



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

**Contra-expertise op bepalingen van
radioactiviteit in afvalwater en
ventilatielucht van COVRA NV**

Periode 2018

RIVM-briefrapport 2019-0160
P.J.M. Kwakman



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

**Contra-expertise op bepalingen van
radioactiviteit in afvalwater en
ventilatielucht van COVRA NV**

Periode 2018

RIVM-briefrapport 2019-0160
P.J.M. Kwakman

Colofon

© RIVM 2020

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.

DOI 10.21945/RIVM-2019-0160

P.J.M. Kwakman (auteur), RIVM

Contact:

P.J.M. Kwakman
Centrum Veiligheid
Pieter.kwakman@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS), in het kader van project 390020/18/SM, Site Monitoring Straling

Dit is een uitgave van:

**Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu**

Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven

Nederland

www.rivm.nl

Publiekssamenvatting

Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit in afvalwater en ventilatielucht van COVRA N.V.

Periode 2018.

De Centrale Organisatie voor Radioactief Afval (COVRA) meet hoeveel radioactiviteit in afvalwater en ventilatielucht wordt geloosd. Het RIVM controleert deze metingen acht keer per jaar. Met deze 'contra-expertise' controleert het RIVM of de analyses die COVRA zelf uitvoert, betrouwbaar zijn. De te analyseren monsters worden verspreid over het jaar door COVRA genomen.

Net als in voorgaande jaren komen de gamma-analyses van afvalwater uit de contra-expertise in 2018 op hoofdlijnen overeen met de resultaten van de COVRA. De analyses van het RIVM en COVRA in de gamma-spectrometrische resultaten, de resultaten van de totaal-alfa bepaling, tritiumbepaling en de ¹⁴C-bepaling in afvalwater kwamen goed overeen. Hoewel het RIVM en COVRA verschillende meetprincipes gebruiken, komen de totaal bèta-metwaarden van het RIVM en de rest bèta-metwaarden van COVRA in 2018 redelijk tot goed overeen.

Ook kwamen de resultaten van het RIVM en COVRA van de ventilatieluchtmonsters van het Afvalverwerkingsgebouw (AVG) en het Hoogradioactief Afval Behandelings- en Opslag Gebouw (HABOG) goed overeen.

Het RIVM voert de contra-expertises jaarlijks uit in opdracht van de Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS).

Kernwoorden: COVRA, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

Synopsis

Counterchecks on determinations of radioactivity in COVRA N.V.'s waste water and ventilation air

Period 2018.

The Central Organisation for Radioactive Waste (COVRA) measures how much radioactivity is discharged into waste water and ventilation air. RIVM checks these measurements eight times a year. These 'counterchecks' are carried out to ensure that the analyses carried out by COVRA itself are reliable. COVRA takes the samples to be analysed at intervals throughout the year.

Just as in previous years, generally speaking, the gamma analyses carried out on the waste water in the counterchecks in 2018 agreed with COVRA's results. The gamma spectrometry results and the results of the total alpha determination, tritium determination and the ^{14}C determination in waste water in the analyses carried out by RIVM and COVRA corresponded well. Although RIVM and COVRA use different measuring principles, RIVM's total beta measurements for 2018 agreed fairly well with COVRA's residual beta measurements.

RIVM and COVRA's results for the ventilation air samples from the Waste Treatment Building (AVG) and the High-Level Radioactive Waste Treatment and Storage Building (HABOG) also corresponded well.

The Authority for Nuclear Safety and Radiation Protection (ANVS) commissions RIVM to carry out these counterchecks every year.

Keywords: COVRA, radioactivity, discharges, waste water, ventilation air

Inhoudsopgave

Samenvatting — 9

1 Inleiding — 11

2 Monsters en analyse — 13

3 Analysemethoden — 15

- 3.1 Tweevoudbepaling — 15
- 3.2 Bepaling van de totaal alfa-activiteitsconcentratie in afvalwater — 15
- 3.3 Bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater — 16
- 3.4 Bepaling van de activiteitsconcentratie aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater — 16
- 3.5 Bepaling van de ³H-activiteitsconcentratie in afvalwater — 17
- 3.6 Bepaling van de ¹⁴C-activiteitsconcentratie in afvalwater — 17
- 3.7 Bepaling van de totaal alfa- en totaal bèta-activiteitsconcentratie in ventilatielucht — 17
- 3.8 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht — 17
- 3.9 Bepaling van de ³H-activiteitsconcentratie in ventilatielucht — 18
- 3.10 Bepaling van de ¹⁴C-activiteitsconcentratie in ventilatielucht — 18
- 3.11 Foutberekeningen — 18
- 3.12 Kwaliteitswaarborging — 19
- 3.13 Presentatie van resultaten en vergelijking — 20

4 Resultaten en discussie — 21

- 4.1 Meetresultaten — 21
- 4.2 Vergelijking van de resultaten en discussie — 21
- 4.3 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten — 24

5 Bijlage A Vergelijking meetresultaten RIVM en COVRA — 25

6 Bijlage B Monsternamen en analyse van afvalwater en ventilatielucht door COVRA — 29

7 Referenties — 35

Samenvatting

Het Centrum Veiligheid van het RIVM heeft in 2018 in opdracht van de Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS) radioactiviteitsmetingen uitgevoerd 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 2018.

De contra-expertisemonsters waar het voorliggende rapport over gaat, zijn afkomstig van de Centrale Organisatie Voor Radioactief Afval N.V. (COVRA) te Nieuwdorp. Het betreft zowel afvalwatermonsters van het afvalverwerkingsgebouw (AVG), als filters waarmee de uitgaande ventilatielucht van AVG en het Hoogradioactief Afval Behandeling en Opslag Gebouw (HABOG) is bemonsterd.

De overeenstemming van de resultaten van RIVM met die van de nucleaire installaties wordt ingedeeld in vier categorieën, in afnemende volgorde A1, A2, B en C. RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, totaal-beta, tritium en koolstof-14 in afvalwater en tevens in ventilatielucht.

De analyses van het RIVM en COVRA in de gamma-spectrometrische resultaten, de resultaten van de totaal-alfa bepaling, tritiumbepaling en de ^{14}C -bepaling in afvalwater kwamen goed overeen. Hoewel het RIVM en COVRA verschillende meetprincipes gebruiken, komen de totaal bèta-meetwaarden van het RIVM en de rest bèta-meetwaarden van COVRA in 2018 goed overeen.

Ook kwamen de analyses van het RIVM en COVRA betreffende de ventilatieluchresultaten van het AVG en het HABOG goed overeen.

1 Inleiding

Het Centrum Veiligheid (VLH) van RIVM voert in opdracht van de Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS) 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 2018.

De contra-expertisemonsters waar het voorliggende rapport over gaat, zijn afkomstig van de COVRA te Nieuwdorp. Het betreft zowel afvalwatermonsters van het AVG, als filters waarmee de uitgaande ventilatielucht van het AVG en het HABOG is bemonsterd.

