
Klei van Boom

Een analyse van sedimentmonsters
afkomstig uit de Westerschelde.

J. Limburg

Medusa Explorations BV project 2001-P-007

In opdracht van RIKZ, opdrachtnummer 67010395

mei 2001

Samenvatting

Dit rapport beschrijft de resultaten van de analyse van een 13-tal sedimentmonsters afkomstig van twee lokaties in de Westerschelde. Doel van de analyse is te bepalen of er zich aantoonbare hoeveelheden materiaal uit de boorspecie van de Westerscheldetunnel in de monsters bevinden en of er zicht te krijgen is op de sedimentatiesnelheid in de bemonsterde gebieden.

Het resultaat van de analyse is dat er zich ten oosten van de tunnelboring inderdaad specie afgezet heeft, de afchatting is dat er zich in de bovenste 5cm van de "oostelijke" monsters tussen de 10% en 40% Boomse klei bevindt, hetgeen overeenkomt met een laagje van tussen de 0.5 en 2cm dikte.

Inhoud

SAMENVATTING	2
INHOUD	3
1 MEETOPSTELLINGEN EN PROCEDURE	4
1.1 Monsterbehandeling	4
1.2 HpGE metingen	4
1.3 Corelogger metingen	5
2 RESULTATEN	6
2.1 Resultaten hpGe metingen	6
2.2 Resultaten Pharos metingen	8
2.3 Overwegingen	9
3 CONCLUSIES EN AANBEVELINGEN	11

Meetopstellingen en procedure

1.1 Monsterbehandeling

20 maart 2001 is door RIKZ-RWS Zeeland een serie van 13 sedimentmonsters en vier bevroren sedimentkernen van elk 50cm lengte aan Medusa Explorations BV aangeboden ter bepaling van de radioactiviteit. Medusa Explorations BV heeft vervolgens uitvoering van de radioactiviteitsmeting uitbesteed aan de Nuclear Geophysics Division van het KVI in Groningen.

De aangeleverde monsters werden (22 maart 2001) overgebracht in Marinellibekers voor de gamma-spectrometrische bepalingen. De monsters werden nat aangeleverd. Voor het overbrengen in de Marinellibekers is eerst het bovenstaande water afgegoten. Hierna zijn de monsters in natte vorm in de Marinellibekers gebracht. De bekiers werden daarna luchtdicht afgesloten ter voorkoming van het ontsnappen van radongas. De tijd tussen afdichten en meting bedroeg meer dan drie weken zodat gedurende de meting de activiteiten van radium, radon, en radondochters nagenoeg gelijk verondersteld mogen worden. Na de gamma-spectrometrische bepalingen is van alle monsters een zo groot mogelijke fractie in een ovenschaal overgebracht en zijn deze fracties gedroogd (bij 105°C) tot constante massa. Via massabepalingen voor en na drogen is van alle monsters de fractie vaste stof bepaald.

De sedimentkernen zijn meteen na ontvangst in de koeling gelegd, waarbij de temperatuur op een constante waarde van -4 °C is gehouden.

1.2 HpGE metingen

De metingen van γ -straling met $120 < E < 2700$ keV zijn uitgevoerd met een 6 cm ϕ x 8 cm HPGe-detector in een lage-achtergrond opstelling (een loodkasteel met een wanddikte van 10 cm).

De meet- en analyseprocedure geschiedt conform de Nederlandse voornorm voor γ -spectrometrische bepalingen NVN 5623 [VN91]. De meettijd van de monsters varieert tussen de 6 en 40 uur. Deze meettijden leveren meer dan voldoende meetstatistiek. De natuurlijke radionucliden die verwacht mogen worden zijn 40K, en de nucliden van de 232Th-reeks en 238U-reeks.

De activiteit van nucliden uit de 238U reeks wordt bepaald aan de hand van het verval van 214Bi en 214Pb. Indien er geen radon ontsnapt uit de monstermatrix is de activiteitconcentratie van 226Ra gelijk aan die van 214Bi en 214Pb. Indien dit wel mogelijk is zal de activiteitconcentratie van 226Ra hoger zijn dan die van 214Pb en 214Bi. De 232Th activiteit is bepaald m.b.v. enkele g-lijnen van dochternucliden. De activiteit van 40K is bepaald uit de 1461 keV g-lijn.

