



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

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

Periode 2019

RIVM-briefrapport 2021-0023
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 NRG**

Periode 2019

RIVM-briefrapport 2021-0023
P.J.M. Kwakman

Colofon

© RIVM 2021

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-2021-0023

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

Contact:

P.J.M. Kwakman
Milieu en Veiligheid\Centrum Veiligheid
pieter.kwakman@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van Autoriteit Nucleaire Veiligheid en Stralingsbescherming (ANVS), in het kader van project 390020/19/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 NRG.

Periode 2019

Het nucleair bedrijf NRG te Petten meet hoeveel radioactiviteit het in het eigen afvalwater en ventilatielucht naar de omgeving loost. Het RIVM controleert deze metingen acht keer per jaar. Met deze 'contra-expertise' controleert het RIVM of de analyses die NRG zelf uitvoert, betrouwbaar zijn. NRG neemt de te analyseren monsters verspreid over het jaar.

Net als in voorgaande jaren komen de gamma-analyses van afvalwater uit de contra-expertise in 2019 zeer goed overeen. De totaal-alfa resultaten stemmen matig overeen; de verdeling van de alfa-activiteit in het afvalwatermonster is hoogstwaarschijnlijk niet altijd homogeen. De overeenstemming in de totaal-bèta resultaten is matig en kan aanzienlijk worden verbeterd. Dit resultaat wordt verklaard door de verschillen in de meetmethoden van NRG en het RIVM. De overeenstemming in de ^3H -resultaten in afvalwater is redelijk tot goed.

De ventilatieluchresultaten geven geen reden voor discussie. Het RIVM heeft in een aantal monsters een lage activiteitsconcentratie aan ^{131}I , ^{133}Xe , ^{191}Os en ^{203}Hg aangetroffen. Deze waarden vallen ruim onder de detectiegrens van NRG.

Het RIVM heeft tweemaal een zeer lage totaal-alfa activiteit in ventilatielucht aangetroffen, waar NRG niets vond. De meetwaarden voor zowel totaal-alfa als totaal-bèta in ventilatielucht liggen in de range van wat er in buitenlucht zit en hebben waarschijnlijk een natuurlijke oorsprong.

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

Kernwoorden: NRG, radioactiviteit, lozingen, afvalwater, ventilatielucht

Synopsis

Contra-expertise on the determination of radioactivity of waste water and ventilation air of NRG.

Period 2019

The Nuclear Research and Consultancy Group at Petten (NRG) measures its own release of radioactivity into wastewater and atmosphere. The RIVM performs eight times per year a contra expertise on these measurements. This form of contra-expertise is aimed at verifying and supporting the reliability of the analyses carried out by NRG. NRG takes the samples of wastewater and ventilation air at various time points dispersed throughout the year.

The two different sets of measurements are generally in very good agreement for gamma spectrometry. The agreement in the data for gross alpha is poor. The distribution of the alpha activity in the waste water sample is possibly not always homogeneous. The agreement in the data for gross beta in wastewater is poor, and can be improved further. This is explained by differences in the analytical methods applied by NRG and RIVM. The agreement in the ^3H data is reasonable to good.

The results obtained by RIVM and NRG in ventilation air samples compare well. RIVM detected a low gamma activity for ^{131}I , ^{133}Xe , ^{191}Os and for ^{203}Hg in some of the samples. All these values are well below the NRG detection limit.

In two ventilation air samples RIVM detected a very low gross alpha activity concentration, where NRG found nothing. The results obtained for gross alpha and gross beta are in the range of what is found in outside air in Bilthoven, and is probably caused by natural radioactivity.

RIVM carried out this contra-expertise on behalf of the Authority for Nuclear Safety and Radiation Protection (ANVS).

Keywords: NRG, radioactivity, wastewater, ventilation, air

Inhoudsopgave

Samenvatting — 9

1 Inleiding — 11

2 Monsters en analyse — 13

3 Analysemethoden — 15

3.1 Tweevoudbepalingen — 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 totaal-alfa- en totaal bèta-activiteitsconcentratie in ventilatielucht — 17

3.7 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendende nucliden in ventilatielucht — 17

3.8 Foutenberekeningen — 17

3.9 Kwaliteitsborging — 18

3.10 Presentatie van resultaten en vergelijking — 19

4 Resultaten en discussie — 21

4.1 Meetresultaten — 21

4.2 Vergelijking van de resultaten en discussie — 21

4.2.1 Afvalwater gammaspectrometrie — 21

4.2.2 Ventilatielucht HFR — 23

4.3 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten — 24

5 Bijlage A Meetresultaten NRG afvalwater — 25

6 Bijlage B Bemonstering en meting door NRG in 2019 — 33

7 Referenties — 35

Samenvatting

Het Centrum Veiligheid (VLH) van RIVM heeft in 2019 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 2019.

De contra-expertisemonsters waarvoor het rapport over gaat, zijn afvalwatermonsters en ventilatieluchtmonsters afkomstig van de Nuclear Research and Consultancy Group (NRG) te Petten. RIVM bepaalde de activiteitsconcentratie van gammastralers, totaal-alfa, totaal-bèta, tritium in afvalwater, en gammastralers, totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht. De mate van overeenstemming van de resultaten van het RIVM met die van de nucleaire installaties wordt ingedeeld in vier categorieën, in afnemende volgorde A1, A2, B en C.

In 2019 is een steekproef van acht monsters afvalwater en ventilatielucht geanalyseerd. Net als in voorgaande jaren komen de gamma-analyses van afvalwater uit de contra-expertise in 2019 zeer goed overeen. De totaal-alfa resultaten stemmen matig overeen; de verdeling van de alfa-activiteit in het afvalwatermonster is hoogstwaarschijnlijk niet altijd homogeen. De overeenstemming in de totaal-bèta resultaten is matig en kan aanzienlijk worden verbeterd. Dit resultaat wordt verklaard door de verschillen in de meetmethoden van NRG en het RIVM. De overeenstemming in de ^3H -resultaten in afvalwater is redelijk tot goed.

