



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

**Contra-expertise op bepalingen van radio-  
activiteit van afvalwater en ventilatielucht  
van NRG.**

*Periode 2011*

RIVM briefrapport 610330135/2013  
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 NRG**

periode 2011

RIVM Briefrapport 610330135/2013

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

## Colofon

© RIVM 2013

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

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van Inspectie Leefomgeving en Transport, 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 NRG. Periode 2011**

Het RIVM controleert achtmaal per jaar de metingen van NRG. Het gaat hierbij om lozingen van radioactiviteit in water en lucht. De contra-expertise onderbouwt de betrouwbaarheid van de analyses die NRG uitvoert. Ook in 2011 komen de analyses in afvalwater goed overeen, met name voor de gammaspectrometrie en totaal-alfa resultaten. Enkele structurele verschillen in dat jaar betreffen de totaal-beta metingen in afvalwater; RIVM meet altijd veel lager dan NRG. Dit wordt deels verklaard door het feit dat er veel kortlevende beta-stralers in het afvalwater aanwezig zijn, en deels door verschillen in de meetmethoden die NRG en RIVM toepassen. De overeenstemming in de tritium resultaten in afvalwater kan nog verbeterd worden.

De resultaten behaald door NRG en RIVM in ventilatieluchtmonsters zijn in goede overeenstemming. De totaal-alfa en totaal-bèta resultaten zijn alle op of dicht bij de detectiegrens en verschillen niet significant van de waarden die in buitenlucht in Bilthoven worden aangetroffen. In het enige geval waar er een vergelijking gemaakt kan worden is er een goede overeenstemming in het gammaspectrometrie resultaat voor  $^{131}\text{I}$ ; dit betreft het eerste monster.

Het RIVM heeft in 2011 acht afvalwatermonsters en acht monsters van ventilatielucht geanalyseerd, die verspreid over het jaar gedurende een week door NRG zijn genomen. Opdrachtgever is de Kernfysische Dienst van de Inspectie Leefomgeving en Transport van het ministerie van Infrastructuur en Milieu.

Trefwoorden: NRG, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

## Abstract

### **Contra-expertise on the determination of radioactivity of waste water and ventilation air of NRG. Period 2011**

Within the framework of a monitoring programme, RIVM measures the release of radioactivity into the waste water and atmosphere of NRG. 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 NRG. In 2011, the two different sets of measurements are generally in agreement for gammaspectrometry and gross alpha results in waste water. The few discrepancies that were observed concern the presence of gross beta emitters in waste water. This is partly explained by the presence of short-lived beta-emitters in waste water of NRG, and partly because of differences in the analytical methods applied by NRG and RIVM. The agreement in  $^3\text{H}$  in waste water needs some improvement.

The results obtained by RIVM and NRG in ventilation air samples are in good agreement. Gross alpha and gross beta results are all close to the detection limit. There is no significant difference between these results and the results obtained in outside air in Bilthoven.

In the only case where the gammaspectrometry result can be compared the agreement for  $^{131}\text{I}$  in the first sample is good.

The RIVM analyzed eight waste water samples and eight samples of ventilation air taken by NRG at various time points dispersed throughout 2011. The analyses were carried out on behalf of the Department of Nuclear Safety, Security and Safeguards of the Dutch Ministry of Infrastructure and Environment.

Keywords:

NRG, 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-activiteitsconcentratie in afvalwater—9

3.3 Bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater—9

3.4 Bepaling van de activiteitsconcentratie aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater—10

3.5 Bepaling van de <sup>3</sup>H-activiteitsconcentratie in afvalwater—10

3.6 Bepaling van de totaal-alfa- en totaal bèta-activiteitsconcentratie in ventilatielucht—11

3.7 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht—11

3.8 Foutenberekeningen—11

3.9 Kwaliteitsborging—12

3.10 Presentatie van resultaten en vergelijking—12

**4 Resultaten en discussie—14**

4.1 Meetresultaten—14

4.2 Vergelijking van de resultaten en discussie—14

4.2.1 Afvalwater—14

4.2.2 Ventilatielucht HFR—16

4.3 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten—17

**5 Referenties—18**

**Bijlage A Vergelijking meetresultaten NRG afvalwater—19**

**Bijlage B Bemonstering en meting door NRG in 2011—22**

## Samenvatting

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek (LSO) van RIVM voert in opdracht van de Kernfysische Dienst van de Inspectie Leefomgeving en Transport 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 2011.

De contra-expertisemonsters waarvoor het rapport over gaat, zijn afvalwatermonsters en ventilatieluchtmonsters afkomstig van de Nuclear Research and Consultancy Group (NRG) te Petten.

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.

RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, totaal-beta, tritium in afvalwater, en gammastralers, totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht.

Bij de vergelijking van de gemeten concentraties aan totaal-alfa en gammastralers in de afvalwatermonsters bleek een uitstekende overeenstemming. De vergelijking in de totaal-bèta activiteit in afvalwater is matig. Dit is echter begrijpelijk omdat de totaal-bèta activiteit voor een groot deel uit kortlevende radionucliden bestaat en omdat NRG en RIVM verschillende meetmethoden hanteren. Voor  $^3\text{H}$  is de overeenstemming nog voor verbetering vatbaar.

RIVM heeft in de ventilatieluchtmonsters een zeer geringe totaal-alfa activiteit aangetroffen die waarschijnlijk van natuurlijke oorsprong is. In het eerste van de acht filterpakketten van ventilatielucht van de Hoge Flux Reactor (HFR) hebben NRG en RIVM, met een goede overeenstemming, een geringe activiteit van het nuclide  $^{131}\text{I}$  gevonden.

## 1 Inleiding

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek (LSO) van RIVM voert in opdracht van Kernfysische Dienst van de Inspectie Leefomgeving en Transport radioactiviteitsmetingen (KFD-ILT) 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 2011.

De contra-expertisemonsters waar voorliggende rapport over gaat, zijn afvalwatermonsters en ventilatieluchtmonsters afkomstig van de Nuclear Research and Consultancy Group (NRG) te Petten.

