



Kennisnotitie

Contra expertise op metingen van radioactiviteit in enkele waterlozingen van Reactorinstituut Delft in 2022 en 2023

Inleiding

In opdracht van de Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS) zijn er aan twee in 2022 en twee in 2023 genomen afvalwatermonsters van het Reactor Instituut Delft (RID) metingen verricht door het RIVM. Het doel van deze metingen is het uitvoeren van een contra expertise op de meetresultaten van RID.

Korte samenvatting

In afvalwater van RID, twee monsters uit beide jaren 2022 en 2023, is de gamma-activiteit, de totaal-alfa/bèta activiteit en de activiteit van ^3H bepaald. Er is door het RIVM in de monsters geen of een zeer geringe gamma-activiteit aangetroffen en geen of een zeer lage alfa-activiteit. Het RIVM vond in alle monsters een lage totaal-bèta activiteit.

Het RIVM vond in de monsters van 2022 een geringe ^3H activiteit; in tank V726 $48 \pm 3 \text{ Bq.l}^{-1}$, en in tank V728 $97 \pm 4 \text{ Bq.l}^{-1}$. In de twee monsters uit 2023 is in tank V727 $75 \pm 3 \text{ Bq.l}^{-1}$ en in tank V730 $11900 \pm 400 \text{ Bq.l}^{-1}$ aangetroffen. Deze ^3H lozing valt echter ruim onder de maximaal toegestane jaarlijkse lozing aan radiotoxiciteitsequivalenten. RID heeft zelf geen bepaling van ^3H uitgevoerd op deze monsters.

Accreditatie

De afdeling SMA van het Centrum Veiligheid van het Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM/VLH) is voor een aantal verrichtingen geaccrediteerd door de Raad voor Accreditatie volgens NEN-EN-ISO/IEC 17025:2017 (RvA: L153 Testen). Deze verrichtingen hebben betrekking op metingen die worden uitgevoerd in het kader van een contra expertise op de meetresultaten van de betreffende nucleaire installatie en zijn gemarkeerd met een 'Q' in Tabel 1. De accreditatie betreft specifiek de analyseresultaten van de verrichtingen. De opinies/interpretaties vermeld in dit rapport vallen buiten de scope van de accreditatie.

Disclaimer en herkomst van RID data

De resultaten van de bepalingen van RIVM zijn alleen van toepassing op de ontvangen monsters. Gegevens met betrekking tot de monsternamen en analyse door RID zijn aangeleverd door RID en met **RID** aangeduid in tabel 2 en tabel 3. De kwaliteit van deze data valt onder de verantwoordelijkheid van RID.

RIVM

A. van Leeuwenhoeklaan 9
3721 MA Bilthoven
Postbus 1
3720 BA Bilthoven
www.rivm.nl

T 088 689 89 89

Auteurs:

P.J.M. Kwakman

Centrum:

Veiligheid

Contact:

Pieter.Kwakman@rivm.nl

Kenmerk:

KN-2024-0025

DOI:

10.21945/RIVM-KN-2024-0025

Datum:

29-4-2024

Monsters en analyses

Het RIVM heeft eind november 2022 en begin november 2023 twee afvalwatermonsters opgehaald van de tanks bij RID met nummers V726 en V728 in 2022, V727 en V730 in 2023. In tabel 1 staan de door ANVS in opdracht gegeven bepalingen aan deze monsters¹.

Tabel 1 Overzicht van het in opdracht gegeven aantal monsters en analyses in 2022 en in 2023

Monsters	Aantal	Soort monster	Analyses (Q*)
Water	2	Afvalwater van lozingstanks	Q: Gamma-spectrometrie* totaal-alfa/beta** tritium*

Q De aanduiding Q betekent dat de betreffende verrichting valt onder de scope van accreditatie (registratienummer L153 Testen).

* Analyse in enkelvoud

** Analyse in tweevoud

Bepaling van de totaal alfa en bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater

Van het monster wordt, na homogenisering, in twee verschillende flesjes elk 10,0 mL gepipetteerd. Aan één van de flesjes wordt 0,100 mL van een ²⁴¹Am-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 mg·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 ²⁴¹Am.

De bèta-telsnelheid van de telpreparaten (zonder ²⁴¹Am) wordt met een telefficiëntie die bepaald is met een separate ⁹⁰Sr bron omgerekend naar een totaal-bèta activiteit.

