



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

**Contra-expertise op bepalingen van
radio-activiteit van afvalwater en
ventilatielucht van de kernenergie-
centrale Borssele**

Periode 2007

RIVM rapport 610330115/2012

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 de
kernenergiecentrale Borssele**

Periode 2007

RIVM rapport 610330115/2012

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 (LSO)
pieter.kwakman@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van VROM-Inspectie Kernfysische
Dienst, in het kader van project 610330, Site Monitoring Straling

Rapport in het kort

Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van de kernenergiecentrale Borssele - 2007

Het RIVM controleert achtmaal per jaar de metingen van de kerncentrale Borssele. Het gaat hierbij om lozingen van radioactiviteit in water en lucht. De contra-expertise onderbouwt de betrouwbaarheid van de analyses die de kerncentrale uitvoert. Doorgaans komen de analyses overeen, zo ook in 2007. Enkele verschillen in dat jaar betreffen radionucliden in ventilatielucht met een korte halfwaardetijd (enkele uren of dagen). Deze verschillen komen voort uit de manier waarop de monsternamen en de meting wordt uitgevoerd en zijn daardoor nauwelijks kleiner te maken.

Het RIVM heeft in 2007 acht afvalwatermonsters en acht monsters van ventilatielucht geanalyseerd, die verspreid over het jaar en voor wat betreft ventilatielucht gedurende een week door KCB zijn genomen. Opdrachtgever is de Kernfysische Dienst van het ministerie van VROM.

Trefwoorden:

kerncentrale Borssele, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

Abstract

Contra-expertise on the determination of radioactivity of waste water and ventilation air of the Borssele nuclear power plant - 2007

Within the framework of a monitoring programme, RIVM measures the release of radioactivity into the waste water and atmosphere of the nuclear power plant at Borssele. Measurements are carried out eight times per year. This form of counter-expertise is aimed at verifying and supporting the reliability of the analyses carried out by the Borssele plant. The two different sets of measurements are generally in agreement, as was also the case in 2007. The few discrepancies that were observed in 2007 concern the presence of radionuclides with a short half-life found in the ventilation air samples. These differences originate from the way sampling and measurement is performed and, consequently, cannot be minimized any further.

The RIVM analyzed eight waste water samples and eight samples of ventilation air taken by KCB at various time points dispersed throughout 2007. 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: nuclear power plant Borssele, radioactivity, discharges, waste water, ventilation air

Inhoud

Samenvatting—6

1 Inleiding—7

2 Monsters en analyse—8

3 Analysemethoden—10

3.1 Tweevoudbepalingen—10

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

3.3 Bepaling van de activiteitsconcentratie van gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater—10

3.4 Bepaling van de ^3H -activiteitsconcentratie in afvalwater—11

3.5 Bepaling van de ^{89}Sr - en ^{90}Sr -activiteitsconcentratie in afvalwater—11

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

3.7 Bepaling van de activiteitsconcentratie van ^3H en ^{14}C in ventilatielucht—12

3.8 Foutenberekening—12

3.9 Kwaliteitsborging—13

3.10 Presentatie van resultaten en vergelijking—13

4 Resultaten en discussie—15

4.1 Meetresultaten—15

4.2 Vergelijking van de resultaten—15

4.2.1 Afvalwater—15

4.2.2 Ventilatielucht—15

4.3 Discussie—17

4.3.1 Afvalwater—17

4.3.2 Ventilatielucht—18

5 Referenties—19

Bijlage A Vergelijking meetresultaten—21

Bijlage B Analyseprocedures van KCB—25

Samenvatting

Het Laboratorium voor Stralingsonderzoek (LSO) van RIVM voert in opdracht van de VROM-Inspectie (VI) radioactiviteitsmetingen uit van lozingsmonsters afkomstig van een vijftal nucleaire installaties. Het doel is het leveren van contra-expertise op de metingen die door de installaties zelf zijn uitgevoerd. Dit rapport gaat over de periode januari – december 2007.

De overeenstemming van de resultaten van RIVM met die van de nucleaire installaties wordt ingedeeld in vier categorieën, in afnemende volgorde A1, A2, B en C.

De contra-expertisemonsters waar het voorliggende rapport over gaat, zijn afkomstig van de kernenergiecentrale te Borssele (KCB). Het betreft zowel afvalwatermonsters als filters waarmee de uitgaande ventilatielucht van het gebouw is bemonsterd. RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, tritium en ^{89}Sr + ^{90}Sr in afvalwater, en van gammastralers in ventilatielucht.

Bij de vergelijking van de gemeten concentraties aan gammastralers in het door KCB gegeleerde monster, bleek een redelijke tot goede overeenstemming. Deze overeenstemming in het door RIVM gegeleerde monster is duidelijk minder, hoogstwaarschijnlijk door een inhomogene verdeling van radionucliden in het afvalwatermonster. Voor ^3H is de overeenstemming matig, en kan zeker nog verbeteren. De vergelijking in het resultaat voor ^{90}Sr is matig. RIVM toonde verder een lage ^{89}Sr - en een totaal-alfa activiteitsconcentratie aan waar KCB niets vond.

In alle acht filterpakketten voor luchtbemonstering heeft RIVM een ^{131}I activiteit aangetroffen, waar KCB in vijf van de acht pakketten ^{131}I aantrof. Hierbij dient opgemerkt te worden dat de door RIVM aangetroffen ^{131}I activiteit beneden de detectiegrens van KCB lag. De kortlevende nucliden ^{132}I en ^{133}I zijn wel door KCB, maar niet door RIVM aangetroffen.

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 2007.

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.

De contra-expertisemonsters waar het voorliggende rapport over gaat, zijn afkomstig van de kernenergiecentrale te Borssele (KCB). Het betreft zowel afvalwatermonsters als filters waarmee de uitgaande ventilatielucht van het gebouw is bemonsterd.

2 Monsters en analyse

RIVM haalt periodiek afvalwater- en ventilatieluchtmonsters op bij KCB. Van het afvalwater (batchmonsters) stelt KCB het eigen gelpreparaat en circa 1 liter ongegeleerd water beschikbaar voor contra-expertise door RIVM. Vanaf 2004 bepaalt RIVM in alle batchmonsters ^3H .

Voor het bepalen van de radioactiviteit in uitgaande ventilatielucht gebruikt KCB aërosolfilters en DSM11- en kool-absorbers. De ventilatieluchtmonsters voor RIVM komen uit een aparte, 'redundante' bemonsteringsinstallatie. Tabel 1 bevat een overzicht van het vooraf afgesproken aantal monsters en de analyses [RI07].

Tabel 1: Overzicht van vooraf afgesproken aantal monsters en analyses

Monsters	Aantal	Soort monster	Analyses
Afvalwater	8	Batchmonster. Water en gel. Zo mogelijk vier uit de splijtstofwisselperiode.	Gelmonster: gammastralers*, Watermonster: gammastralers* en $^3\text{H}^*$
	1	Kwartaalmengmonster; in even jaren afkomstig uit de splijtstofwisselperiode	Totaal- α^{**} ^{89}Sr , $^{90}\text{Sr}^{**}$
Ventilatielucht	8	Weekmonsters (filterpakketten bestaande uit 1 × aërosolfilter, 2 × DSM11-absorber en 2 × kool-absorber)	gammastralers* in filterpakket als geheel; bij indicatie van aanwezigheid van halogenen tevens onderdelen apart
	1	Kwartaalmonster (carbosorb en condensatiewater)	$^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^*$

* Analyse in enkelvoud

** Analyse in tweevoud

De splijtstofwisselperiode in 2007 heeft plaatsgevonden in de maand september. Tabel 2 bevat de gegevens van de door RIVM geanalyseerde afvalwatermonsters. Monsters 5, 6 en 7 kunnen afvalwater uit de splijtstofwisselperiode bevatten. Het kwartaalmengmonster komt uit het derde kwartaal van 2007.

Om uitzakken van radioactieve componenten ondanks het geleermiddel te voorkomen wordt er naar gestreefd de gammaspectrometrische analyse binnen twee weken na ontvangst van het monster uit te voeren. Ter illustratie hiervan zijn ook de data van analyse in Tabel 2 vermeld.

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

Tabel 2: Monstergegevens afvalwater in 2007

Nr.	Lozingsdatum	Ophaaldatum	Data gammaspectrometrie *
1	15 januari	26 januari	29, 31 januari
2	27 februari	07 maart	12, 13 maart
3	21 mei	23 mei	29, 30 mei
4	11 juni	13 juni	15, 15 juni
5	10 september	12 september	13, 13 september
6	19 september	25 september	27, 27 september
7	20 september	25 september	28 september, 1 oktober
8	02 november	07 november	8, 13 november

* Eerste datum: meting KCB-gel, tweede datum: meting RIVM-gel. Gestreefd wordt naar meten binnen 2 weken na ontvangst monsters (analyse gereed binnen 3 weken)

Tabel 3: Monstergegevens ventilatielucht in 2007

Nr.	Monsterperiode	Ophaaldatum	Datum gammaspectrometrie*
1	12 - 19 januari	26-januari	29 jan - 5 februari
2	23 feb - 2 maart	07-maart	8 - 22 maart
3	11 - 18 mei	23-mei	29 mei - 4 juni
4	1 - 8 juni	13-juni	15 - 26 juni
5	31 aug - 7 sept	12-september	13 - 21 september
6	7 - 14 sept	25-september	27 sept - 11 oktober
7	14 - 21 sept	25-september	26 sept - 10 oktober
8	26 okt - 2 nov	07-november	8 - 15 november

* De eerste datum is de meetdatum van het filterpakket als geheel. Vervolgens worden de onderdelen van het pakket gemeten.

3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast door KCB in 2007, zijn gereproduceerd in Bijlage B. Deze methoden zijn overgenomen uit de procedures die KCB heeft toegepast in de voorliggende rapportageperiode (Bijlage B).

3.1 Tweevoudbepalingen

LSO voert sommige analyses in tweevoud uit. Wanneer het verschil tussen de twee meetwaarden van een tweevoudbepaling groter is dan 4σ (waarbij σ 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}Co of ^{137}Cs . Bij andere γ -stralers dan ^{60}Co en ^{137}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.