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 ongegeleerde afvalwatermonsters en ventilatieluchtfilters van HFR op bij NRG. Tabel 1 bevat een overzicht van het, vooraf met de KFD overeengekomen, aantal monsters en de te verrichten analyses [RI11].

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

Monsters	Aantal	Analyses
Afvalwater	8	Totaal-alfa**, totaal- bèta**, gammastralers** en $^3\text{H}^*$
Ventilatielucht HFR (pakket : aerosolfilter, koolfilter, koolkorrels)	8	gamma-emitters*; alleen aerosolfilter: totaal-alfa*, totaal-bèta*

\* Analyse in enkelvoud

\*\* Analyse in tweevoud

In 2011 zijn acht water- en ventilatieluchtmonsters opgehaald; NRG is daarvoor achtmaal bezocht. Gegevens van de monsters staan in Tabel 2 en Tabel 3.

**Tabel 2** *Monstergegevens afvalwater*

Nr.	Monsterperiode	Ophaaldatum	Data gammaspectrometrie
1	14 feb - 21 feb	23 februari 2011	24, 28 februari 2011
2	14 mrt - 21 mrt	24 maart 2011	3, 3 april 2011
3	2 mei - 9 mei	18 mei 2011	22, 23 mei 2011
4	6 jun - 13 jun	15 juni 2011	21, 22 juni 2011
5	5 sep - 12 sep	4 oktober 2011	5, 6 oktober 2011
6	19 sep - 26 sep	4 oktober 2011	6, 6 oktober 2011
7	26 sep - 3 okt	2 november 2011	3, 7 november 2011
8	17 okt - 24 okt	2 november 2011	3, 8 november 2011

\* Bepaling met gammaspectrometrie is uitgevoerd in tweevoud; vermelding wegens afspraak om de meting te verrichten binnen 2 weken na ontvangst monsters (analyse gereed binnen 3 weken).

**Tabel 3** *Monstergegevens HFR ventilatielucht*

Nr.	Monsterperiode	Ophaaldatum	Data gammaspectrometrie
1	09 - 16 februari	23 februari 2011	23 februari 2011
2	09 - 16 maart	24 maart 2011	24 maart 2011
3	27 apr - 04 mei	18 mei 2011	18 mei 2011
4	25 mei - 01 juni	15 juni 2011	15 juni 2011
5	07 - 14 september	4 oktober 2011	4 oktober 2011
6	14 - 21 september	4 oktober 2011	4 oktober 2011
7	12 - 19 oktober	2 november 2011	2 november 2011
8	19 - 26 oktober	2 november 2011	2 november 2011

### 3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast op afvalwater door NRG in 2011, zijn gereproduceerd in Bijlage B. Voor de bemonstering en analyse van ventilatielucht van HFR (gedurende 2011) zijn de beschrijvingen niet door RIVM ontvangen.

In opdracht van de 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-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 en 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 ( $< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ ). 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 monster worden twee monsters van 250 ml afgemeten. Elk van deze monsters 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 [LS90]. De monsters worden gemeten op een N-type halfgeleiderdetector gekoppeld aan een pulssorteerder met 8192 kanalen over een energiebereik van 30 keV (of 80 keV; P-type) tot 2 MeV in een meettijd van 1000 minuten. Het spectrum wordt geanalyseerd met behulp van het analyseprogramma Genie2000 aan de hand van een nuclidenbibliotheek. De door KTA 1504 voorgeschreven radionucliden zijn in Tabel A2 aangegeven met een '\*' [KT06]. Het analyseresultaat is de activiteit van de in de nuclidenbibliotheek opgenomen nucliden of de detectielimieten voor alle nucliden uit de nuclidenbibliotheek waarvan de signalen niet boven een bepaalde signaal/ruis-verhouding uitkomen en de som van de activiteiten van alle gedetecteerde nucliden. Daarnaast wordt door het analyseprogramma melding gemaakt van pieken die wel gedetecteerd zijn in het spectrum maar die niet aan één van de nucliden in de bibliotheek zijn toe te wijzen. Is dit het geval dan vindt een nadere analyse van het spectrum plaats. In dit kader heeft RIVM een nuclidespecifieke kalibratie uitgevoerd voor een aantal gammastralers die niet in de door KTA voorgeschreven nuclidenbibliotheek staan [KT06], maar regelmatig in afvalwater van NRG voorkomen. Het gaat om  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{111}\text{In}$ ,  $^{181}\text{W}$ ,  $^{186}\text{Re}$ ,  $^{188}\text{W}$  en  $^{203}\text{Pb}$ . RIVM corrigeert net als NRG voor radioactief verval door de activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar het midden van de monsterperiode.

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-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 tot een telfout van 1% of tot maximaal 200 min uitgevoerd. Het telpreparaat bestaat uit 10,0 ml destillaat en 10,0 ml scintillatie-vloeistof (Ultima Gold LLT).

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

### 3.6 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 [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 opgenomen. Deze methode is vastgelegd in procedure LSO-0121: Handboek gasdoorstroomtelling.

### 3.7 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht

Per analyse wordt van het geponste (46 mm) aërosolfilter, een koolfilter en korrels met actieve kool een gamma-spectrum opgenomen en geanalyseerd op dezelfde wijze als dit bij afvalwater gebeurt. De gevonden activiteiten in de afzonderlijke onderdelen worden gesommeerd tot een waarde voor het gehele pakket. Er wordt gecorrigeerd voor radioactief verval door de activiteit van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar het midden van de monsterperiode.

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-0238 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gammaspectrometrie.

### 3.8 Foutenberekeningen

De door RIVM opgegeven fout is het 1s-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 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 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 monster-voorbehandeling. Indien cascadeverval optreedt, leidt dit tot een extra bijdrage aan de fout.
- *Bepaling van de  $^3\text{H}$  -activiteitsconcentratie in afvalwater*  
De totale fout is samengesteld uit de telfout, een kalibratiefout en een experimentele fout.
- *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 %.