In de monsters is ook activiteit aangetoond van 137Cs, 60Co en 7Be. De activiteit van deze radionucliden is bepaald aan de hand van de volgende g-lijnen, 662 keV (137Cs), 1173 en 1332 keV (60Co) en 478 keV (7Be)

De inhoud van alle pieken zijn gecorrigeerd voor de achtergrondstraling in de meetopstelling.

Alle γ -metingen zijn uitgevoerd in een standaard meetopstelling met een vaste geometrie ten opzichte van de Ge-detector. Het telrendement van deze geometrie is absoluut gekalibreerd met waterige oplossingen van diverse nucliden met bekende activiteiten. Er is gecorrigeerd voor zelfabsorptie in het monster.

1.3 Corelogger metingen



De metingen aan de sedimentkernen zijn uitgevoerd met de op het KVI ontwikkelde "Pharos" opstelling. Deze opstelling – ook wel de "corelogger" genoemd, bevat een tweetal detectoren ter bepaling van de γ -activiteit van gestoken sedimentkernen met een doorsnede van 10 cm. In bijgevoegd KVI rapport P004 is een uitvoerige beschrijving te vinden van het werkingsprincipe van het apparaat. We volstaan derhalve in dit rapport met de resultaten van de corelogger metingen (zie verderop).

*Pharos opstelling op
KVI*

2 Resultaten

2.1 Resultaten hpGe metingen

De uit de gemeten piekinhouden berekende activiteitconcentraties in becquerel per kilogram nat gewicht, zijn vermeld in tabel 1. In tabel 2 staan de activiteitsconcentraties per kilogram droog gewicht. De opgegeven onzekerheden geven één standaardafwijking (1 σ) ten gevolge van telstatistiek weer. Systematische onzekerheden, ten gevolge van onzekerheden in de absolute rendementskalibratie, zijn niet opgegeven, maar bedragen ten hoogste 5%. Tabellen 3, 4 en 5 bevatten resp. de verschilconcentraties, de gemiddelde concentraties en de monsterlokatie.

Tabel 1: Activiteitconcentraties in Bq kg⁻¹ (nat gewicht)

Monstercodering		massa (g)	Activiteitsconcentraties (Bq kg ⁻¹)					
MEDUSA	KVI		⁴⁰ K	²¹⁴ Pb/ ²¹⁴ Bi	²³² Th	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	⁷ Be
644-5cm	01-ZM-059	696.6	207±4	12.5±0.4	12.4±0.5	2.29±0.09	1.15±0.04	4.6±0.4
644-15cm	01-ZM-060	795.5	230±5	14.8±0.5	13.8±0.3	2.05±0.14	0.46±0.07	<2.0
655-5cm	01-ZM-061	794.9	247±4	15.3±0.4	14.8±0.4	1.93±0.05	0.02±0.01	3.5±0.2
655-15cm	01-ZM-062	897.3	253±5	15.1±0.5	14.1±0.4	1.41±0.11	0.38±0.06	<1.8
666-5cm	01-ZM-063	821.1	256±4	14.3±0.4	14.0±0.5	1.91±0.09	0.52±0.08	2.4±0.4
666-15cm	01-ZM-064	727.0	299±5	15.0±0.5	16.2±0.5	1.10±0.08	0.34±0.05	<1.6
722-5cm	01-ZM-065	760.5	237±4	12.1±0.3	12.2±0.5	1.67±0.06	0.75±0.03	4.8±0.3
722-15cm	01-ZM-066	816.8	252±4	13.1±0.4	13.1±0.5	1.85±0.09	0.76±0.05	<1.6
733-5cm	01-ZM-067	864.2	233±4	10.9±0.3	11.0±0.4	1.34±0.07	0.67±0.04	3.2±0.3
733-15cm	01-ZM-068	820.9	260±5	12.7±0.5	13.0±0.6	1.61±0.13	0.57±0.07	<1.9
778-5cm	01-ZM-069	944.5	263±4	9.0±0.3	7.9±0.3	0.68±0.07	0.13±0.04	2.4±0.3
778-15cm	01-ZM-070	966.4	254±4	8.9±0.2	7.6±0.2	0.56±0.06	0.15±0.04	<1.5
Referentie	01-ZM-071	970.2	259±4	8.6±0.3	6.6±0.2	0.47±0.08	<0.3	<1.5