Deze methode is vastgelegd in procedure VLH-H-005: Handboek gasdoorstroomtelling.

Bepaling van de activiteitsconcentratie van gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater

Van het ongegeleerde afvalwatermonster wordt een monster van 250 ml afgemeten. Het monster wordt in een teldoos gemengd met behangplaksel en geschud tot een homogene stijve massa verkregen is. Dit 'geleren' dient ter voorkoming van het uitzakken van de radioactieve componenten bij gammaspectrometrische analyses met lange teltijden. 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 Genie2000 (onder APEX) aan de hand van een nuclidenbibliotheek.

Tevens 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. Het RIVM corrigeert voor radioactief verval, door de activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar 12.00 uur op de dag van de lozingsdatum.

¹ Jaarplan project M/390220/23/SM – Jaarplan 2023; besproken op 12-01-2023 met P. Arends, N. Beuker (ANVS); aangepaste versie op 15-03-2023 akkoord bevonden.

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

Deze methode is vastgelegd in RIVM procedure VLH-H-004: Handboek Gammaspectrometrie.

Bepaling van de ^3H -activiteitsconcentratie in afvalwater

Aan 25 mL van het monster wordt 0,2 g Na_2CO_3 toegevoegd om het alkalisch te maken. Nadat dit monster is gedestilleerd, wordt door middel van LSC-meting de activiteitsconcentratie van tritium bepaald. Per monsterflesje wordt één telling tot een telfout van 1% of tot maximaal 200 minuten uitgevoerd. Het telpreparaat bestaat uit 10,0 mL destillaat en 10,0 mL scintillatievloeistof (Ultima Gold LLT).

Deze methode is vastgelegd in procedure VLH-H-006: Handboek Vloeistofscintillatietelling.

Meetresultaten RIVM en RID in monsters uit 2022 en 2023

Meetresultaten in RID afvalwater 2022

In Tabel 2 zijn de meetresultaten samengevat die RID en het RIVM behaald hebben in de afvalwatermonsters, opgehaald 17 november 2022. De meetresultaten van RID zijn aangeleverd door RID.

Tabel 2 Vergelijking activiteitsconcentraties gamma-stralers, totaal-alfa en totaal-bèta, en tritium in afvalwater van tanks V726 en V728 (kBq.m⁻³) in 2022

Bepaling	V726 (17-11-2022)			V728 (17-11-2022)		
	RIVM	V	RID	RIVM	V	RID
Gamma			< 5,5			< 5,5
Co-60*	< 0,4			< 0,4		
Totaal-alfa	0,19 ± 0,05		< 0,5	< 0,12		< 0,5
Totaal-bèta	0,66 ± 0,09		2,55	0,75 ± 0,08		1,7
H-3	48 ± 3		NA	97 ± 4		NA

* Co-60 is een voorbeeldnuclide. Voor dit nuclide dient een detectiegrens van < 0,5 Bq.l⁻¹ behaald te worden.

Er zijn geen andere gammastralers aangetroffen.

NA = niet geanalyseerd.

Meetresultaten in RID afvalwater 2023

In Tabel 3 zijn de meetresultaten samengevat die RID en het RIVM behaald hebben in de afvalwatermonsters, opgehaald 2 november 2023. De meetresultaten van RID zijn aangeleverd door RID.

Tabel 3 Vergelijking activiteitsconcentraties gamma-stralers, totaal-alfa en totaal-bèta, en tritium in afvalwater van tanks V727 en V730 (kBq.m⁻³) in 2023

Bepaling	V727 (2-11-2023)			V730 (2-11-2023)		
	RIVM	V	RID	RIVM	V	RID
Gamma			10			16
Co-60*	0,88 ± 0,07			0,97 ± 0,06		
Totaal-alfa	0,16 ± 0,04		< 0,5	< 0,12		< 0,5
Totaal-bèta**	5,8 ± 0,3	C	7,15	2,68 ± 0,15	C	16,2
H-3	75 ± 3		NA	11900 ± 400		NA

* Co-60 is een voorbeeldnuclide. Voor dit nuclide dient een detectiegrens van < 0,5 Bq.l⁻¹ behaald te worden.

Er zijn geen andere gammastralers aangetroffen.

NA = niet geanalyseerd.