### 3.9 Kwaliteitsborging

In het kader van de bewaking van de kwaliteit van de gebruikte analyse- en meetmethoden neemt RIVM jaarlijks deel aan het ringonderzoek 'Abwasser', georganiseerd door het Duitse Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) [Bf11]. Voor ventilatieluchtmonsters wordt indien mogelijk deelgenomen aan relevante ringonderzoeken.

### 3.10 Presentatie van resultaten en vergelijking

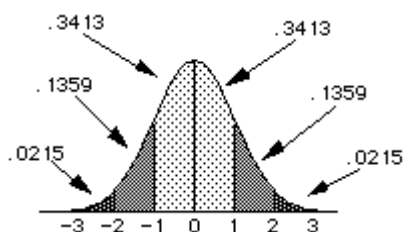
De door NRG bepaalde activiteitsconcentraties worden met de afronding zoals die door RIVM wordt gehanteerd (volgens NEN 1047 [NE91]) overgenomen uit de opgave van NRG [NR11].

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 in dit verschil is:  $s_{\Delta} = \sqrt{(s_{\text{NI}})^2 + (s_{\text{RIVM}})^2}$ . Indien de NI geen opgave doet van de onzekerheid in het analyseresultaat, wordt verondersteld dat de fout in de meetwaarde van de NI,  $s_{\text{NI}}$ , gelijk is aan de fout in de meetwaarde van RIVM,  $s_{\text{RIVM}}$ .

Het is hierbij in het bijzonder van belang, dat alle partijen (RIVM en NI's) een gedegen foutenberekening uitvoeren. In het ideale geval, 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:  $|\Delta| \leq s\Delta$  ~68%, ofwel circa 2 uit 3  
 A2:  $s\Delta < |\Delta| \leq 2 s\Delta$  ~27%, ofwel circa 1 uit 4  
 B:  $2 s\Delta < |\Delta| \leq 3 s\Delta$  ~4,3%, ofwel circa 1 uit 20  
 C:  $3 s\Delta < |\Delta|$  ~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.

De door NRG bepaalde activiteitsconcentraties worden overgenomen uit de lozingsrapportages van NRG [NR11] en zijn in deze rapportageperiode afgerond met de afrondingsregels zoals die door RIVM wordt gehanteerd (volgens NEN 1047 [NE91]).

## 4 Resultaten en discussie

### 4.1 Meetresultaten

De resultaten van de metingen door RIVM en NRG 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 NRG 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 3.8).

### 4.2 Vergelijking van de resultaten en discussie

Het resultaat van de vergelijking zoals beschreven in paragraaf 3.10 is in tabel A1 van Bijlage A vermeld onder de kop 'V'. De vergelijking van de resultaten van NRG met die van het RIVM is samengevat in Tabel 4. In deze tabel 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.

Tabel 4 Vergelijkingsresultaten in NRG afvalwater samengevat

Nuclide	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma A1^*$	$\Sigma A2^*$	$\Sigma B^*$	$\Sigma C^*$
Cd-109		A2							0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Co-56	A2	A1	A1	A1	A1	A2	A1	A2	5 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-57	A1	A1	A1	A1	A1	A2	A2	A2	5 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-58	A1	A1	A1		A2	A1	A2		4 (2-6)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-60	A1	A1	A2	A1	A1	A1	A1	A1	7 (3-7)	1 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-134	A2	A2	A1	A1	A1	A1	A1	A1	6 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-137	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	<u>8</u> (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
I-131	A2	A2	A1	B	A2	A2	A1	A1	3 (3-7)	4 (0-4)	1 (0-1)	0 (0-0)
Mn-54	A1	A2	A1	A1	A2	A1	A1	A1	6 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Mo-99	A2								0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Na-22	A2	A2	A2	A2	A2	A2	A2	A2	<u>0</u> (3-7)	<u>8</u> (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Ru-103							A2	A2	0 (0-2)	2 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Sb-124	A2	A2			A2	A1			1 (1-4)	3 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
Sb-125	A1	A1	A1	A1	A2	A1	A2	A1	6 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Zn-65	A2	A1	A1	A2	A1	A2	A1	A1	5 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
W-181	A1		A1		A1	A1	A2	A1	5 (2-6)	1 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Te-121	A2	A2	A1	A1	A2	A1	A1	A1	5 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Rb-83		A2							0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Totaal									66 (66-82)	<u>42</u> (22-37)	<u>1</u> (2-8)	0 (0-1)
Totaal-alfa	A2	A1	A1	A2		A2		A1	3 (2-6)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Tot./rest-beta	C	C	B	C	C	C	C	C	<u>0</u> (3-7)	0 (0-4)	1 (0-1)	<u>2</u> (0-0)
H-3		C	C	A2	C	A2	A2	A1	<u>1</u> (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	<u>4</u> (0-0)

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

#### 4.2.1 Afvalwater

##### gammaspectrometrie

De gammaspectrometrie vergelijkingsresultaten zijn in deze rapportageperiode goed; de categorieën A1+A2, B en C komen allen volgens de statistische verwachting voor. Bij de gammastralers is de vergelijking tussen de meetwaarden

van RIVM en NRG uitstekend : van de 109 vergelijkingsparen vallen er 108 in de categorie A1+A2, en slechts één in de categorie B. Dit is in grote lijnen conform de bevindingen van de voorgaande jaren. Dit bevestigt dat door beide instituten de berekening van de totale fout goed is opgebouwd en dat foutbijdragen, zoals de inhomogeniteit van het monster, geen rol spelen.

In een aantal gevallen zijn nucliden aangetoond alleen door RIVM of alleen door NRG; zie Tabel 5. Het betreft voor de genoemde gevallen activiteitsconcentraties die vlak boven de detectiegrens liggen of nucliden die betrekkelijk kortlevend zijn.