* De vermelde massa is die van het natte monster in onze meetbekers (Volume 0.5 liter).

Tabel 2: Activiteitconcentraties in Bq.kg⁻¹ (droog gewicht)

Monstercodering		f (g/g)*	Activiteitsconcentraties (Bq kg ⁻¹)					
MEDUSA	KVI		⁴⁰ K	²¹⁴ Pb/ ²¹⁴ Bi	²³² Th	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	⁷ Be
644-5cm	01-ZM-059	0.452	458±9	27.7±0.8	27.5±1.1	5.1±0.2	2.55±0.09	10.2±0.9
644-15cm	01-ZM-060	0.595	386±8	24.9±0.8	23.2±0.5	3.4±0.2	0.77±0.12	<3.4
655-5cm	01-ZM-061	0.589	419±7	26.0±0.7	25.1±0.7	3.28±0.08	0.04±0.02	5.9±0.3
655-15cm	01-ZM-062	0.697	363±7	21.7±0.7	20.2±0.6	2.02±0.16	0.54±0.09	<2.6
666-5cm	01-ZM-063	0.604	424±7	23.7±0.7	23.2±0.8	3.16±0.15	0.86±0.13	4.0±0.7
666-15cm	01-ZM-064	0.607	492±8	24.7±0.8	26.7±0.8	1.81±0.13	0.56±0.08	<2.6
722-5cm	01-ZM-065	0.578	410±7	20.9±0.6	21.1±0.9	2.89±0.10	1.30±0.05	8.3±0.5
722-15cm	01-ZM-066	0.649	388±6	20.3±0.5	20.2±0.8	2.85±0.14	1.16±0.07	<2.5
733-5cm	01-ZM-067	0.622	374±6	17.6±0.6	17.6±0.7	2.15±0.11	1.08±0.06	5.1±0.5
733-15cm	01-ZM-068	0.664	392±8	19.1±0.8	19.6±0.9	2.43±0.20	0.86±0.11	<2.9
778-5cm	01-ZM-069	0.764	344±5	11.8±0.4	10.3±0.3	0.89±0.09	0.17±0.05	3.1±0.4
778-15cm	01-ZM-070	0.774	328±5	11.5±0.3	9.9±0.3	0.72±0.08	0.19±0.06	<1.9
Referentie	01-ZM-071	0.830	312±5	10.4±0.3	8.0±0.3	0.57±0.10	<0.36	<1.8

Tabel 3: verschillen tussen de concentraties: 5cm – 15cm.

Monster	40K	238U	212Th	137Cs	60Co	7Be
644	72.2	2.9	4.3	1.6	1.8	6.8
655	56.5	4.3	4.9	1.3	-0.5	3.4
666	-68.3	-1.0	-3.5	1.4	0.3	1.3
722	21.4	0.6	0.9	0.0	0.1	5.8
733	-17.3	-1.6	-2.0	-0.3	0.2	2.3
778	16.2	0.3	0.4	0.2	0.0	1.2

Tabel 4: gemiddelde activiteit in series 6xx en 7xx.