De ventilatieluchresultaten geven geen reden voor discussie. Het RIVM heeft in een aantal monsters een lage activiteitsconcentratie aan ^{131}I , ^{133}Xe , ^{191}Os en ^{203}Hg aangetroffen. Deze waarden vallen ruim onder de detectiegrens van NRG.

Het RIVM heeft tweemaal een zeer lage totaal-alfa activiteit in ventilatielucht aangetroffen, waar NRG niets vond. De meetwaarden voor zowel totaal-alfa als totaal-bèta in ventilatielucht liggen in de range van wat er in buitenlucht aangetroffen wordt en hebben waarschijnlijk een natuurlijke oorsprong.

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. Een onafhankelijke verificatie is een verplichting die door het Internationaal Atoomenergie Agentschap wordt voorgeschreven. Dit rapport gaat over de periode januari – december 2019.

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

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

2 Monsters en analyse

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

Tabel 1 Overzicht van vooraf afgesproken aantal monsters en analyses

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

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

In 2019 zijn acht water- en ventilatieluchtmonsters opgehaald; NRG is daarvoor zesmaal bezocht. Gegevens van de monsters staan in Tabel 2 en Tabel 3.

Tabel 2 Lozingsdatum, ophaaldatum en meetdatum afvalwater in 2019

Nr.	Lozingsdatum	Ophaaldatum	Data gammaspectrometrie*
1	4-11 maart	15 maart	20 maart
2	8-15 april	24 april	2 mei
3	15-22 april	24 april	3 mei
4	5-12 aug	14 augustus	21 augustus
5	29 juli-5 aug	14 augustus	15 augustus
6	23-30 sept	3 oktober	4 oktober
7	21-28 okt	31 oktober	5 november
8	11-18 november	4 december	10 december

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

Tabel 3 Lozingsperiode, ophaaldatum en meetdatum van HFR ventilatielucht in 2019

Nr.	Monsterperiode	Ophaaldatum	Datum gammaspectrometrie
1	3-10 maart	15 maart	18 maart
2	31 maart-7 april	24 april	1 mei
3	7-14 april	24 april	1 mei
4	21-28 juli	14 augustus	15 augustus
5	28 juli-4 aug	14 augustus	15 augustus
6	22 - 29 september	3 oktober	4 oktober
7	20- 27 oktober	31 oktober	4 november
8	24 nov- 1 dec	4 december	10 december

3 Analysemethoden

Beschrijvingen van de bemonsterings- en analysemethoden toegepast op afvalwater door NRG in 2019, zijn gereproduceerd in Bijlage B. Voor de bemonstering en analyse van ventilatielucht van HFR (gedurende 2019) zijn de beschrijvingen (nog) niet door RIVM ontvangen.

In opdracht van de ANVS worden de randvoorwaarden uit de Kerntechnische Ausschuss (KTA-1503 [2] en KTA-1504 [3]) 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 NEN-normen. Voor gamma-spectrometrie wordt gewerkt conform NEN 5623 [4]; voor gasdoorstroomtelling van filters wordt gewerkt conform NEN 5636 [5]. 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 Tweevoudbepalingen

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 en vervolgens gemengd. De twee oplossingen worden in gedeelten op twee roestvast stalen telschaaltjes (geschuurd en ontvet) met een diameter van 50 mm overgebracht en drooggedampt in een stoof bij 60-80 °C. De metingen aan beide telschaaltjes worden uitgevoerd met proportionele gasdoorstroomtellers die zijn voorzien van een dun venster ($< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$). De tellers hebben een lage achtergrond. De telopbrengst wordt berekend uit het verschil in de resultaten van de beide telpreparaten en de toegevoegde activiteit aan ^{241}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. Hier is afgeweken van de Nederlandse Norm die ^{40}K als referentienuclide voorschrijft [6]. De metingen worden uitgevoerd met proportionele gasdoorstroomtellers die zijn voorzien van een dun venster ($< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$). De tellers hebben een lage achtergrond. Bij het droogdampen verdwijnen vluchtige bèta-stralers zoals ^3H en anorganisch ^{14}C ($^{14}\text{CO}_2$). Minder vluchtige ^{14}C -verbindingen dragen waarschijnlijk wel voor een deel bij aan de detectie met gasdoorstroomtelling.

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 monster worden twee monsters van 250 ml afgemeten. Elk van deze monsters wordt in een teldoos gemengd met behangplaksel en geschud tot een homogene stijve massa verkregen is. Dit 'geleren' dient ter voorkoming van het uitzakken van de radioactieve componenten bij gammaspectrometrische analyses met lange teltijden [7]. De monsters worden gemeten op een N-type halfgeleiderdetector gekoppeld aan een pulssorteerder met 8192 kanalen over een energiebereik van 30 keV (of 80 keV: P-type) tot 2 MeV in een meettijd van 1000 minuten. Het spectrum wordt geanalyseerd met behulp van het analyseprogramma Genie2000 aan de hand van een nuclidenbibliotheek. De door KTA 1504 [3] voorgeschreven radionucliden zijn in Tabel A2 aangegeven met een '*'. Het analyseresultaat is de activiteit van de in de nuclidenbibliotheek opgenomen nucliden of de detectielimieten voor alle nucliden uit de nuclidenbibliotheek waarvan de signalen niet boven een bepaalde signaal/ruis-verhouding uitkomen en de som van de activiteiten van alle gedetecteerde nucliden. Daarnaast wordt door het analyseprogramma melding gemaakt van pieken die wel gedetecteerd zijn in het spectrum maar die niet aan één van de nucliden in de bibliotheek zijn toe te wijzen. Is dit het geval dan vindt een nadere analyse van het spectrum plaats. In dit kader heeft RIVM een nuclidespecifieke kalibratie uitgevoerd voor een aantal gammastralers die niet in de door KTA voorgeschreven nuclidenbibliotheek [3] staan, maar regelmatig in afvalwater van NRG voorkomen. Het gaat om ^{67}Ga , ^{111}In , ^{181}W , ^{186}Re , ^{188}W en ^{203}Pb . RIVM corrigeert net als NRG voor radioactief verval door de activiteitsconcentratie van de gedetecteerde nucliden terug te rekenen naar het bemonsteringstijdstip.

