040 ± 0,016	< 0,07	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,05				0,009 ± 0,003	< 0,005	
13 sep - 20 sep				0,027 ± 0,009 A1	0,021	< 0,03	< 0,06	< 0,03	< 0,05	< 0,03	< 0,05				0,009 ± 0,003 A1	0,009	
22 nov - 29 nov				0,015 ± 0,005 A2	0,006	< 0,04	< 0,07	< 0,04	< 0,06	< 0,03	< 0,05				0,006 ± 0,002	< 0,006	
06 sep - 11 sep				0,48 ± 0,15 A1	0,43												

\* Bij SP2 is de periode van het 2de monster 3 - 8 februari; alleen 2de deel van gebroken week geanalyseerd.

\*\* Alfasprometrie van het SP4 monster van 6 - 11 september: 0,35 mBq/m<sup>3</sup> aan uraan (flank bij 4,8 MeV).

**Tabel A4 : Vergelijking activiteitsconcentraties totaal bèta in ventilatielucht  
(mBq m<sup>-3</sup>)**

Periode	SP2*			SP4			SP5-1MA5			SP5-2MA5			CSB				
	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL	RIVM	V	UNL		
11 jan - 18 jan	0,032 ± 0,005 A1	0,038		0,30 ± 0,04 A1	0,27	< 0,11	< 0,3	< 0,10	< 0,2				0,040 ± 0,006 C	0,088 ± 0,006			
01 feb - 08 feb	< 0,019	< 0,02		0,18 ± 0,02 A1	0,19	< 0,11	< 0,2	< 0,10	< 0,2				0,042 ± 0,006 C	0,097 ± 0,006			
19 apr - 26 apr	0,080 ± 0,011 A1	0,080		0,24 ± 0,03 A2	0,31	< 0,10	< 0,2	< 0,09	< 0,2				0,068 ± 0,010 C	0,154 ± 0,010			
17 mei - 24 mei				0,089 ± 0,013 A2	0,116	< 0,10	< 0,2	< 0,10	< 0,2				< 0,014	< 0,04			
26 jul - 02 aug	SP2 is vanaf 6 mei 2009 niet meer in gebruik.			0,116 ± 0,016 C	0,185	< 0,11	< 0,3	< 0,09	< 0,2				0,025 ± 0,004 C	0,098 ± 0,004			
02 aug - 09 aug				0,17 ± 0,02 A1	0,14	< 0,11	< 0,3	< 0,10	< 0,2						0,048 ± 0,007 C	0,099 ± 0,007	
13 sep - 20 sep				0,23 ± 0,03 A1	0,26	< 0,11	< 0,3	< 0,09	< 0,2						0,060 ± 0,008 C	0,100 ± 0,008	
22 nov - 29 nov				0,038 ± 0,007 C	0,112	< 0,12	< 0,3	< 0,11	< 0,3						< 0,013	< 0,06	
06 sep - 11 sep				0,31 ± 0,04 A1	0,31												

\* Bij SP2 is de periode van het 2de monster 3 - 8 februari; alleen 2de deel van gebroken week geanalyseerd.

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

Uitgave 08, B. Kamp (Urenco). 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 HNO<sub>3</sub> moet worden toegevoegd om de pH van de oplossing tussen 6.5 en 9 te brengen (HNO<sub>3</sub> 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 bekerglas worden gebruikt of de plaat die wordt gebruikt voor alfa en beta analyse.

##### 4.2.3 Bepaling van $\alpha$ en $\beta$

Aan een 2 liter monster wordt 30 ml HNO<sub>3</sub> (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:

$$fout\ in\ \gamma\ -\ activiteit = \sqrt{\sum fout^2}$$

Indien geen nucliden zijn aangetoond wordt voor de totale gamma-activiteit de minimale detectie van <sup>60</sup>Co opgegeven.

#### 4.2.5 Berekening en foutenberekening

##### 4.2.5.1 α en β berekeningen

De resultaten worden volgens onderstaande formules uitgerekend.

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

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

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

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

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

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  $\alpha$  en  $\beta$  per minuut voor de nulmeting

VolumeM is het volume van ingedampte 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 totaal-activiteit met behulp van een "groot oppervlak ArCH<sub>4</sub> 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 "ArCH<sub>4</sub> 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 "ArCH<sub>4</sub> 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 gearhiveerd 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 2009

In de onderstaande tabel zijn de variabelen zoals door RIVM gedefinieerd in [Kw04] toegepast op de genoemde Urenco-fabriekshallen. SP2 is 6 mei 2009 buiten gebruik genomen.

Tabel D1 : Schatting van radonexhalatie

variabelen (eenheid):	SP2	SP4	SP5*	CSB
Area-beton (m2)	17700	6000	8.00E+03	3150
Exhalatie-beton (Bq/s per m2)	5.00E-04	5.00E-04	5.00E-04	5.00E-04
Productie-radon (Bq/s)	8.85	3	4	1.575
Flow door gebouw (m3/s)	8.3	15.3	60	24.5
Deelflow door UNL-filter (m3/week)	8000	8000	1400	14800
Deelflow door UNL filter (m3/s)	0.0132	0.0132	0.0023	0.0245
Deelflow door geponst filter (m3/week)	480	480	83	530
Deelflow door geponst filter (m3/s)	0.0008	0.0008	0.00014	0.0009
Volume van gebouw (m3)	7.73E+04	4.46E+05	2.00E+04	64512
Ventilatievoud (s-1)	1.08E-04	3.43E-05	3.00E-03	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)	4.1	3.2	3.1	3.1
Act Rn-buiten (Bq/m3)	3.0	3.0	3.0	3.0
C_d Conc radonochters (N/m3)	3.77E+04	9.32E+04	1.02E+03	8.08E+03
Act (210Pb) [Bq/UNL-filter,week]	0.30	0.75	0.00	0.12
RIVM-filter (mBq/week)	18.1	44.7	0.1	4.3
RIVM-filter (berekend mBq/m3)	0.04	0.09	0.001	0.008
RIVM-filter (gemeten mBq/m3)	< 0,02 - 0,08	0,04 - 0,3	< 0,12	< 0,01 - 0,07

\* Gegevens voor SP5 aangeleverd door F. Tuentler [Ur11b]

- Flow door gebouw = 54000 m3/h per hal
- SP5 filter 1 betreft 4 hallen
- Betonoppervlak SP5 is ~2000 m2 / hal
- Deelflow door SP5 UNL-filter : 1400 m<sup>3</sup>/week in 2009.



Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu**

Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven  
[www.rivm.nl](http://www.rivm.nl)