



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 2009*

RIVM rapport 610330122/2012

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 NRG**

periode 2009

RIVM Rapport 610330122/2012

## 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

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 NRG. Periode 2009**

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 2009 komen de analyses 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  $^3\text{H}$  resultaten in afvalwater dient verbeterd te worden.

De resultaten in monsters van ventilatielucht behaald door NRG en RIVM stemmen goed overeen. De totaal-alfa, totaal-beta en gammaspectrometrie resultaten zijn allen dicht bij de detectiegrens.

Het RIVM heeft in 2009 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 het ministerie van VROM.

Trefwoorden:

NRG, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

## Abstract

### **Contra-expertise on the determination of radioactivity of waste water and ventilation air of NRG - 2009**

Within the framework of a monitoring programme, the 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 2009, 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 short-lived 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  $^3\text{H}$  results needs considerable improvement. The results obtained by RIVM and NRG in ventilation air samples are in good agreement. Gross alpha, gross beta and gammaspectrometry results are all close to the detection limit.

The RIVM analyzed eight waste water samples and eight samples of ventilation air taken by NRG 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).

**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  $^3\text{H}$ -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—14

4.3 Discussie—16

4.3.1 Afvalwater—16

4.3.2 Ventilatielucht HFR—18

4.4 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten—18

**5 Referenties—20**

**Bijlage A Vergelijking meetresultaten NRG afvalwater—21**

**Bijlage B Bemonstering en meting door NRG in 2009—24**

## Samenvatting

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek (LSO) van RIVM voert in opdracht van de VROM-Inspectie (VI) radioactiviteitsmetingen uit van lozingsmonsters afkomstig van een vijftal nucleaire installaties. Het doel is het leveren van contra-expertise op de metingen die door de installaties zelf zijn uitgevoerd. Dit rapport gaat over de periode januari – december 2009.

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.

Het RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, totaal-beta, tritium en in afvalwater en gammastralers, totaal-alfa en totaal-bèta tevens 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. Deze radionucliden zijn ten tijde van de meting door RIVM al voor een groot deel vervallen. Tevens zijn er verschillen in de meetmethoden die NRG en RIVM toepassen.

Voor  $^3\text{H}$  in afvalwater is de overeenstemming matig: NRG meet in zeven van de acht monsters een 10 tot 20 % lagere  $^3\text{H}$ -activiteit dan RIVM.

In drie van de acht filterpakketten van HFR ventilatielucht hebben NRG en RIVM geen kunstmatige gamma-activiteit en slechts een zeer geringe totaal-alfa en totaal-bèta activiteit aangetroffen. In het 1<sup>e</sup>, 3<sup>e</sup>, 4<sup>e</sup>, 6<sup>e</sup> en 8<sup>e</sup> monster vond RIVM een geringe activiteit van het nuclide  $^{191}\text{Os}$  waar NRG alleen in het 6<sup>e</sup> monster  $^{191}\text{Os}$  aantrof.

## 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 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 VROM-Inspectie overeengekomen, aantal monsters en de te verrichten analyses [RI09].

*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	8	gamma-emitters*, totaal-alfa*, totaal-bèta*

\* Analyse in enkelvoud

\*\* Analyse in tweevoud

In 2009 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	Datum gammaspectrometrie
1	23 - 02 maart	4 maart 2009	4 maart 2009
2	16 - 23 maart	26 maart 2009	27 maart, 1 april 2009
3	06 - 13 april	23 april 2009	1, 2 mei 2009
4	18 - 25 mei	4 juni 2009	11, 12 juni 2009
5	22 - 29 juni	2 juli 2009	8, 15 juli 2009
6	27 - 03 augustus	11 augustus 2009	18 augustus 2009
7	07 - 14 september	23 september 2009	23 september 2009
8	09 - 16 november	17 november 2009	18 november 2009

Bepaling 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	Datum gammaspectrometrie
1	15 - 22 februari	4 maart 2009	5 - 9 maart 2009
2	08 - 15 maart	26 maart 2009	26 - 30 maart 2009
3	10 - 17 mei	4 juni 2009	8 - 16 juni 2009
4	17 - 24 mei	4 juni 2009	9 - 17 juni 2009
5	14 - 21 juni	2 juli 2009	23 - 24 juli 2009
6	26 - 01 augustus	11 augustus 2009	13 - 20 augustus 2009
7	06 - 13 september	23 september 2009	23 - 28 september 2009
8	01 nov - 11 november	17 november 2009	23 - 25 november 2009

## 3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast op afvalwater door NRG in 2009, zijn gereproduceerd in Bijlage B. Voor de bemonstering en analyse van ventilatielucht van HFR zijn de gegevens (nog) niet door NRG ter beschikking gesteld.