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 [3]. KTA 1504 eist dat bij het meten van gammastraling

uitzendinge radionucliden in gedestilleerd water de detectielimiet voor ^{60}Co kleiner is dan $1 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$.

Deze methode is vastgelegd in procedure 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 Na_2CO_3 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 tot een telfout van 1% of tot maximaal 200 min uitgevoerd. Het telpreparaat bestaat uit 10,0 mL destillaat en 10,0 ml scintillatie-vloeistof (Ultima Gold LLT). Deze methode is vastgelegd in procedure VLH-H-006: Handboek vloeistofscintillatietelling.

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

Uit het aërosolfilter wordt een schijf met een diameter van 46 mm geponst. Met behulp van een proportionele gasdoorstroomteller met een lage achtergrond, die van een dun venster ($< 0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$) is voorzien, wordt hiervan de alfa- en bèta-telsnelheid gemeten. In overeenstemming met NVN 5636 inzake de analyse van luchtstoffilters wordt voor de bepaling van de totaal bèta-activiteitsconcentratie ^{90}Sr en voor de bepaling van de totaal-alfa-activiteitsconcentratie ^{241}Am als referentienuclide toegepast [8]. 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.

3.7 Bepaling van de activiteitsconcentratie gammastraling uitzendinge nucliden in ventilatielucht

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

Voor de meetnauwkeurigheid wordt gerefereerd aan KTA 1503.1 [2].

Deze eist dat bij het meten van gammastralers in ventilatielucht de detectielimiet voor ^{60}Co en ^{131}I minder dan $20 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ bedraagt.

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

3.8 Foutenberekeningen

De door RIVM opgegeven fout is het 1s-schattingsinterval. Voor het bepalen hiervan is gebruik gemaakt van NEN 1047 [9](Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen) en NEN 3114 [10] (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 in wegingen en volumebepalingen. Waar van toepassing, is voor de volumebepaling in de hoeveelheid bemonsterde lucht een fout van 1% opgenomen in de experimentele fout. Een correctie voor de achtergrond is in alle gevallen meegenomen in de activiteitsberekening en in de foutenberekening.

Bepaling van de totaal-alfa- en totaal-bèta-activiteitsconcentratie in afvalwater

Voor de totaal 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 opbrengst en monster-voorbehandeling. Indien cascadeverval optreedt, leidt dit tot een extra bijdrage aan de fout.

Bepaling van de tritium-activiteitsconcentratie in afvalwater

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

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

Omdat bij de totaal-alfa-bepaling de invloed van de stoflaag op de telefficiëntie groot kan zijn en per monster verschillend wordt een onzekerheid van 30 % in de berekening van de totale fout verwerkt. De totale fout in de totaal-alfa en totaal-bèta-activiteitsconcentratie in luchtstof is samengesteld uit een telfout van beide deelpreparaten, een kalibratiefout, een experimentele fout (inclusief de 1% onzekerheid als gevolg van het ponsen van een deel uit het gehele filter), en alleen voor totaal-alfa de stoflaagonzekerheid van 30 %.

3.9 Kwaliteitsborging

Het 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) [11]. Voor ventilatieluchtmonsters wordt indien mogelijk deelgenomen aan relevante ringonderzoeken.

3.10 Presentatie van resultaten en vergelijking

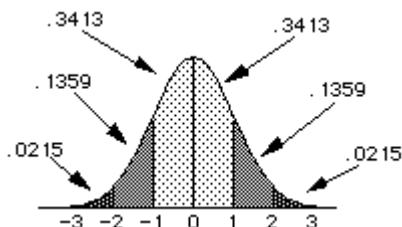
De door NRG bepaalde activiteitsconcentraties worden met de afronding zoals die door RIVM wordt gehanteerd (volgens NEN 1047 [9]) overgenomen uit de opgave van NRG [12].

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

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



Figuur 1 Schematische weergave van een Gaussische 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 NRG zijn te vinden in Bijlage A. De data van NRG zijn overgenomen uit de kwartaalrapportages die NRG [12] elk kwartaal opstuurt naar RIVM. In Tabel A1 van deze bijlage zijn alleen die gammastralers opgenomen die zijn aangetoond. Als een gammastraler wel door NRG maar niet door RIVM wordt aangetoond dan wordt de detectielimiet van RIVM voor het betreffende nuclide in deze tabel opgenomen. In de tabellen staan tevens de onzekerheden (fouten) in de meetwaarden (zie paragraaf 3.8).

4.2 Vergelijking van de resultaten en discussie

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

Tabel 4 Vergelijkingsresultaten in NRG afvalwater samengevat

Nuclide	1	2	3	4	5	6	7	8	$\Sigma A1$ *	$\Sigma A2$ *	ΣB *	ΣC *
Na-22						A1	A1	A1	3 (1-3)	0 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Mn-54	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	8 (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-57	A1	A1		A1	A1	A2	A1	A2	5 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-58	A1	A1	A1	A1	A1				5 (2-5)	0 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
Co-60	A1	A1	A2	A1	A1	A2	A1	A1	6 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Zn-65	A1	A1	A2	A2	A1	A1	A1	A1	6 (3-7)	2 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Mo-99				A1					1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Ru-103	A1								1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Sb-124	A2	A2	A2	A1	A2	A2		A1	<u>2</u> (3-7)	<u>5</u> (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
Sb-125	C	A1	A1	A1	A1	A1	A1	A1	7 (3-7)	0 (0-4)	0 (0-1)	<u>1</u> (0-0)
I-131						A2	A1	A1	2 (1-3)	1 (0-2)	0 (0-1)	0 (0-0)
Cs-134		A1							1 (0-1)	0 (0-1)	0 (0-0)	0 (0-0)
Cs-137	A1	A1	A2	A1	A1	A1	A1	A1	7 (3-7)	1 (0-4)	0 (0-1)	0 (0-0)
W-181	A1	A1	A2	A1			A2		3 (2-5)	2 (0-3)	0 (0-1)	0 (0-0)
Totaal									<u>57</u> (43-56)	15 (14-26)	<u>0</u> (1-6)	1 (0-1)
Totaal-alfa	C	C	A2	C	C	A1	C	C	<u>1</u> (3-7)	1 (0-4)	0 (0-1)	<u>6</u> (0-0)
Tot./rest-b	B	C	C	A2	B	A2	A1	A2	<u>1</u> (3-7)	3 (0-4)	<u>2</u> (0-1)	<u>2</u> (0-0)
³ H	B	B	C	A1	A2	A1	A1	A2	3 (3-7)	2 (0-4)	<u>2</u> (0-1)	<u>1</u> (0-0)