In dit rapport zijn de gammaspectrometrische metingen door RIVM van het door KCB gegeleerde preparaat en van het door RIVM gegeleerde preparaat als twee afzonderlijke metingen behandeld. De reden hiervoor is, dat het door KCB gegeleerde preparaat en het (op een later tijdstip) door RIVM gegeleerde preparaat, vaak in samenstelling bleken te verschillen.

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}Am -oplossing met bekende activiteit toegevoegd. Het geheel wordt vervolgens gemengd. De twee oplossingen worden in gedeelten op twee roestvast stalen telschaaltjes (geschuurd en ontvet) met een diameter van 50 mm overgebracht en drooggedampt in een stoof bij 60-80°C. De metingen aan beide telschaaltjes worden uitgevoerd met proportionele gasdoorstroomtellers die zijn voorzien van een dun venster ($< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$). De tellers hebben een lage achtergrond. De telopbrengst wordt berekend uit het verschil in de resultaten van de beide telpreparaten en de toegevoegde activiteit aan ^{241}Am .

3.3 Bepaling van de activiteitsconcentratie van gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater

Van het ongegeleerde afvalwatermonster wordt een monster van 250 ml afgemeten. Het monster wordt volgens voorschrift 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]. Van het ontstane gegeleerde telpreparaat wordt over het energiebereik van 80 keV tot 2 MeV een gammaspectrum opgenomen met behulp van een P-type halfgeleiderdetector met hoge energieresolutie in combinatie met een

pulssorteerder met 8000 kanalen. De meettijd is 1000 minuten. Het spectrum wordt geanalyseerd met behulp van het analyseprogramma GammaVision. Hierbij wordt een nuclidenbibliotheek gebruikt met de nucliden als vermeld in Tabel A2 in Bijlage A. 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. 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. RIVM corrigeert net als KCB voor radioactief verval, door de activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar 12.00 uur van de lozingsdatum (zie ook Bijlage B, Analyseprocedures van KCB).

Indien door 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 [KT94]. KTA 1504 eist dat bij het meten van gammastraling uitzendende radionucliden in gedestilleerd water de detectielimiet voor ^{60}Co lager is dan 1 kBq m^{-3} .

3.4 Bepaling van de ^3H -activiteitsconcentratie in afvalwater

Aan 25 ml van het monster wordt ca. 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 van maximaal 200 minuten uitgevoerd. Het telpreparaat bestaat uit 10,0 ml destillaat en 10,0 ml scintillatievloeistof (Ultima Gold LLT).

3.5 Bepaling van de ^{89}Sr - en ^{90}Sr -activiteitsconcentratie in afvalwater

De bepaling van strontium in afvalwater berust op selectieve complexatie van strontiumionen door een kroonether op een Sr-specifieke kolom. De kroonether is in staat Sr^{2+} -ionen selectief te complexeren in aanwezigheid van een overmaat aan Ca^{2+} - en Ba^{2+} -ionen.

Aan een deelmonster van 250 mL wordt ^{85}Sr -merker en Sr-drager toegevoegd. Met ammonia wordt de oplossing op pH 10 gebracht. Vervolgens wordt een calcium- en een Na_2CO_3 -oplossing toegevoegd en dit wordt onder verwarmen geroerd. Eénwaardige en tweewaardige ionen worden door middel van een carbonaatprecipitatie van elkaar gescheiden. Het supernatant, met daarin de éénwaardige ionen K^+ en NH_4^+ , wordt gedecanteerd. Het precipitaat (zonder éénwaardige ionen) wordt opgelost in een salpeterzuur/aluminiumnitraat-oplossing en daarna op een voorgespoelde Sr-specifieke kolom gebracht waarop de Sr-ionen achterblijven. Met water worden de Sr-ionen gedesorbeerd en opgevangen in een telflesje. Na toevoeging van scintillatiecocktail wordt het preparaat direct gemeten op de vloeistofscintillatieteller. Na twee weken volgend op de eerste meting wordt het preparaat wederom gemeten om de ingroei van ^{90}Y te bepalen. Voor de opbrengstbepaling van strontium wordt ^{85}Sr gebruikt. Het LSC-spectrum wordt in drie 'windows' onderscheiden. Uit het spectrum met bijdragen van ^{85}Sr , ^{89}Sr , ^{90}Sr en ^{90}Y wordt de ^{89}Sr - en ^{90}Sr -activiteitsconcentratie in het afvalwatermonster berekend.

3.6 Bepaling van de activiteitsconcentratie van gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht

Per analyse wordt van het filterpakket een te analyseren preparaat samengesteld bestaande uit, in volgorde, het geponste (46 mm) aerosolfilter, de

DSM11-absorber 1 en de kool-absorber 1. Van dit preparaat wordt een gammaspectrum opgenomen en geanalyseerd op dezelfde wijze als dit bij afvalwater gebeurt.

De nucliden in de nuclidenbibliotheek zijn weergegeven in Tabel B3 in Bijlage B. Indien uit de analyse blijkt dat er vluchtige nucliden in het pakket aanwezig zijn, worden de vijf afzonderlijke delen (dus ook het tweede monster DSM11 en het tweede monster kool) van het totale pakket gemeten en geanalyseerd. Voor radioactief verval van de gedetecteerde nucliden wordt gecorrigeerd naar het midden van de monsterperiode¹. Voor de kalibratie van de gammaspectrometrieopstelling wordt gebruik gemaakt van een bekende hoeveelheid activiteit overgebracht in preparaatvormen van eenzelfde vorm, afmeting, mate van homogeniteit en dichtheid als de te meten filters.

Voor de meetgevoeligheid wordt gerefereerd aan de detectielimiet voor ⁶⁰Co en ¹³¹I. De KTA 1503.1 [KT93] eist dat bij het meten van gammastralers in ventilatielucht de detectielimiet voor ⁶⁰Co en ¹³¹I minder dan 20 mBq m⁻³ bedraagt.

3.7 **Bepaling van de activiteitsconcentratie van ³H en ¹⁴C in ventilatielucht**

KCB bemonstert anorganisch en organisch ³H en ¹⁴C in een deelstroom van de geloosde ventilatielucht door middel van molecuulairzeven (zie Bijlage B). Na afloop van een kwartaal worden deze uitgestookt bij 350 °C. De vrijkomende CO₂ en H₂O worden geadsorbeerd in een organische base en, respectievelijk, gecondenseerd. RIVM ontvangt van KCB een bekend deel van het condenswater en de organische base en bepaalt daarin de activiteit van ³H en, respectievelijk, ¹⁴C door middel van vloeistofscintillatietelling.

3.8 **Foutenberekening**

De door RIVM opgegeven fout (na teken ±) is het 1σ-schattinginterval. Voor het bepalen hiervan is gebruik gemaakt van NEN 1047 (Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen) en NEN 3114 (Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities) [NE90, NE91]. Indien de analyse in tweevoud is uitgevoerd wordt het gemiddelde en de fout daarin gerapporteerd. Bij het schatten van de totale fout worden telfouten, kalibratiefouten en experimentele fouten meegenomen. Onder experimentele fouten vallen bijvoorbeeld fouten in wegingen en volumebepalingen.

- *Bepaling van de totaal alfa-activiteitsconcentratie in afvalwater*
Hier wordt per analyse gebruik gemaakt van een preparaat zonder en een preparaat met een ²⁴¹Am-standaard. De totale fout in de totaal alfa-activiteitsconcentratie is samengesteld uit een telfout van het preparaat zonder standaard, een telfout van het preparaat met standaard, een kalibratiefout en een experimentele fout.
- *Gammaspectrometrie*
Voor de gammastraling uitzendende nucliden vindt rapportage plaats met een aangegeven fout voortkomend uit telstatistiek, kalibratie, achtergrond, onzekerheid in de yield, monstervoorbehandeling en – in het geval van luchtmonsters – het bemonsterde volume. Aan het door KCB aangemaakte gelpreparaat dat door RIVM wordt gemeten, wordt

¹ De methode verschilt van die van KCB. Voor het kortst levende nuclide dat door RIVM wordt aangetoond (¹³¹I), geeft de RIVM-methode een 2% hogere waarde. Voor de overige nucliden is het verschil kleiner.

geen fout voortkomend uit de monstervoorbehandeling toegekend. Indien er sprake is van cascadeverval dan is een extra fout toegevoegd aan de gerapporteerde activiteitsconcentraties.

- *Bepaling van de ^3H -activiteitsconcentratie in afvalwater*
De totale fout is samengesteld uit de telfout, een kalibratiefout en een experimentele fout.
- *Bepaling van de ^{89}Sr -en ^{90}Sr -activiteitsconcentratie in afvalwater*
Voor ^{89}Sr wordt de totale fout samengesteld uit de telfout, de fout in de ^{89}Sr - quenchcurve, de fout in de ^{85}Sr -opbrengstbepaling en een experimentele fout. Voor ^{90}Sr wordt de totale fout gelijk gesteld aan de fout in de ^{90}Y -bepaling. Deze is samengesteld uit de telfout na minimaal 2 weken ingroei van ^{90}Y , de fout in de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -quenchcurve, de fout in de ^{85}Sr -opbrengstbepaling en een experimentele fout. Indien er ^{89}Sr in het monster aanwezig is dan wordt de fout in de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -bepaling groter door de onzekerheid in de verschilbepaling van ($^{89}\text{Sr}_{t2}$ plus ingegroeid ^{90}Y) - $^{89}\text{Sr}_{t1}$; hierin is $t1$ het meettijdstip direct na kolomelutie (waar nog geen ^{90}Y aanwezig is), en $t2$ het meettijdstip na 2 weken ingroei van ^{90}Y .
- *Bepaling van de ^3H en ^{14}C -activiteitsconcentratie in ventilatielucht*
De totale fout is samengesteld uit de telfout, een onzekerheid die samenhangt met de ^3H en de ^{14}C quenchcurve en een experimentele fout. RIVM ontvangt en analyseert het ^{14}C - en ^3H monster dat door KCB genomen is en kan geen uitspraak doen over de onzekerheid in de monsternamen door KCB en de onzekerheid in de bepaling van het aantal $\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ in de hoofdstroom en de deelstroom.

