

Radioactieve stoffen in de zoute wateren

Evaluatie monitoring 1985-1997
Aanbeveling meetprogramma 1999-2005

Rapport RIKZ/2000.041

Radioactieve stoffen in de zoute wateren

Evaluatie monitoring 1985-1997
Aanbeveling meetprogramma 1999-2005

Rapport RIKZ/2000.041

E.J. de Jong en O.C. Swertz

Den Haag, juli 2000

Voorwoord

.....

Het rapport is opgesteld door Els de Jong, destijds expert radioactiviteit bij het RIZA, en Otto Swertz, projectleider chemische monitoring bij het RIKZ (Postbus 20907, 2500 EX Den Haag, tel. 070-311 43 11). De studie is verricht conform de afspraken tussen RIZA en RIKZ (vastgelegd in de brieven met RIKZ-kenmerken IOL/937387 en RIKZ/ITLC-965592 en RIZA-kenmerken IO/188,IM/7582). Verschillende medewerkers van vooral Rijkswaterstaat hebben een bijdrage geleverd, in discussie of via commentaar. Speciale dank gaat uit naar Theo Klomberg (VROM), Jan de Reus (DNN), Bert van Munster (RIZA), Remi Laane, Foppe Smedes en Hans van Zeijl (RIKZ) voor hun bijdrage aan de succesvolle brainstormsessie in oktober 1998. Ineke Toubert (ATT vertaling) heeft de redactie en vertaling verzorgd. Mike Kortekaas wordt bedankt voor de laatste inhoudelijke en tekstuele redactieslag en Richard Duin voor de herschrijving van de moeilijkste formules.

Voorwoord	2
Samenvatting	4
Summary	6

1 Inleiding 9

2 Samenvatting en aanvulling WSV-stofstudies 11

2.1 Wat zijn radioactieve stoffen?	11
2.2 Stofeigenschappen van doelvariabelen	13
2.3 Achtergrondwaarden van radioactieve stoffen	14
⁹⁹ Techneetium 15; Plutonium-isotopen 15; Antimoon 16	
2.4 Standaardisatie voor zwevende stof en sediment	16
Standaardbodemformule 16; Sedimentformule 16	

3 Doel en opzet van het huidige meetnet 19

4 Meetmethoden tot 1999 21

4.1 Metingen in water	21
Totaal- α 21; Totaal- β 21; Tritium 22; ⁸⁹ Strontium en ⁹⁰ Strontium 22; ²²⁶ Radium 22	
4.2 Metingen in zwevende stof en sediment	23
γ -stralers 23; Totaal- α en totaal- β 23; Lood-210 en Polonium-210 23	

5 Gegevensanalyse 1985-1997 25

5.1 Totaal- α -straling	25
5.2 Rest- β -straling	29
5.3 Tritium	31
5.4 Strontium	33
5.5 ²²⁶ Radium, ²¹⁰ Lood en ²¹⁰ Polonium	35
5.6 ¹³⁷ Cesium	36
5.7 Cobalt-isotopen	37
5.8 Relatie individuele nucliden met totaal- α en rest- β	37

6 Monitoring vanaf 1999 39

6.1 Informatiebehoefte	39
Algemene opzet monitoringprogramma 39; Normen voor radioactieve stoffen in zout water 40; Nationale en internationale verplichtingen 40	
6.2 Meetstrategie	42
Doelvariabelen 42; Meetlocaties 44; Compartimentkeuze 46	
6.3 Monitoringprogramma 1999 -2005	47

7 Conclusies en aanbevelingen 51

Referenties	53
Afkortingen	57

Bijlage 1 Stofeigenschappen	58
Bijlage 2 Achtergrondconcentraties	59
Bijlage 3 Standaardisering in zoete wateren (standaardbodemformule)	60
Bijlage 4 Standaardisering in zoute wateren (sedimentformule)	62
Bijlage 5 Onderzoeksvoorstel voor standaardisering	65

Monitoring van radioactieve stoffen

De aanbeveling voor een aangepast monitoringprogramma voor radioactieve stoffen, zoals in dit rapport te vinden, is reeds in 1999 ingevoerd. Met dit rapport is het monitoringprogramma voor radioactieve stoffen volledig onderbouwd. Het rapport is gebaseerd op de bestudering van literatuur en historische meetgegevens. Tevens is er een brainstorm-sessie met vertegenwoordigers van verschillende disciplines aan vooraf gegaan.