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

4.2.1 Afvalwater gammaspectrometrie

De gammaspectrometrie vergelijkingsresultaten zijn in deze rapportageperiode (zeer) goed; alle categorieën A1, A2, B en C komen

binnen de statistische verwachting voor. De categorie A1 zelfs meer dan de verwachting.

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

Tabel 5 Gammastralers aangetoond in afvalwater, alleen door RIVM of door NRG

Monsternr	Alleen door RIVM	Alleen door NRG
1	^{22}Na , ^{109}Cd	
2	^{22}Na , ^{188}W	
3	^{57}Co	
4	^{22}Na , ^{103}Ru , ^{109}Cd	
	^{131}I	
5	^{51}Cr , ^{109}Cd , ^{181}W	^{99}Mo
6	^{58}Co , ^{99}Mo , ^{109}Cd	
7	^{58}Co , ^{103}Ru , ^{109}Cd ,	
	^{124}Sb	
8	^{109}Cd , ^{181}W	

totaal-alfa

In alle acht monsters toonden RIVM en NRG een totaal alfa-activiteit aan. De overeenkomst was matig met een A1, een A2, en zesmaal C. Met name in de monsters van periode 1, 2, 4, 5, 7 en 8 (vergelijking C) zijn de verschillen groter dan op basis van een matig homogeen monster verwacht mag worden. Het is mogelijk dat de alfa-activiteit in enkele hot particles aanwezig was en zich daardoor slecht laat verdelen bij het aanmaken van submonsters voor NRG en RIVM.

totaal-bèta

De vergelijking van de totaal-bèta resultaten is schijnbaar redelijk met een A1, driemaal A2 en tweemaal B en C. In enkele monsters rapporteert NRG dermate grote onzekerheden dat het vergelijkingscriterium een A1/A2/B geeft waar een C meer terecht zou zijn geweest. Feitelijk zou in dit rapportagejaar voor totaal-bèta achtmaal een C gegeven moeten worden. Nu is de toegevoegde waarde van deze vergelijking zeer klein.

Waarschijnlijk spelen zaken zoals de verschillende meetmethodes een belangrijke rol. NRG meet met LSC alle bèta stralers met een energie boven die van ^3H (> 18 keV), waar RIVM met gasdoorstroomtelling hoofdzakelijk de bèta stralers met een energie boven 150 keV bepaalt. Het is niet duidelijk in hoeverre ^{14}C wel bijdraagt aan de totaal-bèta activiteitsconcentratie van NRG en niet bij de data van RIVM. Dit is wellicht een (deel van de) verklaring voor de systematische verschillen.

tritium

Het vergelijken van ^3H -activiteitsconcentraties resulteerde achtereenvolgens in driemaal A1, tweemaal A2 en B, en een C. De

overeenstemming in de ^3H data is daarmee verbeterd ten opzichte van de data van de periode 2018 [13].

Ventilatielucht HFR

Werkwijze

Eerst wordt het gehele filterpakket (aerosolfilter + koolfilter + koolpatroon) gammaspectrometrisch onderzocht. Indien er geen activiteit wordt aangetroffen wordt het pakket niet verder onderzocht. Indien er wel activiteit wordt aangetroffen, worden, zoals beschreven in par. 3.7, de onderdelen van het pakket gemeten. De gesommeerde activiteiten van de drie onderdelen worden vergeleken met de waarden die NRG rapporteert voor het pakket; zie Tabel A3.

Resultaten van de vergelijking tussen de NRG en RIVM meetwaarden

NRG heeft in alle monsters detectiegrenzen gerapporteerd voor de gammaspectrometrische analyse van het *gehele filterpakket*. De totaal-alfa en totaal- β waarden van de aerosolfilters, geanalyseerd door NRG en RIVM, leverde geen vergelijkingen op. Het betrof slechts waarden op of vlak boven de detectiegrens. De waarden van RIVM hebben door een langere teltijd een detectiegrens die een factor 5-10 lager ligt dan de waarden van NRG.

gammaspectrometrie

RIVM trof in de acht *pakketten* een zeer geringe hoeveelheid van een of meerdere van de nucliden ^{131}I , ^{133}Xe , ^{191}Os of ^{203}Hg aan; dit was ruim onder de detectiegrens van NRG. RIVM gebruikt de pakketmeting als signalering en voert vervolgens een gekalibreerde meting uit voor de drie onderdelen van het pakket.

RIVM en NRG hebben beide in de *aerosolfilters* geen gamma-activiteit aangetroffen.

In de koolfilters van alle monsters, behalve de 7^e, trof RIVM (1,4 – 3,9) $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ aan van ^{191}Os . Tevens in dezelfde 7 monsters (0,5 - 5,9) $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ van ^{131}I . De activiteitsconcentratie voor beide nucliden was erg laag en onder de detectiegrens van NRG.

In de *koolkorrels* van de monsters 1, 5, 6, 7 en 8 trof RIVM (4 – 980) $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ aan van ^{133}Xe . NRG rapporteert ook ^{133}Xe en de vergelijking met de meetwaarden van RIVM is goed (tweemaal A1 en een A2).