** In Bijlage 2 wordt de vergelijking tussen de RID en RIVM meetresultaten toegelicht.

Bevindingen en conclusie

In monsters van afvalwater van RID is de gamma-activiteit, de totaal-alfa/bèta activiteit en de activiteit van ^3H bepaald.

Er is door het RIVM in de afvalwatermonsters, genomen op 17-11-2022 (V726 en V728), geen activiteit aangetroffen. In de monsters van 2-11-2023 (V727, V730) is een gamma-activiteit van $0,9 - 1,0 \text{ kBq.m}^{-3}$ aan Co-60 aangetroffen.

Het RIVM heeft in de monsters geen of een zeer lage activiteit aan totaal-alfa activiteit aangetroffen. Het RIVM vond in de monsters een geringe totaal-bèta activiteit.

RID heeft geen bepaling van ^3H uitgevoerd op deze monsters.

Het RIVM vond in de monsters uit 2022 een geringe ^3H activiteit; het monster van 2022 (tank V 726) bevatte $48 \pm 3 \text{ Bq.l}^{-1}$, en van tank V728 $97 \pm 4 \text{ Bq.l}^{-1}$. Het monster van 2023, tank V727, bevatte $75 \pm 3 \text{ Bq.l}^{-1}$ en tank V730 $11900 \pm 400 \text{ Bq.l}^{-1}$.

De meetresultaten geven aan dat er een (zeer) geringe activiteit aan totaal-alfa, totaal-bèta en gammastralers aantoonbaar is. Alleen het ^3H gehalte in tank V730 uit 2023 is significant hoger dan de overige ^3H waarden. Deze ^3H lozing valt echter ruim onder de maximaal toegestane jaarlijkse lozing aan radiotoxiciteitsequivalenten.

Het uitvoeren van een contra expertise op de meetresultaten van RID wordt bemoeilijkt doordat de meetmethoden van RID (zie Bijlage 1, aangeleverd door RID) en het RIVM verschillen.

- Toetsing van de meetresultaten tegen de door RID aangeleverde waarden was feitelijk niet mogelijk omdat RID geen onzekerheden rapporteert bij de meetwaarden.
- RID past voor de bepaling van gammastralers een NaI-detector toe, het RIVM een High-Purity Germanium opstelling.
- RID gebruikt de dikke-laag methode voor totaal-alfa en totaal-bèta, het RIVM de standaard additiemethode.
- RID voert geen tritiumbepaling uit aan het afvalwater. Het RIVM gebruikt een destillatie en LSC telling met een ^3H -quenchcurve.

Het RIVM beveelt aan om voor de volgende rapportageperiode een vergelijking van de bepalingsmethodes meer gedetailleerd uit te voeren.

Bijlage 1 Meetmethoden van RID – SBD V009

Versie 3; 10-02-2014

Aangeleverd door **RID**.

1. Doel

Dit werkvoorschrift beschrijft een methode voor de monsternamen en bepaling van de totale α - en α -en γ -activiteit van monsters water. Dit ter controle op het mogelijk overschrijden van vergunningsnormen en op controle van de af- dan wel aanwezigheid van radioactiviteit.

2. Referenties

- NEN 5622: 2006 nl 'Radioactiviteitsmetingen - Bepaling van de massieke totale alfa-activiteit van een vast telmonster met de dikke-laagmethode.'
- NVN5665 :2009 nl 'Radioactiviteitsmetingen - Monstervoorbewerking'
- NEN5627:2006 nl 'Radioactiviteitsmetingen - Bepaling van de massieke totale beta-activiteit en massieke rest-beta-activiteit van een vast telmonster'
- NVN5629:1993 nl 'Radioactiviteitsmetingen - Bepaling van de activiteit van eenvoudige mengsels gammastraling uitzendende nucliden in een telmonster door middel van lage resolutie gammaspectrometrie met een NaI(Tl)-detector.'
- NEN6420:1986 nl 'Water - Bepaling van het gehalte aan getritieerd water door vloeistofscintillatietelling'
- SBD-rapporten 1.1.12/1, 1.1.12/1a en 1.1.12/3 'Kalibratie met ^{133}Ba , ^{137}Cs en ^{60}Co
- SBD-rapporten 2.2.2/1, 2.2.2/2 en 2.2.2/3 betreffende detectiegrenzen.