De indeling van dit rapport is als volgt. Na deze inleiding volgt hoofdstuk 2 met een beschrijving van de voor de contra-expertise gebruikte monsters en de hiervan bepaalde radioactieve eigenschappen. In hoofdstuk 3 staat een beschrijving van de door RIVM toegepaste analysemethoden en de wijze waarop de resultaten van RIVM met die van het onderzochte bedrijf zijn vergeleken. Hoofdstuk 4 bevat een korte bespreking van de resultaten van het contra-expertiseonderzoek. De meetresultaten zelf zijn – naast de resultaten van het onderzochte bedrijf – opgenomen in Bijlage A. De bemonstering wordt door de onderzochte bedrijven uitgevoerd. Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast door het onderzochte bedrijf, zijn gereproduceerd in Bijlage B.

2 Monsters en analyse

RIVM haalt periodiek afvalwater- en ventilatieluchtmonsters op bij COVRA. Van elk batchmonster afvalwater bewaart COVRA een fles met circa 500 ml basisch ongegeleerd water voor de ^{14}C -bepaling en een fles met circa 2 l aangezuurd ongegeleerd water voor de overige bepalingen ten behoeve van contra-expertise door RIVM. Voor het bepalen van de radioactiviteit in uitgaande ventilatielucht krijgt RIVM een filterpakket afkomstig uit een apart, 'redundant' bemonsteringssysteem, identiek aan het systeem dat COVRA gebruikt voor haar eigen analyses. Daarnaast krijgt RIVM een condensaat voor de bepaling van ^3H en een BaCO_3 -neerslag voor de bepaling van ^{14}C in ventilatielucht (Zie Bijlage B, laatste pagina). Tabel 1 bevat een overzicht van het, vooraf met de ANVS afgesproken, aantal monsters en de te verrichten analyses [1]. In Tabel 2 staan gegevens van de opgehaalde afvalwatermonsters en in Tabel 3 van de monsters ventilatielucht van AVG. In 2018 zijn er slechts twee afvalwaterbatches geloosd. RIVM heeft monsters van alle batches opgehaald en geanalyseerd.

Tabel 1 : Overzicht van vooraf afgesproken aantal monsters en analyses

Monsters	Aantal	Soort monster	Analyses (Q*)
Afvalwater	4	Batchmonster zuur, en basisch (voor ^{14}C)	Q: Totaal alfa**, totaal- β **, gammastralers**, $^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^{**}$
Ventilatie-lucht	4	Weekmonsters AVG (filterpakket: aërosol 2 x zeoliet 2 x kool)	Q: Totaal alfa*, totaal- β * in aërosolfilter; gamma-emitters pakket*; bij aantonen van mogelijk vluchtige gamma-emitters, tevens meting van de zeoliet- en kool-absorbers apart*
	4	14-daagse monsters HABOG (filterpakket: aërosol 2 x kool)	Q: Totaal alfa*, totaal- β * in aërosolfilter; gamma-emitters pakket* ; bij aantonen van mogelijk vluchtige gamma-emitters, tevens meting van de filters waaruit het pakket is samengesteld apart*
	4	Maandmonster AVG (H_2O , BaCO_3)	Q: $^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^*$ (m.b.v. LSC)
	4	Maandmonster HABOG (H_2O , BaCO_3)	Q: $^3\text{H}^*$ en $^{14}\text{C}^*$ (m.b.v. LSC)

Q De aanduiding Q betekent dat de betreffende verrichting valt onder de lijst van geaccrediteerde verrichtingen volgens NEN-EN-ISO-17025 (registratienummer L153).

* Analyse in enkelvoud

** Analyse in tweevoud

Tabel 2 : Monstergegevens afvalwater in 2018

Nr.	Lozingsdatum	Ophaaldatum	Datum gammaspectrometrie
1	4 januari	14 februari	20 februari
2	14 september	19 september	24 september

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

Tabel 3 : Monstergegevens ventilatielucht AVG in 2018

Nr.	Monsterperiode	Ophaaldatum	datum gammaspectrometrie
1	30 jan - 6 feb	14 februari	14 februari
2	28 aug - 4 sep	19 september	19 september
3	4 sep - 11 sep	19 september	19 september
4	2 okt - 9 okt	18 oktober	30 oktober

De ophaaldata voor HABOG luchtmonsters komen overeen met de ophaaldata voor AVG monsters (zie Bijlage A, tabel A8). Daar in het HABOG niet tot nauwelijks kortlevende nucliden worden opgeslagen heeft de tabel met ophaaldata en data van analyse geen toegevoegde waarde en wordt hier niet opgenomen. In praktijk is het afval al enige tijd bij de betreffende bedrijven in opslag geweest en hebben er enkele bewerkingen plaatsgevonden. De monsterperiode voor HABOG ventilatielucht beslaat 2 weken. Doorgaans valt de laatste week van deze 2-wekelijkse periode samen met de monsterperiode van de AVG ventilatieluchtmonsters.

Lozingsgegevens

De herkomst van de lozingsgegevens is voor alle data in afvalwater het kwartaalrapport van COVRA [2]. De ventilatieluchtdata vanuit AVG en HABOG komen voor totaal alfa, totaal bèta en gamma eveneens uit dit kwartaalrapport. De bemonstering van deze parameters gebeurt met twee parallelle luchtstof-bemonsteringsystemen: één voor COVRA en één voor RIVM; zie Tabel 1 en bijlage B, par. 4.

Voor de bepaling van de ^3H en ^{14}C -activiteitsconcentratie in ventilatielucht gebruikt RIVM het deelvolumen dat per maand door de absorbers is gegaan. Dit gegeven staat niet in de kwartaalrapportages, maar wordt door COVRA apart bijgeleverd op Formulier FC109 (rev 0; d.d. 7-11-2001). Voor de ^{14}C bepaling wordt het totaalgewicht aan BaCO_3 gegeven, en het deel dat RIVM ter beschikking heeft gekregen; dit ten behoeve van de precipitatie van het uitgestookte CO_2 als carbonaat. Voor de ^3H bepaling in ventilatielucht wordt het deelvolumen (in ml) van de totale hoeveelheid uitgestookt H_2O eveneens apart bijgeleverd.

3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast door COVRA in 2018, zijn gereproduceerd in Bijlage B. De beschrijving van deze methoden is gelijk aan de methoden toegepast in voorgaande jaren [3], zie Bijlage B. De RIVM bepalingen aan het maandmonster ventilatielucht van HABOG zijn gelijk aan de bepalingen aan het AVG ventilatieluchtmonster.

In opdracht van ANVS worden de randvoorwaarden uit de Kerntechnische Ausschuss (KTA-1503 [4] en KTA-1504 [5]) voor de uitvoering van de analyses aangehouden. Dit betreft bijvoorbeeld de samenstelling van de nuclidenbibliotheek en de detectiegrenzen die behaald moeten kunnen worden.