In opdracht van VROM-Inspectie KFD worden de randvoorwaarden uit de Kerntechnische Ausschuss (KTA, [KT02] en [KT06]) voor de uitvoering van de analyses aangehouden. Dit betreft bijvoorbeeld de samenstelling van de nuclidenbibliotheek en de detectiegrenzen die gehaald moeten kunnen worden.

### 3.1 Tweevoudbepalingen

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

### 3.2 Bepaling van de totaal-alfa-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 gering 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 GammaVision (eerste helft 2009) en Genie2000 (2<sup>e</sup> helft van 2009) 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 [NR04].

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 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 [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.

### 3.7 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. 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  $1\sigma$ -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 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 monstervoorbehandeling. 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

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.

### 3.10 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 [NR09].

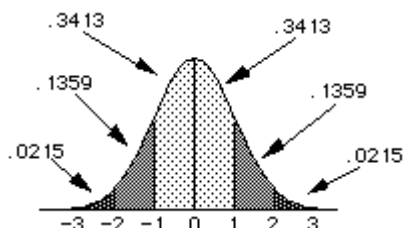
De overeenkomst tussen de meetresultaten van RIVM en die van de onderzochte nucleaire installatie (NI) wordt ingedeeld in één van de categorieën A1, A2, B, of C, die gekoppeld zijn aan een waarschijnlijkheid. Vergelijking vindt alleen plaats als zowel RIVM als het onderzochte bedrijf een activiteit hebben 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>1</sup> 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,  $s_{\text{RIVM}}$ .

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

Het is hierbij in het bijzonder van belang, dat alle partijen (RIVM en NI's) een gedegen foutenberekening uitvoeren. In het ideale geval<sup>2</sup>, bij een voldoende groot aantal metingen van hetzelfde monster, ligt het gemiddelde ten opzichte van de toevallige variaties zeer dicht bij de 'ware waarde' en komt de standaarddeviatie van de meetwaarden overeen met de opgegeven fouten. Als de spreiding benaderd kan worden met de normale verdeling (zie figuur), dan kunnen de volgende frequenties of waarschijnlijkheden van voorkomen van de categorieën verwacht worden:

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



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

<sup>2</sup> Waarbij de systematische fouten klein zijn t.o.v. de toevallige fouten

## 4 Resultaten en discussie

### 4.1 Meetresultaten

De resultaten van de metingen door 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

#### *Afvalwater*

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.

#### *gammaspectrometrie*

De gammaspectrometrie vergelijkingsresultaten zijn in deze rapportageperiode goed; de categorieën A1, A2, B en C komen allen volgens de statistische verwachting voor. Dit bevestigt dat door beide instituten de berekening van de totale fout goed is opgebouwd en dat niet systematische foutbijdragen, zoals de inhomogeniteit van het monster, geen rol spelen.

#### *totaal-alfa*

RIVM en NRG toonden in zeven van de acht monsters totaal alfa-activiteit aan: tweemaal werd een A1 verkregen, naast vijfmaal een A2.

#### *totaal-bèta*

Evenals in de vorige rapportageperiodes valt de vergelijking van totaal-bèta het meest in de categorie C (alle acht). De waarden van NRG zijn minimaal een factor drie hoger dan die van RIVM.

#### *tritium*

Het vergelijken van  $^3\text{H}$ -activiteitsconcentraties leverde achtereenvolgens één A1, één B en zesmaal een C.

Zie Tabel 4 voor een overzicht van de vergelijkingsparen.

*Tabel 4 : Vergelijkingsresultaten in NRG afvalwater samengevat*

Nuclide	1	2	3	4	5	6	7	8	ΣA1 *	ΣA2 *	ΣB *	ΣC *
Cd-109	A2	A1	A1	A2	A2	A1	A1	A1	5 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-57	A2	A1	A1	A2	A1	A2	A1	A1	5 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-58		A1							1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Co-60	A1	A1	A1	A2	A1	A1	A1	A1	7 (3-7)	1 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-134	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A2	A1	7 (3-7)	1 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-137	A2	A1	A1	A1	A1	A1	A2	A1	6 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
I-131				A1		A2	A1	A1	3 (1-4)	1 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
Mn-54	A2	A1	B	A2	A2	A2	A1	A1	3 (3-7)	4 (0-4)	1 (0-1)	0 (0-0)
Mo-99	A1	A1						B	2 (1-3)	0 (0-2)	1 (0-1)	0 (0-0)
Na-22	A2	A1	A2	A2		A1	A1	A1	4 (3-7)	3 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Sb-124	A2	A1							1 (0-2)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Sb-125	A2	A1			A1			A1	3 (1-4)	1 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
Tl-202	A1					A2		A2	1 (1-3)	2 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Zn-65	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	8 (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
W-181	A1	A1	A1	A1	A1	A1			6 (2-6)	0 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Ga-67	A2								0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
In-111	A1								1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Pb-203									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
Co-56	A1						A1		2 (0-2)	0 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal									63 (53-67)	23 (17-31)	2 (1-7)	0 (0-1)
Totaal-α	A2	A2		A2	A1	A1	A2	A2	2 (3-7)	5 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Tot./rest-β	C	C	C	C	C	C	C	C	0 (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	8 (0-0)
<sup>3</sup> H	C	B	C	C	C	C	C	A1	1 (3-7)	0 (0-4)	1 (0-1)	6 (0-0)