Monsters	40K	238U	232Th	137Cs	60Co	7Be
Gem. 6xx	424	25	24	3	1	5
Gem. 7xx	373	17	16	2	1	4

Tabel 5: monsterlokaties in RDC

Monster	X (RDC)	Y (RDC)	Z (m NAP)
644	47475.914	373043.144	-0.95
655	47483.629	373112.62	-1
666	47491.304	373182.148	-1.2
722	39611.886	374909.986	0.4
733	39612.539	375016.826	0.58
778	41084.831	374654.889	0.58

De monsters 644 en 655 laten een significante toename zien in concentraties van alle drie relevante nucliden K, U en Th, voor de bovenste 5 cm. Monster 666 laat een bijna evengrote afname zien voor alle drie nucliden, ook weer voor de bovenste 5 cm. Het 15cm monster 666 heeft ongeveer dezelfde activiteit als de 5cm versies van lokaties 664 en 665. Monsterserie 7xx laat nauwelijks variatie zien tussen de 5cm en 15cm versies, en de monsters 7xx vertonen over het geheel genomen een lagere activiteit dan de 6xx monsters (zie tabellen 1 t/m 4). Tenslotte: tabel 5 leert dat monsterserie 6xx *ten oosten* van de speciestort is genomen, en serie 7xx *ten westen* daarvan. Verder valt op dat de 6xx monsters zijn genomen op plaatsen die zo'n 1.5m lager liggen dan de 7xx monsters.

2.2 Resultaten Pharos metingen

De twee gestoken kernen zijn met behulp van Pharos, de corelogger, bemeten. Met het apparaat is in stappen van 2 cm het ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th , en ^{137}Cs – concentratieprofiel bepaald. De resultaten zijn weergegeven in tabellen 6 en 7.

Tabel 6: Resultaten Pharos meting core 644 (links) en 722 (rechts)

Kern 644				
Diepte (cm)	40K	238U	232Th	137Cs
	($\pm 40\%$)	($\pm 33\%$)	($\pm 33\%$)	($\pm 100\%$)
0	312	4	16	3
2	300	9	12	2
4	301	13	7	0
6	304	8	7	4
8	313	9	11	4
10	339	21	28	-5
12	344	21	30	0
14	350	19	19	7
16	349	13	14	5
18	342	17	23	3
20	348	16	21	-6
22	325	19	21	-1
24	323	14	44	-3
26	386	25	41	-4
28	399	25	37	4
30	355	29	41	2
32	362	21	29	0
34	442	12	26	-2
36	436	25	41	4
38	339	24	45	-4
40	344	19	49	-6
42	373	31	44	-5
44	378	15	34	0
46	323	16	17	9
48	328	11	30	7

Kern 722			
40K	238U	232Th	137Cs
($\pm 40\%$)	($\pm 33\%$)	($\pm 33\%$)	($\pm 100\%$)
303	9	21	1
130	5	25	-1
131	7	7	18
163	5	9	10
408	10	10	9
375	14	14	13
380	14	18	-2
360	18	18	6
369	13	16	3
330	18	21	6
331	18	18	4
355	17	20	2
220	19	23	18
302	22	25	4
353	23	23	4
389	27	23	5
400	29	37	3
315	18	31	4
316	12	23	4
322	15	21	4
316	21	26	4
345	13	13	11
352	29	37	-4
285	31	24	3
287	25	56	2

Wat opvalt is dat noch kern 644, noch kern 722 een duidelijk Cs profiel bevatten¹. Daarnaast is opvallend dat kern 644 gemiddeld zelfs geen Cs bevat, kern 722 bevat gemiddeld 5 Bq/kg Cs. Verder valt op dat er voor beide kernen een asymetrie bestaat tussen de U en Th waarden: de verhouding U:Th is ongeveer 1:1.5. Deze “scheve” verhouding wijkt af in vergelijking met de resultaten van de hpGe analyses van tabel 2. Eén van de belangrijkste redenen voor dit effect is het verschil in analyse: de hpGe-monsters zijn drie weken “ingesealed” geweest. De tijd tussen afdichten en meting bedroeg meer dan drie weken zodat gedurende de meting de activiteiten van radium, radon, en radonochters nagenoeg gelijk verondersteld mogen worden. Dit is niet