Indien mogelijk hanteert RIVM/VLH de Nederlandse NEN-normen. Voor gamma-spectrometrie wordt gewerkt conform NEN 5623 [6]; voor gasdoorstroomtelling van filters wordt gewerkt conform NEN 5636 [7]. Waar er geen Nederlandse norm voorhanden is, wordt gewerkt volgens eigen methoden met een onderliggend validatierapport. Dit geldt voor totaal alfa en totaal bèta in afvalwater en voor de bepaling van ^3H in afvalwater.

3.1 Tweevoudbepaling

VLH 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}Co of ^{137}Cs . Bij andere gammastralers 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.

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 . Deze methode is vastgelegd in procedure VLH-H-005: 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}Sr is ingedampt. Door ^{90}Sr als referentienuclide te gebruiken is afgeweken van de Nederlandse Norm die ^{40}K als referentienuclide voorschrijft [8]. De metingen worden uitgevoerd met proportionele gasdoorstroomtellers die zijn voorzien van een dun venster ($< 0,5 \text{ mg. cm}^{-2}$). De tellers hebben een lage achtergrond. Bij het droogdampen verdwijnen vluchtige bèta-stralers zoals ^3H en anorganisch ^{14}C ($^{14}\text{CO}_2$). Minder vluchtige ^{14}C -verbindingen dragen waarschijnlijk wel voor een deel bij aan de telling. Deze methode is vastgelegd in procedure VLH-H-005: Handboek gasdoorstroomtelling.

3.4 Bepaling van de activiteitsconcentratie aan gammastraling uitzendende nucliden in afvalwater

Van het ongegeleerde afvalwatermonster worden twee monsters van 250 ml afgemeten. Elk van deze monsters wordt, ter voorkoming van het uitzakken van de radioactieve componenten bij gammaspectrometrische analyses met lange teltijden [9], in een teldoos gemengd met behangplaksel en geschud tot een homogene stijve massa is verkregen. De monsters worden gemeten op een N-type halfgeleiderdetector gekoppeld aan een pulssorteerder met 8192 kanalen over een energiebereik van 30 keV tot 2 MeV in een meettijd van 1000 minuten. Het spectrum wordt geanalyseerd met behulp van het analyseprogramma Genie2000 aan de hand van een nuclidenbibliotheek. Tabel A2 in Bijlage A toont de nucliden die hier in zitten.

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

Indien door RIVM geen enkele gammastraler wordt aangetoond, wordt tenminste de detectielimiet voor ^{60}Co gegeven. De detectielimiet voor ^{60}Co geeft een indicatie van de bereikte meetgevoeligheid volgens KTA 1504 [5]. 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} .

Deze methode is vastgelegd in VLH-H-004 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gammaspectrometrie.

3.5 **Bepaling van de ³H-activiteitsconcentratie in afvalwater**

Aan 25 ml van het monster wordt 0,2 g Na₂CO₃ toegevoegd om het alkalisch te maken. Nadat een deel van dit monster is gedestilleerd, wordt door middel van LSC de activiteitsconcentratie van ³H bepaald. Per monsterflesje wordt één telling van maximaal 200 min uitgevoerd. Het telpreparaat bestaat uit 10,0 ml destillaat en 10,0 ml scintillatievloeistof (Ultima Gold LLT).

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

3.6 **Bepaling van de ¹⁴C-activiteitsconcentratie in afvalwater**

De toegepaste ¹⁴C-borrelmethode is geschikt voor het bepalen van het anorganisch en organisch ¹⁴C in afvalwater [10]. Met ingang van januari 2012 wordt niet meer separaat anorganisch ¹⁴CO₂ uitgedreven door toevoegen van zuur. Het totaal aan anorganisch en organisch ¹⁴C wordt onder zure omstandigheden geoxideerd met kaliumpermanganaat tot CO₂ en gedurende 5 uur uitgedreven. Het uitgedreven ¹⁴CO₂ wordt vervolgens geabsorbeerd door Carbo-Sorb E. Dit organische amine (3-methoxy-1-aminopropaan) is in staat om per ml Carbo-Sorb E circa 4 mmol CO₂ te absorberen door vorming van een niet vluchtig carbamaat. Door het ¹⁴C, dat in het laatste uur geoxideerd en uitgeborreld wordt, in een apart telflesje op te vangen, kan vastgesteld worden of de oxidatie beëindigd is. Indien dit niet het geval is wordt de oxidatie de volgende dag voortgezet.

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

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

Uit het aërosolfilter wordt een schijf met een diameter van 46 mm geponst. Met behulp van een proportionele gasdoorstroomteller met een lage achtergrond, die van een dun venster (< 0,5 mg·cm⁻²) is voorzien, wordt hiervan de alfa- en bèta-telsnelheid gemeten. In overeenstemming met NEN 5636 inzake de analyse van luchtstoffilters wordt voor de bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie ⁹⁰Sr en voor de bepaling van de totaal alfa-activiteitsconcentratie ²⁴¹Am als referentienuclide toegepast [7]. 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 VLH-H-005: Handboek gasdoorstroomtelling.

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

Per analyse wordt van het filterpakket een te analyseren preparaat samengesteld bestaande uit het geponste (46 mm) aërosolfilter, de eerste laag DSM11-absorber en de eerste laag actieve kool. Van dit preparaat wordt een gamma-spectrum opgenomen en geanalyseerd op

dezelfde wijze als dit bij afvalwater gebeurt. Indien blijkt dat zich vluchtige nucliden in het preparaat bevinden dan worden alle vijf delen van het filterpakket afzonderlijk gemeten en geanalyseerd, dus ook de tweede laag DSM11-absorber en de tweede laag actieve kool. Er wordt gecorrigeerd voor radioactief verval door de activiteit van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar het midden van de monsterperiode ¹.

Voor de meetnauwkeurigheid wordt gerefereerd aan KTA 1503.1[4] . Deze eist dat bij het meten van gammastralers in ventilatielucht de detectielimiet voor ⁶⁰Co en ¹³¹I minder dan 20 mBq·m⁻³ bedraagt.

Deze methode is vastgelegd in procedure VLH-H-004 (Genie2000 onder APEX); Handboek Gammaspectrometrie.

3.9 Bepaling van de ³H-activiteitsconcentratie in ventilatielucht

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

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

3.10 Bepaling van de ¹⁴C-activiteitsconcentratie in ventilatielucht

COVRA vermeldt bij levering van de Ba¹⁴CO₃-neerslag het volume van de hiermee geassocieerde hoeveelheid ventilatielucht, zodat RIVM de volumieke activiteit kan berekenen. De BaCO₃-monsters worden ingewogen in een scintillatieflesje (maximaal 1,0 g monster); eventueel aangevuld met blanco BaCO₃-poeder tot een eindmassa van 1,0 g. Hieraan wordt 7 ml H₂O toegevoegd en, na goed mengen van het onoplosbare BaCO₃ met water, 13 ml Instagel Plus scintillatiecocktail. Na een uur wordt een LSC-telling uitgevoerd.

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

De bepaling van ³⁵S wordt, mede in verband met de zeer grote onzekerheden, met ingang van 2010 niet meer uitgevoerd [11].