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) [Ob07]. Voor ventilatieluchtmonsters wordt indien mogelijk deelgenomen aan relevante ringonderzoeken.

3.10 Presentatie van resultaten en vergelijking

De door KCB bepaalde activiteitsconcentraties worden overgenomen uit de opgaven van KCB [KC07] en zijn in deze rapportageperiode afgerond met de afrondingsregels zoals die door RIVM wordt gehanteerd (volgens NEN 1047 [NE91]). KCB geeft 2σ op als de fout, RIVM 1σ . De door KCB opgegeven fouten worden door 2 gedeeld, zodat in dit rapport overal σ als fout wordt toegepast.

De overeenkomst tussen de meetresultaten van RIVM en die van de onderzochte nucleaire installatie (NI) wordt ingedeeld in één van de categorieën A1, A2, B, of C, die gekoppeld zijn aan een waarschijnlijkheid. Vergelijking vindt alleen plaats

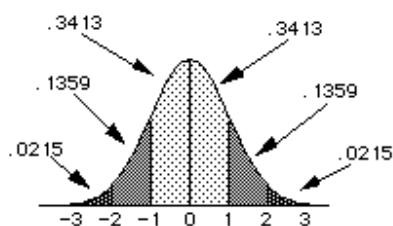
als zowel RIVM als het onderzochte bedrijf een activiteit hebben aangetoond en opgegeven.

Het vergelijken van de gemeten waarden x_{NI} en x_{RIVM} is ook te verwoorden als het bepalen van het verschil $\Delta = x_{NI} - x_{RIVM}$. Het verschil tussen de meetwaarden wordt berekend uit de getallen zoals deze worden weergegeven, dus na afronding van de meetwaarde van RIVM (volgens NEN 1047 [NE91]). De fout² 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, σ_{NI} , gelijk is aan de fout in de meetwaarde van RIVM, σ_{RIVM} .

Het is hierbij in het bijzonder van belang, dat alle partijen (RIVM en NI's) een gedegen foutenberekening uitvoeren. In het ideale geval³, 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.



Ten behoeve van de contra-expertise geeft KCB bij de resultaten van de afvalwatermonsters twee fouten op, namelijk de totale fout inclusief inhomogeniteitsfout en de fout exclusief inhomogeniteitsfout. Bij de vergelijking van de door RIVM bepaalde waarden in de KCB-gel met de door KCB bepaalde waarden werd voor σ_{NI} de fout exclusief inhomogeniteitsfout gehanteerd en in de vergelijking met de RIVM-gel, de fout inclusief inhomogeniteitsfout.

² (als $s_{NI} = s_{RIVM}$ dan $s_{\Delta} = s_{RIVM} \times \sqrt{2}$)

³ 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 KCB [KC07] en de daarbij behorende fouten (σ , zie Hoofdstuk 3) zijn te vinden in Bijlage A. In Tabel A1 van deze bijlage zijn alleen die gammastralers opgenomen die in de afvalwatermonsters zijn aangetoond. Indien een gammastraler wel door KCB maar niet door RIVM is aangetoond dan wordt de detectielimiet van RIVM voor het betreffende nuclide in deze tabel opgenomen.

De activiteitsconcentratie van gammastralers in ventilatielucht zoals bepaald door RIVM en KCB en de vergelijking daarvan staan Tabel A4. Onder de kop 'Pakket' in deze tabel staat '>' als RIVM in het pakket als geheel activiteit heeft aangetoond en anders '<'. RIVM meet de onderdelen van het pakket alleen in het eerste geval. Toont RIVM geen activiteit aan in een gemeten onderdeel van het pakket, dan wordt de MDA (minimaal detecteerbare activiteit) opgegeven.

4.2 Vergelijking van de resultaten

Het resultaat van de vergelijking zoals beschreven in paragraaf 3.10 is in de tabellen van Bijlage A vermeld onder de kop 'V'. De vergelijking van de resultaten van KCB met die van RIVM voor de KCB-gel en de RIVM-gel zijn samengevat in Tabel 4 en Tabel 5. In deze tabellen is tevens tussen haakjes het volgens een normale verdeling verwachte voorkomen aan categorieën A1-A2-B-C te zien. Zo is af te lezen of er significant meer of minder resultaten in een categorie vallen dan verwacht.

4.2.1 Afvalwater

In de acht afvalwatermonsters werden 10 verschillende gammastralers zowel door RIVM als door KCB aangetoond (Tabel A1). Daarnaast toonde RIVM nog een geringe hoeveelheid aan van ^{51}Cr (monster 5), ^{58}Co (monster 4), ^{95}Zr (monster 5 en 7), ^{103}Ru (monster 6), $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (monster 2, 3 en 7), $^{123\text{m}}\text{Te}$ (monster 5, 6 en 7), ^{124}Sb (monster 2), ^{125}Sb (monster 5 en 6), ^{134}Cs (monster 1, 3 en 8), ^{137}Cs (monster 7 en 8), en van ^{144}Ce (monster 5) waar KCB niets vond. KCB vond in monster 5 een geringe hoeveelheid van ^{124}I , waar RIVM niets vond.

In elk van de acht batchmonsters is door zowel KCB als RIVM ^3H aangetroffen. In het kwartaalmengmonster van het vierde kwartaal is door RIVM een geringe activiteitsconcentratie aan ^{89}Sr en ^{90}Sr gevonden. Het nuclide ^{90}Sr is door KCB wel, en ^{89}Sr niet gerapporteerd (Tabel A3).

4.2.2 Ventilatielucht

RIVM heeft in alle ventilatieluchtfilterpakketten activiteit aangetroffen, KCB in monster 1, 5, 6, 7 en 8. KCB en RIVM vonden beide een ^{131}I activiteit in de 1^e, 6^e en 7^e DSM11-1 zeoliet, en tevens een ^{131}I activiteit in de 1^e, 5^e, 6^e en 8^e kool-1 absorber. KCB vond het zeer kortlevende ^{132}I ($T_{1/2} = 2,3$ h) in de 6^e DSM11 zeoliet, waar RIVM niets aantrof. In de kool-1 absorber van monster 6 vond KCB ook het kortlevende jodiumisotoop ^{133}I ($T_{1/2} = 20,8$ h) waar RIVM niets heeft aangetroffen.

Tabel 4 : Vergelijking van RIVM- en KCB-meetresultaten aan het door KCB gegeleerde monster

Nuclide	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma A1$ *	$\Sigma A2$ *	ΣB *	ΣC *
⁵¹ Cr						A1			1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
⁵⁴ Mn					A1	A2			1 (0-2)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
⁵⁸ Co		A1			A1	A2	A1		3 (1-4)	1 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
⁶⁰ Co	A1	A1	A2	A1	A1	A1	A1	B	6 (3-7)	1 (0-4)	1 (0-1)	0 (0-0)
⁹⁵ Nb		A1			B	A2	A1		2 (1-4)	1 (0-3)	1 (0-1)	0 (0-0)
⁹⁵ Zr		B				A2			0 (0-2)	1 (0-2)	1 (0-1)	0 (0-0)
^{110m} Ag					A1	A1			2 (0-2)	0 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
^{123m} Te	A1								1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
¹²⁴ Sb					A2	A2			0 (0-2)	2 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
¹³⁴ Cs		A1			A1	A2			2 (1-3)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
¹³⁷ Cs	A2	A1	A1	A1	A1	A2			4 (2-6)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal									22 (19-28)	10 (5-14)	3 (0-4)	0 (0-1)

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

Tabel 5 : Vergelijking van RIVM-meetresultaten aan een door RIVM gegeleerd monster met KCB-meetresultaten aan het door KCB gegeleerde monster

Nuclide	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma A1$ *	$\Sigma A2$ *	ΣB *	ΣC *
⁵¹ Cr						A1			1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
⁵⁴ Mn					B	C			0 (0-2)	0 (0-2)	1 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
⁵⁸ Co		A1			C	A2			1 (1-3)	1 (0-2)	0 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
⁶⁰ Co	A1	C	A2	C	C	A1	A1	A1	4 (3-7)	1 (0-4)	0 (0-1)	<u>3</u> (0-0)
⁹⁵ Nb					A2	A2			0 (0-2)	2 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
⁹⁵ Zr						A2			0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
¹⁰³ Ru									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
^{110m} Ag					C	A1			1 (0-2)	0 (0-2)	0 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
^{123m} Te	A1								1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
¹²⁴ I									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
¹²⁴ Sb					A2				0 (0-1)	1 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
¹²⁵ Sb									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
¹³⁴ Cs		A1			A1	A2			2 (1-3)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
¹³⁷ Cs	C	A1	A1	A1	A2	A1			4 (2-6)	1 (0-4)	0 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
¹⁴⁴ Ce									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
³ H	A2	A1	C	C	C	B	C	C	<u>1</u> (3-7)	1 (0-4)	1 (0-1)	<u>5</u> (0-0)
Totaal									<u>15</u> (21-31)	9 (6-15)	2 (0-4)	<u>12</u> (0-1)

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

In het monster van het derde kwartaal is zowel door RIVM als KCB ^3H en ^{14}C aangetoond (zie tabel A5).

Tabel 6 : Vergelijking ^{131}I in ventilatielucht

Filter	1	2	3	4	5	6	7	8	ΣA1^*	ΣA2^*	ΣB^*	ΣC^*
DSM11-1	A1					B	A1		2 (1-3)	0 (0-2)	1 (0-1)	0 (0-0)
DSM11-2									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
Kool-1	A1				A1	C		B	2 (1-4)	0 (0-3)	1 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
Kool-2									0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
Totaal									4 (3-7)	0 (0-4)	<u>2</u> (0-1)	<u>1</u> (0-0)

4.3 Discussie

4.3.1 Afvalwater

Algemeen

Het RIVM voert geen controle uit op alle lozingen die KCB jaarlijks uitvoert. In opdracht van VROM voert RIVM een contra-expertise uit op de bepalingen van KCB, uitgevoerd aan acht lozingsbatches.