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

### Ventilatielucht

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.

### gammaspectrometrie

RIVM heeft in het koolpatroon van het 1<sup>e</sup>, 3<sup>e</sup>, 4<sup>e</sup>, 6<sup>e</sup> en 8<sup>e</sup> monster een zeer lage activiteitsconcentratie van <sup>191</sup>Os aangetroffen. In het 6<sup>e</sup> monster treft NRG ook <sup>191</sup>Os aan met een A1 als vergelijking.

NRG rapporteert tevens <sup>137</sup>Cs in zeven van de acht filterpakketten, en enkele malen de kortlevende nucliden <sup>131</sup>I, <sup>133</sup>Xe en <sup>135</sup>Xe.

### totaal-alfa en totaal-bèta

RIVM heeft zesmaal een (zeer) lage activiteitsconcentratie aan totaal-alfa aangetroffen. NRG vond dat eveneens in twee luchtfilters met een A1 en A2 als vergelijking.

RIVM heeft zesmaal een (zeer) lage activiteitsconcentratie aan totaal-bèta aangetroffen. In vijf gevallen trof NRG ook een totaal-bèta activiteit aan met driemaal A1, éénmaal A2 en één B als vergelijking.



Tabel 5 : Vergelijkingsresultaten in HFR ventilatielucht samengevat

Filternr.	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma A1$ *	$\Sigma A2$ *	$\Sigma B$ *	$\Sigma C$ *
Aerosolfilter									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
koolfilter $^{191}\text{Os}$						A1			1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
koolkorrels $^{137}\text{Cs}$				C					0 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	<u>1</u> (0-0)
koolkorrels $^{191}\text{Os}$						C			0 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	<u>1</u> (0-0)
Totaal- $\alpha$	A2				A1				1 (0-2)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal- $\beta$			A1	A1		A2	B	A1	3 (2-5)	1 (0-3)	1 (0-1)	0 (0-0)
Totaal									5 (4-9)	2 (1-5)	1 (0-2)	<u>2</u> (0-0)

### 4.3

#### Discussie

#### 4.3.1

##### Afvalwater

##### *gammaspectrometrie*

Bij de gammastralers is de vergelijking tussen de meetwaarden van RIVM en NRG uitstekend : van de 88 vergelijkingsparen vallen er 86 in de categorie A1+A2, en slechts twee in de categorie B. Dit is in grote lijnen conform de bevindingen van de voorgaande jaren.

Het kwam 10-maal voor dat RIVM een gammastraler aantoonde die niet door NRG werd opgegeven, namelijk in monster 1  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  en  $^{203}\text{Pb}$  ; in monster 5  $^{58}\text{Co}$  en  $^{22}\text{Na}$ ; in monster 6  $^{58}\text{Co}$  en  $^{125}\text{Sb}$ ; in monster 7  $^{58}\text{Co}$  en  $^{181}\text{W}$ . Het betreft in de genoemde gevallen activiteitsconcentraties die vlak boven de detectiegrens liggen.

Daarnaast kwam het ook 10-maal voor dat NRG een nuclide vond waar RIVM dat niet heeft gedaan: in monster 2  $^{202}\text{Tl}$ ; in monster 3  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{99}\text{Mo}$  en  $^{125}\text{Sb}$ ; in monster 4  $^{99}\text{Mo}$ ; in monster 5  $^{99}\text{Mo}$ ; in monster 6  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  en  $^{111}\text{In}$  ; in monster 7  $^{99}\text{Mo}$ . Ook hier betreft het zeer lage activiteitsconcentraties die, met name bij  $^{99}\text{Mo}$ , kortlevend zijn.