3.11 Foutberekeningen

De door RIVM opgegeven fout is het 1 σ -schattingsinterval. Voor het bepalen hiervan is gebruik gemaakt van NEN 1047 [12] (Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen) en NEN 3114 [13] (Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities). 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 wegenen en volumebepalingen.

Waar van toepassing, is voor de volumebepaling in de hoeveelheid bemonsterde lucht een fout van 1% opgenomen in de experimentele

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

fout. Een correctie voor de achtergrond is in alle gevallen meegenomen in de activiteitsberekening en in de foutenberekening.

Bepaling van de totaal- α - en totaal- β -activiteitsconcentratie in afvalwater

Voor de totaal α -bepaling wordt per analyse gebruik gemaakt van een preparaat zonder en een preparaat met een ^{241}Am -standaard. De totale fout in de totaal α -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 β -activiteitsconcentratie is samengesteld uit een telfout van het preparaat, een kalibratiefout en een experimentele fout.

Gammaspectrometrie

Voor de γ -stralers vindt rapportage plaats met een fout voortkomend uit telstatistiek, kalibratie, achtergrond, onzekerheid in de yield en monster-voorbehandeling. Indien cascadeverval optreedt, leidt dit tot een extra bijdrage aan de fout.

Bepaling van de ^{14}C -activiteitsconcentratie in afvalwater

De totale fout is samengesteld uit de telfout, de fout in de opbrengst, een experimentele fout en de kalibratiefout

Bepaling van de totaal α - en totaal- β -activiteitsconcentratie in ventilatielucht

Omdat bij de totaal α -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 α en totaal- β -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 α de stoflaagonzekerheid van 30 %.

Bepaling van de ^3H -activiteitsconcentratie in afvalwater en ventilatielucht

De totale fout is samengesteld uit de telfout, een kalibratiefout en een experimentele fout.

Bepaling van de ^{14}C -activiteitsconcentratie in ventilatielucht

De totale fout is samengesteld uit de telfout, een experimentele fout en een kalibratiefout.

3.12 Kwaliteitswaarborging

Het Centrum Veiligheid van het Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM/VLH) is voor een aantal verrichtingen geaccrediteerd door de Raad voor Accreditatie volgens NEN-EN-ISO-17025 (registratienummer L153). Deze verrichtingen hebben betrekking op metingen die worden uitgevoerd in het kader van het toezicht op nucleaire installaties (ANVS) en zijn gemarkeerd met een 'Q'. Zie tabel 1 in Hoofdstuk 2.

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

3.13 Presentatie van resultaten en vergelijking

De door COVRA bepaalde activiteitsconcentraties worden overgenomen uit de kwartaalrapportages van COVRA [2] en zijn in deze rapportageperiode afgerond met de afrondingsregels zoals die door RIVM wordt gehanteerd (volgens NEN 1047 [12]).

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

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

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

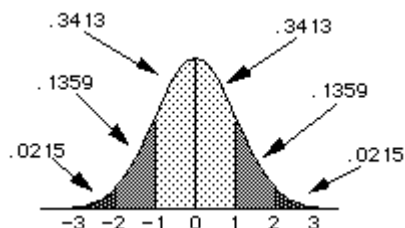


Fig 1 Schematische weergave van een Gausse verdeling

In de praktijk wijkt de verdeling vaak af van de normale verdeling waardoor rekening gehouden moet worden met 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.

4 Resultaten en discussie

4.1 Meetresultaten

De resultaten van de metingen door RIVM en COVRA zijn te vinden in Bijlage A. De data van Covra zijn overgenomen uit de kwartaalrapportages die Covra elk kwartaal opstuurt naar RIVM [2]. In tabel A1 van deze bijlage zijn alleen die gammastralers opgenomen die zijn aangetoond. Als een gammastraler wel door COVRA maar niet door RIVM wordt aangetoond dan wordt de detectielimiet van RIVM voor het betreffende nuclide in deze tabel opgenomen. In de tabellen staan tevens de onzekerheden (fouten) in de meetwaarden (zie paragraaf 3.11).

4.2 Vergelijking van de resultaten en discussie

Het resultaat van de vergelijking zoals beschreven in paragraaf 3.13 is in de tabellen van Bijlage A vermeld onder de kop 'V'. De vergelijking van de resultaten van COVRA met die van het RIVM is samengevat in Tabel 4 en Tabel 5. In deze tabellen is tevens tussen haakjes het volgens een normale verdeling verwachte voorkomen aan categorieën A1-A2-B-C te zien. Zo is af te lezen of er significant meer of minder resultaten in een categorie vallen dan verwacht.

4.2.1 Afvalwater

In 2018 zijn er door COVRA twee afvalwaterbatches geloosd. Van beide lozingen zijn door RIVM deelmonsters opgehaald en geanalyseerd. De vergelijking van alle resultaten is hieronder gegeven in tabel 4.

Tabel 4 : Vergelijkingsresultaten voor twee COVRA afvalwatermonsters in 2018

Nuclide	1	2	ΣA1	ΣA2	ΣB	ΣC
I-129	A1		1 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)	0 (0-0)
Cs-137	A2	A1	1 (1-3)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal			2 (1-3)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal-alfa	C		0 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	1 (0-0)
Tot./rest-b	B	A2	0 (0-2)	1 (0-2)	1 (0-1)	0 (0-0)
³ H	A1	A2	1 (0-2)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
¹⁴ C	A1	A1	2 (0-2)	0 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)

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

gammaspectrometrie

Uit Tabel 4 blijkt dat de vergelijkingsresultaten van de gammametingen door RIVM en COVRA goed is. De A1 en A2 meetresultaten voldoen aan de statistische verwachting.

Opvallend is het een zeer beperkt aantal nucliden in de afvalwatermonsters met lage activiteitsconcentraties.

totaal alfa

De vergelijkingsresultaten voor totaal alfa in afvalwater geven met een A1 en een B een normaal beeld bij lage activiteitsconcentraties. De data

van RIVM zijn allen lager dan $0,8 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ en de data van COVRA in alle gevallen lager dan $0,2 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$. Dit is op of dichtbij de detectiegrens.

Totaal-bèta (RIVM) en rest-bèta (COVRA)

De overeenstemming in de rest-bèta metingen van COVRA en de totaal bèta metingen van RIVM is met een A2 en een B goed. Zeker gezien de fundamenteel verschillende meetprincipes: RIVM past gasdoorstroomtelling toe op een drooggedampt residu en COVRA past vloeistofscintillatietelling toe. Een perfecte overeenstemming is daarom niet te verwachten. De meetresultaten voor totaal-bèta en rest-bèta zitten er echter dichtbij.

tritium

De tritium resultaten van COVRA en RIVM geven dit jaar met een A1 en een A2 een goede overeenkomst te zien.

^{14}C

RIVM bepaalt net als COVRA het *totaal* aan ^{14}C in het afvalwatermonster. Er wordt geen verschil gemaakt tussen anorganisch ^{14}C , dat als ^{14}C -carbonaat in het monster aanwezig is, en organisch- ^{14}C dat pas na een oxidatiereactie omgezet wordt in $^{14}\text{CO}_2$.