*Tabel 5 Gammastralers aangetoond in afvalwater of door NRG of door RIVM*

Monsternr	Alleen door RIVM	Alleen door NRG
1	<sup>95</sup> Zr	<sup>109</sup> Cd, <sup>51</sup> Cr
2	<sup>181</sup> W	<sup>51</sup> Cr, <sup>202</sup> Tl
3	<sup>124</sup> Sb	<sup>99</sup> Mo
4	<sup>109</sup> Cd, <sup>58</sup> Co	
5	<sup>103</sup> Ru, <sup>188</sup> W	<sup>99</sup> Mo
6	<sup>103</sup> Ru	<sup>83</sup> Rb
7	<sup>124</sup> Sb	<sup>99</sup> Mo
8	<sup>58</sup> Co, <sup>124</sup> Sb, <sup>83</sup> Rb	<sup>99</sup> Mo, <sup>202</sup> Tl

#### *totaal-alfa*

De activiteitsconcentraties voor totaal-alfa zijn allen lager dan 1,0 kBq.m<sup>-3</sup> en vertonen een goede overeenkomst: in zes van de acht monsters toonden RIVM en NRG totaal alfa-activiteit aan. Driemaal werd een A1 verkregen, en driemaal een A2.

#### *totaal-bèta*

Evenals in de vorige rapportageperiodes valt de vergelijking van totaal-bèta het meest in de categorie C (zevenmaal), naast één B. De waarden van NRG zijn een factor drie tot vijf hoger dan die van RIVM.

NRG rapporteert in 2011 totaal-bèta activiteitsconcentraties die een factor 3 tot 15 hoger zijn dan de waarden van RIVM. Dit is mogelijk te wijten aan het voorkomen van kortlevende pure bèta-stralers in het afvalwater. Deze zijn afkomstig van de Molybdeen-99 productiefabriek op het terrein van NRG. In 2009 en 2010 is getracht om de overeenstemming tussen de totaal-bèta data van NRG en RIVM te verbeteren door de monsters gelijktijdig te meten. Dit heeft niet het gewenste resultaat gehad : ook de totaal-bèta resultaten die NRG (op een later tijdstip) op dezelfde dag als RIVM heeft uitgevoerd kwamen niet overeen met de totaal-bèta resultaten van RIVM. De aanwezigheid van kortlevende bèta stralers van het Molybdeen-99 productieproces is niet de verklaring voor de verschillen tussen de NRG en de RIVM meetwaarden.

Waarschijnlijk spelen andere zaken, zoals de verschillende meetmethodes, en de inherent afwijkende gevoeligheid voor laag energetische bèta's, een belangrijke rol.

#### *tritium*

Het vergelijken van <sup>3</sup>H-activiteitsconcentraties resulteerde achtereenvolgens in éénmaal A1, driemaal A2 en viermaal een C. De overeenstemming in de <sup>3</sup>H data is daarmee matig. Beide laboratoria hebben goede resultaten behaald voor <sup>3</sup>H bij het Abwasser 2011 ringonderzoek. Voor de beide te onderzoeken watermonsters



vielen de resultaten in de range van -0,5 tot 3,2 % voor NRG en van 1,9 tot 3,6 % voor RIVM. Dit zijn acceptabele marges bij  $^3\text{H}$ -bepalingen. Hiermee zijn de verschillen van 6-7 % in de monsters 5 en 6, en verschillen van 17-27% in de monsters 1, 2, 4 en 8 niet verklaarbaar.

Wellicht dat beide laboratoria de procedure rond het neutraliseren met  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  en de daaropvolgende destillatie meer op elkaar kunnen afstemmen.

#### 4.2.2 Ventilatielucht HFR

##### Werkwijze

Eerst wordt het gehele filterpakket (aerosolfilter + koolfilter + koolpatroon) gammaspectrometrisch onderzocht. Indien er geen activiteit wordt aangetroffen wordt het pakket niet verder onderzocht. Indien er wel activiteit wordt aangetroffen, worden, zoals beschreven in par. 3.7, de onderdelen van het pakket gemeten. De gesommeerde activiteiten van de drie onderdelen worden vergeleken met de waarden die NRG rapporteert voor het pakket.

De vergelijking van de gammaspectrometrie resultaten in ventilatielucht is gegeven in Tabel 5. Daar 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.

Tabel 1 : Vergelijkingsresultaten in HFR ventilatielucht samengevat

Filternr.	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma\text{A1}^*$	$\Sigma\text{A2}^*$	$\Sigma\text{B}^*$	$\Sigma\text{C}^*$
Aerosolfilter												
Koolfilter												
pakket $^{131}\text{I}$	A2								0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Totaal- $\alpha$	A2								0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Totaal- $\beta$	C								0 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	1 (0-0)
Totaal									0 (1-3)	2 (0-2)	0 (0-1)	1 (0-0)

##### gammaspectrometrie

RIVM en NRG hebben in het pakket van het 1<sup>e</sup> monster een zeer lage activiteitsconcentratie van  $^{131}\text{I}$  aangetroffen met een A2 als vergelijking.

RIVM trof in het koolfilter van het derde monster een zeer geringe hoeveelheid  $^{203}\text{Hg}$  en  $^{191}\text{Os}$  aan waar NRG niets vond

RIVM heeft in de pakketten 2 en 4 tot en met 8 geen activiteit aangetroffen. In pakket 2 heeft NRG wel een geringe hoeveelheid  $^{137}\text{Cs}$  en de edelgassen  $^{135}\text{Xe}$  en  $^{133}\text{Xe}$  gevonden, maar RIVM heeft dat in de onderdelen van het pakket niet kunnen bevestigen.

Feitelijk worden hier twee verschillende manieren van meten vergeleken. RIVM gebruikt de pakketmeting als signalering en voert vervolgens een gekalibreerde meting uit voor de drie onderdelen van het pakket. Om daarna tot de waarde voor een heel pakket te komen sommeert RIVM de onderdelen. NRG voert alleen de pakketmeting uit en rapporteert die pakketwaarden.