In het 6^e koolkorrelmonster treft RIVM nog een zeer lage activiteitsconcentratie aan van ^{203}Hg ; dit ligt onder de detectiegrens van NRG.

totaal-alfa en totaal- β

RIVM heeft in het 1^e en 7^e aerosolfilter een zeer geringe alfa-activiteit aangetroffen, waar NRG niets vond. De alfa activiteitsconcentratie is echter zeer laag. RIVM treft in de acht monsters een zeer geringe β activiteit aan. In buitenlucht worden dergelijke activiteitsconcentraties aangetroffen voor natuurlijke radioactiviteit [14].

De waarden van RIVM liggen doorgaans ruim onder de detectiegrens van NRG.

De RIVM-metwaarden voor totaal-alfa in ventilatielucht verschillen niet significant van de waarden in buitenlucht die door RIVM met een high

volume sampler wekelijks wordt aangetoond in Bilthoven: het weekgemiddelde voor 2018 voor totaal-alfa bedraagt $0,023 \pm 0,012$ $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ en voor totaal-bèta $0,45 \pm 0,2$ $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ ($\pm 1\text{s}$) [14]. Dit houdt in dat de totaal-alfa en totaal-bèta activiteit in ventilatielucht van de HFR waarschijnlijk een natuurlijke oorsprong heeft.

4.3 Algemeen oordeel over de contra-expertise resultaten

Op basis van de contra-expertise gegevens in deze rapportage wordt de overeenstemming in de gammaspectrometriresultaten in afvalwater beoordeeld als (zeer) goed. De vergelijking in de ^3H resultaten in afvalwater is nu redelijk tot goed, maar kan nog licht verbeterd worden. De totaal-alfa resultaten stemmen matig overeen. De verdeling van de alfa-activiteit in het afvalwatermonster is hoogstwaarschijnlijk niet altijd homogeen.

De overeenstemming in de totaal-bèta resultaten in afvalwater is matig kan verbeterd worden. De monstername, de monsterbehandeling en met name de verschillen in de meetmethode zullen bekeken moeten worden.

De ventilatieluchresultaten geven geen reden voor discussie. Er is in een aantal monsters door RIVM een zeer lage activiteitsconcentratie aan ^{131}I , ^{133}Xe en ^{191}Os aangetroffen. Deze waarden vallen ruim onder de detectiegrens van NRG. In drie gevallen was er sprake van een licht verhoogde hoeveelheid ^{133}Xe (koolkorrelmonster 6, 7 en 8); dit is zowel door RIVM als NRG goed aangetoond.

De RIVM meetwaarden voor totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht liggen in de range van wat er in buitenlucht aangetroffen wordt en hebben waarschijnlijk een natuurlijke oorsprong. NRG heeft een hogere detectiegrens voor totaal-alfa en totaal-bèta; de RIVM meetwaarden liggen ruim onder deze detectiegrens.

5 Bijlage A Meetresultaten NRG afvalwater in 2019

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

Periode Nuclide	periode 1			periode 2		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Na-22	1,14 ± 0,19			0,78 ± 0,11		
Cr-51						
Mn-54	13,6 ± 0,7	A1	12,8 ± 1,0	6,2 ± 0,4	A1	5,8 ± 0,7
Co-57	1,93 ± 0,16	A1	2,2 ± 0,4	1,32 ± 0,18	A1	1,7 ± 0,4
Co-58	6,1 ± 0,4	A1	6,0 ± 0,8	3,1 ± 0,3	A1	3,0 ± 0,7
Co-60	249 ± 7	A1	247 ± 6	152 ± 5	A1	154 ± 4
Zn-65	3,8 ± 0,4	A1	3,8 ± 1,2	3,1 ± 0,5	A1	2,3 ± 1,3
Mo-99						
Ru-103	1,6 ± 0,2	A1	1,9 ± 0,6			
Cd-109						
Sb-124	39,7 ± 1,3	A2	42,7 ± 1,7	84 ± 3	A2	89 ± 2
Sb-125	40,1 ± 1,3	C	48 ± 2	117 ± 4	A1	116 ± 3
I-131						
Cs-134	2,39 ± 0,14			1,37 ± 0,10	A1	1,1 ± 0,3
Cs-137	109 ± 4	A1	108 ± 3	82 ± 4	A1	82 ± 3
W-181	7,6 ± 0,5	A1	8,2 ± 1,1	40 ± 3	A1	37 ± 5
W-188				6 ± 2		
Totaal- α	1,71 ± 0,18	C	0,5 ± 0,2	7,6 ± 0,8	C	2,7 ± 0,3
Tot./rest- β	323 ± 15	B	2500 ± 900	510 ± 20	C	3800 ± 1100
H-3	67 ± 2	B	60,5 ± 0,8	86 ± 3	B	78,0 ± 1,1

Tabel A1 Vervolg (2)

Periode Nuclide	periode 3			periode 4*		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Na-22				5,9 ± 0,6		
Cr-51						
Mn-54	1,9 ± 0,3	A1	2,1 ± 0,4	8,2 ± 0,5	A1	8,7 ± 0,8
Co-57	0,71 ± 0,05			2,7 ± 0,2	A1	2,9 ± 0,4
Co-58	1,34 ± 0,19	A1	1,8 ± 0,4	2,5 ± 0,3	A1	2,9 ± 0,5
Co-60	71 ± 2	A2	65,8 ± 1,9	210 ± 7	A1	205 ± 8
Zn-65	3,8 ± 0,3	A2	2,1 ± 0,9	6,8 ± 0,6	A2	8,2 ± 1,2
Mo-99				18,6 ± 1,8	A1	18 ± 2
Ru-103				0,9 ± 0,2		
Cd-109				18 ± 12		
Sb-124	36,1 ± 1,2	A2	39,8 ± 1,7	18,9 ± 0,8	A1	17,8 ± 1,1
Sb-125	53,6 ± 1,6	A1	53,2 ± 1,8	71 ± 3	A1	72 ± 6
I-131				2,5 ± 0,5		
Cs-134						
Cs-137	37,1 ± 1,4	A2	35,0 ± 1,3	83 ± 4	A1	84 ± 5
W-181	13,3 ± 0,7	A2	11,6 ± 1,5	4,1 ± 0,3	A1	4,1 ± 0,9
W-188						
Totaal- α	3,6 ± 0,4	A2	4,3 ± 0,3	6,4 ± 0,6	C	3,7 ± 0,3
Tot./rest- β	238 ± 11	C	1700 ± 500	337 ± 16	A2	2400 ± 1700
H-3	33,6 ± 1,1	C	29,9 ± 0,4	109 ± 4	A1	106 ± 3