¹ Dit Cs profiel zou verwacht mogen worden als “overblijfsel” van de Chernobyl ramp in 1986. Bij deze ramp is een – lokaal verschillende – hoeveelheid Cs over Nederland uitgestrooid. Deze laag kan in sommige sedimenterende gebieden terug gevonden worden op een bepaalde diepte onder het maaiveld en geeft daarmee een indicatie voor de sedimentatiesnelheid sinds 1986. Dwz: door de diepte te bepalen van de Cs-piek, en deze te delen door het aantal jaren verstreken sinds 1986, wordt de sedimentatiesnelheid bepaald in cm per jaar.

het geval voor de kernen: deze zijn "open": het Radon gas dat ontstaat kan ontsnappen waardoor het evenwicht in de ^{238}U -reeks verstoord wordt. De afwijking die hierdoor in het bepaalde ^{238}U -gehalte wordt veroorzaakt kan tot 20% bedragen.

2.3 Overwegingen

Om de variaties in de 6xx monsters te kunnen verklaren, is informatie nodig over de activiteit van de gestorte specie en het "achtergrondmateriaal" (de slib die "van nature" afgezet wordt). Uit de monstercampagne van 2000, n.a.v. de Medusa metingen in het gebied in 1999 (zie KVI rapport S72), kunnen een aantal typische fingerprints worden opgesteld voor Boomse klei, slib afkomstig van de noordoever en slib afkomstig van de zuidoever van de Schelde:

Tabel 7: Fingerprints v/e aantal sedimenttypes uit de Schelde (gegevens genomen a.d.h.v. rapportage KVI S72). Getallen zijn – voor zover mogelijk – gemiddeld over een aantal monsters. De 2^e kolom duidt de monsters aan die gebruikt zijn voor de middeling

Type sediment	Monsters #	40K	238U	232Th
Boomse Klei/Boorspecie	110-113	734	39	40
"Slib Zuid"	104-106	354	19	15
"Slib Noord"	107-109	421	22	23

Uit deze fingerprint is af te leiden dat de concentraties gevonden in de 7xx serie monsters sterk lijken op de "Slib-zuid" fingerprint. Echter, de 6xx serie lijkt eerder op slib-noord: de concentraties zijn over de gehele linie groter dan de 7xx serie.

De concentraties gevonden in monsters 644 en 655 zijn - met name voor de 5 cm toplaag monsters - ook groter dan de Slib Noord fingerprint. Dit geldt merkwaardigerwijs ook voor het 15cm monster 666. Het 5cm monster 666 heeft ongeveer dezelfde K, U, Th concentraties als "slib noord".

Dit alles wijst erop dat de monsters uit de 6xx serie "verrijkt" zijn met Boomse klei. Er is – in de ons bekende monsterset als gerapporteerd in KVI rapport S72 – geen enkel "natuurlijk" Scheldeslibmonster te vinden dat een fingerprint heeft die bij benadering overeenkomt met die van de 6xx monsters. Bovendien lijkt het dat de concentratie Boomse klei toeneemt voor de toplaag.

Afschatting hoeveelheid Boomse Klei in toplaag

Op basis van de fingerprints die in tabel 7 geconstrueerd zijn, kan een ruwe inschatting worden gemaakt van de hoeveelheid Boomse Klei die zich in de toplaag van monsters 644 en 655 zou kunnen bevinden. Als de toplaag bestaat uit slibtypes "slib zuid" of "slib noord" gemixed met boorspecie, dan kan de hoeveelheid bijgemengde boorspecie bepaald worden uit de vergelijking

$$x(C_{K,U,Th} \text{ Boomse Klei}) + (1-x) (C_{K,U,Th} \text{ Scheldeslib}) = (C_{K,U,Th} \text{ Monsters}),$$

waarin x de massafractie Boomse Klei in het monster voorstelt. Tabel 8 laat de aldus benaderde fracties Boomse Klei zien voor alle monsters 6xx en 7xx:

Tabel 8: *Fracties Boomse Klei in de 6xx en 7xx monsters*

Monsters	x (Slib Zuid)	x (Slib Noord)
644-5cm	40%	24%
644-15cm	23%	2%
655-5cm	31%	12%
655-15cm	12%	0%
666-5cm	25%	4%
666-15cm	37%	20%
722-5cm	16%	0%
722-15cm	12%	0%
733-5cm	3%	0%
733-15cm	10%	0%
778-5cm	0%	0%
778-15cm	0%	0%

Getuige de getallen in tabel 8 bevindt er zich tussen de 10% en 40% Boomse klei in de 6xx hpGe monsters. Als zich deze hoeveelheid volledig in het bovenste 5cm zou bevinden, betekent dat een laag van tussen de 0.5 en 2cm dikte. Dit zijn laagdiktes die met het Medusa systeem in-situ bepaald kunnen worden (zie ook rapport S72).