##### *totaal-alfa*

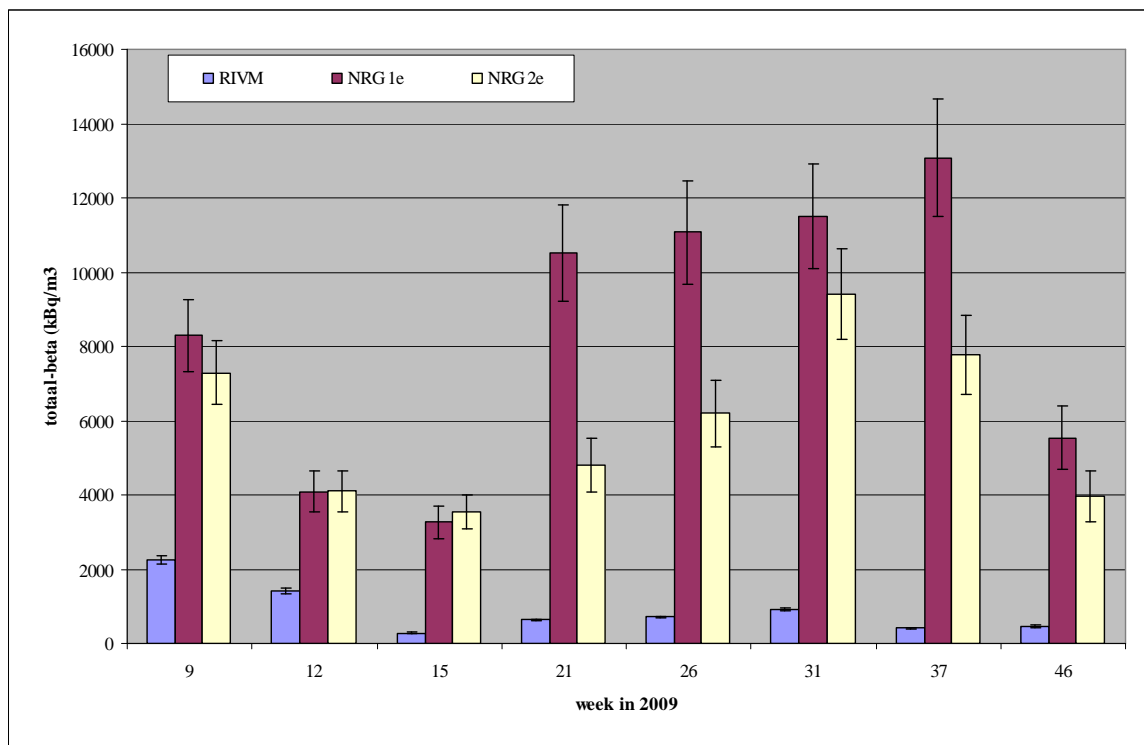
De activiteitsconcentraties voor totaal-alfa in monster 4 en 5 zijn met 1,9 en 3,8  $\text{kBq.m}^{-3}$  hoger dan de overige zes monsters (lager dan 0,6  $\text{kBq.m}^{-3}$ ). Alle totaal-alfa resultaten vertonen een goede overeenkomst.

##### *totaal-bèta*

NRG rapporteert totaal-bèta activiteitsconcentraties die doorgaans minimaal een factor 3 hoger zijn dan de waarden van RIVM [KW08]. Dit is hoogstwaarschijnlijk 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 is getracht om de overeenstemming tussen de NRG data en de RIVM data voor totaal-bèta te verbeteren door de monsters gelijktijdig te meten. In praktijk betekent dit dat NRG de monsters tweemaal meet: de eerste keer zoals gebruikelijk voorafgaand aan de lozing van het afvalwater, en de tweede keer (na afstemmen) gelijktijdig met RIVM.

De resultaten van deze serie metingen aan de totaal-beta activiteit zijn samengevat in figuur 1. Er is in de monsters van week 9, 21, 26, 31, 37 en 46 een duidelijke afname te zien tussen de eerste en de tweede meting van NRG. Deze meetwaarden zijn echter nog steeds veel hoger dan de meetwaarden van RIVM. Het is niet duidelijk waarom de eerste meetwaarde van NRG in week 9, 12 en 15 binnen de onzekerheden gelijk is aan de tweede meetwaarde. De

aanname dat radioactief verval van kortlevende beta-stralers de belangrijkste verklaring is voor het verschil in meetwaarden van NRG en RIVM lijkt dus niet op te gaan.