In tabel 6 staat een overzicht van de nucliden die of door NRG of door RIVM zijn aangetoond.

*Tabel 6 Gammastralers aangetoond of door NRG of door RIVM in ventilatielucht*

Monsternr*	Alleen door RIVM	Alleen door NRG
1	<sup>191</sup> Os	<sup>137</sup> Cs <sup>133</sup> Xe <sup>109</sup> Cd
2		<sup>137</sup> Cs <sup>133</sup> Xe <sup>135</sup> Xe
3	<sup>203</sup> Hg <sup>191</sup> Os	
5		<sup>82</sup> Br
6		<sup>82</sup> Br

\* in monster 4, 7 en 8 hebben zowel RIVM als NRG niets aangetroffen.

De gammastralers die RIVM heeft aangetroffen (zie tabel 6) bevinden zich allen vlak boven de detectiegrens en zijn alleen maar aantoonbaar met een lange meettijd. De gammastralers die NRG heeft aangetoond zijn of door RIVM niet eenduidig quantificeerbaar (<sup>133</sup>Xe), of zeer kortlevend (<sup>82</sup>Br en <sup>135</sup>Xe), of zijn als spoor aanwezig in het 'blanco'-monster materiaal (<sup>137</sup>Cs).

#### *totaal-alfa en totaal-bèta*

RIVM heeft in zeven van de acht monsters een zeer geringe alfa-activiteit aangetroffen en in alle acht monsters een zeer geringe bèta activiteit.

RIVM en NRG hebben beide in monster 1 een (zeer) lage activiteitsconcentratie aan totaal-alfa (A2) en totaal-bèta (C) aangetroffen.

De meetwaarden voor totaal-alfa in ventilatielucht verschillen niet significant van de waarden in buitenlucht die door RIVM met een high volume sampler wekelijks wordt aangetoond: het weekgemiddelde voor 2011 voor totaal-alfa bedraagt  $0,029 \pm 0,017$  mBq.m<sup>-3</sup>. Dit houdt in dat de totaal-alfa activiteit in ventilatielucht van de HFR zeer waarschijnlijk een natuurlijke oorsprong heeft.

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

Op basis van de contra-expertise gegevens in deze rapportage worden de gammaspectrometriresultaten en de totaal-alfa resultaten in afvalwater beoordeeld als goed. De overeenstemming in de totaal-beta resultaten kan aanzienlijk verbeterd worden. Niet alleen het meettijdstip is een belangrijke factor, maar ook verschillen in de meetmethode zullen nader bekeken moet worden.

De vergelijking in de <sup>3</sup>H resultaten kan nog aanzienlijk verbeterd worden.

De ventilatieluchresultaten geven geen reden voor discussie. Er wordt slechts éénmaal door beide instituten een geringe <sup>131</sup>I activiteit aangetroffen.

## 5 Referenties

- Bf11 I. Krol, Ch. Hohmann. Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2011", August 2011, SW 1 - 05/2011, Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich SW, Berlin/München, Duitsland.
- Ho99 Weers AW van, Maurik CJH van, Groot TJH de. Vergelijking Gamma-metingen van zeelozingsmonsters COBRA versus Hobre. NRG-rapport 25115.20.30/99.22940. Petten, NRG, 16 juni 1999.
- 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.
- Kw10 Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van NRG. Periode 2010. RIVM/LSO rapport 610330123/2012.
- LS90 Voorschrift monstervoorbereiding en monsterbehandeling van vloeibare afvalstoffen. Brief van LSO aan de nucleaire installaties d.d. 18 september 1990, kenmerk 1364/90 LSO Sm/eh.
- NE06 NEN 6421: 2006. Water. Bepaling van de totale bèta-activiteitsconcentratie en rest- bèta-activiteitsconcentratie van niet vluchtige bestanddelen. Delft, Nederlands Normalisatie Instituut. 2006.
- NE90 NEN 3114. Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities. Delft, Nederlands Normalisatie Instituut. 2e druk, Augustus 1990.
- NE91 NEN 1047. Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen. Delft, Nederlands Normalisatie Instituut. 1991.
- NR11 Nuclear Research and Consultancy Group. E-mail van J. Kok (NRG) aan P. Kwakman (RIVM) met een bijgevoegde Excel sheet met lozingsdata :  
Radioactieve componenten zeelozing NRG 1<sup>e</sup> kwartaal 2011 d.d. 31 mei 2011.  
Radioactieve componenten zeelozing NRG 2<sup>e</sup> kwartaal 2011 d.d. 15 september 2011.  
Radioactieve componenten zeelozing NRG 3<sup>e</sup> kwartaal 2011 d.d. 26 okt 2011.  
Radioactieve componenten zeelozing NRG 4<sup>e</sup> kwartaal 2011 d.d. 9 feb 2012.
- RI11 Jaarplan project 610330 - 2011. Brief R.C.G.M. Smetsers van RIVM/LSO aan P.J.W.M Müskens van VROM-Inspectie KFD, briefnr. LSO 008a/11 SME/Kwa/dh d.d. 23 juni 2011.

## Bijlage A Vergelijking meetresultaten NRG afvalwater

Tabel A1 : Vergelijking van de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, totaal-bèta (kBq.m<sup>-3</sup>) en <sup>3</sup>H in afvalwater (MBq.m<sup>-3</sup>)

