



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

**Contra-expertise op bepalingen van  
radio-activiteit van afvalwater en  
ventilatielucht van COVRA N.V.**

*Periode 2009*

RIVM rapport 610330127/2012

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 COVRA N.V.**

Periode 2009

RIVM rapport 610330127/2012

## 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 COVRA N.V. Periode 2009**

Het RIVM controleert achtmaal per jaar de metingen van COVRA . Het gaat hierbij om lozingen van radioactiviteit in water en lucht. De contra-expertise onderbouwt de betrouwbaarheid van de analyses die COVRA uitvoert. Doorgaans komen de afvalwateranalyses overeen, zo ook de gamma-spectrometrieresultaten, de totaal-alfa,  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  resultaten in 2009. Enkele verschillen in 2009 betreffen de totaal-bèta meetwaarden van RIVM en de rest-bèta meetwaarden van COVRA. Desondanks is de gehele vergelijking acceptabel, mede gezien het feit dat RIVM en COVRA verschillende meetprincipes toepassen.

De meetresultaten in ventilatieluchtmonsters van het afvalverwerkingsgebouw komen doorgaans goed overeen. De gammastraler  $^{125}\text{I}$  is door RIVM en COVRA aangetroffen in slechts één ventilatieluchtmonster. De overeenstemming is redelijk.  $^3\text{H}$  is aangetroffen met een redelijke overeenstemming, en  $^{14}\text{C}$  met een goede overeenstemming.

Zowel RIVM and COVRA hebben geen gamma-stralers, geen totaal-alfa of totaal-beta activiteit aangetroffen in ventilatielucht van HABOG. Slechts enkele sporen van  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  zijn gevonden, met een goede overeenstemming.

Het RIVM heeft in 2009 acht afvalwatermonsters en acht monsters van ventilatielucht geanalyseerd, die verspreid over het jaar door COVRA zijn genomen. Opdrachtgever is de Kernfysische Dienst van het ministerie van VROM.

Trefwoorden:

COVRA, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

## Abstract

### **Contra-expertise on the determination of radioactivity of waste water and ventilation air of COVRA N.V. Period 2009.**

Within the framework of a monitoring programme, the RIVM measures the release of radioactivity into the waste water and atmosphere of COVRA N.V.. 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 COVRA. The two different sets of measurements are generally in agreement, as is also the case in 2009 for gamma-emitters, gross-alpha, tritium and carbon-14. The few discrepancies that were observed in 2009 concern some gross-beta results from RIVM and the rest-beta results from COVRA. Nevertheless, the overall agreement is reasonable. This is regarding the fact that RIVM and COVRA apply different measuring principles.

The results for gross-alpha and gross-beta obtained by RIVM and COVRA in ventilation air samples taken from the waste treatment building are generally in good agreement. The gamma emitter  $^{125}\text{I}$  was found by both RIVM and COVRA in only one ventilation air sample, with reasonable agreement.  $^3\text{H}$  was found with reasonable agreement, and  $^{14}\text{C}$  with good agreement.

Both RIVM and COVRA found no gamma-emitters, and no gross-alpha or gross-beta activity in ventilation air from HABOG. Only a few traces of  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  were found, in good agreement.

RIVM analyzed eight waste water samples and eight samples of ventilation air taken by COVRA at various time points dispersed throughout 2009. 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).

Trefwoorden / Key words:

COVRA, radioactivity, discharges, waste water, ventilation air

## Inhoud

Samenvatting—6

### **1 Inleiding—7**

### **2 Monsters en analyse—8**

### **3 Analysemethoden—10**

3.1 Tweevoudbepaling—10

3.2 Bepaling van de totaal-alfa-activiteitsconcentratie in afvalwater—10

3.3 Bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater—10

3.4 Bepaling van de activiteitsconcentratie aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater—11

3.5 Bepaling van de <sup>3</sup>H-activiteitsconcentratie in afvalwater—11

3.6 Bepaling van de <sup>14</sup>C-activiteitsconcentratie in afvalwater—11

3.7 Bepaling van de totaal-alfa- en totaal bèta-activiteitsconcentratie in ventilatielucht—12

3.8 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht—12

3.9 Bepaling van de <sup>3</sup>H-activiteitsconcentratie in ventilatielucht—13

3.10 Bepaling van de <sup>14</sup>C-activiteitsconcentratie in ventilatielucht—13

3.11 Foutberekeningen—13

3.12 Kwaliteitswaarborging—14

3.13 Presentatie van resultaten en vergelijking—14

### **4 Resultaten en discussie—16**

4.1 Meetresultaten—16

4.2 Vergelijking van de resultaten—16

4.2.1 Afvalwater—16

4.2.2 Ventilatielucht AVG—17

4.2.3 Ventilatielucht HABOG—18

4.3 Discussie—18

4.3.1 Afvalwater—18

4.3.2 Ventilatielucht AVG—19

4.4 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten—20

### **5 Referenties—21**

### **Bijlage A Vergelijking meetresultaten—22**

### **Bijlage B Monsternamen en analyse door COVRA—26**

## Samenvatting

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek van het RIVM voert in opdracht van de VROM-Inspectie (VI) radioactiviteitsmeting uit van lozingsmonsters afkomstig van een vijftal nucleaire installaties. Het doel is het leven van de 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 de Centrale Organisatie Voor Radioactief Afval N.V. (COVRA) te Nieuwdorp. Het betreft zowel afvalwatermonsters van het afvalverwerkingsgebouw (AVG), als filters waarmee de uitgaande ventilatielucht van de AVG en het Hoogradioactief Afvalbehandeling en Opslag Gebouw (HABOG) is bemonsterd.

De 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. RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, totaal-beta, tritium en koolstof-14 in afvalwater en tevens in ventilatielucht.

Bij de vergelijking van de gemeten concentraties aan gammastralers in het afvalwatermonster bleek een goede overeenstemming, net als in voorgaande jaren. Voor  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  is de overeenstemming goed, voor totaal-alfa redelijk. De vergelijking in de totaal-bèta activiteit in afvalwater is redelijk, mede gezien het feit dat RIVM en COVRA verschillende meetprincipes toepassen.

In de acht filterpakketten van ventilatielucht van het afvalverwerking gebouw (AVG) hebben COVRA en RIVM slechts een zeer geringe totaal-alfa en totaal-bèta activiteit aangetroffen. Jodium-125 is de enige gammastraler die zowel door RIVM als COVRA is aangetroffen in ventilatielucht, en wel met een redelijke overeenstemming. De overeenstemming in de  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  resultaten in vier maandmonsters ventilatielucht van het AVG was redelijk tot goed.

In de acht filterpakketten van ventilatielucht van het HABOG heeft RIVM geen kunstmatige gamma-activiteit en slechts éénmaal een zeer geringe totaal-alfa activiteit aangetroffen. De overeenstemming in de  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  resultaten in vier maandmonster ventilatielucht van HABOG was goed.

Zowel RIVM and COVRA hebben geen gamma-stralers, geen totaal-alfa of totaal-beta activiteit aangetroffen in ventilatielucht van HABOG. Slechts enkele sporen van  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  zijn gevonden, met een goede overeenstemming.

## 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 de Centrale Organisatie Voor Radioactief Afval N.V. (COVRA) te Nieuwdorp. Het betreft zowel afvalwatermonsters van het afvalverwerkingsgebouw (AVG), als filters waarmee de uitgaande ventilatielucht van het AVG en het Hoogradioactief Afvalbehandeling en Opslag Gebouw (HABOG) 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

RIVM haalt periodiek afvalwater- en ventilatieluchtmonsters op bij COVRA. Van elk batchmonster afvalwater bewaart COVRA een fles met circa 500 ml basisch ongegeleerd water voor de  $^{14}\text{C}$ -bepaling en een fles met circa 2 l aangezuurd ongegeleerd water voor de overige bepalingen ten behoeve van contra-expertise door RIVM. Voor het bepalen van de radioactiviteit in uitgaande ventilatielucht krijgt RIVM een filterpakket afkomstig uit een apart, 'redundant' bemonsteringssysteem, identiek aan het systeem dat COVRA gebruikt voor haar eigen analyses. Daarnaast krijgt RIVM een condensaat voor de bepaling van  $^3\text{H}$  en een  $\text{BaCO}_3$ -neerslag voor de bepaling van  $^{14}\text{C}$  in ventilatielucht (Zie Bijlage B, laatste pagina). Tabel 1 bevat een overzicht van het, vooraf met de VROM inspectie afgesproken, aantal monsters en de te verrichten analyses [RI09]. In Tabel 2 staan gegevens van de opgehaalde afvalwatermonsters en in Tabel 3 van de monsters ventilatielucht van AVG.