*Figuur 1 : Vergelijking van RIVM en NRG meetdata aan de totaal-beta activiteit in NRG afvalwater in periode 2009*

RIVM heeft van de afvalwatermonsters van week 21 en 26 een deelmonster van 8 ml geanalyseerd, daarbij globaal de LSC methode van NRG volgend. Het resultaat was ca. 1000 kBq.m<sup>-3</sup> (week 21) en ca. 1100 kBq.m<sup>-3</sup> (week 26). Dit is wat hoger dan de waarden die RIVM rapporteert met gasdoorstroomtelling, maar nog steeds een factor 3 - 4 onder de activiteitsconcentratie die NRG rapporteert in de tweede meetwaarde. Dit is opmerkelijk, want de kortlevende nucliden zouden grotendeels al vervallen moeten zijn.

Uit het oogpunt van rapportage van lozingen is het van belang dat enkele veel voorkomende gamma-stralers, zoals <sup>60</sup>Co, <sup>124</sup>Sb en <sup>137</sup>Cs, feitelijk beta+gamma-stralers zijn. De activiteit van deze nucliden wordt dus dubbel gerapporteerd: als gamma-straler en als belangrijk onderdeel van totaal-beta. Dit betekent dat NRG een conservatieve schatting rapporteert van de totale lozing. In praktijk is dit geen punt van discussie omdat de totale afvalwaterlozing van NRG in de orde van 3-10% van de totale vergunde limiet van 2000 Re<sub>ing</sub>/jaar bedraagt [NRG09b]. De lozing in zee is normaal rond de 200 Re<sub>ing</sub>/jaar. Omdat de HFR in 2009 slechts beperkt operationeel is geweest en er door het stilliggen veel minder radioactiviteit in het afvalwater aanwezig was, is de zeelozing in 2009 met 34 Re<sub>ing</sub> ruim onder het gemiddelde gebleven.

#### *Tritium*

De overeenstemming in de <sup>3</sup>H data is matig: één A1, één B en zesmaal een C. De NRG resultaten met een C als vergelijking zijn structureel 10-20 % lager dan de RIVM resultaten. Gezien de resultaten die beide laboratoria behaald hebben

bij het Abwasser 2009 ringonderzoek lijkt hier sprake te zijn van een (negatieve) systematische meetfout bij NRG. De laatste  $^3\text{H}$ -meetwaarde van 2009 met een A1 als vergelijking duidt erop dat de  $^3\text{H}$  bepaling in november 2009 verbeterd is.

#### 4.3.2 Ventilatielucht HFR

De uitvoering van de vergelijking van de RIVM meetresultaten met de NRG data is verbeterd ten opzichte van 2008. NRG heeft de door RIVM opgehaalde monsters extra lang gemeten om de detectiegrens te verlagen. De ventilatieluchtgegevens van de HFR zijn door NRG gerapporteerd in [Bq/filter] voor de totaal-alfa en totaal-beta metingen, en in [Bq/koolpakket] voor de gammametingen. RIVM heeft met de aangeleverde monstervolumes de vergelijking uitgevoerd op basis van data met als eenheid [Bq.m<sup>-3</sup>].

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 2009 voor totaal-alfa bedraagt  $0,029 \pm 0,010 \text{ mBq.m}^{-3}$ . Dit houdt in dat de totaal-alfa activiteit in ventilatielucht van de HFR zeer waarschijnlijk een natuurlijke oorsprong heeft. Tweemaal is er voor totaal-alfa een vergelijkingspaar met een A1 en A2 als resultaat. De ventilatieluchtdata voor totaal-beta stemmen goed overeen en geven geen aanleiding tot discussie.

De gammaspectrometrie data in ventilatielucht blijven lastig te vergelijken, omdat RIVM de filterpakketonderdelen (aerosolfilter, koolfilter en koolpatroon) afzonderlijk meet en NRG het totale pakket als één geheel. Desondanks is het vergelijkingsresultaat voor  $^{191}\text{Os}$  in het 6<sup>e</sup> monster een A1.

NRG rapporteert in zeven van de acht pakketten een geringe  $^{137}\text{Cs}$  activiteitsconcentratie waar RIVM niets vindt. Gezien de constante waarde van de  $^{137}\text{Cs}$  activiteitsconcentratie lijkt het een geringe  $^{137}\text{Cs}$ -besmetting in de gebruikte koolmaterialen te zijn.

NRG rapporteert voorts een (zeer) geringe activiteit van de kortlevende nucliden  $^{131}\text{I}$  (4<sup>e</sup> en 6<sup>e</sup> monster),  $^{133}\text{Xe}$  (1<sup>e</sup>, 2<sup>e</sup>, 3<sup>e</sup>, 4<sup>e</sup> en 6<sup>e</sup> monster) en  $^{135}\text{Xe}$  (6<sup>e</sup> monster). Gezien de tijd van ongeveer drie weken tussen de bemonsteringsperiode en de meetdatum is er door RIVM niets meer aantoonbaar. Daarbij is het voor RIVM praktisch gezien niet mogelijk om een kalibratie voor een edelgas uit te voeren.