De voornaamste doelstelling van monitoring is “een vinger aan de pols houden” en qua meetkennis voorbereid zijn op een eventuele calamiteit. De voornaamste potentiële lozers in de zoute wateren zijn de opwerkingsfabrieken en, in mindere mate, de kerncentrales. Een andere bron van radioactieve stoffen is de procesindustrie. Hoewel geen grote calamiteuze lozingen van deze industrieën zijn te verwachten, kunnen de huidige lozingen niet worden genegeerd. In de Westerschelde en de Nieuwe Waterweg leiden deze tot overschrijding van de streefwaarde.

Evaluatie meetgegevens periode 1985 t/m 1997

Om de invloeden van de opwerkingsfabrieken in Le Havre (Frankrijk) en Sellafield (Groot-Brittannië) te monitoren worden tritium en $^{90}\text{Strontium}$ gemeten. De meetresultaten van deze nucliden samen met de indicatieve parameters totaal- α en rest- β tonen de invloed van de opwerkingsfabriek in Le Havre aan. De concentraties van deze parameters nemen naar het noorden toe af. De invloed van de opwerkingsfabriek in Sellafield is niet aantoonbaar in de Nederlandse deel van de Noordzee. De verhouding tussen de concentraties en de streefwaarde (de toetsratio) varieert voor totaal- α van 0,89 in het zuidelijkste watersysteem tot 0,42 in het noordelijkste systeem. Voor rest- β varieert deze toetsratio minder duidelijk van 0,31 in de Voordelta tot 0,27 in de centrale Noordzee.

Tritium en $^{137}\text{Cesium}$ worden door kerncentrales geloosd. Het dalende concentratieverloop van tritium op de Westerschelde, waarbij de toetsratio van 1,30 daalt tot 0,26, wordt veroorzaakt door de kerncentrale in Doel. Bij Schaar van Ouden Doel wordt de streefwaarde voor tritium overschreden. $^{226}\text{Radium}$, $^{210}\text{Lood}$ en $^{210}\text{Polonium}$ zijn nucliden uit de uraanvervalketen die door de procesindustrie worden geloosd. Op de Westerschelde wordt de norm voor het zoete oppervlaktewater voor totaal- α overschreden met een factor 2. Voor de individuele nucliden zijn te weinig metingen beschikbaar om betrouwbare uitspraken te kunnen doen.

Trendbreuk totaal- α en rest- β

Tussen 1990 en 1993 zijn er op de meeste meetlocaties voor totaal- α lagere waarden geconstateerd. Na deze periode nemen de concentraties weer toe. De meetreeks op de locatie Schaar van Ouden Doel vertoont dit concentratieverloop niet. Er zijn drie mogelijke verklaringen voor de lagere waarden in de periode 1990 t/m 1993:

1. In de periode 1990 t/m 1993 was de tijd tussen monsternamen en analyse extreem lang, zodat door absorptie aan de fleswand en verval de meetwaarden lager kunnen zijn uitgekomen. Dit is de meest voor de hand liggende verklaring.

2. In 1994 heeft het radiochemisch laboratorium nieuwe apparatuur met een lagere detectiegrens aangeschaft. Dit zou van invloed op de meetresultaten kunnen zijn.
3. Er was een tijdelijke lagere productie en lozing van de kunstmest-industrie in de Nieuwe Waterweg. In dezelfde periode met de lage meetresultaten in de Kustzone en Centrale Noordzee waren de waarden voor de locatie in de Nieuwe Waterweg ook een factor 2 en 3 lager dan voor en na 1990-1993.

Voor rest- β zijn de meetwaarden vanaf 1994 juist lager. De meest voor de hand liggende verklaring is de wijziging van meetapparatuur in deze periode.

Opzet monitoringprogramma 1999 t/m 2005

Voor de opzet van het meetnet is de monitoringscyclus gevolgd. Als eerste is in de informatiebehoefte een relatie gelegd tussen parameters en bronnen. De belangrijkste bronnen van radioactieve stoffen zijn: de opwerkingsfabrieken, kerncentrales en de procesindustrie. Voor het monitoringprogramma 1999 t/m 2005 is het nuclide $^{241}\text{Americium}$ toegevoegd, als representant voor van opwerkingsfabrieken afkomstige plutonium- en curium-isotopen.