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

Monsters	Aantal	Soort monster	Analyses
Afvalwater	8	Batchmonster	Totaal-alfa**, totaal-bèta**, gamma-stralers**, $^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^{**}$
Ventilatielucht	8	Weekmonsters AVG (filterpakket: aërosol   2 x zeoliet   2 x kool)	Totaal-alfa*, totaal-bèta* in aërosolfilter; gamma-emitters pakket*; bij aantonen van mogelijk vluchtige gamma-emitters, tevens meting van de zeoliet- en kool-absorbers apart*
	8	7- of 14-daagse monsters HABOG (filterpakket: aërosol   2 x kool)	Totaal-alfa*, totaal-bèta* in aërosolfilter; gamma-emitters pakket* ; bij aantonen van mogelijk vluchtige gamma-emitters, tevens meting van de filters waaruit het pakket is samengesteld apart*
	4	Maandmonster AVG ( $\text{H}_2\text{O}$ , $\text{BaCO}_3$ )	$^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^*$ (m.b.v. LSC)
	4	14-dagen of maandmonster HABOG ( $\text{H}_2\text{O}$ )	$^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^*$ (m.b.v. LSC)

\* Analyse in enkelvoud

\*\* Analyse in tweevoud

*Tabel 2 : Monstergegevens afvalwater*

Nr.	Lozingsdatum	Ophaaldatum	Data gammaspectrometrie
1	26 januari 2009	8 april 2009	9 april 2009
2	11 februari 2009	8 april 2009	10 april 2009
3	4 maart 2009	8 april 2009	15 april 2009
4	3 april 2009	15 april 2009	20 april 2009
5	16 juni 2009	8 juli 2009	10 juli 2009
6	21 april 2009	8 september 2009	10 september 2009
7	1 oktober 2009	4 november 2009	10 november 2009
8	14 december 2009	10 februari 2010	11 februari 2010

Tabel 3 bevat de gegevens van de door het RIVM geanalyseerde ventilatieluchtmonsters. De ventilatieluchtmonsters worden doorgaans op dezelfde dag opgehaald als de afvalwatermonsters.

*Tabel 3 : Monstergegevens ventilatielucht AVG*

Nr.	Monsterperiode	Ophaaldatum	Datum gammaspectrometrie
1	6 - 13 januari	21 januari 2009	22 januari 2009
2	17 - 24 maart	8 april 2009	14 april 2009
3	24 - 31 maart	8 april 2009	22 april 2009
4	31 maart - 7 april	15 april 2009	16 april 2009
5	23 - 30 juni	8 juli 2009	9 - 28 juli 2009
6	25 aug - 1 september	8 september 2009	10 - 16 september 2009
7	13 - 20 oktober	4 november 2009	5 november 2009
8	10 - 17 november	1 december 2009	7 - 10 december 2009

De ophaaldata voor HABOG luchtmonsters komen overeen met de ophaaldata voor AVG monsters (zie Bijlage A, tabel A8). Daar in het HABOG geen kortlevende nucliden worden opgeslagen heeft de tabel met ophaaldata en data van analyse geen toegevoegde waarde en wordt hier niet meer toegevoegd. De monsterperiode voor HABOG ventilatielucht beslaat 2 weken. Doorgaans valt de laatste week van deze 2-wekelijkse periode samen met de monsterperiode van de AVG ventilatieluchtmonsters.

#### *Lozingsgegevens*

De herkomst van de lozingsgegevens is voor alle data in afvalwater het kwartaalrapport [CO09]. De ventilatieluchtdata vanuit AVG en HABOG komen voor totaal-alfa, totaal-beta en gamma eveneens uit het kwartaalrapport. De bemonstering van deze parameters gebeurt met twee parallelle filterpakketten: één voor COVRA en één voor RIVM; zie Tabel 1 en bijlage B, par. 4.2.

Voor de bepaling van de  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$ -activiteitsconcentratie in ventilatielucht gebruikt RIVM het deelvolume dat per maand door de absorbers is gegaan. Dit gegeven staat niet in de kwartaalrapportages, maar wordt door Covra apart bijgeleverd op Formulier FC109 (rev 0; d.d. 7-11-2001). Voor de  $^{14}\text{C}$  bepaling wordt het totaalgewicht gegeven aan  $\text{BaCO}_3$  en het deel dat RIVM ter beschikking heeft gekregen; dit ten behoeve van precipitatie van de uitgestookte  $\text{CO}_2$  als carbonaat. Voor de  $^3\text{H}$  bepaling in ventilatielucht wordt het deelvolume (in ml) van de totale hoeveelheid uitgestookt  $\text{H}_2\text{O}$  eveneens apart bijgeleverd.

### 3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast door COVRA in 2009, zijn gereproduceerd in Bijlage B. De beschrijving van deze methoden is gelijk aan de methoden toegepast in voorgaande jaren, zie Bijlage B. De RIVM bepalingen aan het maandmonster ventilatielucht van HABOG zijn gelijk aan de bepalingen aan het AVG ventilatieluchtmonster.

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 Tweevoudbepaling

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-activiteitsconcentratie in afvalwater

Van het monster wordt, na homogenisatie, in twee verschillende flesjes elk 10,0 mL gepipetteerd. Aan één van de flesjes wordt 0,100 mL van een  $^{241}\text{Am}$ -oplossing met bekende activiteit toegevoegd. Het geheel wordt vervolgens gemengd. De twee oplossingen worden in gedeelten op twee roestvast stalen telschaaltjes (geschuurd en ontvet) 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  $^{241}\text{Am}$ .

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0121: Handboek gasdoorstroomtelling

#### 3.3 Bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater

Van het gehomogeniseerde monster wordt 10,0 mL drooggedampt op een roestvast stalen telschaaltje met een diameter van 50 mm. Het preparaat heeft een geringe laagdikte. De telefficiëntie wordt bepaald met behulp van een standaard, een telschaaltje waarop een bekende hoeveelheid  $^{90}\text{Sr}$  is ingedampt. Hier is afgeweken van de Nederlandse Norm die  $^{40}\text{K}$  als referentienuclide voorschrijft [NE06]. De metingen worden uitgevoerd met proportionele

gasdoorstroomtellers die zijn voorzien van een dun venster ( $< 0,5 \text{ mg. cm}^{-2}$ ). De tellers hebben een lage achtergrond. Bij het droogdampen verdwijnen vluchtige bèta-stralers zoals  $^3\text{H}$  en anorganisch  $^{14}\text{C}$  ( $^{14}\text{CO}_2$ ). Minder vluchtige  $^{14}\text{C}$ -verbindingen dragen waarschijnlijk wel voor een deel bij aan de telling.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0121: Handboek gasdoorstroomtelling.

### 3.4 **Bepaling van de activiteitsconcentratie aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater**

Van het ongegeleerde afvalwatermonster worden twee monsters van 250 ml afgemeten. Elk van deze monsters wordt, ter voorkoming van het uitzakken van de radioactieve componenten bij gammaspectrometrische analyses met lange telltijden [LS90], in een teldoos gemengd met behangplaksel en geschud tot een homogene stijve massa is verkregen. De monsters worden gemeten op een N-type halfgeleiderdetector gekoppeld aan een pulssorteerder met 8192 kanalen over een energiebereik van 30 keV tot 2 MeV in een meettijd van 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. Tabel A2 in Bijlage A toont de nucliden die hier in zitten. In het geval van GammaVision worden de spectra van COVRA nog eens apart geanalyseerd op  $^{125}\text{I}$ .

Daarnaast wordt door het analyseprogramma melding gemaakt van pieken die wel gedetecteerd zijn in het spectrum maar die niet aan een van de nucliden in de bibliotheek zijn toe te wijzen. Is dit het geval dan vindt een nadere analyse van het spectrum plaats. RIVM corrigeert net als de COVRA voor radioactief verval, door de activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar 12.00 uur van de lozingsdatum.

Indien door RIVM geen enkele gammastraler wordt aangetoond, wordt tenminste de detectielimiet voor  $^{60}\text{Co}$  gegeven. De detectielimiet voor  $^{60}\text{Co}$  geeft een indicatie van de bereikte meetgevoeligheid volgens KTA 1504 [KT06]. KTA 1504 eist dat bij het meten van gammastraling uitzendende radionucliden in gedestilleerd water de detectielimiet voor  $^{60}\text{Co}$  kleiner is dan  $1 \text{ kBq m}^{-3}$ .

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

### 3.5 **Bepaling van de $^3\text{H}$ -activiteitsconcentratie in afvalwater**

Aan 25 ml van het monster wordt 0,2 g  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  toegevoegd om het alkalisch te maken. Nadat een deel van dit monster is gedestilleerd, wordt door middel van LSC de activiteitsconcentratie van  $^3\text{H}$  bepaald. Per monsterflesje wordt één telling van maximaal 200 min uitgevoerd. Het telpreparaat bestaat uit 10,0 ml destillaat en 10,0 ml scintillatievloeistof (Ultima Gold LLT).

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0133: Handboek vloeistofscintillatietelling.

### 3.6 **Bepaling van de $^{14}\text{C}$ -activiteitsconcentratie in afvalwater**

De toegepaste  $^{14}\text{C}$ -borrelmethode is geschikt voor het bepalen van het anorganisch en organisch  $^{14}\text{C}$  in afvalwater [Hi98]. Eerst wordt anorganisch  $^{14}\text{CO}_2$  uitgedreven door toevoegen van zuur, koken en doorborrelen met  $\text{N}_2$ .