Door de aard van de werkzaamheden bij KCB is was- en spoelwater een belangrijk deel van het te lozen afvalwater. Hierdoor bevat het afvalwater vaak vlokkige en uitzakkende delen. Een aantal radionucliden, zoals bijvoorbeeld Co^{2+} , Ru^{3+} , Ce^{4+} , hechten zich relatief makkelijk aan zwevende deeltjes en zal daardoor na verloop van tijd uitzakken en op de bodem van de monsterfles liggen. De verdeling van dergelijke metaalionen over het watermonster is dan zeker niet homogeen. Nucliden zoals $^{134/137}\text{Cs}^+$ en met name ^3H (als $^3\text{H}_2\text{O}$) vertonen een veel minder sterke neiging tot adsorptie aan zwevende deeltjes en zijn doorgaans wel homogeen verdeeld.

Naast een homogene verdeling over het monster speelt mogelijke adsorptie aan de fleswand een rol. Dit is van groot belang bij glazen monsterflessen: de meeste radionucliden hebben een sterke affiniteit voor glasoppervlakken en zullen na verloop van tijd adsorberen aan de glaswand. Ongewenste wandadsorptie kan geminimaliseerd worden door het gebruik van kunststof monsterflessen, het aanzuren van het monster tot ca. pH 1, en het toevoegen van stabiele metaalionen (dragerionen). Dit staat omschreven in KTA 1504 [KT94]. Een nadeel van het toevoegen van stabiele metaalionen kan het optreden van meer uitvlokking zijn. Het is daarom van belang in ieder geval de pH op ca. 1 te handhaven en een zodanige hoeveelheid stabiele metaalionen toe te voegen dat er geen extra uitvlokking optreedt.

Bij het beoordelen van de resultaten behaald door KCB en in vergelijking tot de resultaten van RIVM dienen bovenstaande argumenten altijd in beschouwing te worden genomen.

KCB-gel

Bij de vergelijking van de gemeten concentraties door RIVM en KCB aangetoonde gammastralers in de KCB-gel, bleek voor een groot deel van de nucliden een goede overeenstemming. Bij de vergelijkingsresultaten van de KCB-gel komen de categorieën A1, A2, B en C volgens de statistische verwachting voor.

RIVM-gel

Er bleek een matige overeenstemming tussen de door RIVM gemeten concentraties aan gammastralers in de RIVM-gel met de KCB-resultaten in de KCB-gel. De categorie A1 komt te weinig voor en de categorie C juist te veel. Alleen de categorieën A2 en B komen volgens de statistische verwachting voor. Daarnaast komt het echter ook voor dat een monster met slechts enkele nucliden niet goed homogeen is verdeeld, zoals in monster 2 en 4 (^{60}Co), monster 5 (^{58}Co , ^{60}Co en $^{110\text{m}}\text{Ag}$) en monster 6 (^{54}Mn). Hoogstwaarschijnlijk bevat het afvalwater vlokke of uitzakkende deeltjes waaraan activiteit adsorbeert. Het is echter niet goed verklaarbaar dat de vergelijking voor ^{58}Co in monster 2 wel goed uitkomt, en voor ^{60}Co niet; beide nucliden gedragen zich immers chemisch hetzelfde.

De ^3H vergelijkingsresultaten vertonen naast één A1, A2 en B verder vijfmaal een C: RIVM bepaalt viermaal een hogere waarde en éénmaal een lagere waarde. Een praktisch knelpunt bij de ^3H bepaling is de destillatieopstelling, waarin contaminatie van een hoge (of lage) ^3H activiteit uit een vorig monster nooit geheel is uit te sluiten. De ^3H -resultaten zouden nog verbeterd kunnen worden, ook al omdat er geen homogeniteitsproblemen zijn te verwachten bij ^3H .

RIVM rapporteert hogere waarden voor ^{90}Sr en totaal-alfa dan KCB in het mengmonster van het derde kwartaal. De oorzaak daarvan is niet duidelijk. RIVM vindt een geringe activiteitsconcentratie van $0,8 \pm 0,2 \text{ kBq.m}^{-3}$ voor ^{89}Sr .

4.3.2

Ventilatielucht

Aan de aanzuigzijde is de activiteit van jodium isotopen in het absorbermateriaal het hoogst. Hierdoor is de activiteit niet homogeen verdeeld over het zeoliet- of het koolmateriaal. Dit houdt in dat KCB en RIVM na het schudden van het korrelmateriaal niet exact dezelfde verdeling in de teldoos hebben. Desondanks zijn de vergelijkingsresultaten (zie tabel 6) met viermaal A1, tweemaal B en een C acceptabel.

De gevonden activiteit aan geloosd ^3H en ^{14}C in het derde kwartaal heeft voor beide nucliden als overeenkomst een A1. Bij deze vergelijking is uitgegaan van de meetwaarden die door KCB en RIVM behaald zijn in de monsters genomen met TL080R020. De analyseresultaten die in opdracht van KCB behaald zijn door Areva met de bemonsteringsopstelling TL080R019 komen voor ^3H niet goed en voor ^{14}C slecht overeen met de KCB en RIVM resultaten. De reden daarvoor is niet duidelijk en is reden voor nader onderzoek door KCB.

5 Referenties

- [KC97] Onderzoek aan mengmonsters radioactief afvalwater. Rapport R0087, N.V. Elektriciteits-produktiemaatschappij Zuid-Nederland KCB, 1997.
- [KC01] 'Foutenanalyse gammaspecifieke afvalwateranalyse', G.L.J. Haaij, ref. Lous/Haaij/R015045, 31 januari 2001.
- [KC07] Rapportages betreffende geloosde gasvormige en vloeibare ioniserende stralen uitzendende stoffen in:
 2007 kwartaal 1 – brief KM/Lrs/Lrs/R072245 dd. 27-09-07.
 2007 kwartaal 2 – brief KM/ Lrs/Lrs/R072261 dd. 1-10-07.
 2007 kwartaal 3 – brief KM/ Lrs/Lrs/R072337 dd. 21-12-07.
 2007 kwartaal 4 – brief KM/ Lrs/Lrs/R082082 dd. 6-03-08.
 Lozingsrapportages afvalwater t.b.v. contra-expertise RIVM:
 datum lozing TR42 15 januari 07, volgnummer 07-01
 datum lozing TR42 27 februari 07, volgnummer 07-07
 datum lozing TR42 21 mei 07, volgnummer 07-25
 datum lozing TR42 1 juni 07, volgnummer 07-28
 datum lozing TR42 10 september 07, volgnummer 07-53
 datum lozing TR41 19 september 07, volgnummer 07-60
 datum lozing TR42 20 september 07, volgnummer 07-61
 datum lozing TR42 2 november 07, volgnummer 07-68
 Meetgegevens ventilatieschacht Kernenergiecentrale Borssele (paraaf door Haz of CKu afd. KMC; monsteromschrijving TL080 R018):
 periode 12 - 19 januari 2007; rapportage d.d. 24-01-07
 periode 23 februari – 2 maart 2007; rapportage d.d. 6-03-07
 periode 11 - 18 mei 2007;
 periode 1 - 8 juni 2007;
 periode 31 augustus – 7 september 2007;
 periode 7 – 14 september 2007;
 periode 14 – 21 september 2007;
 periode 26 oktober - 2 november 2007.
- [KT93] KTA 1503.1 Überwachung der Ableitung gasförmiger und aërosolgebundener radioaktiver Stoffe. KTA, Köln, 1993.
- [KT94] KTA 1504 Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe im Wasser. KTA, Köln, 1994.
- [KW06] Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van de kernenergiecentrale Borssele. Periode 2006, RIVM/LSO briefrapport 610330065/2007.
- [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.
- [NE90] NEN 3114. Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities. Nederlands Normalisatie Instituut. Delft, augustus 1990.

- [NE91] NEN 1047. Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen. Nederlands Normalisatie Instituut. Delft, 1991.
- [Ob07] D. Obrikat, Ch. Hohmann, I. Krol. Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2007", August 2007, SW 2 – 12/2007, Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich SW, Berlin/München, Duitsland.
- [RI07] Jaarplan project 610330 - 2007. Notitie van RIVM/LSO aan P.J.W.M. Müskens, directeur VROM-KFD, kenmerk 063/07 LSO/Kwa/lvl, datum 1 februari 2007.
- [VI07] Brief van R.D. Woittiez, directeur sector RIVM-MEV, aan P.J.W.M. Müskens, directeur VROM-KFD, kenmerk VI/KFD/2007069434_.526, datum 30 juli 2007.