Nuclide	periode 1			periode 2			periode 3			periode 4		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Cd-109	< 13		8 ± 4	54 ± 15	A2	29 ± 12				13 ± 5		
Co-56	1,76 ± 0,18	A2	2,4 ± 0,5	14,3 ± 1,0	A1	13,2 ± 0,7	2,7 ± 0,8	A1	1,8 ± 0,5	1,78 ± 0,18	A1	2,0 ± 0,4
Co-57	32 ± 2	A1	31,4 ± 0,6	288 ± 17	A1	276 ± 3	40 ± 2	A1	38,4 ± 0,7	50 ± 3	A1	48,2 ± 0,9
Co-58	1,6 ± 0,2	A1	1,4 ± 0,3	4,4 ± 0,7	A1	4,8 ± 0,6	2,8 ± 1,0	A1	3,7 ± 0,6	0,85 ± 0,15		
Co-60	36 ± 2	A1	36,1 ± 0,9	54 ± 3	A1	53,1 ± 1,2	118 ± 7	A2	131 ± 2	22,3 ± 1,3	A1	22,7 ± 0,7
Cr-51	< 10		4 ± 2	< 30		13 ± 4						
Cs-134	4,2 ± 0,6	A2	5,2 ± 0,5	6,9 ± 1,3	A2	9,9 ± 0,7	7,2 ± 1,1	A1	6,4 ± 0,7	4,9 ± 0,8	A1	5,8 ± 0,6
Cs-137	131 ± 8	A1	126,8 ± 1,8	234 ± 14	A1	228 ± 3	133 ± 8	A1	133,6 ± 1,9	245 ± 15	A1	240 ± 3
I-131	70 ± 5	A2	64,8 ± 1,5	1000 ± 60	A2	868 ± 15	310 ± 20	A1	298 ± 5	298 ± 19	B	252 ± 4
Mn-54	3,2 ± 0,3	A1	3,3 ± 0,4	6,0 ± 0,7	A2	5,1 ± 0,5	6,5 ± 0,7	A1	6,4 ± 0,7	2,8 ± 0,3	A1	2,7 ± 0,4
Mo-99	14 ± 2	A2	11,1 ± 0,8				< 1300		38,9 ± 1,8			
Na-22	10,7 ± 0,9	A2	12,0 ± 0,6	2,6 ± 0,5	A2	3,5 ± 0,4	7,8 ± 0,8	A2	9,4 ± 0,5	44 ± 3	A2	49,9 ± 1,1
Ru-103												
Sb-124	3,7 ± 0,5	A2	2,7 ± 0,6	23 ± 4	A2	26,8 ± 1,3	1,6 ± 0,6					
Sb-125	15,6 ± 1,1	A1	16,6 ± 1,5	95 ± 6	A1	92 ± 3	20,1 ± 1,8	A1	19,5 ± 1,7	21,7 ± 1,5	A1	23,5 ± 1,9
Ti-202				< 8		1,1 ± 0,6						
Zn-65	12,8 ± 1,1	A2	10,9 ± 1,0	39 ± 4	A1	39,0 ± 1,6	9,2 ± 1,8	A1	10,2 ± 1,4	14,5 ± 1,3	A2	12,7 ± 1,1
Zr-95	1,5 ± 0,4											
W-181	1,7 ± 0,3	A1	1,5 ± 0,9	8 ± 2				A1	6 ± 2			
W-188												
Te-121	3,0 ± 0,3	A2	2,4 ± 0,3	1,7 ± 0,4	A2	2,4 ± 0,3	5,9 ± 1,1	A1	6,6 ± 0,5	2,8 ± 0,3	A1	3,2 ± 0,6
Rb-83				2,8 ± 0,8	A2	1,5 ± 0,8						
Totaal-α	1,02 ± 0,11	A2	0,73 ± 0,10	0,43 ± 0,07	A1	0,46 ± 0,09	0,29 ± 0,06	A1	0,27 ± 0,08	0,24 ± 0,04	A2	0,11 ± 0,08
Tot./rest-β	228 ± 11	C	1700 ± 300	500 ± 20	C	5400 ± 700	410 ± 20	B	1200 ± 300	342 ± 16	C	1200 ± 200
H-3	16,1 ± 0,4	C	13,8 ± 0,3	34,1 ± 0,9	C	26,8 ± 0,5	25,3 ± 0,6	A2	24,3 ± 0,5	3,05 ± 0,08	C	2,61 ± 0,06

Tabel A1 : vervolg

Nuclide	periode 5			periode 6			periode 7			periode 8		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Cd-109												
Co-56	3,1 ± 0,3	A1	3,7 ± 0,7	3,4 ± 0,3	A2	4,1 ± 0,5	3,9 ± 0,4	A1	4,2 ± 0,5	2,1 ± 0,2	A2	1,4 ± 0,4
Co-57	68 ± 4	A1	67,0 ± 1,3	86 ± 5	A2	79,6 ± 1,1	83 ± 5	A2	77,9 ± 1,4	35 ± 2	A2	31,4 ± 0,7
Co-58	6,7 ± 0,6	A2	5,1 ± 0,8	2,1 ± 0,2	A1	1,9 ± 0,4	1,2 ± 0,5	A2	2,4 ± 0,5	0,68 ± 0,19		
Co-60	251 ± 14	A1	247 ± 3	42 ± 2	A1	41,8 ± 1,0	39 ± 2	A1	39,7 ± 1,0	13,2 ± 0,8	A1	13,5 ± 0,5
Cr-51												
Cs-134	12,5 ± 1,8	A1	13,3 ± 1,2	3,5 ± 0,5	A1	4,2 ± 0,6	3,7 ± 0,6	A1	3,9 ± 0,5	4,1 ± 0,6	A1	4,5 ± 0,4
Cs-137	380 ± 20	A1	369 ± 4	158 ± 10	A1	150 ± 2	172 ± 11	A1	169 ± 2	220 ± 13	A1	213 ± 3
I-131	2950 ± 180	A2	2590 ± 40	1190 ± 70	A2	1035 ± 18	3900 ± 200	A1	3950 ± 60	700 ± 40	A1	699 ± 12
Mn-54	14,7 ± 1,0	A2	13,4 ± 0,9	3,1 ± 0,3	A1	3,2 ± 0,5	3,9 ± 0,4	A1	3,4 ± 0,5	1,08 ± 0,18	A1	1,2 ± 0,3
Mo-99	< 12000		8 ± 2				< 100000		15 ± 4	< 140		3,7 ± 1,5
Na-22	31 ± 2	A2	34,8 ± 1,0	19,6 ± 1,6	A2	22,4 ± 0,8	17,6 ± 1,5	A2	19,5 ± 0,7	12,0 ± 1,0	A2	14,1 ± 0,6
Ru-103	2,8 ± 0,6			1,1 ± 0,2			11,6 ± 1,4	A2	13,3 ± 0,8	9,7 ± 0,9	A2	8,6 ± 0,6
Sb-124	8,7 ± 1,3	A2	6,9 ± 0,8	8,1 ± 1,0	A1	7,5 ± 0,7	2,1 ± 0,4			1,14 ± 0,18		
Sb-125	47 ± 3	A2	42 ± 3	54 ± 3	A1	53 ± 2	14,3 ± 1,2	A2	18 ± 2	13,1 ± 0,9	A1	12,1 ± 1,7
Ti-202							< 15		10,9 ± 1,1			
Zn-65	25 ± 2	A1	26 ± 2	48 ± 4	A2	42,2 ± 1,6	37 ± 3	A1	36,6 ± 1,5	7,9 ± 0,7	A1	7,3 ± 0,9
Zr-95												
W-181	60 ± 7	A1	48 ± 17	27 ± 3	A1	23 ± 8	88 ± 13	A2	60 ± 20	95 ± 11	A1	80 ± 30
W-188	10 ± 3											
Te-121	16,2 ± 1,5	A2	14,2 ± 0,7	21,8 ± 1,8	A1	20,2 ± 0,9	16 ± 2	A1	16,2 ± 0,8	12,4 ± 1,1	A1	12,5 ± 0,6
Rb-83				< 4		2,2 ± 0,7				1,8 ± 0,3		
Totaal-α	< 0,2		0,21 ± 0,08	0,22 ± 0,04	A2	0,09 ± 0,09	< 0,2		0,10 ± 0,09	0,28 ± 0,05	A1	0,31 ± 0,10
Tot./rest-β	1310 ± 60	C	9200 ± 1500	360 ± 17	C	2300 ± 300	294 ± 14	C	4500 ± 600	255 ± 12	C	1700 ± 300
H-3	100 ± 3	A2	94,1 ± 1,7	11,0 ± 0,3	A2	10,3 ± 0,2	11,7 ± 0,3	A1	11,5 ± 0,2	4,45 ± 0,11	C	3,80 ± 0,09