Vervolgens wordt organisch  $^{14}\text{C}$  geoxideerd met kaliumpermanganaat tot  $\text{CO}_2$  en op soortgelijke wijze gedurende 5 uur uitgedreven. Het uitgedreven  $^{14}\text{CO}_2$  wordt vervolgens geabsorbeerd door Carbo-Sorb E. Dit organische amine (3-methoxy-1-aminopropaan) is in staat om per ml Carbo-Sorb E circa 4 mmol  $\text{CO}_2$  te absorberen door vorming van een niet vluchtig carbamaat. Door het  $^{14}\text{C}$ , dat in het laatste uur geoxideerd en uitgeborreld wordt, in een apart telflesje op te vangen, kan vastgesteld worden of de oxidatie beëindigd is. Indien dit niet het geval is wordt de oxidatie de volgende dag voortgezet.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0133: Handboek vloeistofscintillatietelling.

### **3.7 Bepaling van de totaal-alfa- en totaal bèta-activiteitsconcentratie in ventilatielucht**

Uit het aërosolfilter wordt een schijf met een diameter van 46 mm geponst. Met behulp van een proportionele gasdoorstroomteller met een lage achtergrond, die van een dun venster ( $< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) is voorzien, wordt hiervan de alfa- en bèta-telsnelheid gemeten. In overeenstemming met NVN 5636 inzake de analyse van luchtstoffilters wordt voor de bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie  $^{90}\text{Sr}$  en voor de bepaling van de totaal-alfa-activiteitsconcentratie  $^{241}\text{Am}$  als referentienuclide toegepast [NV06]. 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 opgenomen.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0121: Handboek gasdoorstroomtelling.

### **3.8 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht**

Per analyse wordt van het filterpakket een te analyseren preparaat samengesteld bestaande uit het geponste (46 mm) aërosolfilter, het eerste laag DSM11-absorber en het eerste laag actieve kool. Van dit preparaat wordt een gamma-spectrum opgenomen en geanalyseerd op dezelfde wijze als dit bij afvalwater gebeurt. Indien blijkt dat zich vluchtige nucliden in het preparaat bevinden dan worden alle vijf delen van het filterpakket afzonderlijk gemeten en geanalyseerd, dus ook de tweede laag DSM11-absorber en de tweede laag actieve kool. Er wordt gecorrigeerd voor radioactief verval door de activiteit van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar het midden van de monsterperiode<sup>1</sup>.

Voor de meetnauwkeurigheid wordt gerefereerd aan KTA 1503.1 [KT02]. Deze eist dat bij het meten van gammastralers in ventilatielucht de detectielimiet voor  $^{60}\text{Co}$  en  $^{131}\text{I}$  minder dan  $20 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$  bedraagt.

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

<sup>1</sup> De methode verschilt van die van COVRA (zie Bijlage B, figuur B1). Voor het kortst levende nuclide dat wordt aangetroffen ( $^{131}\text{I}$ ), geeft de RIVM-methode een 2% hogere waarde. Voor de overige nucliden is het verschil kleiner.

### 3.9 Bepaling van de $^3\text{H}$ -activiteitsconcentratie in ventilatielucht

Na destillatie van het condensaat vanuit alkalisch milieu, wordt de  $^3\text{H}$ -concentratie bepaald met LSC als beschreven in paragraaf 3.5.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0133: Handboek vloeistofscintillatietelling.

### 3.10 Bepaling van de $^{14}\text{C}$ -activiteitsconcentratie in ventilatielucht

COVRA vermeldt bij levering van de  $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ -neerslag het volume van de hiermee geassocieerde hoeveelheid ventilatielucht, zodat RIVM de volumieke activiteit kan berekenen. De  $\text{BaCO}_3$ -monsters worden ingewogen in een scintillatieflesje (maximaal 1,0 g monster) en eventueel aangevuld met blanco  $\text{BaCO}_3$ -poeder tot een eindmassa van 1,0 g. Hieraan wordt 7 ml  $\text{H}_2\text{O}$  toegevoegd en, na goed mengen van het onoplosbare  $\text{BaCO}_3$  met water, 13 ml Instagel Plus scintillatiecocktail. Na een uur wordt een LSC-telling uitgevoerd.

Met de vangst van  $^{14}\text{C}$  in het patroon met zeolietkorrels kan ook  $^{35}\text{S}$  worden ingevangen dat de analyse van de  $^{14}\text{C}$ -activiteit kan verstoren. Door na een wachttijd van circa 3 maanden de monsters nogmaals te meten wordt de bijdrage van  $^{35}\text{S}$  aan de telling bepaald, waarna de  $^{14}\text{C}$ -activiteit in de geloosde ventilatielucht van de COVRA wordt berekend.

Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0133: Handboek vloeistofscintillatietelling.

### 3.11 Foutberekeningen

De door RIVM opgegeven fout is het  $1\sigma$ -schattingsinterval. 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 wegen 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 totaal-bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater*  
Voor de totaal  $\alpha$ -bepaling wordt per analyse gebruik gemaakt van een preparaat zonder en een preparaat met een  $^{241}\text{Am}$ -standaard. De totale fout in de totaal  $\alpha$ -activiteitsconcentratie is samengesteld uit een telfout van het preparaat zonder standaard, een telfout van het preparaat met standaard, een kalibratiefout en een experimentele fout. De totale fout in de totaal  $\beta$ -activiteitsconcentratie is samengesteld uit een telfout van het preparaat, een kalibratiefout en een experimentele fout.
- *Gammaspectrometrie*  
Voor de  $\gamma$ -stralers vindt rapportage plaats met een fout voortkomend uit telstatistiek, kalibratie, achtergrond, onzekerheid in de yield en

monstervoorbehandeling. Indien cascadeverval optreedt, leidt dit tot een extra bijdrage aan de fout.

- *Bepaling van de  $^{14}\text{C}$ -activiteitsconcentratie in afvalwater*  
De totale fout is samengesteld uit de telfout, de fout in de opbrengst, een experimentele fout en de kalibratiefout
- *Bepaling van de totaal -alfa- en totaal-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 %.
- *Bepaling van de  $^3\text{H}$ -activiteitsconcentratie in afvalwater en ventilatielucht*  
De totale fout is samengesteld uit de telfout, een kalibratiefout en een experimentele fout.
- *Bepaling van de  $^{14}\text{C}$ -activiteitsconcentratie in ventilatielucht*  
De totale fout is samengesteld uit de telfout, een experimentele fout en een kalibratiefout.

### 3.12 Kwaliteitswaarborging

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.

### 3.13 Presentatie van resultaten en vergelijking

De door COVRA bepaalde activiteitsconcentraties worden overgenomen uit de kwartaalrapportages van COVRA [CO09] en zijn in deze rapportageperiode afgerond met de afrondingsregels zoals die door RIVM wordt gehanteerd (volgens NEN 1047 [NE91]).

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.

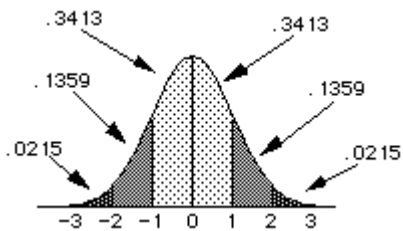
Het vergelijken van de gemeten waarden  $x_{\text{NI}}$  en  $x_{\text{RIVM}}$  is ook te verwoorden als het bepalen van het verschil  $\Delta = x_{\text{NI}} - x_{\text{RIVM}}$ . Het verschil tussen de meetwaarden

wordt berekend uit de getallen zoals deze worden weergegeven, dus na afronding van de meetwaarde van RIVM (volgens NEN 1047 [NE91]). De fout<sup>2</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>3</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>2</sup> (als  $s_{NI} = s_{RIVM}$  dan  $s_{\Delta} = s_{RIVM} \times \sqrt{2}$ )

<sup>3</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 RIVM en COVRA zijn te vinden in Bijlage A. In Tabel A1 van deze bijlage zijn alleen die gammastralers opgenomen die zijn aangetoond. Als een gammastraler wel door COVRA maar niet door RIVM wordt aangetoond dan wordt de detectielimiet van RIVM voor het betreffende nuclide in deze tabel opgenomen. In de tabellen staan tevens de onzekerheden (fouten) in de meetwaarden (zie paragraaf 3.11).

### 4.2 Vergelijking van de resultaten

Het resultaat van de vergelijking zoals beschreven in paragraaf 3.13 is in de tabellen van Bijlage A vermeld onder de kop 'V'. De vergelijking van de resultaten van COVRA met die van het RIVM is samengevat in Tabel 4 en Tabel 5. 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.

#### 4.2.1 Afvalwater

In 2009 zijn er door COVRA acht afvalwaterbatches geloosd. Van alle lozingen zijn door RIVM deelmonsters opgehaald en geanalyseerd.

##### *gammaspectrometrie*

Uit Tabel 4 blijkt dat de vergelijkingsresultaten van de metingen door RIVM en COVRA goed is. De A1 + A2 meetresultaten voldoen samen ruim aan de statistische verwachting, net als de B en C meetresultaten.

##### *totaal-alfa*

De vergelijkingsresultaten voor totaal-alfa in afvalwater is met driemaal A1, één A2 en viermaal een B redelijk.