Als tweede stap is de relatie tussen bronnen en de watersystemen gelegd. Alleen wanneer bronnen direct op een watersysteem lozen wordt intensief gemeten. Bij indirecte beïnvloeding door een bron wordt het watersysteem extensief gemeten. De gekozen locaties sluiten zoveel mogelijk aan bij historische reeksen. Verder is als randvoorwaarde gesteld dat de kosten van het nieuwe meetprogramma gelijk zijn aan het voorgaande.

Tabel 6

De relatie tussen bron en doelvariabelen. Voor alle bronnen worden ook de indicatieve parameters totaal- α en rest- β gemeten.

Bron	Doelvariabele 1987 t/m 1997	Doelvariabele 1999 t/m 2005
Opwerkings-fabrieken	Tritium (^3H), $^{90}\text{Strontium}$	Tritium (^3H), $^{90}\text{Strontium}$, $^{241}\text{Americium}$
Kerncentrales	Tritium (^3H), $^{137}\text{Cesium}$	Tritium (^3H), $^{237}\text{Cesium}$
Procesindustrie	$^{210}\text{Lood}$, $^{210}\text{Polonium}$, $^{226}\text{Radium}$	$^{210}\text{Lood}$, $^{210}\text{Polonium}$, $^{226}\text{Radium}$

Vervolgonderzoek

Het rapport doet meerdere aanbevelingen. De belangrijkste zijn hier samengevat:

- De metingen hebben tot nu toe plaatsgevonden in de waterfase en in zwevende stof. Voor 1999 wordt onderzocht of metingen in het sediment zinvol zijn.
- Voor normtoetsing van de metingen in zwevende stof en sediment is het nodig om de gegevens te standaardiseren. Er is aanvullend onderzoek nodig om de standaardiseringsparameters vast te stellen.
- Totaal- α en rest- β zijn indicatieve parameters, die geen één op één relatie met de individuele nucliden hebben. Deze relatie dient te worden vastgesteld.
- De invloed van lozingen van radioactieve stoffen door olieproductieplatforms op zee verdient nader onderzoek.
- Modellering kan de relatie tussen bron en concentratie aantonen. Speciale aandacht vraagt de bijdrage van de atmosferische depositie.

Summary

.....

Monitoring radioactive substances

The recommendations in this report for an adapted monitoring programme for radioactive substances were implemented in 1999. This report fully supports the monitoring programme for radioactive substances. For this report literature and historical measuring data were studied, and a brainstorming session was held by representatives of various disciplines.

The main objective for monitoring is 'to have a finger on the pulse' and, as far as monitoring methods are concerned, to be prepared for future calamities. The most likely causers of discharge are reprocessing plants and to a lesser extent nuclear power plants. Another source of radioactive substances is the processing industry. Although calamitous discharges are not to be expected, the industry's current discharges cannot be neglected. In the Western Scheldt and the Nieuwe Waterweg, target values are exceeded.

Evaluation of monitoring data during the period 1985 to 1997

To monitor the impact of the reprocessing plants in La Havre and Sellafield tritium and strontium are measured. The monitoring results of these nuclides and the indicative parameters total- α and residue- β are able to show the impact of the reprocessing plant in Le Havre. Going northward the concentrations of these parameters are seen to diminish. The Dutch monitoring programme has not measured any effects from the reprocessing plant Sellafield. The ratio between the concentrations and the target value is varies for total- α from 0.89 in the most southern water system to 0.42 in the most northern system. For residue- β this test ratio is less varied, from 0.31 in the Voordelta to 0.27 in the central North Sea.

Tritium and caesium are discharged by nuclear power plants. The diminishing concentration fluctuation of tritium in the Western Scheldt, whereby the test ratio of 1.30 drops to 0.26, is caused by the nuclear power plant in Doel (Belgium). The target value for tritium is exceeded at Schaar van Ouden Doel. Radium, lead and polonium are nuclides from the uranium decay chain which are discharged by the processing industry. In the Western Scheldt the standard for fresh surface water for total- α is exceeded by factor 2. The individual nuclides have not been measured sufficiently to make reliable statements.