* Het monster van periode 4 is van NRG week 32

Tabel A1 Vervolg (3)

Periode Nuclide	periode 5*			periode 6		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Na-22				8,0 ± 0,4	A1	7,5 ± 0,6
Cr-51	9 ± 3					
Mn-54	8,2 ± 0,5	A1	8,2 ± 0,9	4,5 ± 0,3	A1	4,9 ± 0,5
Co-57	1,71 ± 0,18	A1	1,6 ± 0,3	2,6 ± 0,2	A2	2,1 ± 0,3
Co-58	1,8 ± 0,3	A1	1,8 ± 0,5	0,91 ± 0,19		
Co-60	152 ± 5	A1	152 ± 4	77 ± 3	A2	72 ± 2
Zn-65	12,9 ± 0,7	A1	13,6 ± 1,6	17,1 ± 0,9	A1	16,1 ± 1,4
Mo-99	< 60		3,7 ± 1,0	5,6 ± 0,8		
Ru-103						
Cd-109	16 ± 4			4,9 ± 1,4		
Sb-124	22,7 ± 0,9	A2	24,3 ± 1,3	9,5 ± 0,4	A2	7,8 ± 0,8
Sb-125	81 ± 3	A1	80 ± 2	62 ± 2	A1	59 ± 2
I-131				9,4 ± 0,8	A2	7,4 ± 0,8
Cs-134						
Cs-137	87 ± 4	A1	84 ± 3	92 ± 5	A1	87 ± 3
W-181	5,0 ± 0,4					
W-188						
Totaal-α	13,2 ± 1,3	C	19,6 ± 0,7	5,8 ± 0,6	A1	6,0 ± 0,4
Tot./rest-β	359 ± 17	B	4500 ± 1600	226 ± 10	A2	1200 ± 900
H-3	96 ± 3	A2	89 ± 3	123 ± 4	A1	121 ± 4

* Het monster van periode 5 is van NRG week 31

Tabel A1 Vervolg (4)

Periode Nuclide	periode 7			periode 8		
	RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
Na-22	2,44 ± 0,19	A1	2,6 ± 0,4	1,02 ± 0,14	A1	0,81 ± 0,17
Cr-51						
Mn-54	3,7 ± 0,2	A1	4,3 ± 0,7	3,3 ± 0,2	A1	3,141 ± 0,4
Co-57	6,3 ± 0,4	A1	6,4 ± 0,3	4,0 ± 0,3	A2	4,6 ± 0,5
Co-58	0,82 ± 0,19					
Co-60	39,0 ± 1,4	A1	38,5 ± 1,1	30,6 ± 1,0	A1	29,7 ± 1,3
Zn-65	12,0 ± 0,6	A1	11,9 ± 1,1	7,7 ± 0,5	A1	8,1 ± 0,8
Mo-99						
Ru-103	0,81 ± 0,16					
Cd-109	5,0 ± 0,9			8,6 ± 1,7		
Sb-124	10,5 ± 0,4			7,9 ± 0,4	A1	7,7 ± 0,7
Sb-125	31,5 ± 1,2	A1	32,4 ± 1,6	34,2 ± 1,2	A1	35 ± 3
I-131	17,9 ± 1,2	A1	18,3 ± 0,8	5,6 ± 1,8	A1	5,8 ± 1,4
Cs-134						
Cs-137	49 ± 3	A1	47,6 ± 1,3	46 ± 2	A1	45 ± 3
W-181	1,96 ± 0,15	A2	1,4 ± 0,3	1,17 ± 0,12		
W-188						
Totaal-α	1,8 ± 0,2	C	0,31 ± 0,18	8,5 ± 0,8	C	4,4 ± 0,3
Tot./rest-β	158 ± 7	A1	1200 ± 1600	145 ± 7	A2	2900 ± 1600
H-3	100 ± 3	A1	100 ± 3	109 ± 4	A2	102 ± 3

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

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

* Volgens KTA 1503.1 en KTA 1504 te onderzoeken nucliden^{2,3}† Volgens KTA 1504 te onderzoeken nucliden³

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

NRG ventilatielucht

Tabel A3 Meetresultaten gammaspectrometrie in ventilatielucht HFR in 2019
($mBq m^{-3}$)

Monsternr Periode 2019	Nuclide	Aërosolfilter RIVM	Koolfilter RIVM
1 wk10 3-10 mrt	^{131}I	< 0,3	0,57 ± 0,2
	^{133}Xe	< 0,5	< 0,4
	^{191}Os	< 0,3	2,3 ± 0,2
	^{203}Hg	< 0,1	< 0,1
2 wk14 31 mrt – 7 apr	^{131}I	< 5,0	3 ± 0,5
	^{133}Xe	< 20,0	< 17,0
	^{191}Os	< 2,0	3,6 ± 0,5
	^{203}Hg	< 0,4	< 2,0
3 wk15 7 13 apr	^{131}I	< 4,0	1,2 ± 0,3
	^{133}Xe	< 11,0	< 3,0
	^{191}Os	< 1,8	3,9 ± 0,3
	^{203}Hg	< 0,4	0,20 ± 0,04
4 wk 39 21 – 28 jul	^{131}I	< 0,2	< 1,1
	^{133}Xe	< 0,2	< 3,0
	^{191}Os	< 0,4	< 0,8
	^{203}Hg	< 0,2	< 0,1
5 wk31 28 juli – 4 aug	^{131}I	< 0,2	0,89 ± 0,2
	^{133}Xe	< 0,2	< 1,0
	^{191}Os	< 0,3	1,6 ± 0,2
	^{203}Hg	< 0,2	< 0,1
6 wk39 22 - 29 sep	^{131}I	< 0,3	5,9 ± 0,3
	^{133}Xe	< 0,5	< 0,9
	^{191}Os	< 0,3	2,5 ± 0,3
	^{203}Hg	< 0,1	< 0,2
7 wk43 20 – 27 okt	^{131}I	< 0,6	0,7 ± 0,2
	^{133}Xe	< 1,1	< 1,2
	^{191}Os	< 0,5	1,4 ± 0,2
	^{203}Hg	< 0,2	< 0,2
8 wk48 24 nov – 1 dec	^{131}I	< 0,7	0,46 ± 0,2
	^{133}Xe	< 1,4	< 1,2
	^{191}Os	< 0,6	1,4 ± 0,2
	^{203}Hg	< 0,2	< 0,2