##### *totaal-bèta (RIVM) en rest-bèta (COVRA)*

De overeenstemming in de totaal/rest-bèta resultaten is met driemaal A1, en tweemaal A2 en B, en één C vergelijkbaar met de afgelopen jaren.

##### *tritium*

De tritium resultaten van COVRA en RIVM geven dit jaar met achtmaal een A1 een zeer goede overeenkomst te zien.

##### *<sup>14</sup>C*

De vergelijkingsresultaten, zevenmaal A1 en één C, geven aan dat de som van de RIVM meetwaarden goed overeenkomt met de totaal-<sup>14</sup>C meting van COVRA.

Tabel 4 : Vergelijkingsresultaten voor de afvalwatermonsters

Nuclide	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma A1$ *	$\Sigma A2$ *	$\Sigma B$ *	$\Sigma C$ *
Co-60	A2	A1	A2	A2	A2	A2	A2	A2	<u>1</u> (3-7)	<u>7</u> (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-134	A1	A1	A1	A1		A2			4 (2-5)	1 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-137	A1	A1	B	A1	A2	A1	A1	A1	6 (3-7)	1 (0-4)	1 (0-1)	0 (0-0)
Na-22	A1	A1	A1	A1	B	A1	A1		6 (3-7)	0 (0-4)	1 (0-1)	0 (0-0)
Ru-103					A1				1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Ru-106	A2	A1	A2	A1	A1	A1	B	A1	5 (3-7)	2 (0-4)	1 (0-1)	0 (0-0)
Sb-125	A2				A1	A1	A1	A2	3 (2-5)	2 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
W-181					A2		A2		0 (0-2)	2 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal									26 (25-35)	15 (7-17)	3 (0-4)	0 (0-1)
Totaal- $\alpha$	B	A1	A1	B	A1	B	B	A2	3 (3-7)	1 (0-4)	<u>4</u> (0-1)	0 (0-0)
Tot./rest- $\beta$	B	A1	A1	B	A2	A1	A2	C	3 (3-7)	2 (0-4)	<u>2</u> (0-1)	<u>1</u> (0-0)
$^3\text{H}$	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	<u>8</u> (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
$^{14}\text{C}$	C	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	7 (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	<u>1</u> (0-0)

\* Aantallen beneden of boven de range tussen haakjes (beide situaties hebben kans < 2,5%) zijn onderstreept.

#### 4.2.2

##### Ventilatielucht AVG

In dit rapportagejaar zijn door RIVM en COVRA acht ventilatieluchtmonsters geanalyseerd van AVG (zie tabellen A3 – A6). Tabel 5 geeft een samenvatting van de vergelijkingsresultaten van de bepaalde grootheden. Uit deze tabel is tevens af te lezen of er meer of minder resultaten in een categorie vallen dan verwacht.

In Tabel A7 zijn als indicatie van de bereikte meetnauwkeurigheid, gelet op de eisen die daaraan gesteld worden in KTA 1503.1 [KT02], de gerealiseerde detectielimieten voor  $^{125}\text{I}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$  en voor de totaal-alfa- en totaal-bèta activiteitsconcentratie weergegeven.

##### gammaspectrometrie

COVRA en RIVM hebben beide in het vijfde filterpakket  $^{125}\text{I}$  aangetoond. De overeenstemming in het aerosolfilter en de DSM11 zeoliet is in beide gevallen matig : een B. Alleen COVRA heeft in het 6<sup>e</sup>, 7<sup>e</sup> en 8<sup>e</sup> aerosolfilter ook nog  $^{125}\text{I}$  aangetroffen. Dit is net onder de detectiegrens van RIVM.

##### totaal-alfa en totaal-bèta

RIVM toonde alleen in het 2<sup>e</sup>, 3<sup>e</sup> en 4<sup>e</sup> AVG ventilatieluchtmonster alfa-activiteit aan, COVRA in het 2<sup>e</sup> en 3<sup>e</sup> met in beide monsters een A1 als vergelijkingsresultaat. De door RIVM gevonden totaal-bèta-concentraties in monster 2 - 8 komen met viermaal A1, één A2, één B en één C redelijk overeen.

##### Tritium en $^{14}\text{C}$

In het maandmonsters van februari, mei, juni en november toonden zowel RIVM als COVRA een significante hoeveelheid  $^3\text{H}$  aan, met een overeenkomst van tweemaal A1, éénmaal A2 en B. RIVM en COVRA vonden beide een geringe hoeveelheid  $^{14}\text{C}$  in AVG ventilatielucht. De vergelijking met COVRA was met viermaal A1 goed.

Tabel 5 : Samenvatting van de vergelijkingsresultaten voor de  $^{125}\text{I}$  (monster 5), totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht AVG

Filtrenr.	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma\text{A1}^*$	$\Sigma\text{A2}^*$	$\Sigma\text{B}^*$	$\Sigma\text{C}^*$
Aerosolfilter					B				(0-1)	(0-1)	<u>1</u> (0-0)	(0-0)
DSM11-1					B				(0-1)	(0-1)	<u>1</u> (0-0)	(0-0)
DSM11-2									(0-0)	(0-0)	(0-0)	(0-0)
Kool-1									(0-0)	(0-0)	(0-0)	(0-0)
Kool-2									(0-0)	(0-0)	(0-0)	(0-0)
Totaal- $\alpha$		A1	A1						2 (0-2)	(0-2)	(0-1)	(0-0)
Totaal- $\beta$		A1	C	B	A1	A2	A1	A1	4 (3-7)	1 (0-4)	1 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
Totaal									6 (4-9)	1 (1-5)	2 (0-2)	<u>1</u> (0-0)

\* Aantallen beneden of boven de range tussen haakjes (beide situaties hebben kans < 2,5%) zijn onderstreept.

#### 4.2.3 Ventilatielucht HABOG

In dit rapportagejaar zijn door RIVM en COVRA acht ventilatieluchtmonsters geanalyseerd van HABOG (zie tabellen A8 – A11). COVRA heeft geen totaal-alfa en totaal-bèta in de HABOG ventilatieluchtmonsters gevonden. RIVM vond een zeer lage totaal-alfa activiteit in het 1<sup>e</sup> monster.

COVRA en RIVM vonden beide geen  $^{125}\text{I}$  of andere kunstmatige gammastralers in HABOG ventilatielucht. RIVM en COVRA vonden beide een geringe  $^3\text{H}$  activiteit in de HABOG ventilatieluchtmonsters van september en oktober. De activiteitsconcentratie van  $^{14}\text{C}$  in het monster van september ligt bij RIVM vlak boven en bij COVRA onder de detectiegrens. In het monster van oktober vinden zowel RIVM als COVRA een geringe activiteitsconcentratie aan  $^{14}\text{C}$  met een A1 vergelijking.

## 4.3 Discussie

### 4.3.1 Afvalwater

#### *gammaspectrometrie*

De overeenkomsten in de RIVM en COVRA meetresultaten voor gammastralers in afvalwater zijn goed. In enkele gevallen,  $^{129}\text{I}$  in monster 2, en  $^{125}\text{I} + ^{129}\text{I}$  in monster 6, rapporteert RIVM een detectiegrens die (ruim) onder de waarde van Covra ligt. RIVM heeft in beide monsters  $^{129}\text{I}$  niet gerapporteerd door het ontbreken van de 39,0 keV gammalijn. In monster 6 is de 35,5 keV gammalijn gebruikt om de activiteit van  $^{125}\text{I}$  handmatig te berekenen. De automatische procedure van het software pakket Genie2000 geeft dan niet een juiste piekfit door de bijdrage van röntgens van  $^{125}\text{Sb}$ .

#### *totaal-alfa*

Voor totaal-alfa wordt in monster 1 - 4 een beduidend hogere activiteitsconcentratie aangetroffen dan de gebruikelijke activiteitsconcentratie van < 10 kBq.m<sup>-3</sup>. De overeenkomst is redelijk. De gevonden verschillen zijn vermoedelijk te wijten aan een inhomogene verdeling van de alfastralers in de oplossing.

*Rest-bèta (COVRA) en totaal-bèta (RIVM)*

De overeenstemming in de rest-bèta metingen van COVRA en de totaal-bèta metingen van RIVM is redelijk, vooral gezien het feit dat hier verschillende meetmethodes toegepast worden.

In het algemeen bepalen de veelvoorkomende bèta/gamma-stralers  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{125}\text{Sb}$  en vooral  $^{137}\text{Cs}$  de totaal-bèta activiteit in afvalwater. Deze nucliden zijn niet vluchtig en zijn in alle monsters aanwezig, met uitzondering van  $^{125}\text{Sb}$  in het 2<sup>e</sup> en 3<sup>e</sup> monster.

 $^3\text{H}$ 

De overeenkomst in de bepaling van  $^3\text{H}$  in afvalwater is zeer goed.

 $^{14}\text{C}$ 

De vergelijkingsresultaten voor  $^{14}\text{C}$  zijn goed en daarmee wordt de trend van de voorgaande jaren voortgezet [KW09]. Uitzondering is het 1<sup>e</sup> monster waar het resultaat van COVRA 28% hoger is dan het resultaat van RIVM. Gezien de goede resultaten in de overige zeven monsters lijkt dit op een toevallige afwijking. Gezien de chemische complexiteit van de bepaling is het verkregen resultaat in de afgelopen jaren redelijk tot goed en waarschijnlijk niet verder te verbeteren.