Bijlage A Vergelijking meetresultaten

Tabel A1 : Vergelijking van de activiteitsconcentratie van gammastralers in afvalwater van KCB (kBq m⁻³)

Monsternr. Datum Nuclide	1 15 januari 2007				2 27 februari 2007				3 21 mei 2007				4 11 juni 2007							
	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel
⁵¹ Cr																				
⁵⁴ Mn																				
⁵⁸ Co						1,2 ± 0,2	A1	1,0 ± ^{0,3} _{0,4}	A1	1,1 ± 0,3						0,45 ± 0,12				< 0,6
⁶⁰ Co	35,5 ± 1,9	A1	36,7 ± ^{1,3} ₁₇	A1	34 ± 2	64 ± 3	A1	63 ± ² ₃₀	C	151 ± 9	7,2 ± 0,4	A2	6,7 ± ^{0,5} ₃	A2	9,1 ± 0,6	18,1 ± 1,0	A1	18,6 ± ^{0,8} ₈	C	33 ± 2
⁹⁵ Nb						2,5 ± 0,3	A1	2,3 ± ^{0,4} _{1,1}		< 1,6										
⁹⁵ Zr						2,6 ± 0,6	B	1,2 ± ^{0,4} _{0,7}		< 1,4										
¹⁰³ Ru																				
^{110m} Ag						1,4 ± 0,3				1,7 ± 0,4	< 0,4				0,9 ± 0,2					
^{123m} Te	0,51 ± 0,16	A1	0,42 ± ^{0,12} _{0,14}	A1	0,36 ± 0,09															
¹²⁴ I																				
¹²⁴ Sb						2,5 ± 0,7				< 0,4										
¹²⁵ Sb																				
¹³⁴ Cs	< 1,2				1,4 ± 0,4	2,3 ± 0,4	A1	2,0 ± ^{0,3} _{0,3}	A1	2,2 ± 0,4	0,84 ± 0,19				0,95 ± 0,18					
¹³⁷ Cs	1,8 ± 0,3	A2	1,3 ± ^{0,3} _{0,3}	C	3,6 ± 0,3	8,3 ± 0,5	A1	8,6 ± ^{0,7} _{0,8}	A1	9,0 ± 0,6	3,1 ± 0,3	A1	3,0 ± ^{0,4} _{0,4}	A1	2,8 ± 0,4	1,5 ± 0,3	A1	1,2 ± ^{0,3} _{0,3}	A1	1,3 ± 0,3
¹⁴⁴ Ce																				
³ H			800000 ± 16000	A2	840000 ± 20000			369000 ± 8000	A1	371000 ± 9000			816000 ± 16000	C	910000 ± 20000			224000 ± 4000	C	258000 ± 7000

* Meetresultaat van KCB: de bovenste fout is exclusief inhomogeniteitsfout, de onderste is de totale fout

Tabel A1 : Vervolg

Monsternr. Datum Nuclide	5 10 september 2007					6 19 september 2007					7 20 september 2007					8 2 november 2007				
	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel	KCB-gel	V	KCB*	V	RIVM-gel
⁵¹ Cr	< 3,7				6 ± 3	14 ± 3	A1	14 ± ³ / ₇	A1	14 ± 2										
⁵⁴ Mn	1,3 ± 0,3	A1	1,4 ± ^{0,3} / _{0,7}	B	3,3 ± 0,6	2,7 ± 0,7	A2	1,5 ± ^{0,4} / _{0,8}	C	7,8 ± 0,7										
⁵⁸ Co	1,54 ± 0,19	A1	1,6 ± ^{0,4} / _{0,4}	C	3,7 ± 0,4	7,0 ± 0,6	A2	7,8 ± ^{0,7} / _{1,4}	A2	9,4 ± 0,7	3,3 ± 0,3	A1	3,1 ± ^{0,4} / _{0,6}		< 0,8					
⁶⁰ Co	44 ± 2	A1	44,1 ± ^{1,6} / ₂₀	C	88 ± 5	104 ± 5	A1	99 ± ³ / ₄₀	A1	96 ± 6	4,7 ± 0,3	A1	4,7 ± ^{0,4} / ₂	A1	4,2 ± 0,4	3,2 ± 0,3	B	4,1 ± ^{0,4} / _{1,9}	A1	4,7 ± 0,4
⁹⁵ Nb	4,3 ± 0,3	B	3,5 ± ^{0,5} / _{1,6}	A2	4,7 ± 0,4	25,8 ± 1,4	A2	28,9 ± ^{1,5} / ₁₃	A2	16,5 ± 1,0	0,68 ± 0,15	A1	0,8 ± ^{0,3} / _{0,4}		< 0,3					
⁹⁵ Zr	4,3 ± 0,8				7,1 ± 1,6	17,9 ± 1,4	A2	20,0 ± ^{1,2} / ₉	A2	11,5 ± 1,1	1,6 ± 0,4				< 2,3					
¹⁰³ Ru						1,2 ± 0,4				1,2 ± 0,4										
^{110m} Ag	3,7 ± 0,6	A1	3,4 ± ^{0,5} / _{0,7}	C	7,3 ± 1,2	6,7 ± 1,3	A1	6,0 ± ^{0,6} / _{1,1}	A1	6,4 ± 1,0	0,9 ± 0,2				< 0,2					
^{123m} Te	0,27 ± 0,12				< 0,4	0,7 ± 0,3				< 0,3	0,33 ± 0,11				< 0,6					
¹²⁴ I	**		1 ± ² / ₂		**															
¹²⁴ Sb	3,5 ± 0,6	A2	1,9 ± ^{1,1} / _{1,1}	A2	3,1 ± 0,7	4,2 ± 1,0	A2	2,6 ± ^{0,4} / _{0,5}		< 1,2										
¹²⁵ Sb	3,2 ± 0,7				4,4 ± 1,2	3,3 ± 0,9				2,8 ± 0,7										
¹³⁴ Cs	2,4 ± 0,5	A1	2,1 ± ^{0,3} / _{0,3}	A1	2,1 ± 0,4	4,4 ± 1,0	A2	2,6 ± ^{0,3} / _{0,4}	A2	4,3 ± 0,9					0,47 ± 0,12					< 0,2
¹³⁷ Cs	10,2 ± 0,6	A1	10,5 ± ^{0,8} / _{0,9}	A2	11,7 ± 0,8	14,7 ± 0,9	A2	16,4 ± ^{1,0} / _{1,3}	A1	15,7 ± 1,0	0,25 ± 0,11				< 0,4	0,75 ± 0,14				0,6 ± 0,2
¹⁴⁴ Ce	3,9 ± 1,2				11 ± 2	< 7				10,6 ± 1,8										
³ H			129000 ± 3000	C	111000 ± 3000			3020 ± 100	B	3290 ± 100			809000 ± 16000	C	910000 ± 20000			517000 ± 10000	C	582000 ± 15000

* Meetresultaat van KCB: de bovenste fout is exclusief inhomogeniteitsfout, de onderste is de totale fout

** Gezien de korte halfwaardetijd van 4,1 d is de activiteitsconcentratie van ¹²⁴I te laag om op de meetdag van RIVM nog waar te nemen.

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

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

* Volgens KTA 1504 en KTA 1503.1 te onderzoeken nucliden [KT94, KT93]

† Volgens KTA 1504 te onderzoeken nucliden [KT94]

Tabel A3 : Vergelijking van de activiteitsconcentratie van totaal-alfa, ⁸⁹Sr en ⁹⁰Sr in het kwartaalmengmonster van afvalwater KCB (kBq m⁻³)

Periode Nuclide	Kwartaal 3		
	RIVM	V	KCB
totaal-alfa	0,60 ± 0,06		< 0,12
⁹⁰ Sr	4,23 ± 0,11	C	0,73 ± 0,03
⁸⁹ Sr	0,8 ± 0,2		< 0,5

Tabel A4 : Vergelijking van gamma-activiteitsconcentraties in de weekmonsters ventilatielucht in 2007 (mBq m⁻³)

Monsternummer Periode	Pakket	Nuclide	Aërosolfilter			DSM11-1			DSM11-2			Kool-1			Kool-2		
			RIVM	V	KCB	RIVM	V	KCB	RIVM	V	KCB	RIVM	V	KCB	RIVM	V	KCB
1. 12 - 19 januari	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 0.6		< 0.5	0.5 ± 0.2	A1	0.6 ± 0.4	< 0.5		< 0.8	1.3 ± 0.4	A1	1.4 ± 0.6	< 0.6		< 1.0
2. 23 feb - 2 maart	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 0.4		< 0.5	0.7 ± 0.3		< 0.9	< 0.7		< 0.7	< 0.4		< 1.1	< 0.7		< 0.9
3. 11 - 18 mei	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 3		< 0.5	0.7 ± 0.2		< 0.8	< 0.6		< 0.8	< 0.5		< 1.0	< 0.5		< 1.0
4. 1 - 8 juni	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 0.4		< 0.5	0.9 ± 0.3		< 0.8	< 0.6		< 0.8	0.7 ± 0.2		< 1.3	< 0.9		< 1.2
5. 31 aug - 7 sept	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 0.5		< 0.5	< 1.1		< 0.8	< 0.4		< 0.6	1.8 ± 0.3	A1	2.0 ± 0.6	< 0.5		< 0.8
6. 7 - 14 sept	>	¹³¹ I ¹³² I ¹³³ I	< 0.5		< 0.4	3.7 ± 0.5	B	2.2 ± 0.6 50 ± 160	1.5 ± 0.5		< 0.8	46 ± 3	C	59 ± 3 5 ± 2	< 4		< 0.8
7. 14 - 21 sept	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 0.4		< 0.5	1.1 ± 0.3	A1	1.0 ± 0.4	< 0.8		< 0.6	0.9 ± 0.2		< 1.2	< 0.6		
8. 26 okt - 2 nov	>	¹³¹ I ¹³³ I	< 0.4		< 0.4	0.6 ± 0.2		< 1.0	< 0.4		< 0.8	1.8 ± 0.2	B	2.7 ± 0.7	< 0.2		< 0.7

Tabel A5 : Vergelijking geloosde ³H en ¹⁴C activiteitsconcentratie in ventilatielucht in derde kwartaal 2007

	RIVM Bq/m ³	V (TL080R020)*	KCB Bq/m ³	KCB _{Areva} (TL080R019)** Bq/m ³	V
³ H*	368 ± 9	A1	372	328	C
¹⁴ C	145 ± 4	A1	140	280	C

* Het monster genomen met TL080R020 is gebruikt voor contra-expertise

** Het monster genomen met TL080R019 is bepaald door Areva (Siemens) en deze waarde staat vermeld in het 3^e kwartaalrapport 2007

Bijlage B Analyseprocedures van KCB

In de Bijlagen wordt een overzicht gegeven van de analytische methodes die KCB gehanteerd heeft ten tijde van de rapportageperiode. Dit heeft als doel een goede vergelijking te kunnen maken tussen de resultaten van KCB en RIVM.

In figuur 1 staat een algemene werkwijze voor het analyseren van afvalwater;

figuur 2-5 geeft een gedetailleerde beschrijving van de monsterbehandeling van afvalwater (Metingen en berekeningen aan monsters van radioactief afvalwater. Chemie instructie PO-N04-28-012, opsteldatum 30-9-2005);

figuur 6-8 geeft een beschrijving van de bepaling van ^3H en ^{14}C in ventilatielucht (Bepaling van de koolstof-14 en tritium lozing door de ventilatieschacht. Analysevoorschrift KMC PO-N04-26-033, opsteldatum 12-10-2007);

figuur 9-11 geeft een beschrijving van de bepaling van jodiumisotopen in ventilatielucht (Bepaling van de lozing van aerosolen en jodium via de ventilatieschacht. Meet- bedieningsinstructie PO-N17-25-220, opsteldatum 6-5-2004).