* NRG heeft slechts detectiegrenzen gerapporteerd voor het gehele filterpakket.

Tabel A3 (vervolg)

Monsternr. Periode 2019	Nuclide	Koolkorrels			Pakket	
		RIVM	Verg.	NRG	RIVM	NRG
1 wk10 3-10 mrt	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 0,9 4,0 ± 0,7 < 1,1 < 0,6			0,32 ± 0,05 1,22 ± 0,17 1,50 ± 0,17 < 0,1	
2 wk14 31 mrt –7 apr	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 6,0 < 40 < 3,0 < 0,9			< 1,4 < 7,0 2,4 ± 0,3 < 0,2	
3 wk15 7 13 apr	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 3,0 < 11 < 2,0 < 0,6			< 0,6 < 2,0 2,6 ± 0,2 < 0,2	
4 wk 30 21 – 28 jul	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 4,0 < 15 < 2,0 < 0,5		8,3 ± 1,7	< 0,7 < 3,0 < 0,5 < 0,1	
5 wk31 28 juli – 4 aug	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 3,0 9,1 ± 1,6 < 2,0 < 0,5			0,36 ± 0,12 1,6 ± 0,3 0,83 ± 0,17 < 0,2	
6 wk39 22 - 29 sep	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 0,8 450 ± 50 < 0,9 0,30 ± 0,08	A2	621 ± 124	3,2 ± 0,3 110 ± 12 1,4 ± 0,2 < 0,1	
7 wk43 20 – 27 okt	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 1,3 980 ± 150 < 1,6 < 0,5	A1	891 ± 178	< 0,6 170 ± 30 0,48 ± 0,15 < 0,2	
8 wk48 24 nov–1 dec	¹³¹ I ¹³³ Xe ¹⁹¹ Os ²⁰³ Hg	< 1,0 91 ± 10 < 0,9 < 0,3	A1	96 ± 19	< 0,4 18 ± 2 0,79 ± 0,16 < 0,1	

Tabel A4 Vergelijking van de activiteitsconcentratie meetresultaten totaal-alfa en totaal-bèta in ventilatielucht HFR in 2019 ($\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$); NRG resultaten van glasvezelfilter.

Nr	2019 Monsterperiode	Totaal-alfa			Totaal-bèta		
		RIVM	V	NRG	RIVM	V	NRG
1	03 mrt - 10 mrt	$0,016 \pm 0,005$		< 0,14	$0,144 \pm 0,016$		< 0,5
2	31 mrt - 07 apr	< 0,012		< 0,12	$0,158 \pm 0,015$		< 0,4
3	07 apr - 14 apr	< 0,012		< 0,13	$0,113 \pm 0,015$		< 0,5
4	21 jul - 28 jul	< 0,013		< 0,14	$0,182 \pm 0,017$		< 0,5
5	28 jul - 04 aug	< 0,013		< 0,15	$0,167 \pm 0,018$		< 0,5
6	22 sep - 29 sep	< 0,015		< 0,15	$0,120 \pm 0,017$		< 0,5
7	20 okt - 27 okt	$0,020 \pm 0,006$		< 0,16	$0,118 \pm 0,018$		< 0,6
8	24 nov - 01 dec	< 0,015		< 0,16	$0,099 \pm 0,017$		< 0,6

6 Bijlage B Bemonstering en meting door NRG in 2019

Procedures geldig ten tijde van rapportageperiode 2019.

Bemonsterings- en meetplan voor radioactieve stoffen in gereinigd afvalwater uit de zeeleiding: 2002.

Monsterneming NRG

Per week kunnen bij NRG, in "batches" van 75 m³ een of meer lozingen van gereinigd afvalwater op de Noordzee plaatsvinden. Bij de lozing voert NRG een automatische debiet proportionele bemonstering uit met het Hobre-systeem (omvat tevens de koeling en conservering), waarbij per batch van 75 m³ een monster van ca. 4 liter wordt genomen. Het weekmonster wordt opgevangen in een polytheen verzamelvat van 25 liter waarin ter conservering van het monster reeds 400 ml verdund salpeterzuur (1:1) is afgewogen. Na verwisseling van het vat aan het begin van een nieuwe lozingsweek wordt uit het verzamelvat onder roeren een deelmonster van 1 liter genomen voor RIVM en een deelmonster van 1 liter voor NRG. Aan beide deelmonsters wordt een evenredige hoeveelheid drageroplossing toegevoegd om het optreden van inhomogeniteiten en adsorptie aan de fleswand tegen te gaan⁷. De deelmonsters worden vervolgens tot moment van verwerking opgeslagen in een koelkast.