RIVM voert na ca. 3 maanden een hertelling uit van de Carbosorb telflesjes met  $^{14}\text{C}$  om de eventuele aanwezigheid van  $^{35}\text{S}$  aan te kunnen tonen.  $^{14}\text{C}$  en  $^{35}\text{S}$  hebben immers nagenoeg dezelfde bèta-energie en door oxidatie van  $^{35}\text{S}$ -gelabelde verbindingen zou  $^{35}\text{S}$  als  $\text{SO}_2$  of  $\text{SO}_3$  uit de vloeistof geborreld kunnen worden. Het vaststellen van een activiteitsconcentratie voor  $^{35}\text{S}$  wordt echter enerzijds bemoeilijkt doordat de doorborrelefficiëntie en de adsorptie in de silicagelpatroon onbekend is. Anderszijds neemt de mate van quenching van de combinatie Carbosorb / Instagel in 3 maanden soms sterk toe. Dit heeft tot gevolg dat de LSC teller in de  $^{14}\text{C}$ -quenchcurve een efficiëntie berekent in de steil aflopende beginflank van de curve. Hier is de onzekerheid in de telefficiëntie relatief groot. Dit maakt een verschilmeting in de  $^{14}\text{C}$  telling direct en na 3 maanden extra onzeker. De kans op een onterechte vaststelling van  $^{35}\text{S}$  is daarmee reëel aanwezig.

RIVM beveelt daarom aan om met ingang van 2010 geen  $^{35}\text{S}$  in afvalwater meer te rapporteren.

4.3.2 *Ventilatielucht AVG*

De gammaspectrometrische meetresultaten behaald door RIVM zijn 7 van de 8 keer onder de detectiegrens. Alleen in het vijfde ventilatieluchtfilterpakket heeft RIVM een zeer geringe  $^{125}\text{I}$ -activiteit waargenomen.

De totaal-alfa meetresultaten bevinden zich op of vlak boven de detectiegrens: in het 2<sup>e</sup> en 3<sup>e</sup> monster was de vergelijking A1. COVRA en RIVM hebben in 2009 regelmatig contact gehad over de filters die gebruikt worden voor de totaal-alfa en totaal-bèta bepaling. De verschillende filtertypes bepalen in hoge mate de achtergrond en daarmee het netto telresultaat.

De vergelijking van de totaal-bèta-waarden leverde slechts éénmaal een C: de matige totaal- $\beta$  overeenkomst uit eerdere rapportages lijkt zich hiermee te verbeteren. Het verschil in de totaal-bèta meetwaarde van het 3<sup>e</sup> monster is niet duidelijk.

De activiteitsconcentraties van  $^3\text{H}$  in AVG ventilatielucht zijn in de monsters van mei, juni en november wat hoger dan gebruikelijk. Dit heeft waarschijnlijk te maken met de betrekkelijk hoge  $^3\text{H}$  activiteitsconcentraties in het afvalwater; de hoogste  $^3\text{H}$ -waarde in ventilatielucht in juni valt samen met de lozing van afvalwatermonster 5, eveneens in juni.

#### *Ventilatielucht HABOG*

Omdat in het HABOG alleen kunstmatige (en lang levende) nucliden zijn opgeslagen, worden de gemeten waarden door COVRA gecorrigeerd voor natuurlijke nucliden afkomstig uit de buitenlucht. De alfa- en bèta emissie is gecorrigeerd door de waarde te verminderen met de waarde gemeten in de luchtinlaat van het AVG. De gammameting is nuclidespecifiek, de natuurlijke nucliden zijn niet in de emissieberekening meegenomen.

Afgezien van een zeer geringe totaal-alfa activiteit in het eerste monster hebben zowel COVRA als RIVM geen alfa-, bèta- of gamma-activiteit in ventilatielucht van het HABOG aangetroffen.

De  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  activiteitsconcentraties in HABOG-ventilatielucht bevinden zich onder of vlak boven de detectiegrens. De lichte verhoging voor  $^3\text{H}$  in het monster van oktober 2009 komt hoogstwaarschijnlijk door de plaatsing van vaten of containers die een zeer geringe hoeveelheid  $^3\text{H}$  ventileren.

#### **4.4 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten**

Het totaal van alle vergelijkingsresultaten heeft zich vrijwel volgens de statistische verwachting verdeeld. Dit geeft aan dat de onderzoeksresultaten in 2009 zich, net als de voorgaande jaren, goed laten vergelijken en dat er weinig noodzaak bestaat om de toegepaste laboratoriummethodes (nog) beter op elkaar af te stemmen.

## 5 Referenties

- [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.
- [CO09] COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 86, week 1-13, 2009. COVRA-rapport nr. 09.119, 19 juni 2009.  
COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 87, week 14 – 26, 2009. COVRA-rapport nr. 09.186, 29 oktober 2009.  
COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 88, week 27 – 39, 2009, COVRA rapport nr. 09.245, 24 december 2009.  
COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 89, week 40 – 53, 2009, COVRA-rapport nr. 10.044, 27 februari 2010.
- [Hi98] Hiemstra YS, Kwakman PJM, Nissan LA, Aldenkamp FJ. Bepaling van <sup>14</sup>C in afvalwater. RIVM rapportnr. 610330004. Bilthoven, 1998.
- [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.
- [KW09] Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van COVRA. Periode 2008. RIVM Rapport 610330126/2012.
- [LS90] Voorschrift monstervoorbereiding en monsterbehandeling van vloeibare afvalstoffen. Bij brief 1364/90 LSO Sm/eh d.d. 18 september 1990.
- [NE06] NEN 6421: 2007. Water. Bepaling van de totale bèta-activiteitsconcentratie en rest- bèta-activiteitsconcentratie van niet-vluchtige bestanddelen. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, 2007.
- [NE07] NEN 5636:2007. Radioactiviteitsmetingen. Bepaling van de kunstmatige totale alfa-, kunstmatige totale bèta-activiteit en gammaspectrometrie van luchtfilters en berekening van de volumieke activiteit van de bemonsterde lucht. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, 2007.
- [NE90] NEN 3114. Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, 2e druk, augustus 1990.
- [NE91] NEN 1047. Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, 1991.
- [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

## COVRA afvalwater

Tabel A1 : Vergelijking activiteitsconcentraties gammastralers, totaal-alfa, totaal- $\beta$ , 'rest- $\beta$ ',  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  in afvalwater ( $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ ), monster 1-4 in 2009. RIVM berekent C-14 als de som van C-14<sub>anorg</sub> + C-14<sub>org</sub>.

	periode 1			periode 2			periode 3			periode 4		
	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA
Co-60	42 ± 2	A2	45,0 ± 1,0	38 ± 2	A1	39,0 ± 1,0	63 ± 4	A2	67,0 ± 1,0	55 ± 3	A2	59,0 ± 1,0
Cs-134	6,7 ± 1,0	A1	6,9 ± 0,2	8,4 ± 1,3	A1	8,3 ± 0,2	9,7 ± 1,5	A1	9,8 ± 0,2	6,6 ± 1,0	A1	6,0 ± 0,2
Cs-137	1840 ± 100	A1	1900 ± 40	2190 ± 120	A1	2220 ± 50	2280 ± 130	B	2580 ± 60	1850 ± 100	A1	1960 ± 50
K-40												
Na-22	103 ± 8	A1	98 ± 2	115 ± 9	A1	110 ± 3	130 ± 10	A1	120 ± 3	93 ± 7	A1	93 ± 2
Ru-103												
Ru-106	45 ± 9	A2	34 ± 3	39 ± 10	A1	38 ± 3	86 ± 16	A2	67 ± 4	37 ± 10	A1	31 ± 3
Sb-124				4,2 ± 1,3								
Sb-125	14,7 ± 1,8	A2	12,1 ± 0,5							14,5 ± 1,6	<	3
Zn-65				1,9 ± 1,0								
I-125												
W-181												
I-129	< 6		29,0 ± 1,0	< 4		27,0 ± 1,0						
Totaal- $\alpha$	23,3 ± 1,9	B	40 ± 6	14,2 ± 1,2	A1	13 ± 2	17,0 ± 1,4	A1	19 ± 3	9,5 ± 0,8	B	17 ± 3
Tot./rest- $\beta$	2290 ± 110	B	1960 ± 70	2330 ± 110	A1	2350 ± 80	2870 ± 140	A1	2780 ± 100	2480 ± 120	B	2070 ± 70
H-3	35000 ± 900	A1	35100 ± 1100	40100 ± 1000	A1	40400 ± 1200	42300 ± 1100	A1	40900 ± 1200	33700 ± 900	A1	32800 ± 1000
C-14 anorg	6,2 ± 0,3	C	372 ± 11	5,9 ± 0,2	A1	397 ± 12	10,4 ± 0,4	A1	481 ± 15	7,4 ± 0,3	A1	421 ± 15
C-14 org	283 ± 12			387 ± 15			489 ± 19			424 ± 16		