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

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

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

† Volgens KTA 1504 te onderzoeken nucliden [KT06]

Naast de bovengenoemde nucliden wordt ook gekeken naar afwijkende nucliden die incidenteel bij NRG in het afvalwater aangetroffen worden. Voorbeelden daarvan zijn <sup>67</sup>Ga, <sup>111</sup>In, <sup>181</sup>W, <sup>191</sup>Os, <sup>203</sup>Pb.

## NRG ventilatielucht

Tabel A3 : Meetresultaten gammaspectrometrie in ventilatielucht HFR in 2011  
(mBq m<sup>-3</sup>)

Nr	Periode	Nuclide	Aërosolfilter RIVM	Koolfilter RIVM	Koolkorrels RIVM	Pakket	
						RIVM	V NRG
1	09 feb - 16 feb	<sup>191</sup> Os	< 3,0	2,2 ± 0,5	< 2,0	2,2 ± 0,5	
		<sup>137</sup> Cs	< 0,8	< 0,2	< 0,6	< 0,8	1,7 ± 0,5
		<sup>133</sup> Xe	< 8,0	< 2,0	< 1,9	< 8,0	11 ± 3
		<sup>131</sup> I	< 3,0	1,4 ± 0,3	1,0 ± 0,5	2,3 ± 0,5	A2 1,3 ± 0,3
		<sup>109</sup> Cd	< 7,0	< 2,0	< 6,0	< 7,0	21 ± 6
2	09 mrt - 16 mrt	<sup>137</sup> Cs	< 0,7	< 0,6	< 1,1	< 0,7	2,2 ± 0,7
		<sup>135</sup> Xe	*	*	*	*	16 ± 5
		<sup>133</sup> Xe	< 12,0	< 10,0	< 30	< 12,0	20 ± 6
		<sup>203</sup> Hg	< 0,7	0,38 ± 0,14	< 1,1	0,38 ± 0,14	
3	27 apr - 04 mei	<sup>191</sup> Os	< 3,0	2,7 ± 0,8	< 4,0	2,7 ± 0,8	
		<sup>137</sup> Cs	< 0,8	< 0,7	< 1,1	< 0,8	
		<sup>137</sup> Cs	< 1,0	< 0,8	< 1,6	< 1,0	
4	25 mei - 01 jun	<sup>137</sup> Cs	< 1,0	< 0,8	< 1,6	< 1,0	
5	07 sep - 14 sep	<sup>137</sup> Cs				< 0,8	
		<sup>82</sup> Br				< 130000	120 ± 40
6	14 sep - 21 sep	<sup>137</sup> Cs				< 1,0	
		<sup>82</sup> Br				< 80000	190 ± 60
7	12 okt - 19 okt	<sup>137</sup> Cs				< 1,0	
8	19 okt - 26 okt	<sup>137</sup> Cs				< 0,9	

\* Opmerkingen:

- NRG rapporteert geen onzekerheid. Indien er een activiteit is gerapporteerd is voor de vergelijking de fout van RIVM gebruikt.
- NRG rapporteert de waarden van een geheel pakket. De gemeten waarden staan in principe weergegeven bij het meest logische onderdeel (bijv. aerosolfilter voor Cs-137; koolfilter voor I-131. Indien RIVM iets aantreft in een ander onderdeel van het pakket wordt dezelfde NRG waarde ook daar gebruikt voor de vergelijking.
- Het edelgas Xe-135 is met een halfwaardetijd van 9,1 uur niet meer meetbaar door RIVM.