Analyseprocedure NRG

Van elk weekmonster worden de volgende concentraties bepaald:

- **Gammastralers**
Voor de bepaling van activiteitconcentratie van de gamma-emitterende radionucliden wordt onder roeren 250 ml van het deelmonster afgewogen in een 500 ml polytheenfles. Om uitzakken van het monster tijdens de meting te voorkomen wordt 10 gram geleermiddel, behangplaksel merk Perfax blauw, aan het monster toegevoegd en goed gemengd. Het aldus gegeleerde monster wordt gedurende 16 uur gemeten op een N-type high-purity germanium detector in lage-achtergrond meetopstelling. De methode is conform NEN 5623. Daarnaast voldoet de meetmethode aan de door de Duitse overheid gehanteerde normen zoals weergegeven in het voorschrift KTA-1504.
- **Totaal alfa-bepaling.**
De bepaling van de totaal alfa wordt uitgevoerd met behulp van ZnS-scintillatiemetingen. Van het gehomogeniseerde monster wordt in twee monstervaatjes elk 5 ml gepipetteerd.. Aan een van de monstervaatjes wordt een bekende hoeveelheid ²⁴¹Am-oplossing toegevoegd. Vervolgens worden beide monsters ingedampt tot droog op vooraf geprepareerde rvs-plaatjes met een diameter van 35 mm en gedurende 16 uur geteld onder een scintillatieteller met een lage achtergrond. Uit de additie van de ²⁴¹Am-oplossing wordt de correctiefactor bepaald voor de zelfabsorptie in het ingedampte preparaat ten gevolge van de

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

- Tritium en totaal bèta-bepaling
Tritium en totaal bèta's worden bepaald met behulp van vloeistofscintillatie-spectrometrie volgens een methode waarbij gecorrigeerd wordt voor quenching.
Na homogeniseren van het monster wordt ongeveer 50 ml overgebracht in een bekersglas met daarin een driepoot met een opvangbakje. Vervolgens wordt 250 mg Na₂CO₃ toegevoegd en verwarmd tot kookpunt. Na enige minuten koken wordt het bekersglas afgedekt met een rondbodemkolf gevuld met ijswater en wordt het tritium na condenseren opgevangen in het opvangbakje. Het opvangbakje bevat uiteindelijk 15-20 ml destillaat. Vervolgens wordt 10 ml destillaat gemengd met 10 ml Ultima Gold LLT en m.b.v. de LSC wordt gedurende 5 maal 6 minuten de activiteit in de energieband 0-19 keV bepaald. De methode is conform NEN-EN-ISO 9698, echter er wordt geen natriumthiosulfaat toegevoegd.

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

Referenties van NRG

- 1 ECN-CX--96-059, C.J.H. van Maurik, A.W. van Weers. *Bemonsterings- en meetplan voor radioactieve stoffen in het afvalwater uit de zeeleiding*. maart 1998.
- 2 ECN-R--97-003, N.D. Engeltjes, C.J.H. van Maurik, T.J.H. de Groot, J. Zwaard, A.W. van Weers. *Testresultaten van het Hobre-systeem voor bemonstering van radioactief afvalwater uit de zeeleiding*. Oktober 1997.
- 3 Weers AW van, Maurik CJH van, Groot TJH de. *Vergelijking Gamma-metingen van zeelozingsmonsters COBRA versus Hobre*. NRG-rapport 25115.20.30/99.22940. Petten, NRG, 16 juni 1999.

7 Referentie

- [1] Project M/390020/19/SM – Jaarplan 2019; besproken op 12-12-2018 met P. Arends (ANVS); aangepaste versie op 9-1-2019 akkoord bevonden.
- [2] 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.
- [3] KTA 1504. Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Wasser. KTA, 2017-11.
- [4] NEN 5623. Radioactiviteitsmetingen - Bepaling van de activiteit van gammastraling uitzendende nucliden in een telmonster met halfgeleider-gammaspectrometrie. Nederlands Normalisatie Instituut. NEN, Delft.
- [5] 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.
- [6] NEN 6421. Water. Bepaling van de totale bèta-activiteitsconcentratie en rest- bèta-activiteitsconcentratie van niet vluchtige bestanddelen. Delft, Nederlands Normalisatie Instituut. NEN, Delft, 2006.
- [7] Voorschrift monstervoorbereiding en monsterbehandeling van vloeibare afvalstoffen. Brief van VLH aan de nucleaire installaties d.d. 18 september 1990, kenmerk 1364/90 VLH Sm/eh.
- [8] 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.
- [9] NEN 1047. Receptbladen voor de statistische verwerking van waarnemingen. Nederlands Normalisatie Instituut. NEN, Delft, 1991.
- [10] NEN 3114. Nauwkeurigheid van metingen, termen en definities. Delft, Nederlands Normalisatie Instituut. NEN, Delft, 1990.
- [11] I. Krol, Ch. Lucks, Kontrolle der Eigenüberwachung Radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (Abwasser), Ringversuch "Abwasser 2019", August 2019, UR – 01/2019, Bundesamt für Strahlenschutz, Abteilung Umweltradioaktivität, Berlin/München, Duitsland.
- [12] Nuclear Research and Consultancy Group. E-mail van J. Kok (NRG) aan P. Kwakman (RIVM) met een bijgevoegde Excel sheet met lozingsdata :
 - Radioactieve componenten zeelozing :*
 - NRG 1e kwartaal 2019 d.d. 18 april 2019.
 - NRG 2e kwartaal 2019 d.d. 15 juli 2019.
 - NRG 3e kwartaal 2019 d.d. 11 oktober 2019.
 - NRG 4e kwartaal 2019 d.d. 30 december 2019.
 - Radioactieve componenten in HFR lozingslucht :*
 - E-mail van J. Kok (NRG) aan P. Kwakman (RIVM) met een

bijgevoegde Excel sheet met lozingsdata "NRG_koolpakket_2019", d.d. 30-12-2019.

- [13] Contra-expertise op bepalingen van radioactiviteit in afvalwater en ventilatielucht van NRG. Periode 2018. RIVM Briefrapport 2019-0162. P.J.M. Kwakman
- [14] Environmental Radioactivity in The Netherlands. Results in 2019. CP Tanzi, editor. RIVM rapport 2019-0216, Bilthoven, Netherlands.

RIVM

De zorg voor morgen begint vandaag