Tabel A1 : Vervolg - vergelijking activiteitsconcentraties gammastralers, totaal-alfa, totaal- $\beta$ , 'rest- $\beta$ ',  $^3\text{H}$  en  $^{14}\text{C}$  in afvalwater ( $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ ), monster 5-8 in 2009. RIVM berekent C-14 als de som van C-14<sub>anorg</sub> + C-14<sub>org</sub>.

	periode 5			periode 6			periode 7			periode 8		
	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA
Co-60	47 ± 3	A2	50,0 ± 1,0	41 ± 2	A2	45,0 ± 1,0	5,3 ± 0,3	A2	5,8 ± 0,2	12,4 ± 0,8	A2	13,4 ± 0,3
Cs-134				3,2 ± 0,5	A2	3,80 ± 0,10						
Cs-137	2430 ± 140	A2	2590 ± 60	3400 ± 200	A1	3410 ± 80	620 ± 40	A1	600 ± 10	430 ± 30	A1	440 ± 10
K-40				< 9		6,1 ± 1,1	< 10		5,5 ± 0,8			
Na-22	9,4 ± 0,9	B	7,2 ± 0,2	57 ± 4	A1	56,0 ± 1,0	1,8 ± 0,2	A1	1,80 ± 0,10	< 1,3		0,83 ± 0,11
Ru-103	17 ± 5	A1	17,4 ± 1,2									
Ru-106	16000 ± 2000	A1	15800 ± 300	25 ± 5	A1	25 ± 2	900 ± 120	B	1140 ± 30	2300 ± 300	A1	2200 ± 50
Sb-124												
Sb-125	20200 ± 1200	A1	19500 ± 300	10,5 ± 1,1	A1	9,5 ± 0,6	1900 ± 120	A1	1870 ± 30	70 ± 5	A2	62,0 ± 1,0
Zn-65	5,4 ± 1,5											
I-125				< 3		12,4 ± 0,7						
W-181	190 ± 20	A2	217 ± 5				12,3 ± 1,8	A2	8,6 ± 0,4			
I-129				< 3		55,0 ± 1,0						
Totaal- $\alpha$	2,8 ± 0,3	A1	2,5 ± 0,4	9,0 ± 0,8	B	6,4 ± 1,0	1,27 ± 0,14	B	2,2 ± 0,3	2,3 ± 0,2	A2	1,8 ± 0,3
Tot./rest- $\beta$	29500 ± 1400	A2	31900 ± 1100	3780 ± 180	A1	3970 ± 140	2940 ± 140	A2	3290 ± 120	2830 ± 130	C	4190 ± 150
H-3	196000 ± 5000	A1	190000 ± 6000	22700 ± 600	A1	22200 ± 700	43900 ± 1100	A1	43400 ± 1300	10000 ± 300	A1	10400 ± 300
C-14 anorg	73 ± 3	A1	136 ± 5	4,13 ± 0,19	A1	205 ± 7	1,67 ± 0,12	A1	22,4 ± 0,7	2,0 ± 0,2	A1	17,7 ± 0,6
C-14 org	62 ± 7			204 ± 10			21 ± 5			17 ± 7		

Tabel A2 : De nucliden in de bibliotheek voor analyse van gammaspectra van monsters afvalwater en ventilatielucht

<sup>7</sup> Be	<sup>65</sup> Zn*	<sup>115</sup> Cd	<sup>134</sup> Cs*
<sup>22</sup> Na	<sup>75</sup> Se	<sup>115m</sup> Cd	<sup>136</sup> Cs
<sup>24</sup> Na	<sup>95</sup> Nb*	<sup>123m</sup> Te <sup>†</sup>	<sup>137</sup> Cs*
<sup>40</sup> K	<sup>95</sup> Zr*	<sup>124</sup> Sb*	<sup>140</sup> Ba*
<sup>51</sup> Cr*	<sup>99</sup> Mo	<sup>125</sup> I	<sup>140</sup> La*
<sup>54</sup> Mn*	<sup>103</sup> Ru*	<sup>125</sup> Sb <sup>†</sup>	<sup>141</sup> Ce*
<sup>57</sup> Co*	<sup>106</sup> Ru*	<sup>129m</sup> Te	<sup>144</sup> Ce*
<sup>58</sup> Co*	<sup>109</sup> Cd	<sup>129</sup> I	<sup>181</sup> W
<sup>59</sup> Fe*	<sup>110m</sup> Ag*	<sup>131</sup> I*	<sup>202</sup> Tl
<sup>60</sup> Co*	<sup>113</sup> Sn	<sup>132</sup> Te	

\* Volgens KTA 1503.1 en KTA 1504 te onderzoeken nucliden [KT02, KT06]

† Volgens KTA 1504 te onderzoeken nucliden [KT06]

## COVRA ventilatielucht AVG

Tabel A3 : Meetresultaten gammaspectrometrie (<sup>125</sup>I) in ventilatielucht AVG in 2009 (mBq m<sup>-3</sup>)

Monsternummer	Pakket	Nuclide	Aërosolfilter		DSM11-1		Kool-1	
			RIVM	COVRA	RIVM	COVRA	RIVM	COVRA
6 - 13 januari	<	<sup>125</sup> I						
17 - 24 maart	<	<sup>125</sup> I						
24 - 31 maart	<	<sup>125</sup> I						
31 maart - 7 april	<	<sup>125</sup> I						
23 - 30 juni	>	<sup>125</sup> I	5,5 ± 1,4	9,8 ± 0,4	8 ± 2	3,7 ± 0,3	< 3	
25 aug - 1 september	<	<sup>125</sup> I	< 3	3,2 ± 0,2				
13 - 20 oktober	<	<sup>125</sup> I	< 2	0,61 ± 0,11				
10 - 17 november	<	<sup>125</sup> I	< 2	1,1 ± 0,13				

\* In de onderdelen DSM11-2 (< 4 mBq.m<sup>-3</sup>) en kool-2 (< 1,9 mBq.m<sup>-3</sup>) hebben COVRA en RIVM geen <sup>125</sup>I aangetroffen.



**Tabel A4 : Meetresultaten totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht AVG in 2009 ( $mBq m^{-3}$ )**

Nr.	Monsterperiode	Totaal- $\alpha$		Totaal- $\beta$		
		RIVM	COVRA	RIVM	V	COVRA
1	06 jan - 13 jan	< 0,017	< 0,02	< 0,06		$0,130 \pm 0,013$
2	17 mrt - 24 mrt	$0,031 \pm 0,012$	A1 $0,024 \pm 0,002$	$0,43 \pm 0,05$	A1	$0,45 \pm 0,05$
3	24 mrt - 31 mrt	$0,022 \pm 0,009$	A1 $0,031 \pm 0,003$	$0,45 \pm 0,05$	C	$1,36 \pm 0,14$
4	31 mrt - 07 apr	$0,019 \pm 0,009$	< 0,02	$0,16 \pm 0,03$	B	$0,26 \pm 0,03$
5	23 jun - 30 jun	< 0,014	< 0,02	$2,1 \pm 0,2$	A1	$1,93 \pm 0,19$
6	25 aug - 01 sep	< 0,017	< 0,02	$0,82 \pm 0,09$	A2	$0,63 \pm 0,06$
7	13 okt - 20 okt	< 0,014	< 0,02	$0,25 \pm 0,03$	A1	$0,26 \pm 0,03$
8	10 nov - 17 nov	< 0,015	< 0,02	$0,30 \pm 0,04$	A1	$0,33 \pm 0,03$

**Tabel A5 : Meetresultaten  $^3H$  in ventilatielucht AVG in 2009 ( $Bq m^{-3}$ )**

Periode	$^3H$		
	RIVM	V	COVRA
februari	$1,46 \pm 0,07$	A2	$1,2 \pm 0,2$
mei	$7,8 \pm 0,2$	B	$6,8 \pm 0,3$
juni	$38,1 \pm 1,0$	A1	$37,0 \pm 1,3$
november	$8,7 \pm 0,3$	A1	$9,2 \pm 0,4$

**Tabel A6 : Meetresultaten  $^{14}C$  in ventilatielucht AVG in 2009 ( $Bq m^{-3}$ )**

Periode	$^{14}C$		
	RIVM	V	COVRA
februari	$0,91 \pm 0,06$	A1	$0,94 \pm 0,06$
mei	$1,35 \pm 0,12$	A1	$1,36 \pm 0,08$
juni	$2,07 \pm 0,13$	A1	$2,21 \pm 0,13$
november	$0,49 \pm 0,05$	A1	$0,46 \pm 0,03$