Het komt de vergelijking van de meetresultaten ten goede als NRG ook een onzekerheid opgeeft bij de ventilatielucht meetresultaten.

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

Op basis van de contra-expertise gegevens in deze rapportage wordt de overeenstemming in de gammaspectrometriresultaten en de totaal-alfa resultaten in afvalwater beoordeeld als goed. De overeenstemming in de totaal-beta resultaten kan aanzienlijk verbeterd worden. Uit de eerste vergelijkingen in het huidige rapportagejaar blijkt dat niet alleen het meettijdstip een belangrijke factor is, maar ook de afwijkende meetmethode nader bekeken moet worden. Het meetprobleem in de  $^3\text{H}$  bepaling van NRG lijkt in het monster van november 2009 opgelost te zijn.

De vergelijking tussen de NRG- en RIVM-ventilatieluchresultaten is flink verbeterd ten opzichte van de voorgaande jaren. NRG wordt aangeraden om bij

de gammaspectrometrische meetresultaten in ventilatielucht ook een meetonzekerheid op te geven.

## 5 Referenties

- Bf10 I. Krol, Ch. Hohmann, A. Labahn. Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2010", August 2010, SW 1 – 03/2010, Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich SW, Berlin/München, Duitsland
- 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.
- Kw09 Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van NRG. Periode 2008. RIVM Rapport 610330121/2012.
- 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.
- NR09 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 kwartaal 1 (3 sept 09)  
Radioactieve componenten zeelozing NRG kwartaal 2 (3 sept 09)  
Radioactieve componenten zeelozing NRG kwartaal 3 (30 nov 09)  
Radioactieve componenten zeelozing NRG kwartaal 4 (1 maa 10)
- NR09b Jaarverslag Veiligheid en Milieu 2009 NRG.  
NRG-K5004/10.101742I, Petten, 27 mei 2010.
- 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.

## Bijlage A Vergelijking meetresultaten NRG afvalwater

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

	periode 1			periode 2			periode 3			periode 4		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Cd-109	2030 ± 160	A2	1830 ± 20	1080 ± 80	A1	998 ± 15	30 ± 7	A1	28 ± 7	41 ± 6	A2	25 ± 8
Co-57	24,1 ± 1,4	A2	22,0 ± 0,6	13,9 ± 0,8	A1	13,3 ± 0,4	10,0 ± 0,7	A1	9,4 ± 0,4	11,9 ± 0,7	A2	10,3 ± 0,5
Co-58	2,8 ± 0,6			1,7 ± 0,3	A1	2,4 ± 0,7	< 3		0,7 ± 0,4			
Co-60	206 ± 12	A1	207 ± 3	187 ± 10	A1	180 ± 3	136 ± 8	A1	131 ± 2	330 ± 20	A2	358 ± 4
Cs-134	19 ± 3	A1	18,6 ± 1,2	15 ± 2	A1	15,4 ± 1,0	14 ± 2	A1	14,9 ± 0,9	55 ± 8	A1	59,5 ± 1,6
Cs-137	93 ± 5	A2	86,9 ± 1,6	85 ± 5	A1	80,8 ± 1,4	82 ± 5	A1	82,9 ± 1,4	282 ± 17	A1	292 ± 4
I-131	2,8 ± 0,9									199 ± 13	A1	198 ± 4
Mn-54	4,8 ± 1,2	A2	3,3 ± 0,8	3,6 ± 0,7	A1	2,8 ± 0,6	10,6 ± 1,3	B	7,0 ± 0,6	10,3 ± 1,2	A2	7,8 ± 1,0
Mo-99	230 ± 40	A1	256 ± 6	46 ± 7	A1	42,7 ± 1,5	< 2000		57 ± 3	< 1300		21 ± 2
Na-22	11,0 ± 1,1	A2	9,6 ± 0,5	6,7 ± 0,7	A1	6,4 ± 0,5	3,2 ± 0,5	A2	2,1 ± 0,3	3,1 ± 0,4	A2	2,1 ± 0,4
Ru-103	1,7 ± 0,5											
Sb-124	3,5 ± 0,7	A2	2,3 ± 0,5	2,1 ± 0,5	A1	2,0 ± 0,5						
Sb-125	17 ± 2	A2	14 ± 2	13,4 ± 1,5	A1	11,9 ± 1,5	< 4		1,7 ± 1,1			
Tl-202	4,0 ± 0,6	A1	3,2 ± 0,6	< 1,4		1,6 ± 0,6						
Zn-65	720 ± 50	A1	677 ± 8	87 ± 7	A1	81 ± 2	12 ± 2	A1	10,0 ± 1,5	46 ± 4	A1	41 ± 3
W-181	6,2 ± 1,0	A1	6 ± 2	5,1 ± 0,7	A1	4,3 ± 1,6	2,4 ± 0,6	A1	2,9 ± 1,2	4,3 ± 0,6	A1	3,6 ± 1,7
Ga-67	29 ± 9	A2	18 ± 4									
In-111	14 ± 2	A1	13,6 ± 1,2									
Pb-203	9 ± 3											
Co-56	2,5 ± 0,9	A1	2,6 ± 0,9									
Totaal-a	0,34 ± 0,06	A2	0,20 ± 0,07	0,38 ± 0,07	A2	0,23 ± 0,07	< 0,19		0,07 ± 0,06	1,95 ± 0,18	A2	2,23 ± 0,16
Tot./rest-b	2260 ± 110	C	8300 ± 1000	1410 ± 70	C	4100 ± 500	277 ± 13	C	3300 ± 400	630 ± 30	C	10500 ± 1300
H-3	19400 ± 500	C	17600 ± 300	17000 ± 400	B	15700 ± 300	13600 ± 300	C	11100 ± 200	35600 ± 900	C	29900 ± 600