3. Eisen

De Sample Changers dienen 2-wekelijks gekalibreerd te worden.

De NaI-kristaldetector kent minder verloop en hoeft pas gekalibreerd te worden bij ongewone meetwaarden.

4. Omschrijving van de werkzaamheden

Alle monsternamen, verwerking van de monsters en berekeningen aan de resultaten zijn gebaseerd op de bovengenoemde normen in 'Referenties'.

Monsternamen afvalwater

Een medewerker van de waterbehandeling houdt dagelijks bij of een tank vol is. Van alle tanks wordt dagelijks het niveau in een logboek genoteerd plus eventuele bijzonderheden.

Wanneer de tank (bijna) vol is, wordt lucht bijgezet waardoor het water in de tank homogeniseert. Daarna tapt de medewerker ongeveer 1L afvalwater af. De pH wordt direct gemeten, genoteerd en daarna wordt het monster aangeboden aan de Stralingsbeschermingsdienst (SBD) voor analyse op aanwezige radioactiviteit.

Monsternamen drink- en demiwater

Een medewerker van de SBD neemt elke tweede week een monster van het drink- en van het demiwater. Laat de kraan even doorlopen alvorens een monster te nemen.

Monstername omgevingswater

Een medewerker van de SBD neemt elke vierde week een 1 liter monster uit de ringvaart van het Reactor Instituut Delft en 1 liter monster uit de sloot van de Anthony Fokkerweg. Monstername vindt plaats door gebruik te maken van een liter fles van plastic. Het monster wordt niet gefilterd voordat het gecontroleerd wordt op radioactiviteit.

Meting NaI kristal

Met behulp van een NaI-kristal meet de SBD de γ -activiteit van het watermonster. Daartoe voert de SBD eerst een achtergrondmeting uit door gebruik te maken van MilliQ in een marinellibeker. De marinellibeker wordt in de teller over het NaI-kristal geplaatst. De software wordt ingesteld op 1800 seconden teltijd. Het window wordt geheel breed gezet zodat alle eventuele pieken kunnen worden waargenomen. Nadat de achtergrondmeting is voltooid, wordt een gelijke durende meting verricht met het monster. Alle waarden worden genoteerd op een begeleidend formulier. De uitkomst van de metingen worden ingevoerd in het Kernenergiewetdossier.

Indampen

Van het water wordt 50 mL in een maatcilinder geschonken. Deze 50 mL wordt ingedampt met behulp van een aluminium bakje op de kookplaat (stand 3-4), Het residu wordt 1000 seconden geteld op α - en β -activiteit met behulp van een proportionele-telbuis (De Sample Changer). Opgemerkt dient te worden, dat op deze manier vluchtige radionucliden en radionucliden in vluchtige verbindingen niet worden meebepaald. De uitkomst van de metingen worden ingevoerd in het Kernenergiewetdossier.

Formule berekening

De gemeten gamma's op het NaI-kristal worden omgerekend naar een γ -activiteit per ml water met behulp van onderstaande formule.

$$\gamma[\text{kBq}/\text{m}^3] = (\text{cps}_{\text{monster}} - \text{cps}_{\text{achtergrond}}) \cdot F_{\text{kal}}$$

waarin cps het aantal pulsen gedeeld door de meettijd [s] bedraagt en F_{kal} de kalibratiefactor bedraagt. De kalibratiefactor staat genoteerd in het logboek naar de PC van het NaI kristal.

De gemeten alfa's en beta's worden omgerekend naar een α - en β -activiteit per m^3 water met behulp van onderstaande formule.

$$\alpha(\beta)[\text{kBq}/\text{m}^3] = \frac{\text{cps}_{\text{monster}} - \text{cps}_{\text{achtergrond}}}{\epsilon} \cdot \frac{F_{\text{m}^3}}{F_{\text{indamp}}} \cdot 1000$$

waarin cps het aantal pulsen gedeeld door de meettijd [s] bedraagt, de ϵ de effectiviteit van de sample changer bedraagt (deze wordt elke 2 weken bepaald). F_{m^3} bedraagt de omrekenfactor naar kubieke meter, de F_{indamp} is de factor van het verlies bij indampen, dit bedraagt 0,47.