**Tabel A7 : Detectielimieten, bereikt bij de monsters ventilatielucht ( $mBq m^{-3}$ )**

	Detectiegrens RIVM	Detectiegrens COVRA
$^{125}I$ (pakket)	2,0–5,6	
$^{60}Co$ (pakket)	a) 0,7	0,5
$^{60}Co$ (aërosol)	a) 0,3	0,5
$^{131}I$ (DSM-11)	b) 1,3–8,4	1,0 <sup>c)</sup>
$^{131}I$ (act.kool.)	b) 1,5–3,8	1,1 <sup>c)</sup>
Totaal-alfa	0,014–0,017	0,02
Totaal-bèta	0,06	0,05

a) KTA 1503.1 eist dat de detectielimiet voor aërosolgebonden  $^{60}Co$  in ventilatielucht maximaal  $20 mBq \cdot m^{-3}$  is

b) KTA 1503.1 eist dat de detectielimiet voor  $^{131}I$  in ventilatielucht maximaal  $20 mBq \cdot m^{-3}$  is

c) COVRA bepaalt de detectielimiet voor  $^{131}I$  in DSM-11 en actieve kool aan de hand van  $^{60}Co$

**COVRA ventilatielucht HABOG***Tabel A8 : Meetresultaten in 2009 voor totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht HABOG (mBq m<sup>-3</sup>)*

Nr.	Monsterperiode	Totaal-α			Totaal-β		
		RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA
1	30 dec - 13 jan	0,010 ± 0,004		< 0,04	< 0,02		< 0,3
2	24 feb - 10 mrt	< 0,007		< 0,008	< 0,02		< 0,2
3	10 mrt - 24 mrt	< 0,010		< 0,008	< 0,04		< 0,2
4	24 mrt - 07 apr	< 0,012		< 0,008	< 0,04		< 0,19
5	16 jun - 30 jun	< 0,005		< 0,008	< 0,018		< 0,2
6	11 aug - 25 aug	< 0,007		< 0,008	< 0,018		< 0,3
7	06 okt - 20 okt	< 0,005		< 0,008	< 0,018		< 0,02
8	03 nov - 17 nov	< 0,005		< 0,008	< 0,019		< 0,02

*[Tabel A9] : Meetresultaten in 2009 voor gammaspectrometrie in ventilatielucht HABOG (mBq m<sup>-3</sup>)*

In alle filterpakket onderdelen, aerosolfilter + kool-1 + kool-2, hebben zowel COVRA als RIVM geen gammastralers aangetroffen.  
De detectiegrens van RIVM voor <sup>125</sup>I in het aerosolfilter bedraagt 1-3 mBq.m<sup>-3</sup> en voor hetzelfde nuclide in het koolfilter 1-2 mBq.m<sup>-3</sup>

*Tabel A10 : Meetresultaten in 2009 voor <sup>3</sup>H in ventilatielucht HABOG (Bq m<sup>-3</sup>)*

Periode	<sup>3</sup> H		
	RIVM	V	COVRA
februari	0,27 ± 0,05		< 0,10
mei	0,11 ± 0,03		< 0,10
september	1,14 ± 0,11 A1		1,03 ± 0,16
oktober	2,85 ± 0,14 A1		2,7 ± 0,3

*Tabel A11 : Meetresultaten in 2009 voor <sup>14</sup>C in ventilatielucht HABOG (Bq m<sup>-3</sup>)*

Periode	<sup>14</sup> C		<sup>14</sup> C COVRA
	RIVM	V	
februari	< 0,06		< 0,10
mei	< 0,05		< 0,10
september	0,078 ± 0,018		< 0,10
oktober	0,105 ± 0,018 A1		0,120 ± 0,010

## Bijlage B Monstername en analyse door COVRA

Procedures geldig ten tijde van rapportageperiode 2009.

Alex de Best, Covra. (e-mail d.d. 29-3-2012)

### **1. Monstername AVG**

#### **1.1 Afvalwater**

Het afvalwater wordt verzameld in opslagtanks. Na reiniging van het afvalwater komt dit water in een lozingstank. Hierna vindt lozing plaats op de Westerschelde. Tijdens de lozing neemt COVRA 2 monsters van elk 2 l dmv een proportioneel bemonsteringssysteem dat geïntegreerd is in de lozingsleiding. In de fles zit een zuur ter voorkoming van inhomogeniteiten en een drageroplossing om adsorptie aan de fleswand te voorkomen. Eén fles is voor RIVM en de ander voor COVRA.

#### **1.2 Ventilatielucht**

De geloosde ventilatielucht wordt via een isokinetisch bemonsteringssysteem continu naar twee parallel opgestelde filterpakketten geleid. Eén pakket is bedoeld voor analyse door RIVM en de andere is voor COVRA. Sinds mei 1999 zijn de filterpakketten identiek dwz een glasvezelfilter, twee DSM 11 lagen en twee actieve kool lagen. Eenmaal per week worden de patronen vernieuwd. Ook wordt de geloosde ventilatielucht bemonsterd voor de bepaling op H-3 en C-14. Dit gebeurt door de ventilatielucht gedurende één maand door een patroon te leiden die gevuld is met adsorptiemiddel (zeolietkorrels). Doordat gebruik wordt gemaakt van katalytische oxidatie wordt alle H-3 en C-14 (dus niet alleen de H<sub>2</sub>O en CO<sub>2</sub> gebonden) bemonsterd. Hierna wordt het adsorptiemiddel vervangen door 'schone' nieuwe.

### **2. Monstername HABOG**

#### **Ventilatielucht**

De geloosde ventilatielucht wordt via een isokinetisch bemonsteringssysteem continu naar twee parallel opgestelde filterpakketten geleid. Eén pakket is bedoeld voor analyse door RIVM en de andere is voor COVRA. Deze filterpakketten zijn identiek dwz een glasvezelfilter en twee actieve kool lagen. Eenmaal per 2 weken worden de patronen vernieuwd. Ook wordt de geloosde ventilatielucht bemonsterd voor de bepaling op H-3 en C-14. Dit gebeurt door de ventilatielucht gedurende één maand door een patroon te leiden die gevuld is met adsorptiemiddel (zeolietkorrels). Doordat gebruik wordt gemaakt van katalytische oxidatie wordt alle H-3 en C-14 (dus niet alleen de H<sub>2</sub>O en CO<sub>2</sub> gebonden) bemonsterd. Hierna wordt het adsorptiemiddel vervangen door 'schone' nieuwe.

### **3. Analyses AVG**

#### **3.1 Afvalwater AVG**

Gamma: mbv een high purity Ge detector. Ter voorkoming van het uitzakken v/d radioactieve componenten wordt 500 ml afvalwater gegeleerd met 15 g behangplaksel in een marinelli-beker. De marinellibeker regelmatig schudden. Na 24 uur kan de marinellibeker met het monster gemeten worden. De meettijd bedraagt 240 min. Voor de kalibratie wordt gebruikt gemaakt van een bekende hoeveelheid activiteit in 500 ml demiwater en 15 g behangplaksel. Genie2K berekent ook de fout in de meting. Tevens kunnen alle andere fouten, zoals kalibratiefout en experimentelefout, als randomfout worden ingegeven zodat er op de print een totaal  $1\sigma$ -fout ontstaat.

Totaal alfa: 20 ml afvalwater wordt drooggedampt in een roestvrij stalen schaalte met een diameter van 50 mm. Dit gebeurt door porties van 4 ml bij een temperatuur van  $\pm 70$  °C te drogen. Nieuw afvalwater wordt pas toegevoegd nadat het schaalte helemaal droog is. De bepaling wordt in duplo uitgevoerd. Om de telopbrengst te bepalen wordt 50  $\mu$ l Am-241 standaard aan 100 ml afvalwater toegevoegd. 20 ml van deze oplossing wordt op dezelfde manier drooggedampt.

De monsters en standaarden worden hierna 4 x 720 min. gemeten mbv een proportionele gasdoorstroomteller (Berthold LB770)

De telopbrengst wordt berekend uit het verschil in de resultaten van de beide telpreparaten en de toegevoegde activiteit aan Am-241.

De fout in de bepaling is groot omdat we bij alfa te maken hebben met zelfabsorptie. Ook de hele monstervoorbereiding is redelijk foutgevoelig.

Afhankelijk van de concentratie komt hier nog de telfout bij. De totale  $1\sigma$ -fout zal minimaal rond de 15% liggen en kan, monster afhankelijk, nog hoger zijn.

Tritium: breng in een bekersglas van 100 ml,  $\pm 30$  ml afvalwater en voeg 0,5 g  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  toe om het alkalisch te maken. Hierna wordt het monster verwarmd tot koken. Nadat er  $\pm 10$  ml is verdampt wordt er een opvangvatje in het bekersglas gezet en wordt de verwarming lager gezet zodat het monster langzaam verdampt. Boven op het bekersglas wordt een rondbodemkolf, gevuld met water, geplaatst. De damp zal nu condenseren en in het vatje vallen. We koken totdat er minimaal 10 ml in het opvangvatje zit. De bepaling wordt in duplo uitgevoerd. Af laten koelen tot kamertemperatuur. Hierna 10 ml pipetteren in een telflesje en 10 ml Ultima Gold XR toevoegen. De monsters en een blanco (= 10 ml demiwater + 10 ml UG-XR) 120 min. meten op de LSC. De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een experimentelefout. De totale  $1\sigma$ -fout bedraagt minimaal 2%.