Break in trend total- α and residue- β

At most of the monitoring sites lower values for total- α were recorded between 1990 and 1993. After this period concentrations were seen to increase. The monitoring series at Schaar van Ouden Doel does not show such a concentration fluctuation. There are three possible explanations for lower values in the period 1990 to 1993:

1. During the period 1990 to 1993 the interval between sampling and analysis was extremely long. Absorption to the bottle-wall and decay could have been the cause for lower values. This is the most plausible explanation.
2. In 1994 the radiochemical laboratory acquired new equipment with a lower detection limit. This could have an effect on the monitoring results.

3. There was a temporary lower production and discharge from the fertiliser industry in the Nieuwe Waterweg. In the same period of low values, the monitoring results for the Nieuwe Waterweg site were also a factor 2-3 lower than in the periods before and after 1990 to 1993.

For residue- β the monitoring values have actually been lower since 1994. The most likely explanation for this is a change of monitoring equipment during this period.

Set-up of 1999 to 2005 monitoring programme

For the set-up of the monitoring network the monitoring cycle was followed. Firstly, a relation was laid between parameters and sources. Most radioactive substances are produced by reprocessing plants, nuclear power plants and the processing industry. The nuclide americium has been added to the 1999 to 2005 monitoring programme and is representative for the nuclide plutonium and curium isotopes produced by reprocessing plants.

Secondly, the relation between sources and water systems has been indicated. Only sources which are discharged directly into a water system are intensively monitored. When a source has an indirectly influence on a water system, this is extensively monitored. The monitoring programme has been drawn up from the combinations of source and parameters and source and water system, actively and inactively. The historical series were used as a basis as much as possible. A further precondition is that the new monitoring programme may not cost more than the previous one.

Table 6

The relation between source and target variables. The indicative parameters total- α and residue- β are also measured for all sources.

Source	Target variable 1987 to 1997	Doelvariabele 1999 t/m 2005
Reprocessing plants	Tritium (^3H), $^{90}\text{Strontium}$	Tritium (^3H), $^{90}\text{Strontium}$, $^{241}\text{Americium}$
Nuclear power plants	Tritium (^3H), $^{137}\text{Cesium}$	Tritium (^3H), $^{237}\text{Cesium}$
Processing industry	$^{210}\text{Lead}$, $^{210}\text{Polonium}$, $^{226}\text{Radium}$	$^{210}\text{Lead}$, $^{210}\text{Polonium}$, $^{226}\text{Radium}$

Follow-up study

The report contains a number of the following important recommendations, the main ones being:

- So far measurements have been carried out in the water phase and in suspended matter. A study must conclude whether it is useful to monitor sediment in 1999.
- To test standards for measurements in suspended matter and sediment, it is necessary to standardise data. Research is needed to establish standardisation parameters.
- Total- α and residue- β are indicative parameters which do not have a one to one relation with the individual nuclides. This relation must be established.
- The impact of discharges of radioactive substances by oil rigs at sea needs further study.
- Models are to show the relation between source and concentration. The contribution from atmospheric deposition needs special attention.

1 Inleiding

Radioactieve stoffen belanden via verschillende bronnen in de zoute rijkswateren. Opwerkingsfabrieken lozen radioactieve stoffen direct op de zoute wateren. Andere bronnen van radioactieve verontreinigingen lozen via de rivieren indirect op de zoute wateren. Over het algemeen zijn de concentraties in de zoute wateren niet onrustbarend hoog. Monitoring van radioactieve stoffen stelt zich tot doel 'een vinger aan de pols te houden' om te controleren of concentraties niet boven de streefwaarden uit komen. Bovendien is dankzij monitoring voldoende meetkennis aanwezig voor het geval zich een ernstige calamiteit voordoet.

Vanaf 1975 tot 1994 werden radioactieve stoffen in de zoute wateren met een lage meetfrequentie gemeten; in enkele gevallen werd de meting slechts eenmaal per jaar uitgevoerd, waarbij een achterliggende meetstrategie ontbrak. Een notitie uit 1994 legt de relatie tussen de huidige meetlocaties en doelvariabelen en de verontreinigingsbronnen (de Jong et al, 1994). Verder geeft de notitie een aanbeveling voor de inrichting van het meetprogramma die ten dele zijn overgenomen. In 1995 is het gehele chemische monitoringprogramma geëvalueerd en is een strategie voor de metingen voor de periode 1996-2000 vastgesteld (Swertz & Stronkhorst, 1998). Hierbij zijn de radioactieve stoffen buiten beschouwing gelaten (in afwachting van de stofstudies van de Watersysteemverkenningen).