Vrijgave voor lozing van afvalwater

De door de SBD gehanteerde concentratiegrens voor lozing van vloeistoffen op de openbare riolering bedraagt 40 kBq/m³. Deze waarde is gebaseerd op een waarde uit een eerdere verstrekte vergunning. Deze waarde wordt gehanteerd omdat het praktisch niet haalbaar is om complete gammaspectrometrie uit te voeren op elk monster afvalwater. Met het hanteren van deze waarde blijven we ruim beneden de in de vergunning van het RID vermelde grenswaarde van 20 radiotoxiciteitsequivalenten (Re_{ing}) per jaar, gebaseerd op de meest conservatieve schatting met de $e(50)_{ing}$ van Am-241.

Wanneer het afvalwater voldoet aan bovengenoemde normering wordt een lozingsformulier uitgeprint en ondertekend door een van de medewerkers van de SBD. Het ondertekende formulier wordt overhandigd aan de medewerker van de waterbehandeling.

De medewerker lost de tank op het riool en tekent dit aan in het logboek.

Wanneer niet wordt voldaan aan de lozingsnorm wordt het voorval voorgelegd aan de algemeen stralingsdeskundige (ASD) van het RID. De ASD beslist welke maatregelen worden genomen.

Metingen aan getritieerd water

Wanneer een afvalwater monster gemeten dient te worden op de aanwezigheid van ³H (tritium), wordt de procedure gebaseerd op NEN6420. Deze procedure is op moment van schrijven nog in ontwikkeling. De telling wordt uitgevoerd met behulp van een Liquid Scintillation Counter (LSC) vanwege de zachte β 's in ³H.

Zwavelactiviteit in water

Wanneer het water op zwavel (S-35) activiteit gemeten moet worden, dient gebruik te worden gemaakt van de LSC vanwege de zachte β 's.

5. Verificatie

Bij wijziging van de procedure of apparatuur dient dit werkvoorschrift aangepast te worden.

6. Afwijkingen

De detectiegrenzen van de Sample Changers bij afvalwatermeting bedragen 0,5 kBq.m⁻³ voor α -stralers en 1,4 kBq.m⁻³ voor β stralers (SBD-rapport en 2.2.2/1, 2.2.2/2 en 2.2.2/3).

De detectiegrens van de gammaspectrometer met NaI-kristal bij afvalwatermeting, bedraagt 5,5 kBq.m⁻³ voor γ -stralers.

De detectiegrenzen bij de LSC zijn afhankelijk van de quenching en het rendement.

7. Middelen en bevoegdheden

Toestellen/hulpmiddelen;
Maatcilinders van 50 ml gemerkt met tanknummer naam
Aluminium indampschaaltjes
Kookplaat
Proportionele telbuis (Sample changer, Low-Background Planchet Counter)
Marinelli-bekers van 320 ml
NaI-kristaldetector gekoppeld aan PC met 'gammavision'-insteekkaart en -software
LSC gekoppeld aan PC en printer
Telcocktail en MilliQ voor LSC
Telpotjes voor LSC

8. Overige bepalingen

Geen.

9. Versie beheer

Versie 1 d.d. 1997
versie 2 d.d. 11-06-2008
versie 3 d.d. 10-02-2014 Verificatiedatum 10-02-2014 door Jan Okx

Aanpassingen versie 3
Procedure geüpdate
Naamgeving geüpdate
Tekstuele aanpassingen
Titelpagina ingevoegd
Versiebeheer ingevoegd
Lay out aangepast

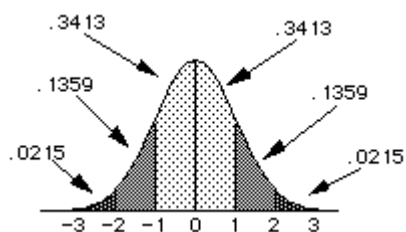
Bijlage 2 Presentatie van resultaten en vergelijking

De overeenkomst tussen de meetresultaten van het 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.

Het vergelijken van de gemeten waarden x_{NI} en x_{RIVM} is ook te verwoorden als het bepalen van het verschil $\Delta = x_{NI} - x_{RIVM}$. Het verschil tussen de meetwaarden wordt berekend uit de getallen zoals deze worden weergegeven, dus na afronding van de meetwaarde van RIVM (volgens NEN 1047). De fout 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} .

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



Figuur 1 Schematische weergave van een Gausse verdeling

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