Koolstof-14: Bepaling dmv de C-14 borrelmethode. Breng in een driehalsrondbodemkolf 100 ml afvalwater. Vul aan met demiwater tot 200 ml. Opstelling maken volgens voorschrift: Bep. C-14 in afvalwater. In het telflesje zit 7 ml Carbosorb-E. Hierna 3 ml  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (geconc.) toevoegen en 90 min. koken. In dit telflesje zit het anorganisch gebonden C-14. Hierna het telflesje vervangen door een nieuwe (ook met 7 ml Carbosorb-E), 30 ml  $\text{KMnO}_4$  (75 g/l) toevoegen en 5 uur koken. We bepalen nu het organisch gebonden C-14. Hierna het telflesje opnieuw vervangen (weer met 7 ml Carbosorb-E) en nog een uur

koken. Dit flesje is om er zeker van te zijn dat alle C-14 is geoxideerd. Voeg aan alle drie de flesjes 10 ml Instagel-plus toe. De monsters 3 x 120 min. meten op de LSC. Als er in het laatste flesje meer dan 3 % zit van flesje 2, moet er de andere dag nog 2 uur extra gekookt worden.

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een experimentelefout. De totale  $1\sigma$ -fout bedraagt minimaal 3%.

Rest- $\beta$ : breng in een telflesje 10 ml afvalwater en voeg 10 ml Ultima-Gold XR toe. Meet 120 min. op de LSC. De telopbrengst voor deze bepaling is 53 %, waarbij we gebruik maken van referentienuclide  $^{136}\text{Cl}$ . Dit geldt bij een kanaalinstelling van 50 tot 2000 keV.

We wijken hierbij af van de NEN norm: NEN 6421. Hier is de rest- $\beta$  activiteit omschreven als: de totale  $\beta$  activiteit min de K-40 activiteit.

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een pipetteerfout. De totale  $1\sigma$ -fout bedraagt minimaal 3%.

### **3.2 Ventilatielucht AVG**

Gamma: mbv een high purity Ge detector. Het filter, de eerste DSM 11 laag en de eerste kool laag worden apart gemeten. Indien er in de eerste laag DSM 11 of kool activiteit gemeten wordt, dan wordt ook de tweede laag gemeten. De meettijd bedraagt 100 min. per laag. Voor alle drie verschillende lagen is een kalibratie gemaakt mbv een bekende hoeveelheid activiteit. De activiteitconcentraties worden berekend met Genie2K van de firma Canberra. De instelling voor de meetperiode gebeurt door desorption te kiezen waardoor de begin- en einddatum ingevuld kan worden. Bij desorption wordt er gecorrigeerd voor verval tijdens de meetperiode.

Genie2K berekent ook de fout in de meting. Tevens kunnen alle andere fouten, zoals kalibratiefout en experimentelefout, als random fout worden ingegeven zodat er op de print een totaal  $1\sigma$ -fout ontstaat.

Totaal alfa en totaal bèta: uit het glasvezelfilter wordt een schijf geponst met een diameter van 58 mm. De monsters worden hierna 4 x 720 min. gemeten mbv een proportionele gasdoorstroomteller (Berthold LB770)

Voor de bepaling van de telopbrengst is op een schoon filter een bekende hoeveelheid activiteit gebracht. Voor alfa mbv  $^{241}\text{Am}$  en bèta mbv  $^{136}\text{Cl}$ . We krijgen dan voor alfa een telopbrengst van 22% en voor bèta een telopbrengst van 48%. De fouten bij deze bepaling wordt bijna geheel bepaald door de telfout omdat de gemeten waarden heel laag zijn. Experimenteel is deze fout voor alfa vastgesteld op 10% en voor bèta op 3%.

Tritium: het adsorptiemiddel wordt bij 350 °C uitgestookt. Dit gebeurt onder doorleiding van stikstof. Hierbij ontstaat waterdamp waarin zich het tritium bevindt. Door condensatie, dmv een 'koude val', wordt dit water afgevangen. Dit water wordt aangevuld tot 50 ml en hiervan gaat 10 ml naar het RIVM. Hierna 10 ml pipetteren in een telflesje en 10 ml Ultima Gold XR toevoegen. De monsters en een blanco (= 10 ml demiwater + 10 ml UG-XR) 120 min. meten dmv LSC.

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een experimentelefout. De totale  $1\sigma$ -fout bedraagt minimaal 4%.

Koolstof-14: bij het uitstoken van tritium wordt het stikstof, na de koude val, door een verzadigde  $\text{Ba}(\text{OH})_2$  - opl. geleid. Hierbij ontstaat  $\text{BaCO}_3$  neerslag. Dit

neerslag wordt 2 uur gedroogd bij 300 °C en na afkoelen tot poeder vermalen. Hierna wordt het totaal gewicht bepaald en weegt COVRA 1,000 g af. De rest gaat naar RIVM. Aan het neerslag wordt 7 ml water toegevoegd en goed gemengd. Hierna wordt 13 ml Instagel-Plus toegevoegd. Na 2 uur de monsters en een blanco (= 1 g zuiver BaCO<sub>3</sub> + 7 ml water + 13 ml Instagel Plus) 120 min. meten dmv LSC.

De mogelijk bestaat dat er tijdens de monsternamen ook S-35 wordt neergeslagen. Daarom wordt na 3 maanden het monster nogmaals geteld. Het verschil in telling is bijdrage van S-35. Vervolgens wordt de werkelijk geloosde C-14 activiteit berekend.

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratie fout en een experimentele fout. De totale 1 $\sigma$ -fout bedraagt minimaal 6%. De experimentele fout is bij deze bepaling het grootst. Er moeten veel handelingen verricht worden voordat het monster gereed is.

#### **4. Analyses HABOG**

##### **Ventilatielucht**

Gamma: mbv een high purity Ge detector. Het filter en de eerste kool laag worden apart gemeten. Indien er in de eerste laag kool activiteit gemeten wordt, dan wordt ook de tweede laag gemeten. De meettijd bedraagt 100 min. per laag. Voor beide verschillende lagen is een kalibratie gemaakt mbv een bekende hoeveelheid activiteit. De activiteitconcentraties worden berekend met Genie2K van de firma Canberra. De instelling voor de meetperiode gebeurt door desorption te kiezen waardoor de begin- en einddatum ingevuld kan worden. Bij desorption wordt er gecorrigeerd voor verval tijdens de meetperiode. Genie2K berekent ook de fout in de meting. Tevens kunnen alle andere fouten, zoals kalibratiefout en experimentele fout, als random fout worden ingegeven zodat er op de print een totaal 1 $\sigma$ -fout ontstaat.

Totaal alfa en totaal bèta: uit het glasvezelfilter wordt een schijf gepolst met een diameter van 58 mm. De monsters worden hierna 4 x 720 min. gemeten mbv een proportionele gasdoorstroomteller (Berthold LB770)

Voor de bepaling van de telopbrengst is op een schoon filter een bekende hoeveelheid activiteit gebracht. Voor alfa mbv Am-241 en bèta mbv CI-36. We krijgen dan voor alfa een telopbrengst van 22% en voor bèta een telopbrengst van 48%.

De fouten bij deze bepaling wordt bijna geheel bepaald door de telfout omdat de gemeten waarden heel laag zijn. Experimenteel is deze fout voor alfa vastgesteld op 10% en voor bèta op 3%.

Tritium: het adsorptiemiddel wordt bij 350 °C uitgestookt. Dit gebeurt onder doorleiding van stikstof. Hierbij ontstaat waterdamp waarin zich het tritium bevindt. Door condensatie, mbv een 'koude val', wordt dit water afgevangen. Dit water wordt aangevuld tot 50 ml en hiervan gaat 10 ml naar het RIVM. Hierna 10 ml pipetteren in een telflesje en 10 ml Ultima Gold XR toevoegen. De monsters en een blanco (= 10 ml demiwater + 10 ml UG-XR) 120 min. meten dmv LSC.

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een experimentele fout. De totale 1 $\sigma$ -fout bedraagt minimaal 4%.

Koolstof-14: bij het uitstoken van tritium wordt het stikstof, na de koude val, door een verzadigde  $\text{Ba}(\text{OH})_2$  – opl. geleid. Hierbij ontstaat  $\text{BaCO}_3$  neerslag. Dit neerslag wordt 2 uur gedroogd bij 300 °C en na afkoelen tot poeder vermalen. Hierna wordt het totaal gewicht bepaald en weegt COVRA 1,000 g af. De rest gaat naar RIVM. Aan het neerslag wordt 7 ml water toegevoegd en goed gemengd. Hierna wordt 13 ml Instagel-Plus toegevoegd. Na 2 uur de monsters en een blanco (= 1 g zuiver  $\text{BaCO}_3$  + 7 ml water + 13 ml Instagel Plus) 120 min. meten dmv LSC.

De mogelijk bestaat dat er tijdens de monsternamen ook S-35 wordt neergeslagen. Daarom wordt na 3 maanden het monster nogmaals geteld. Het verschil in telling is bijdrage van S-35. Vervolgens wordt de werkelijk geloosde C-14 activiteit berekend.

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratie fout en een experimentele fout. De totale  $1\sigma$ -fout bedraagt minimaal 6%. De experimentele fout is bij deze bepaling het grootst. Er moeten veel handelingen verricht worden voordat het monster gereed is.



Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu**

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