De vergelijkingsresultaten, tweemaal A1, geven een (zeer) goede overeenstemming.

4.2.2

Ventilatielucht AVG

In dit rapportagejaar zijn door RIVM en COVRA vier ventilatieluchtmonsters geanalyseerd van AVG (zie tabellen A3 – A6). Tabel 5 geeft een samenvatting van de vergelijkingsresultaten van de bepaalde grootheden. Uit deze tabel is tevens af te lezen of er meer of minder resultaten in een categorie vallen dan verwacht. In Tabel A7 zijn als indicatie van de bereikte meetnauwkeurigheid, gelet op de eisen die daaraan gesteld worden in KTA 1503.1 [4], de gerealiseerde detectielimieten voor ^{125}I , ^{60}Co , ^{131}I en voor de totaal alfa- en totaal bèta activiteitsconcentratie weergegeven.

Tabel 5 : Samenvatting van de vergelijkingsresultaten voor ^{125}I , totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht AVG

Filternr.	1	2	3	4
Aerosolfilter	< MDA	<	<	<
DSM11-1	< MDA	<	<	<
Kool-1	< MDA	<	<	<
Totaal- α	< MDA	<	<	<
Totaal- β	< MDA	<	<	<
Totaal				

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

gammaspectrometrie

RIVM en COVRA troffen in de ventilatieluchtpakketten beide geen gamma-activiteit aan.

totaal alfa en totaal-bèta

Er is zowel door COVRA als door RIVM geen totaal-alfa activiteit en geen totaal-beta activiteit aangetroffen.

De detectiegrens is erg laag en ligt zelfs onder wat er van nature aan totaal-beta activiteit in buitenlucht aangetroffen wordt ($0,36 \pm 0,19$ mBq.m⁻³) [15].

Tritium en ¹⁴C

In de vier AVG-maandmonsters toonden zowel RIVM als COVRA ³H aan; de vergelijking was goed met driemaal een A1 en een B in het maart monster (zie tabel 6).

RIVM en COVRA vonden beide ¹⁴C in AVG ventilatielucht bij activiteitsconcentraties van 0,13 – 0,17 Bq.m⁻³. De vergelijking met COVRA was goed met tweemaal A1, en tweemaal A2.

Tabel 6 vergelijking van RIVM- en COVRA-meetresultaten voor ³H en ¹⁴C in maandmonsters van ventilatielucht van AVG in 2018 (Bq.m⁻³)

Maand	³H	¹⁴C
maart	B	A2
mei	A1	A2
juli	A1	A1
oktober	A1	A1

* Vanwege matige vergelijking is ³H-monster van april overgedaan door de ³H-bepaling in monster van mei -2018 te herhalen.

4.2.3

Ventilatielucht HABOG

In dit rapportagejaar zijn door RIVM en COVRA vier ventilatieluchtmonsters geanalyseerd van HABOG (zie tabellen A8 – A11). Omdat in het HABOG alleen kunstmatige (en lang levende) nucliden zijn opgeslagen, worden de gemeten waarden door COVRA gecorrigeerd voor natuurlijke nucliden afkomstig uit de buitenlucht. De alfa- en bèta emissie is gecorrigeerd door de waarde te verminderen met de waarde gemeten in de luchtinlaat van het AVG. De gammameting is nuclidespecifiek, de natuurlijke nucliden zijn niet in de emissieberekening meegenomen.

COVRA en RIVM vonden beide geen ¹²⁵I of andere kunstmatige gammastralers in HABOG ventilatielucht.

RIVM en COVRA hebben beide in geen van de vier monsters een totaal alfa of totaal bèta activiteit in de HABOG ventilatieluchtmonsters aangetroffen.

RIVM en COVRA vonden beide een geringe ^3H activiteit (in de range van $2,1-18,4 \text{ Bq.m}^{-3}$) in de vier HABOG ventilatieluchtmonsters. Met tweemaal A1, en tweemaal A2 is de overeenstemming goed.

De activiteitsconcentratie van ^{14}C in de HABOG ventilatieluchtmonsters is erg laag ($0,2 - 0,6 \text{ Bq.m}^{-3}$) met driemaal A1, en een A2 vergelijking. Dit is gezien de activiteitsconcentratie goed.

4.3 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten

Het totaal van alle vergelijkingsresultaten heeft zich vergelijkbaar met voorgaande jaren min of meer volgens de statistische verwachting verdeeld over de vergelijkingscriteria A1-A2-B-C. Dit geeft aan dat de onderzoeksresultaten in 2018 zich goed laten vergelijken.

Ter wille van de overzichtelijkheid is in Tabel 7 een overzicht gegeven van de uitgevoerde contra-expertise in 2018.

Tabel 7 Overzicht van overeenstemming tussen de COVRA en RIVM resultaten

Parameter	Afvalwater	Ventilatielucht AVG	Ventilatielucht HABOG
Totaal-alfa	Redelijk (1C)	n.a.	n.a.
Totaal-beta / rest -beta	Goed	Goed	n.a.
Gammaspectrometrie	Goed	Goed	n.a.
Tritium	Goed	Goed	Goed
Koolstof-14	Goed	Goed	Goed

n.a. = niet aangetoond

5 Bijlage A Vergelijking meetresultaten RIVM en COVRA

COVRA afvalwater 2018

Tabel A1 : Vergelijking activiteitsconcentraties gammastralers, totaal alfa, totaal-bèta, 'rest-bèta' en ^{14}C (kBq.m^{-3}), en ^3H (MBq.m^{-3}) in afvalwater in 2018. RIVM en COVRA bepalen beide totaal C-14.

Periode	monster 1			monster 2		
	RIVM	V	COVRA	RIVM	V	COVRA
I-129	1,3 ± 0,6	A1	1,2 ± 0,4	9,8 ± 0,4	A1	10,0 ± 0,5
Cs-137	22,0 ± 0,8	A2	22,9 ± 0,3			
Totaal- alfa	0,72 ± 0,10	C	0,20 ± 0,05	< 0,11		0,13 ± 0,03
Tot./rest- b	34,0 ± 1,4	B	29,7 ± 1,2	16,1 ± 0,7	A2	17,6 ± 0,9
H-3	4,90 ± 0,16	A1	4,83 ± 0,14	0,333 ± 0,012	A2	0,349 ± 0,010
C-14	5,3 ± 0,3	A1	5,2 ± 0,3	3,29 ± 0,19	A1	3,2 ± 0,3