Het huidige monitoringprogramma van radioactieve stoffen in de zoute wateren richt zich vooral op het meten van de parameters tritium, totaal- α en rest- β . Bij de WSV-stofstudies konden de tijdreeksen van totaal- α en rest- β voor de zoute wateren moeilijk worden geïnterpreteerd en zijn deze derhalve buiten beschouwing gelaten. De tijdreeksen van deze parameters toonden een slecht verklaarbaar verloop dat om opheldering vroeg. Dit kon niet in het tijdsbestek van de WSV-stofstudies worden uitgevoerd.

Doelstelling

Het doel van deze rapportage is:

- een overzicht geven van de monitoringgegevens in de zoute wateren in de periode 1985 t/m 1997;
- aanbevelingen doen voor monitoringprogramma geven voor de zoute wateren; en
- de trendbreuk in metingen van rest- β en totaal- α evalueren.

Leeswijzer

In hoofdstuk 2 van dit rapport worden de resultaten van de WSV-stofstudies samengevat en, waar nodig, aangevuld met onder andere nieuwe informatie over achtergrondwaarden en standaardisatie. Hoofdstuk 3 is een beschrijving van het monitoringprogramma tot 1999. Hoofdstuk 4 beschrijft de meetmethoden die voor monitoring zijn gebruikt. In hoofdstuk 5 zijn de beschikbare tijdreeksen nader onderzocht en vergeleken met de resultaten van de monitoringprogramma's in de ons omringende landen. De trendbreuk in rest- β - en totaal- α -metingen wordt in de hoofdstukken 4 en 5 behandeld. Ten slotte geeft hoofdstuk 6 aanbevelingen voor het monitoringprogramma 1999 t/m 2005. Deze zijn gebaseerd op de informatiebehoefte, zoals is vastgelegd in nationale en internationale afspraken. Hoofdstuk 7 bevat de conclusies en aanbevelingen.

2 Samenvatting en aanvulling WSV-stofstudies

2.1 Wat zijn radioactieve stoffen?

Radioactieve stoffen worden ook wel radionucliden genoemd. Het zijn stoffen, die onder uitzending van energierijke deeltjes vervallen tot andere stoffen, die soms zelf weer radioactief zijn. Zeer zware radioactieve stoffen kunnen splijten tot meerdere radioactieve elementen. Deze stoffen bestaan uit kernen die geen evenwichtige samenstelling van protonen en neutronen hebben. Door deze instabiliteit vervallen ze tot andere stoffen onder uitzending van 'deeltjes' met een bepaalde massa en/of energie. De tijd waarin de helft van de stof vervallen is, wordt halfwaardetijd genoemd. Er worden drie soorten straling onderscheiden:

α -straling (alpha-straling)	Dit zijn He^{2+} -deeltjes. Door hun grote massa hebben ze een klein doordringingsvermogen. Ze passeren bijv. niet een blad papier of de huid. Ook de dracht door lucht is zeer gering. De radiotoxiciteit bij inwendige besmetting is echter groot.
β -straling (beta-straling)	Dit zijn elektronen of positronen. Ze kunnen afhankelijk van hun energie tot ca. 1 cm het lichaam binnendringen.
γ -straling (gamma-straling)	Energierijke fotonen, met zeer geringe massa. Ze hebben een zeer groot doordringingsvermogen.

Natuurlijke radioactiviteit

Radioactieve stoffen komen van nature voor. Daarnaast worden door menselijk handelen radionucliden in het milieu gebracht. Vanaf het ontstaan van de aarde zijn er radioactieve stoffen in de natuur aanwezig geweest. Een aantal van deze primordiale radionucliden heeft een zeer lange halveringstijd en vervalt via een reeks van dochternucliden. In de natuur komen ook radionucliden van cosmogene oorsprong voor; deze worden door kernreacties in de bovenste luchtlagen gevormd. Voor zoet water is bekend dat de concentratie tritium na een heftige onweersbui toeneemt.

Tezamen vormen deze radioactieve stoffen het achtergrondniveau. De gemiddelde Nederlander loopt een dosis van 2,4 mSv per jaar op. De volgende activiteiten komen ongeveer overeen met een dosis van 1 mSv:

- ca. 10 keer retour Amsterdam - Curaçao per vliegtuig;
- ca. 67 weken skiën;
- ca. 12 thorax röntgenopnames.