EPZ

Bijlage behorend bij KMS/Kam/Kam/B03004479

Bèta/gamma-activiteit in afvalwater, excl. tritium

De bèta/gamma-activiteit in afvalwater wordt bepaald per geloosde afvalwatertank. De monstervoorbereiding van het puntmonster per geloosde tank is steeds identiek geweest.

Van een 2 l puntmonster met drageroplossingen wordt 250 ml in een Polystyreen-doos gebracht. Hieraan wordt 6,5 g behangplaksel (Perfax blauw) toegevoegd. De doos wordt lek dicht gemaakt m.b.v. vaseline en tape rond het deksel. Na 5 min. goed schudden is de doos gereed om gemeten te worden. Meting geschiedt op een Ge-detektor gedurende 50.000 s.

Correctie voor radioactief verval is uitgevoerd naar 12.00 uur van de lozingdatum.

Tritium-activiteit in afvalwater

De tritiumactiviteit in afvalwater wordt bepaald per geloosde afvalwatertank. De monstervoorbereiding van het puntmonster per geloosde tank is steeds identiek geweest.

Van een 2 l puntmonster zoals hierboven wordt ca. 100 ml gedestilleerd. Van het destillaat wordt 10 ml in een plastic flesje gemengd met 10 ml scintillatievloeistof (Ultima gold). Na schudden wordt het flesje in een vloeistofscintillatieteller (Canberra 2700TR) gedurende 5 maal 1 min. geteld. Correctie voor radioactief verval wordt niet uitgevoerd.

Totaal alfa-bepaling in kwartaalmengmonster afvalwater

De totaal alfa-activiteit in afvalwater wordt bepaald in een proportioneel samengesteld mengmonster over 1 kwartaal. De bepaling wordt uitbesteed aan NRG in Petten. De bepaling 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 ^{241}Am -oplossing toegevoegd. Vervolgens worden beide monsters ingedampd 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 ^{241}Am -oplossing wordt de correctiefactor bepaald voor de zelfabsorptie in het ingedampde preparaat ten gevolge van de aanwezige zoutrest. Correctie voor radioactief verval wordt niet uitgevoerd.

Sr-89/Sr-90 bepaling in kwartaalmengmonster afvalwater

Deze bepaling wordt uitbesteed aan NRG in Petten. De bepaling van strontium activiteit wordt uitgevoerd conform NVN 5637 met als voorbereidende stap een extra oxalaatprecipitatie.

Na toevoegen van een bekende hoeveelheid inactief strontium en barium aan 1 liter afvalwater wordt de pH van de vloeistof met ammonia op 7 gebracht. Vervolgens worden als belangrijkste elementen onder meer strontium en calcium als oxalaat neergeslagen.

Na afscheiding en oplossen van de oxalaatneerslag wordt strontium gescheiden van calcium door gebruik te maken van het verschil in oplosbaarheid van hun nitraten in rood rokend salpeterzuur.

Barium, radium en lood isotopen worden vervolgens verwijderd door een barium-chromaat precipitatie. Yttrium en mogelijke andere splijttingsproducten worden verwijderd door een ijzerhydroxide precipitatie.

Tot slot wordt het strontium neergeslagen als carbonaat, gefiltreerd, gedroogd en gemeten op een low-level beta-gasdoorstroomteller.

De metingen worden periodiek herhaald tot geen verhoging meer wordt waargenomen van het teltempo.

CB-461-002

1

Figuur 1 Analyses in afvalwater door KCB, pag 1 van 1

3. WERKWIJZE

3.1 BEMONSTERING EN ANALYSE OPVANG- EN LOZINGTANKS TR-SYSTEEM

Bemonstering opvangtanks

De opvangtanks TR011B001, TR012B001, TR013B001 en TR014B001 worden bemonsterd en geanalyseerd: 1 × 1 liter puntmonster zonder toevoeging van drageroplossingen in een monsterfles (ZPE, wijdmonds).

Analyses TR011B001 en TR012B001

pH, boriumgehalte, chloridegehalte en de totaal gamma activiteit (NaI, geometrie 1 liter).

Analyses TR013B001 en TR014B001

pH, boriumgehalte, chloridegehalte, bepaling van de hoeveelheid loog en antischuim, vaste stof gehalte en de totaal gamma activiteit (NaI, geometrie 5 ml).

Bemonstering en analyses lozingtanks

De lozingtanks TR041B001 en TR042B001 worden bemonsterd en geanalyseerd:

- a. 1 × 500 ml puntmonster zonder toevoeging van drageroplossingen in een schone monsterfles (ZPE, wijdmonds). Van dit monster wordt de pH, het boorgehalte en de tritiumactiviteit bepaald. De meetfout in de tritiumactiviteit wordt tevens vermeld. De aantoonbaarheidsgrens voor tritium moet 40 kBq/m³ zijn.
- b. 1 × 2 liter puntmonster met drageroplossingen in een schone monsterfles (ZPE, wijdmonds).

Drageroplossing 1 wordt vooraf in de monsterfles gebracht. Na het vullen van de fles (niet spoelen en niet overvullen!) wordt drageroplossing 2 toegevoegd. De toe te voegen hoeveelheid drageroplossingen bedraagt 1 ml per liter monster.

Na het toevoegen van de drageroplossingen wordt het monster aangezuurd met geconcentreerd (65 %) salpeterzuur in een hoeveelheid van 10 ml per liter monster.

blad 3 van 8

Figuur 2 Monsternamen en analyse in afvalwater door KCB, pag 1 van 4

Meet na aanzuren de pH (1 – 2) en noteer de waarde in het afvalwaterschrift.

Van dit monster wordt de totaal gamma activiteit (NaI, geometrie 1 liter) en de nuclidensamenstelling bepaald. De puntmonsters worden minimaal één jaar bewaard voor het RIVM dat steekproefsgewijs een contra expertise uitvoert.

De bepaling van de chemische parameters, de uit te voeren afvalwaterbehandeling en de totaal gamma- en tritiumactiviteit is beschreven in de betreffende analysevoorschriften. Het bepalen van de nuclidensamenstelling is beschreven in paragraaf 3.2.

Voor het vaststellen van het volume afvalwater in de opvang- en lozingtanks wordt het PPS geraadpleegd om het waterniveau af te lezen: $\text{volume (m}^3\text{)} = \text{niveau (m)} \times 7,5 \text{ (m}^2\text{)}$.

De uit te voeren afvalwaterbehandeling, verpompen, doseren van chemicaliën en verdampen, wordt door de technicus chemie aan de afdeling KPB gemeld.

Het verwerken van de chemische en radiochemische analyseresultaten gebeurt met het programma Excel onder de afdelingsdirectory:

G:\6142\database\afvalwater\afvalwaterlozingenXXXX.xls, onder de tabbladen **herkomst en invoerblad lozingen**.

Na het verwerken van de resultaten wordt onder het tabblad **formulier** het afvalwaterformulier gegenereerd. Het afvalwaterformulier vermeldt de analyseresultaten, de uit te voeren afvalwaterbehandeling en de te lozen hoeveelheid activiteit inclusief de cumulatieve lozingen van het lopende jaar. De technicus chemie controleert en ondertekent het formulier en overhandigt dit aan de afdeling KPB.

Na lozing van het afvalwater wordt het geloosde volume gecorrigeerd voor de resterende hoeveelheid water in de lozingtank.

3.2 BEPALING VAN DE NUCLIDENSAMENSTELLING

Het puntmonster uit de lozingtank (TR041B001 en TR042B001) wordt radiochemisch nuclidespecifiek geanalyseerd. De radiochemische analyse gebeurt in een gel die als volgt wordt geprepareerd:

- Weeg 6,5 g behangplaksel af in een 250 ml geldoos;
- Smeer wat vaseline op de binnenrand van het deksel;
- Voeg daarna 250 g puntmonster toe;
- Maak de doos lekdticht door het sluiten van de doos en het afplakken met tape;
- Na goed schudden is het preparaat na vijf minuten geschikt om het radiochemisch te analyseren;

De radiochemische analyse vindt plaats op het conventionele laboratorium op detector 1 of 5.

Kies in de genie 2k gamma spectrometrie programmatuur de achtereenvolgende menu's en vul de gevraagde parameters in. De *sample date* is de datum waarop de lozing gebeurd of plaats vond. De teltijd is 60000 s. De *random error* = 1 % en de *systematic error* = 0 %. De aantoonbaarheidsgrens voor ^{60}Co in gedemineraliseerd water moet 1 kBq/m³ zijn.

Het verwerken van de resultaten gebeurt met het programma Excel onder de

afdelingsdirectory: **G:\6142\database\afvalwater\afvalwaterlozingenXXXX.xls**.

Per nuclide wordt opgegeven de activiteit, de fout (2s) en de MDA, onder het tabblad

blad 4 van 8

Figuur 3 Monsternamen en analyse in afvalwater door KCB, pag 2 van 4

invoerblad lozingen.

De gelpreparaten worden minimaal één jaar bewaard voor het RIVM dat steekproefsgewijs een contra expertise uitvoert.

3.3 HET KWARTAAL MENGMONSTER

Het kwartaal mengmonster dient te worden samengesteld uit de puntmonsters van de lozingtanks in een verhouding van de geloosde hoeveelheid in dat kwartaal. Het mengmonster, in totaal 5 liter, wordt samengesteld in een schone 5 l jerrycan. De berekeningswijze voor de juiste hoeveelheid puntmonster in ml is als volgt:

$$\frac{\text{geloosde volume afvalwater per tank (m}^3\text{)}}{\text{totaal geloosde volume afvalwater in het betreffende kwartaal (m}^3\text{)}} \times 5000 \text{ ml}$$

Het mengmonster wordt verdeeld over nieuwe 1 l monsterflessen (ZPE, wijdmonds). Het NRG bepaalt de totaal alfa-, ^{89}Sr -, en ^{90}Sr -activiteit in het kwartaal mengmonster. Als de totaal alfa-activiteit $> 1 \text{ kBq/m}^3$ is dient alfa-nuclide specifiek te worden gemeten.