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

^7Be	$^{65}\text{Zn}^*$	$^{103}\text{Ru}^*$	^{125}I	^{136}Cs	^{188}W	^{219}Rn
^{22}Na	^{67}Ga	$^{106}\text{Ru}^*$	$^{125}\text{Sb}^\dagger$	$^{137}\text{Cs}^*$	^{191}Os	^{223}Ra
^{24}Na	^{75}Se	^{109}Cd	^{129}I	^{139}Ce	^{202}Tl	^{226}Ra
^{40}K	^{82}Br	$^{110\text{m}}\text{Ag}^*$	^{129}Te	$^{140}\text{Ba}^*$	^{203}Hg	^{227}Th
$^{51}\text{Cr}^*$	^{83}Rb	^{111}In	$^{129\text{m}}\text{Te}$	$^{140}\text{La}^*$	^{203}Pb	^{228}Ac
$^{54}\text{Mn}^*$	^{85}Sr	^{113}Sn	$^{131}\text{I}^*$	$^{141}\text{Ce}^*$	^{208}Tl	^{230}Th
^{56}Co	^{88}Y	^{115}Cd	^{132}I	$^{144}\text{Ce}^*$	^{210}Pb	^{231}Pa
$^{57}\text{Co}^*$	$^{95}\text{Nb}^*$	$^{115\text{m}}\text{Cd}$	^{132}Te	^{152}Eu	^{212}Bi	$^{234\text{m}}\text{Pa}$
$^{58}\text{Co}^*$	$^{95\text{m}}\text{Tc}$	^{121}Te	^{133}I	^{181}W	^{212}Pb	^{234}Th
$^{59}\text{Fe}^\dagger$	$^{95}\text{Zr}^*$	$^{123\text{m}}\text{Te}^\dagger$	^{133}Xe	^{185}W	^{214}Bi	^{235}U
$^{60}\text{Co}^*$	^{99}Mo	$^{124}\text{Sb}^*$	$^{134}\text{Cs}^*$	^{186}Re	^{214}Pb	^{241}Am

* Volgens KTA 1503.1 en KTA 1504 te onderzoeken nucliden^{4,5}

† Volgens KTA 1504 te onderzoeken nucliden⁵

Overige nucliden zijn opgenomen in de generieke gammabibliotheek die ook voor afvalwater van KCB, NRG, Urenco en RID wordt toegepast.

COVRA ventilatielucht AVG 2018Tabel A3 : Meetresultaten gammaspectrometrie in ventilatielucht AVG in 2018 (mBq.m⁻³)

Periode	Pakket	Nuclide	Aerosolfilter		DSM11-1	
			RIVM	COVRA	RIVM	COVRA
30 jan - 6 feb	<	¹²⁵ I	< MDA		< MDA	
28 aug - 4 sep	<	¹²⁵ I	< MDA		< MDA	
4 sep - 11 sep	<	¹²⁵ I	< MDA		< MDA	
2 okt - 9 okt	<	¹²⁵ I	< MDA		< MDA	

Zowel RIVM als COVRA hebben ook in de zeolietabsorbers DSM11-2 en de beide koolpatronen van alle monsters geen gammastralers aangetroffen.

Tabel A4 : Vergelijking van de activiteitsconcentratie meetresultaten totaal alfa en totaal bèta in ventilatielucht AVG in 2018 (mBq.m⁻³)

Nr.	Monsterperiode	Totaal-alfa		Totaal-beta	
		RIVM	COVRA	RIVM	COVRA
1	30 jan - 6 feb	< 0,016	< 0,02	< 0,05	< 0,07
2	28 aug - 4 sep	< 0,014	< 0,02	< 0,05	< 0,07
3	4 sep - 11 sep	< 0,015	< 0,02	< 0,05	< 0,07
4	2 okt - 9 okt	< 0,015	< 0,02	< 0,05	< 0,07

Tabel A5 : Meetresultaten ³H in ventilatielucht AVG in 2018 (Bq.m⁻³)

Periode 2018	³ H		
	RIVM	V	COVRA
maart	0,98 ± 0,13	B	1,6 ± 0,3
mei	263 ± 9	A1	266 ± 8
juli	17,5 ± 0,6	A1	18,2 ± 0,7
oktober	5,2 ± 0,2	A1	5,6 ± 0,5

Tabel A6 : Meetresultaten ¹⁴C in ventilatielucht AVG in 2018 (Bq.m⁻³)

Periode 2018	¹⁴ C		
	RIVM	V	COVRA
maart	0,125 ± 0,014	A2	0,15 ± 0,02
mei	0,160 ± 0,015	A2	0,19 ± 0,02
juli	0,129 ± 0,012	A1	0,15 ± 0,02
oktober	0,169 ± 0,015	A1	0,16 ± 0,02

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

	Detectiegrens RIVM	Detectiegrens COVRA
^{125}I (pakket)	2,0–7,0	
^{60}Co (pakket) ^{a)}	0,4 – 1,0	0,5
^{60}Co (aërosol) ^{a)}	0,3	0,5
^{125}I (DSM-11) ^{b)}	3-12	1,0 ^{c)}
^{125}I (act.kool.) ^{b)}	3-11	1,1 ^{c)}
Totaal alfa	0,013–0,017	0,02
Totaal-bèta	0,05	0,07

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

^{b)} KTA 1503.1 eist dat de detectielimiet voor ^{131}I in ventilatielucht maximaal $20 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ is. Door het tijdsverloop tussen het verzamelen van radioactief afval bij een klant, het transport naar COVRA en het verwerken bij COVRA zit er vrijwel geen I-131 meer in het afval. Vandaar is besloten om de detectiegrens van het langer levende jodium isotoop I-125 als richtinggevend te nemen.

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

COVRA ventilatielucht HABOG 2018

Tabel A8 : Meetresultaten in 2018 voor gammaspectrometrie in ventilatielucht HABOG ($\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$)

Periode in 2018	Nuclide	Aërosolfilter		Kool-1	
		RIVM	V COVRA	RIVM	V COVRA
16 jan - 30 jan	^{125}I	< 0,9		< 0,5	
14 aug - 28 aug	^{125}I	< 0,8		< 1,6	
28 aug - 11 sept	^{125}I	< 0,7		< 1,4	
25 sept -9 okt	^{125}I	< 0,7		< 0,9	

MDA van RIVM voor ^{125}I in aerosolfilter : $0,3 - 1,2 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$

MDA van RIVM voor ^{125}I in kool : $0,4 - 1,9 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$. Door het tijdsverloop tussen het verzamelen van radioactief afval bij een klant, het transport naar COVRA en het verwerken bij COVRA zit er vrijwel geen I-131 meer in het afval. Vandaar is besloten om de detectiegrens van het langer levende jodium isotoop I-125 als richtinggevend te nemen.