Boorkernen

De boorkernanalyses zijn met name verricht om te zien of er een ^{137}Cs profiel te herkennen is. Zoals eerder vermeld is dit profiel binnen de vermelde onnauwkeurigheid van de meetresultaten in beide geanalyseerde kernen niet terug te vinden. Dit kan twee dingen betekenen:

1. De sedimentatiesnelheid in de bemonsterde gebieden is zo groot dat de ^{137}Cs laag "neergeregend" na het Chernobyl incident in 1986, dieper ligt dan zo'n 50 cm. Dit zou betekenen dat de sedimentatiesnelheid in het gebied minimaal op zo'n 3 cm per jaar zou moeten liggen;
2. De bemonsterde gebieden zijn dermate verstoord (geweest) dat het ^{137}Cs volledig gemengd is geworden, of is uitgespoeld.

Uitsluitsel over deze vraag kan slechts verkregen worden door een langere kern te steken, bijvoorbeeld van 1m lengte.

Een vergelijking van de K, U en Th waarden gevonden in de boorkern met de getallen in tabel 2 laat zien dat er een redelijke overeenkomst bestaat tussen de boorkernwaarden en de waarden bepaald op de hpGe. Wat opvalt, is dat er in beide kernen een trend lijkt te bestaan naar grotere totale activiteit naarmate de diepte groter wordt. Dit komt zeer waarschijnlijk doordat het watergehalte dieper in de kern afneemt. De boorkernconcentraties zijn gecorrigeerd voor een gemiddeld gehalte aan water in de kern, er is daarbij geen rekening gehouden met variatie van dat gehalte met de diepte.

3 Conclusies en aanbevelingen

De belangrijkste conclusies van het hier gepresenteerde onderzoek zijn:

1. Dat er ten oosten van de stort een lichte verhoging van de natuurlijke radioactiviteit te zien is in de top-5 cm laag van twee van de drie monsters; ten westen is geen effect waar te nemen
2. Dat van het derde oostelijke monster de volledige 15cm in activiteit is verhoogd;
3. Dat deze verhoging niet verklaard kan worden depositie van sediment dat uit de Schelde zelf afkomstig is – althans Scheldesediment dat in het kader van vorige proeven is geanalyseerd op radiometrie;
4. Dat de toename wel verklaard kan worden door aan te nemen dat er Boomse klei is afgezet met een karakteristieke activiteit als eerder gevonden in monsters uit de stort van de Westerscheldetunnel, en wel met een mengpercentage van enige tientallen procenten, dwz: een laag van 0.5 tot 2cm dikte;
5. Dat de hoeveelheid dusdanig groot is, dat ze in-situ mbv Medusa metingen bepaald moet kunnen worden;
6. Dat er geen ^{137}Cs pieken afkomstig van het Chernobyl experiment zijn gevonden hetgeen betekent dat de sedimentatiesnelheid in de gebieden groter zijn dan zo'n 3cm per jaar, of – waarschijnlijker – de bemonsterde gebieden dermate verstoord zijn (geweest) dat het ^{137}Cs volledig gemengd is geworden, of is uitgespoeld.

Om de stelling dat er zich Boomse klei in de (toplaag van de) 6xx monsters bevindt te staven, zou bijvoorbeeld dmv ICP-MS metingen, onderzocht kunnen worden of er zich antropogene metalen in de toplaag van de monsters bevinden. Dergelijke metalen zou men niet verwachten in de Boomse klei afkomstig uit de Scheldetunnel.