Het RIVM bepaalt tevens de totaal alfa-, ^{89}Sr -, en ^{90}Sr -activiteit in het kwartaal mengmonster waarin de splijtstofwisselperiode valt.

Aantoonbaarheidsgrenzen: totaal alfa = $0,2 \text{ kBq/m}^3$, ^{241}Am = $0,05 \text{ kBq/m}^3$, ^{89}Sr = $0,5 \text{ kBq/m}^3$ en ^{90}Sr = $0,5 \text{ kBq/m}^3$.

Het kwartaal mengmonster wordt minimaal één jaar bewaard.

3.4 HET JAAR MENGMONSTER

Het jaar mengmonster dient te worden samengesteld uit de kwartaalmonsters in een verhouding van de geloosde hoeveelheid in dat jaar. Het mengmonster, in totaal 3 liter, wordt samengesteld in een schone 5 l jerrycan. De berekeningswijze voor de juiste hoeveelheid kwartaalmonster in ml is als volgt:

$$\frac{\text{geloosde volume afvalwater in dat kwartaal (m}^3\text{)}}{\text{totaal geloosde volume afvalwater in het betreffende jaar (m}^3\text{)}} \times 3000 \text{ ml}$$

Het mengmonster wordt verdeeld over nieuwe 1 l monsterflessen (ZPE, wijdmonds).

Areva in Erlangen bepaalt de ^{55}Fe en ^{63}Ni activiteit in het jaar mengmonster. De aantoonbaarheidsgrens moet voor elk van de nucliden 2 kBq/m^3 zijn.

Het jaar mengmonster wordt minimaal één jaar bewaard.

4. RAPPORTAGE

Rapportage vindt plaats :

- per tank voor de contra expertise door het RIVM;
- per week, de totale lozing aan gamma- en tritiumactiviteit inclusief de cumulatieve lozing van het lopende jaar;
- per maand, de totale lozing aan gamma- en tritiumactiviteit inclusief de cumulatieve lozing van het lopende jaar;

blad 5 van 8

- per kwartaal, de nuclidespecifieke lozing aan gamma- en tritiumactiviteit inclusief de cumulatieve lozing van het lopende jaar;

Per nuclide wordt opgegeven:

- de gemeten activiteit inclusief de totale fout en de inhomogeniteitsfout in kBq/m³;
- de geloosde hoeveelheid activiteit inclusief de totale fout en de inhomogeniteitsfout in MBq.

De totale fout is opgebouwd uit de meetfout, de experimentele fout en de inhomogeniteitsfout. De eerste twee fouten worden door genie 2k integraal als één getal gerapporteerd. De getalsmatige invulling van de inhomogeniteitsfout van de belangrijkste nucliden is:

H-3	5 %	Te-123m	15 %
Cr-51	45 %	I-124	5 %
Mn-54	45 %	Sb-124	15 %
Co-58	15 %	I-131	5 %
Co-60	45 %	Xe-133	5 %
Nb-95	45 %	Cs-134	5 %
Zr-95	45 %	Cs-137	5 %
Ag-110m	15 %	I-133	5 %

De fout wordt opgegeven bij een betrouwbaarheid van 95 % (2s).

Een uitgebreide foutenbeschouwing is vastgelegd in de rapporten *Foutenanalyse gammaspecifieke afvalwateranalyse* [1] en *Aanvullend onderzoek inhomogeniteitsfout gammaspecifieke afvalwateranalyse* [2]. Tevens wordt verwezen naar de brief van het RIVM met het kenmerk 665/01 LSO Sto/jh van 9 november 2001.

Figuur 5 Monsternamen en analyse in afvalwater door KCB, pag 4 van 4

6. WERKWIJZE

6.1 WISSELEN VAN DE CILINDERS MET MOLECULAIRZEEF

- Enkele dagen voor plaatsing in het monsternameapparaat nieuwe molecuulairzeef gedurende 8 uur uitstoken op 350 °C onder doorleiden van stikstof (5 NI/h). De molecuulairzeef af laten koelen onder doorleiden van stikstof.
- Vul een lege cilinder met uitgestookte molecuulairzeef, schroef de cilinder dicht en bepaal de massa van de cilinders plus molecuulairzeef. Noteer de massa op de betreffende cilinder. Bovenstaande wordt voor iedere cilinder apart uitgevoerd
- Voor verwijderen van de cilinders de wacht inlichten.
- Zet de schakelaar in de monsternamekast op 0 en noteer de datum/tijd op de cilinder.
- Verwijder de geplaatste cilinders met molecuulairzeef uit de automatische monstername-apparatuur.
- Noteer de tellerstand van het aantal pompslagen op de meetstaat.
- Plaats de cilinders met nieuwe molecuulairzeef in het monsternameapparaat en reset de teller.
- Wissel het papierfilter in de inlaat van het monsternameapparaat (alleen in TL080R020).
- In de maanden januari en juli ook de katalysatormassa in de oven van het monstername-apparaat wisselen (pas op HEET).
- Zet de schakelaar in de monsternamekast op stand 4 en noteer de datum/tijd op de cilinders.
- Bepaal de massa's van de gewisselde cilinders plus molecuulairzeef en noteer deze massa's ook op de cilinder.

6.2 UITSTOKEN VAN DE MOLECULAIRZEEF

De werkwijze is voor beide cilinders, organisch en anorganisch gelijk

- Schakel de koeler in de dag voor uitstoken en stel de koelertemperatuur in op 10 °C.
- Op de dag van uitstoken de koelertemperatuur instellen op 1 °C.
- Controleer de uitstookopstelling (zie bijlage 2) op compleetheid, de aanwezigheid van stikstof en de elektrische aansluitingen. Controleer ook de aanwezige o-ringen op beschadigingen.
- Breng m.b.v. een maatscilinder 70 ml carbosorb in gaswasflesje 1 en 60 ml carbosorb in gaswasflesje 2. Eventueel eerst voorspoelen met carbosorb.
- Stel de stikstofdruk op de reduceer in op ca. 0,25 bar, open de toevoer en stel het debiet in op ca. 3,0 NI/h. Wacht op een regelmatige bellenstroom in de gaswasflesjes.
- Sluit de beide afvoeren van het tweede gaswasflesje en wacht tot de bellenstroom stopt. Het stikstofdebiet moet < 0,3 NI/h worden, bij een druk van 0,25 bar. Na de lektest de stikstoftoevoer sluiten en de druk voorzichtig aflaten door de afvoer van het tweede gaswasflesje te openen.
- Breng de uit te stoken molecuulairzeef over in de glazen ovenbuis en sluit deze goed.
- Stel het stikstofdebiet in op 0,3 NI/h en voeg via het septum langzaam water toe totdat het watergehalte van de molecuulairzeef 12,5-15,0 g per 100 g molecuulairzeef bedraagt. Schakel na 10 minuten wachten de buisoven in op 50 °C. Het gasdebiet door de gaswasflesjes zal tijdens opwarmen stijgen t.g.v. desorptie van CO₂

blad 6 van 22

Figuur 6 Monstername en analyse van ³H en ¹⁴C door KCB, pag 1 van 3

- Als het gasdebiet door de gaswasflesjes weer afgenomen is tot ca. 0,3 l/h (na ca. 15 minuten) de oven-temperatuur verhogen tot 100 °C. Ook nu zal het gasdebiet door de gaswasflesjes weer stijgen.
- Als het gasdebiet door de gaswasflesjes weer afgenomen is tot ca. 0,3 l/h (na ca. 15 minuten) de oven-temperatuur verhogen tot 150 °C.
- 10 minuten na het bereiken van een temperatuur van 150 °C deze verhogen tot 200 °C en 10 minuten wachten.
- Temperatuur in stappen van 10 °C verhogen tot 240 °C steeds het bellenpatroon in de gaswasflesjes beoordelen (bij ca. 220 °C komt het water vrij).
- Na 20 minuten de oventemperatuur verhogen tot 350 °C en het stikstofdebiet tot 1,0 l/h.
- Na 5 uur op 350 °C de stikstoftoevoer sluiten en de koeler uitschakelen.
- Voor de koolstof-14 bepaling.
De inhoud van gaswasflesje 1 of 2 overbrengen in een droge maatcilinder van 100 ml. Het gaswasflesje spoelen met carbosorb via de gastoevoer met 3 maal 5 ml carbosorb en dit ook in de maatcilinder brengen. Na spoelen het volume van de carbosorb bepalen en deze vanuit de maatcilinder overbrengen in een, vooraf gemerkt, glazen monsterflesje van 100 ml.
- Voor de tritiumbepaling.
Spoel met ca. 15 ml met een injectiespuit met naald de laatste resten condensaat uit de gasafvoer van de ovenbuis via de koeler in de rondbodemkolf. Spoel daarna de koeler met ca. 15 ml water en vang dit ook op in de rondbodemkolf. Breng de inhoud van de rondbodemkolf over in een droge maatcilinder van 100 ml. Spoel de kolf enkele malen met weinig deminwater en breng dit ook over in de maatcilinder. Lees het volume water af en breng dit over in een, vooraf gemerkt, plastic monsterflesje van 100 ml.

6.3 METEN VAN DE MONSTERS

6.3.1 Aanmaken van de monsters voor de meting

- Koolstof-14
De werkwijze is voor alle monsters carbosorb gelijk.
Omdat de efficiëntie van de monsters afhankelijk is van eventuele verontreiniging wordt deze per monster bepaald. De monsters voor de scintillatiemeting worden aangemaakt in telflesjes van 20 ml

Tabel 2: Aanmaken monsters voor scintillatiemeting koolstof-14, hoeveelheden zijn in ml

	achtergrond	standaard 3,23 Bq	(AN)ORG fles 1 + BL	(AN)ORG fles 1 + ST	(AN)ORG fles 2 + BL	(AN)ORG fles 2 + ST
carbosorb	11	10	1	0	1	0
standaard	0	1	0	1	0	1
monster	0	0	10	10	10	10
permafluor	9	9	9	9	9	9

Hierna de telflesjes goed schudden en in het rekje met protocolvlag 19 plaatsen.