Tabel A9 : Meetresultaten in 2018 voor totaal alfa en totaal bèta in ventilatielucht HABOG ($\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$)

Nr.	2018 Monsterperiode	Totaal-alfa		Totaal-beta	
		RIVM	V COVRA	RIVM	V COVRA
1	16 jan - 30 jan	< 0,006	< 0,007	< 0,02	< 0,02
2	14 aug - 28 aug	< 0,006	< 0,007	< 0,02	< 0,02
3	28 aug - 11 sept	< 0,007	< 0,007	< 0,02	< 0,02
4	25 sept -9 okt	< 0,006	< 0,007	< 0,02	< 0,02

Tabel A10 : Meetresultaten in 2018 voor ^3H
in ventilatielucht HABOG (Bq.m^{-3})

Periode 2018	RIVM	^3H	
		V	COVRA
maart	$2,12 \pm 0,17$	A2	$2,6 \pm 0,3$
mei	$10,2 \pm 0,4$	A2	$11,3 \pm 0,6$
juli	$18,4 \pm 0,7$	A1	$19,1 \pm 0,9$
oktober	$16,6 \pm 0,6$	A1	$17,0 \pm 0,7$

Tabel A11 : Meetresultaten in 2018 voor ^{14}C
in ventilatielucht HABOG (Bq.m^{-3})

Periode 2018	RIVM	^{14}C	
		V	COVRA
maart	$0,237 \pm 0,018$	A1	$0,26 \pm 0,02$
mei	$0,39 \pm 0,02$	A2	$0,44 \pm 0,04$
juli	$0,54 \pm 0,03$	A1	$0,58 \pm 0,04$
oktober	$0,45 \pm 0,02$	A1	$0,43 \pm 0,03$

6 Bijlage B Monsternamen en analyse van afvalwater en ventilatielucht door COVRA

Procedures geldig ten tijde van rapportageperiode 2018.
Alex de Best, COVRA. (procedures geldig vanaf januari 2015)

Monsternamen en analyse door COVRA

1. Monsternamen AVG

1.1 Afvalwater

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

1.2 Ventilatielucht

De geloosde ventilatielucht wordt via een isokinetisch bemonsteringssysteem continu naar twee parallel opgestelde filterpakketten geleid. Eén pakket is bedoeld voor analyse door RIVM en de andere is voor COVRA. Sinds mei 1999 zijn de filterpakketten identiek dwz een glasvezelfilter, twee DSM 11 lagen en twee actieve kool lagen. Eenmaal per week worden de patronen vernieuwd. Ook wordt de geloosde ventilatielucht bemonsterd voor de bepaling op H-3 en C-14. Dit gebeurt door de ventilatielucht gedurende één maand door een patroon te leiden die gevuld is met adsorptiemiddel (zeolietkorrels). Doordat gebruik wordt gemaakt van katalytische oxidatie wordt alle H-3 en C-14 (dus niet alleen de H₂O en CO₂ gebonden) bemonsterd. Hierna wordt het adsorptiemiddel vervangen door 'schone' nieuwe.

2. Monsternamen HABOG

Ventilatielucht

De geloosde ventilatielucht wordt via een isokinetisch bemonsteringssysteem continu naar twee parallel opgestelde filterpakketten geleid. Eén pakket is bedoeld voor analyse door RIVM en de andere is voor COVRA. Deze filterpakketten zijn identiek dwz een glasvezelfilter en twee actieve kool lagen. Eenmaal per 2 weken worden de patronen vernieuwd. Ook wordt de geloosde ventilatielucht bemonsterd voor de bepaling op H-3 en C-14. Dit gebeurt door de ventilatielucht gedurende één maand door een patroon te leiden die gevuld is met adsorptiemiddel (zeolietkorrels). Doordat gebruik wordt gemaakt van katalytische oxidatie wordt alle H-3 en C-14 (dus niet alleen de H₂O en CO₂ gebonden) bemonsterd. Hierna wordt het adsorptiemiddel vervangen door 'schone' nieuwe.

3. Analyses AVG

3.1 Afvalwater

Gamma:

mbv een high purity Ge detector. Ter voorkoming van het uitzakken v/d radioactieve componenten wordt 500 ml afvalwater gezeleerd met 15 g behangplaksel in een marinelli-beker. De marinellibeker regelmatig schudden. Na 24 uur kan de marinellibeker met het monster gemeten worden. De meettijd bedraagt 480 min. Voor de kalibratie wordt gebruikt gemaakt van een bekende hoeveelheid activiteit in 500 ml demiwater en 15 g behangplaksel. Genie2K berekent ook de fout in de meting. Tevens kunnen alle andere fouten, zoals kalibratiefout en experimentele fout, als randomfout worden ingegeven zodat er op de print een totaal 1σ -fout ontstaat.

Totaal alfa:

Maximaal 20 ml afvalwater wordt droog gedampt in een roestvrij stalen schaalte met een diameter van 50 mm. Dit gebeurt door porties van 5 ml bij een temperatuur van ± 70 °C te drogen. Nieuw afvalwater wordt pas toegevoegd nadat het schaalte helemaal droog is. De bepaling wordt in duplo uitgevoerd. Om de telopbrengst te bepalen wordt 50 μ l Am-241 standaard aan 100 ml afvalwater toegevoegd. 20 ml van deze oplossing wordt op dezelfde manier droog gedampt.

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

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

De fout in de bepaling is groot omdat we bij alfa te maken hebben met zelfabsorptie. Ook de hele monstervoorbereiding is redelijk foutgevoelig. Afhankelijk van de concentratie komt hier nog de telfout bij. De totale 1σ -fout zal minimaal rond de 15% liggen en kan, monster afhankelijk, nog hoger zijn.

Tritium:

breng in een bekersglas van 100 ml, ± 30 ml afvalwater en voeg 0,5 g Na_2CO_3 toe om het alkalisch te maken. Hierna wordt het monster verwarmd tot koken. Nadat er ± 10 ml is verdampt wordt er een opvangvaatje in het bekersglas gezet en wordt de verwarming lager gezet zodat het monster langzaam verdampt. Boven op het bekersglas wordt een rondbodemkolf, gevuld met water, geplaatst. De damp zal nu condenseren en in het vaatje vallen. We koken totdat er minimaal 10 ml in het opvangvaatje zit. De bepaling wordt in duplo uitgevoerd. Af laten koelen tot kamertemperatuur. Hierna 10 ml pipetteren in een telflesje en 10 ml Ultima Gold XR toevoegen. De monsters en een blanco (= 10 ml demiwater + 10 ml UG-XR) 120 min. meten op de LSC. De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een experimentele fout. De totale 1σ -fout bedraagt minimaal 2%.

Koolstof-14:

Bepaling dmv de C-14 borrelmethode. Breng in een driehals rondbodemkolf 100 ml afvalwater. Vul aan met demiwater tot 200 ml. Opstelling maken volgens voorschrift: Bep. C-14 in afvalwater. In het telflesje zit 9,5 ml Carbosorb-E. Hierna 3 ml H_2SO_4 (geconc.) toevoegen en koken. Na ongeveer 30 minuten, 30 ml KMnO_4 (75 g/l) toevoegen en

6 uur koken. We bepalen nu alle C-14. Hierna het telflesje vervangen door een nieuwe gevuld met 7 ml Carbosorb-E en nog een uur koken. Dit flesje is om er zeker van te zijn dat alle C-14 is geoxideerd. Voeg aan beide flesjes 10 ml Instagel-plus toe. De monsters 3 x 120 min. meten op de LSC. Als er in flesje 2 meer dan 3 % zit van flesje 1, dan moet er de andere dag nog 2 uur extra gekookt worden. De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een experimentele fout. De totale 1σ -fout bedraagt minimaal 3%.