Tabel A1 : vervolg

	periode 5			periode 6			periode 7			periode 8		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Cd-109	71 ± 7	A2	50 ± 8	27 ± 6	A1	26 ± 5	17 ± 3	A1	15 ± 7	89 ± 8	A1	92 ± 6
Co-57	9,9 ± 0,6	A1	10,1 ± 0,5	17,4 ± 1,2	A2	15,3 ± 0,6	15,3 ± 1,0	A1	14,3 ± 0,4	4,5 ± 0,4	A1	4,3 ± 0,3
Co-58	1,1 ± 0,2			4,0 ± 1,8			2,0 ± 0,3					
Co-60	370 ± 20	A1	351 ± 5	370 ± 20	A1	372 ± 4	166 ± 10	A1	159 ± 2	95 ± 5	A1	92,2 ± 1,7
Cs-134	46 ± 7	A1	48,6 ± 1,5	58 ± 8	A1	63,0 ± 1,9	25 ± 4	A2	29,5 ± 1,1	11,5 ± 1,7	A1	11,4 ± 0,8
Cs-137	277 ± 16	A1	261 ± 3	440 ± 30	A1	427 ± 5	213 ± 13	A2	197 ± 3	141 ± 9	A1	135,0 ± 1,9
I-131				29 ± 4	A2	35,9 ± 1,7	4,9 ± 0,7	A1	6,2 ± 1,5	30 ± 2	A1	29 ± 2
Mn-54	5,5 ± 0,5	A2	3,8 ± 1,1	3,8 ± 0,9	A2	2,1 ± 1,0	2,8 ± 0,3	A1	2,6 ± 0,6	3,0 ± 0,4	A1	3,2 ± 0,5
Mo-99	< 200		56,6 ± 1,8	< 800		200 ± 5	< 110		39 ± 8	40 ± 6	B	15 ± 9
Na-22	1,1 ± 0,3			94 ± 8	A1	92,8 ± 1,5	12,3 ± 1,0	A1	11,8 ± 0,6	14,1 ± 1,2	A1	13,6 ± 0,6
Ru-103				< 4		1,8 ± 0,9						
Sb-124												
Sb-125	6,1 ± 1,0	A1	4,1 ± 1,8	4,0 ± 1,6						9,7 ± 0,8	A1	9,0 ± 1,4
Tl-202				7 ± 3	A2	4,1 ± 1,0				3,6 ± 0,4	A2	5,1 ± 1,2
Zn-65	12,2 ± 1,8	A1	10 ± 2	370 ± 30	A1	358 ± 6	37 ± 3	A1	33,9 ± 1,8	36 ± 3	A1	33,4 ± 1,8
W-181	4,0 ± 0,6	A1	3,3 ± 1,3	4 ± 2	A1	3,4 ± 1,7	1,1 ± 0,9					
Ga-67												
In-111				< 60		18,1 ± 1,8						
Pb-203												
Co-56							1,6 ± 0,3	A1	1,8 ± 0,6			
Totaal-a	3,8 ± 0,3	A1	3,9 ± 0,2	0,56 ± 0,07	A1	0,68 ± 0,10	0,41 ± 0,07	A2	0,29 ± 0,08	0,24 ± 0,04	A2	0,09 ± 0,07
Tot./rest-b	700 ± 30	C	11100 ± 1400	920 ± 40	C	11500 ± 1400	420 ± 20	C	13100 ± 1600	450 ± 20	C	5500 ± 900
H-3	43800 ± 1100	C	35900 ± 700	42600 ± 1100	C	34600 ± 600	43000 ± 1100	C	38400 ± 700	30300 ± 800	A1	29600 ± 600