Figuur 7 Monsternamen en analyse van ^3H en ^{14}C door KCB, pag 2 van 3

– Tritium

De werkwijze is voor beide monsters (organische en anorganische fase) gelijk.

Breng 40 ml monster in een destillatiekolf en destilleer dit. De eerste 10 ml weggooien. Van het volgende condensaat 10 ml in een telflesje brengen en 10 ml ultima gold LLT scintillatievloeistof toevoegen. Telflesje goed schudden en in het rekje met protocolvlag 18 plaatsen.

Tabel 3: Aanmaken monsters voor scintillatiemeting Tritium, hoeveelheden zijn in ml

	blanco	Standaard E3	Org	Anorg
Demi	10	0	0	0
Standaard	0	10	0	0
Monster	0	0	10	10
Scintillatievloeistof	10	10	10	10

6.3.2 Metten van de monsters

– Koolstof-14

- * Het telrekje met IPA-standaarden in het instrument plaatsen en de vlag uitschuiven
- * Het telrekje met de monsterflesjes in het instrument plaatsen en de volgende gegevens invullen:
 - naam uitvoerende
 - de naam en de directory van te creëren bestand (C:\C14\YY\KW\anorg of org)
 - kies voor opslaan van de spectra en geef de directory waar de spectra opgeslagen moeten worden (C:\C14\YY\KW\anorg of org)
 - alle verdere gegevens liggen vast in het protocol
 - start de meting door de toets F11 in te drukken

– Tritium

- * Het telrekje met IPA-standaarden in het instrument plaatsen en de vlag uitschuiven
- * Het telrekje met de monsterflesjes in het instrument plaatsen en de volgende gegevens invullen:
 - naam uitvoerende
 - de naam en de directory van te creëren bestand (C:\C14\YY\KW\3H)
 - kies voor opslaan van de spectra en geef de directory waar de spectra opgeslagen moeten worden (C:\C14\YY\KW\3H)
 - alle verdere gegevens liggen vast in het protocol
 - start de meting door de toets F11 in te drukken

Figuur 8 *Monsternamen en analyse van ^3H en ^{14}C door KCB, pag 3 van 3*

3. UITVOERING

3.1 FILTERWISSEL

- Neem uit de kast een nieuw RVS filterpatroon en vul dit als volgt met verse zeoliet DSM11 en actieve kool, TEDA geïmpregneerd. Van boven naar beneden:
 - * 2 aerosolfilters, S-klasse, glasfaser, 90 mm (ligt los op filterpatroon);
 - * 2 bedden van 100 cm³ DSM11;
 - * 2 bedden van 200 cm³ actieve kool, TEDA geïmpregneerd.
 De zeoliet/koolbedden worden door gridjes gescheiden.
- Neem het gevulde patroon en het aerosolfilter mee naar TL080R015 (03415) danwel naar TL080R018 (03416).
- Open vervolgens de kast (tweede paneel van onder).
- Maak de vergrendeling van de hefboom links naast het filter los (palletje) en trek de hefboom naar voren. Hierdoor zakken het filter en de teflonbus die daaromheen zitten omlaag. Het filter komt daardoor vrij en de pomp slaat automatisch af.
- Noteer het doorstroomde volume en de standtijd zoals die zijn geregistreerd door de Microquant. Normaal gesproken staat het apparaat in de bedrijfsstand. In het display staat dan:

Qt= X.XX [m ³ /h]	Qt is de actuele doorstroming
Met behulp van de toetsen D en E kunnen de volgende bedrijfsparameters worden uitgelezen:	
Qt= X.XX [m ³ /h]	actuele doorstroming
ΣQ= X.XX [m ³]	actuele doorstroomde volume
T= X.X [h]	actuele standtijd
Δp= X.XX [mbar]	actuele drukval over het filter
Max 200,0 [mbar]	drukval over filter waarboven alarm wordt gegenereerd
Min 40,0 [mbar]	drukval over filter waaronder alarm wordt gegenereerd
Q0= X.XX [m ³ /h]	totale doorstroming tijdens vorige cyclus; de eenheid staat niet correct in het display, moet zijn [m ³].
T0= X.X [h]	totale standtijd van vorige cyclus

Als het apparaat na filterwissel wordt herstart worden SQ en ST opgeslagen. Deze gegevens zijn van de laatste tien periodes terug te halen. Daartoe moet vanuit de bedrijfstoestand op toets F worden gedrukt. In het display verschijnt dan <1> Betrieb. Door een druk op toets D verschijnt in het display <2> Speicher. Druk nu op toets C (Enter). In het display verschijnt dan Q0= X.XX [m³]. Met behulp van toetsen D en E kunnen de laatste 10 doorgestroomde volumina en standtijden worden teruggelezen, Q0 heeft betrekking op de meest recente, Q9 op de oudste.

- Verwissel het filter.
- Plaats het nieuwe filter recht in het apparaat en vergrendel het filter met behulp van de hefboom Vergrendel ook de hefboom. Zorg ervoor dat het filter recht zit: na vergrendeling moet de teflon huls rond kunnen draaien.
- Druk op de knop Neustart nach Filterwechsel, op het bovenste paneel naast het Microquant paneel.

blad 3 van 5

- Druk daarna op de witte vierkante knop (Ein/on) midden op het apparaat.
- De temperatuur aflezing dient ongeveer 13 K aan te geven, het duurt echter ongeveer een half uur voordat de juiste waarde wordt bereikt.
- Zolang TL080R015 of TL080R018 uit bedrijf is ook de edelgasmeting TL080R011 danwel TL080R012 uit bedrijf!
- De instellingen dienen als volgt te zijn:
 - * TL080R015Qt ongeveer 4,2 [m³/h].
 - * TL080R018Qt ongeveer 4,2 [m³/h].
- De sleutelschakelaar: intern/internal.
- Blauwe keuzeschakelaar: temperatuurgradiënt, K/temperatuurgradiënt.
- Zwarte hoofdschakelaar ingedrukt.
- Op paneel microquant dienen links 2 groene lampjes te branden.
- In display microquant brandt groene lampje OK en Qt= ...[m³/h].
- Naast witte Ein/on knop brandt groen lampje: continuous light power on.

3.2 AËROSOLLOZING

De aërosollozing wordt bepaald op basis van het glasfaserfilter in de TL080R018. In de opstelling zit een glasvezel filter op het jodiumpatroon. Voor de bepaling dient als volgt te worden gehandeld:

- Bepaal met behulp van de HpGe (instructie N17-26-042) de activiteit op het filter door dit filter als geheel plat op de HpGe te leggen. Gebruik daarvoor geometrie 15, filter 90 mm. Noteer het resultaat van de meting.
- De uiteindelijk te rapporteren hoeveelheid aërosolen is 2x de gevonden hoeveelheid als bepaald met behulp van de HpGe en de monitorgegevens. Dit geldt ook voor de MCA waarde. Dit i.v.m. de buisfactor van het monsternamesysteem, die bepaald is op 2.

3.3 α EN ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr LOZING

Na de meting dient het bovengenoemde filter te worden bewaard. Eens per kwartaal dient de bepaling van de α en ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr activiteit op de filters plaats te vinden.

Deze bepaling wordt uitgevoerd door de KEMA en de resultaten worden verwerkt in de rapportage aan de overheid. Indien de α activiteit > 5E-3 Bq/m³, dan moet ook een α nucliden specifieke bepaling worden uitgevoerd.

3.4 JODIUMLOZING

De jodiumlozing wordt wekelijks bepaald met behulp van het filterpatroon uit de TL080R018 en wordt opgesplitst in de lozing van organisch gebonden jodium (CH₃I) en anorganisch gebonden jodium (I₂). Het filterpatroon is daarom gevuld met twee materialen. Eerst het zeoliet 'A41 absorbermateriaal DSM11' voor het absorberen van I₂, en vervolgens de met TEDA geïmpregneerde actieve kool voor het absorberen van CH₃I. Beide absorberbedden zijn dubbel uitgevoerd.

- In eerste instantie dient slechts het eerste bed te worden gemeten (op de HpGe volgens instructie N17-26-042). Het volume van de DSM11 is 100 ml, geometrie 3, 100 ml op 0 cm.

blad 4 van 5

Figuur 10 Monsternamen en analyse van jodiumisotopen door KCB, pag 2 van 3

- De actieve kool heeft een volume van 200 ml per bed, hiervoor gebruikt men geometrie 8, 200 ml op 0 cm.
 - ALS in het eerste DSM11 bed jodium wordt gemeten dan dient ook het tweede DSM11 bed te worden gemeten.
 - De totale halogenen lozing wordt bepaald aan de hand van de bijelkaar opgetelde activiteiten van zowel de zeoliet als de actieve koolbedden.
 - ALS in het eerste met TEDA geïmpregneerde actieve kool bed jodium wordt gemeten dan dient ook het tweede bed te worden gemeten.
 - Wanneer jodium gevonden wordt in het tweede bed, dan dient bij de berekening van de lozing rekening gehouden te worden met het vangst percentage van de bedden.
- De I_2 en CH_3I lozingen dienen afzonderlijk te worden genoteerd en gerapporteerd.

Van de TWEEDE opstelling, TL080R015, dienen het filter en de inhoud van de filterelementen te worden bewaard. Deze filters dienen t.z.t naar het RIVM te worden gestuurd om daar te worden onderzocht.

3.5 DETECTIEGRENZEN

In de rapportage naar de overheid moeten de minimale en maximale detectiegrenzen, die in de 13 weken van het betreffende kwartaal zijn voorgekomen, worden vermeld. Hiertoe moeten de detectiegrenzen van aerosol en jodium bepaling van het betreffende kwartaal worden verzameld. Deze detectiegrenzen worden door het meetprogramma gegenereerd.

Figuur 11 Monsternamen en analyse van jodiumisotopen door KCB, pag 3 van 3



Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu**

Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven
www.rivm.nl