Rest- β :

breng in een telflesje 10 ml afvalwater en voeg 10 ml Ultima-Gold XR toe. Meet 120 min. op de LSC. De telopbrengst voor deze bepaling is 53 %, waarbij we gebruik maken van referentienuclide Cl-36. Dit geldt bij een kanaalinstelling van 50 tot 2000 keV.

We kijken hierbij af van de NEN norm: NEN 6421. Hier is de rest- β activiteit omschreven als: de totale β activiteit min de K-40 activiteit. De totale fout is samengesteld uit de telfout, de kalibratiefout en een pipetteerfout. De totale 1σ -fout bedraagt minimaal 3%.

3.2 Ventilatielucht

Gamma:

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

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

Totaal alfa en totaal bèta:

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

Voor de bepaling van de telopbrengst is op een schoon filter een bekende hoeveelheid activiteit gebracht. Voor alfa mbv Am-241 en bèta mbv Cl-36. We krijgen dan voor alfa een telopbrengst van 22% en voor bèta een telopbrengst van 48%. De fouten bij deze bepaling wordt bijna geheel bepaald door de telfout omdat de gemeten waarden heel laag zijn. Experimenteel is deze fout voor alfa vastgesteld op 10% en voor bèta op 3%.

Tritium:

het adsorptiemiddel wordt bij 350 °C uitgestookt. Dit gebeurt onder doorleiding van stikstof. Hierbij ontstaat waterdamp waarin zich het tritium bevindt. Door condensatie, dmv een 'koude val', wordt dit water afgevangen. Dit water wordt aangevuld tot 50 ml en hiervan bewaren we 10 ml voor het RIVM. Hierna 10 ml pipetteren in een telflesje en 10 ml Ultima Gold XR toevoegen. De monsters en een blanco (= 10 ml

demiwater + 10 ml UG-XR) 5x 120 min. meten dmv LSC. Hierna wordt het gemiddelde bepaald.

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

Koolstof-14:

bij het uitstoken van tritium wordt het stikstof, na de koude val, door een verzadigde $Ba(OH)_2$ – opl. geleidt. Hierbij ontstaat $BaCO_3$ neerslag. Dit neerslag wordt 2 uur gedroogd bij 300 °C en na afkoelen wordt het totaal gewicht bepaald. Hierna wordt het neerslag tot poeder vermalen en weegt COVRA 1,000 g af. De rest gaat naar RIVM. Aan het neerslag wordt 7 ml water toegevoegd en goed gemengd. Hierna wordt 13 ml Instagel-Plus toegevoegd. Na 2 uur de monsters en een blanco (= 1 g zuiver $BaCO_3$ + 7 ml water + 13 ml Instagel Plus) 5x 120 min. meten dmv LSC. Hierna wordt het gemiddelde bepaald.

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

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

4. Analyses HABOG

Ventilatielucht

Gamma:

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

Totaal alfa en totaal bèta:

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

Voor de bepaling van de telopbrengst is op een schoon filter een bekende hoeveelheid activiteit gebracht. Voor alfa mbv Am-241 en bèta mbv ^{137}Cs . We krijgen dan voor alfa een telopbrengst van 22% en voor bèta een telopbrengst van 48%.

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

Tritium:

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

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

Koolstof-14:

bij het uitstoken van tritium wordt het stikstof, na de koude val, door een verzadigde $\text{Ba}(\text{OH})_2$ – opl. geleid. Hierbij ontstaat BaCO_3 neerslag. Dit neerslag wordt 2 uur gedroogd bij 300 °C en na afkoelen wordt het totaal gewicht bepaald. Hierna wordt het neerslag tot poeder vermalen en weegt COVRA 1,000 g af. De rest gaat naar RIVM. Aan het neerslag wordt 7 ml water toegevoegd en goed gemengd. Hierna wordt 13 ml Instagel-Plus toegevoegd. Na 2 uur de monsters en een blanco (= 1 g zuiver BaCO_3 + 7 ml water + 13 ml Instagel Plus) 10x 120 min. meten dmv LSC. Hierna wordt het gemiddelde bepaald.

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

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

7 Referenties

- ¹ Project M/390020/18/SM – Jaarplan 2018; besproken op 21-12-2017 met P. Arends (ANVS). Vastgelegd in brief met bijlage van RIVM/VLH d.d. 21-dec-2017; kenmerk 20170174/VLH/LRB/PKM.
- ² COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 122, week 1-13, 2018. COVRA-rapport nr. 18.106, 29 juni 2018.
COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 123, week 14 – 26, 2018. COVRA-rapport nr. 18.134, 28 september 2018.
COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 124, week 27 – 39, 2018, COVRA rapport nr. 18.190, 21 december 2018.
COVRA NV, Kwartaalrapport nr. 125 week 40 – 52, 2018, COVRA-rapport nr. 19.048, 29 maart 2019.
- ³ Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van COVRA. Periode 2017. RIVM Rapport 2019-0125.
- ⁴ 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, 2016-11.
- ⁵ KTA 1504. Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Wasser. KTA, 2017-11.
- ⁶ NEN 5623. Radioactiviteitsmetingen - Bepaling van de activiteit van gammastraling uitzendende nucliden in een telmonster met halfgeleider-gammaspectrometrie
- ⁷ NEN 5636. Radioactiviteitsmetingen. Bepaling van de kunstmatige totale alfa-, kunstmatige totale bèta-activiteit en gammaspectrometrie van luchtfilters en berekening van de volumieke activiteit van de bemonsterde lucht. Nederlands Normalisatie Instituut (NEN), Delft, 2007.
- ⁸ NEN 6421. Water - Bepaling van de volumieke totale bèta-activiteit en volumieke rest-bèta-activiteit van niet-vluchtige bestanddelen. Nederlands Normalisatie Instituut (NEN), Delft, 2006.
- ⁹ Voorschrift monstervoorbereiding en monsterbehandeling van vloeibare afvalstoffen. Bij brief 1364/90 LSO Sm/eh d.d. 18 september 1990.
- ¹⁰ Hiemstra YS, Kwakman PJM, Nissan LA, Aldenkamp FJ. Bepaling van ¹⁴C in afvalwater. RIVM rapportnr. 610330004. Bilthoven, 1998.
- ¹¹ Kwakman PJM, Overwater RMW. Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit van afvalwater en ventilatielucht van COVRA. Periode 2012. RIVM Rapport 300002002/2015.
- ¹² NEN 1047. Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, 1991.
- ¹³ NEN 3114. Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities. Nederlands Normalisatie Instituut, Delft, 2e druk, augustus 1990.
- ¹⁴ I. Krol, Ch. Lucks, U.-K. Schkade, Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2018", September 2018, UR – 02/2018, Bundesamt für Strahlenschutz, Fachbereich SW, Berlin/München, Duitsland.
- ¹⁵ Environmental Radioactivity in The Netherlands. Results in 2017. CP Tanzi, editor. RIVM rapport 2019-0103, Bilthoven, Netherlands.

RIVM

De zorg voor morgen begint vandaag