Tabel A4 : Vergelijking van de activiteitsconcentratie meetresultaten totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht HFR in 2011 (mBq m<sup>-3</sup>)

Nr.	Monsterperiode	Totaal-alfa			Totaal-beta		
		RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
1	09 feb - 16 feb	0,023 ± 0,010	A2	0,049 ± 0,010	0,061 ± 0,018	C	0,19 ± 0,04
2	09 mrt - 16 mrt	0,016 ± 0,007		< 0,04	0,056 ± 0,016		< 0,013
3	27 apr - 04 mei	0,033 ± 0,012		< 0,17	0,17 ± 0,03		< 0,6
4	25 mei - 01 jun	0,036 ± 0,014		< 0,2	0,08 ± 0,02		< 0,8
5	07 sep - 14 sep	< 0,016		< 0,17	0,14 ± 0,02		< 0,6
6	14 sep - 21 sep	0,034 ± 0,013		< 0,2	0,13 ± 0,03		< 0,8
7	12 okt - 19 okt	0,09 ± 0,03		< 0,2	0,48 ± 0,06		< 0,8
8	19 okt - 26 okt	0,027 ± 0,011		< 0,2	0,17 ± 0,03		< 0,7

## Bijlage B Bemonstering en meting door NRG in 2011

Procedures geldig ten tijde van rapportageperiode 2011.

### **Bemonsterings- en meetplan voor radioactieve stoffen in het afvalwater uit de zeeleiding: 2002**

#### **Monsterneming NRG**

Per week kunnen bij NRG, in "batches" van 75 m<sup>3</sup> een of meer lozingen van afvalwater op de Noordzee plaatsvinden. Bij de lozing voert NRG een automatische debiet proportionele bemonstering uit met het Hobre-systeem (omvat tevens de koeling en conservering), waarbij per batch van 75 m<sup>3</sup> een monster van ca. 4 liter wordt genomen. Het weekmonster wordt opgevangen in een polytheen verzamelvat van 25 liter waarin ter conservering van het monster reeds 400 ml verdund salpeterzuur (1:1) is afgewogen. Gedurende de gehele lozingsweek bevindt het verzamelvat zich in een koelkast. Na verwisseling van het vat aan het begin van een nieuwe lozingsweek wordt uit het verzamelvat onder roeren een deelmonster van 1 liter genomen voor RIVM en een deelmonster van 1 liter voor NRG. Aan beide deelmonsters wordt een evenredige hoeveelheid drageroplossing toegevoegd om het optreden van inhomogeniteiten en adsorptie aan de fleswand tegen te gaan [2]. De deelmonsters worden vervolgens tot moment van verwerking opgeslagen in een koelkast.

#### **Analyseprocedure NRG**

Van elk weekmonster worden de volgende concentraties bepaald:

- Gammastralers

Voor de bepaling van activiteitconcentratie van de gamma-emitterende radionucliden wordt onder roeren 250 ml van het deelmonster afgewogen in een 500 ml polytheenfles.

Om uitzakken van het monster tijdens de meting te voorkomen wordt 10 gram geleermiddel, behangplaksel merk Perfax blauw, aan het monster toegevoegd en goed gemengd. Het aldus gezeleerde monster wordt gedurende 16 uur gemeten op een N-type high-purity germanium detector in lage-achtergrond meetopstelling. De methode is conform NVN 5623. Daarnaast voldoet de meetmethode aan de door de Duitse overheid gehanteerde normen zoals weergegeven in het voorschrift KTA-1504.

- Totaal alfa-bepaling.

De bepaling van de totaal alfa wordt uitgevoerd met behulp van ZnS-scintillatiemetingen.

Van het gehomogeniseerde monster wordt in twee monstervaatjes elk 5 ml gepipetteerd.. Aan een van de monstervaatjes wordt een bekende hoeveelheid <sup>241</sup>Am-oplossing toegevoegd. Vervolgens worden beide monsters ingedampt tot droog op vooraf geprepareerde rvs-plaatjes met een diameter van 35 mm en gedurende 16 uur geteld onder een scintillatieteller met een lage achtergrond. Uit de additie van de <sup>241</sup>Am-oplossing wordt de correctiefactor bepaald voor de zelfabsorptie in het ingedampte preparaat ten gevolge van de aanwezigheid

zoutrest. Deze wijze van totaal-alfabepaling is (destijds) goedgekeurd door de VROM inspectie, regio Zuid-West.

- Tritium en totaal bèta-bepaling

Tritium en totaal bèta's worden bepaald met behulp van vloeistofscintillatiespectrometrie volgens een methode waarbij gecorrigeerd wordt voor quenching. Na homogeniseren van het monster wordt 50 ml overgebracht in een bekersglas met daarin een driepoot met een opvangbakje. Vervolgens wordt 250 mg  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  toegevoegd en verwarmd tot kookpunt. Na enige minuten koken wordt het bekersglas afgedekt met een rondbodemkolf gevuld met ijswater en wordt het tritium na condenseren opgevangen in het opvangbakje. Het opvangbakje bevat uiteindelijk 15-20 ml destillaat. Vervolgens wordt 10 ml destillaat gemengd met 10 ml Ultima Gold LLT en m.b.v. de LSC wordt gedurende 2 maal 10 minuten de activiteit in de energieband 0-19 keV bepaald. De methode is conform NEN 6420, echter er wordt geen natriumthiosulfaat toegevoegd.

Voor het bepalen van de totaal bèta activiteit wordt naast de meting van het gedestilleerde monster tevens een direct meting van het watermonster uitgevoerd. Vanuit deze direct meting wordt, rekeninghoudend met de correctie voor quenching, na aftrek van de tritiumactiviteit de totaal bèta-activiteit berekend.

#### Referenties

- 1 ECN-CX--96-059, C.J.H. van Maurik, A.W. van Weers. *Bemonsterings- en meetplan voor radioactieve stoffen in het afvalwater uit de zeeleiding*. maart 1998.
- 2 ECN-R--97-003, N.D. Engeltjes, C.J.H. van Maurik, T.J.H. de Groot, J. Zwaard, A.W. van Weers. *Testresultaten van het Hobre-systeem voor bemonstering van radioactief afvalwater uit de zeeleiding*. Oktober 1997.



Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid  
en Milieu**

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