*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 2009  
(mBq m<sup>-3</sup>)*

Monsternummer Periode	Nuclide	Aërosolfilter			Koofilter			Koolkorrels		
		RIVM	V	NRG*	RIVM	V	NRG*	RIVM	V	NRG*
1	<sup>191</sup> Os	< 0,9			1,0 ± 0,4			< 1,6		
15 feb - 22 feb	<sup>137</sup> Cs	< 0,2			< 0,4			< 1,3		
2	<sup>191</sup> Os	< 0,4			< 0,8			< 2,0		
08 mrt - 15 mrt	<sup>137</sup> Cs	< 0,1	2		< 0,2			< 1,2		
3	<sup>191</sup> Os	< 2,0			2,9 ± 1,3			< 3,0		
10 mei - 17 mei	<sup>137</sup> Cs	< 0,2	3		< 0,3			< 1,2		
4	<sup>191</sup> Os	< 0,9			2,9 ± 0,9			< 1,9		
	<sup>131</sup> I	< 1,1			< 1,4	0,6		< 3,0		
17 mei - 24 mei	<sup>137</sup> Cs	< 0,1	3		< 0,3			1,49 ± 0,19	C 2,54 ± 0,19	
5	<sup>191</sup> Os	< 2,0			< 2,0			< 4,0		
14 jun - 21 jun	<sup>137</sup> Cs	< 0,3	3		< 0,3			< 0,6		
6	<sup>191</sup> Os	< 2,0			5,6 ± 1,1	A1 5,0 ± 1,1		1,6 ± 0,5	C 5,0 ± 0,5	
	<sup>131</sup> I	< 3,0			< 4,0	1,4		< 1,4		
26 jul - 01 aug	<sup>137</sup> Cs	< 0,4	3		< 0,3			< 0,6		
7	<sup>191</sup> Os	< 2,0			< 1,0			< 3,0		
06 sep - 13 sep	<sup>137</sup> Cs	< 0,8	2		< 0,4			< 1,3		
8	<sup>191</sup> Os	< 0,8			1,3 ± 0,3			< 1,9		
01 nov - 11 nov	<sup>137</sup> Cs	< 0,2	1,8		< 0,2			< 1,7		

\* Opmerkingen:

- NRG rapporteert geen onzekerheid. Indien er een activiteit is gerapporteerd is de fout van RIVM gebruikt.
- NRG rapporteert Xe-133 en Xe-135 voor enkele perioden waar RIVM dat niet kan.
- 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; koofilter voor I-131. Indien RIVM iets aantreft in een ander onderdeel van het pakket wordt dezelfde NRG waarde ook daar gebruikt voor de vergelijking.

*Tabel A4 : Vergelijking van de activiteitsconcentratie meetresultaten totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht HFR in 2009 (mBq m<sup>-3</sup>)*

Nr.	Monsterperiode	Totaal-alfa			Totaal-beta		
		RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
1	15 feb - 22 feb	0,023 ± 0,010	A2	0,048 ± 0,010	< 0,05		< 0,7
2	08 mrt - 15 mrt	0,022 ± 0,009		< 0,05	< 0,05		< 0,7
3	10 mei - 17 mei	< 0,016		< 0,05	0,085 ± 0,019	A1	0,096 ± 0,019
4	17 mei - 24 mei	< 0,018		< 0,05	0,10 ± 0,02	A1	0,10 ± 0,02
5	14 jun - 21 jun	0,031 ± 0,012	A1	0,047 ± 0,012	0,075 ± 0,018		< 0,014
6	26 jul - 01 aug	0,021 ± 0,009		< 0,05	0,055 ± 0,018	A2	0,093 ± 0,018
7	06 sep - 13 sep	0,038 ± 0,014		< 0,05	0,20 ± 0,03	B	0,29 ± 0,03
8	01 nov - 11 nov	0,017 ± 0,007		< 0,03	0,078 ± 0,015	A1	0,067 ± 0,015



## Bijlage B            Bemonstering en meting door NRG in 2009

Procedures geldig ten tijde van rapportageperiode 2009.

### **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 in homogeniteiten 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 geleerde 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 aanwezige 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 bekerglas 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 bekerglas 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)