Technisch verhoogde radioactiviteit

Menselijke activiteiten resulteren in een herverdeling en verplaatsing van bovengenoemde radioactieve stoffen. De ontstane concentratieverhogingen worden 'technisch verhoogde natuurlijke activiteit' genoemd. Voor het zoete aquatische milieu is vooral de fosfaatverwerkende industrie van belang. Bij de winning van olie en gas op productieplatforms komen ook radioactieve stoffen vrij, die direct op de zoute wateren worden geloosd. Hierbij komen nucliden uit de ^{238}U -reeks vrij, zoals ^{226}Ra , ^{210}Pb en ^{210}Po .

Kunstmatige radioactiviteit

Naast de natuurlijke activiteit wordt radioactiviteit van kunstmatige radionucliden onderscheiden. Deze radioactieve stoffen komen niet in de natuur voor en worden door kernsplijting of door het invangen van een neutron gevormd. Tijdens de bovengrondse kernwapenproeven in de jaren zestig en andere militaire activiteiten is een aantal langlevende nucliden in het milieu gebracht. Bij reactorongevallen zijn eveneens radioactieve stoffen in het milieu gekomen. Alleen al het laatste grote ongeluk bij Tsjernobyl in de Oekraïne in 1986 leidde tot een wijdverspreide depositie en besmetting met relatief langlevende nucliden, waarvan ¹³⁷Cesium de belangrijkste is.

Radioactieve stoffen worden door kerninstallaties in het milieu gebracht. In alle Europese landen staan langs de grote rivieren kerncentrales, die, volgens een stelsel van vergunningen, radioactieve stoffen op het oppervlaktewater lozen. Er zijn drie opwerkingsfabrieken (bij Dounreau, Le Havre en Sellafield) die direct radioactieve stoffen op de zoute wateren van de Noordzee lozen.

In Nederland wordt al het nucleaire afval verwerkt door de Centrale Organisatie voor Verwerking van Radioactief Afval (COVRA) te Petten. Veel van de radioactieve stoffen worden in containers boven land opgeslagen. Een gedeelte van de stoffen wordt als afvalproduct van een verwerkingsmethode geloosd op de zoute wateren.

Tabel 2.1:1

Doelvariabelen gerangschikt naar bronnen die direct op de zoute wateren lozen.

Table 2.1:1

Target variables arranged according directly on marine waters dischargeing sources.

Bronnen die direct lozen op de zoute wateren		
Bron	Radionucliden	Straling
Opwerkingsfabrieken (voornamelijk kunstmatige nucliden)	¹³⁷ Cesium	β, γ
	⁶⁰ Cobalt	β, γ
	⁹⁰ Strontium	β
	⁹⁹ Technetium	γ
	²⁴¹ Americium	α
	²⁴⁰⁺²⁴⁰ Plutonium	α
	Tritium (³ H)	zeer zachte β
Productieplatforms van olie en gas (technisch verhoogde nucliden)	²²⁶ Radium	α, γ
	²¹⁰ Lood (Pb)	β
	²¹⁰ Polonium (Po)	α

Tabel 2.1:2

Doelvariabelen gerangschikt naar bronnen die op de zoete wateren en indirect op de zoute wateren lozen.

Table 2.1:2

Target variables arranged according directly on fresh waters - and indirectly on marine waters - dischargeing sources.

Bronnen die lozen op zoet water (en dus indirect op de zoute wateren)		
Bron	Radionucliden	Straling
fosfaatverwerkende industrie (technisch verhoogde nucliden)	²²⁶ Radium	α, γ
	²¹⁰ Lood (Pb)	β
	²¹⁰ Polonium (Po)	α
	Tritium (³ H)	-
Ziekenhuizen en laboratoria	¹⁴ Koolstof (C)	β
	³² Fosfor (P)	β
	³⁵ Zwavel (S)	β
	etc.	
	¹³⁷ Cesium	β, γ
COVRA (voornamelijk kunstmatige nucliden)	⁶⁰ Cobalt	β, γ
	⁹⁰ Strontium	β
	⁹⁹ Technetium	γ
	²⁴¹ Americium	α
	²⁴⁰⁺²⁴⁰ Plutonium	α
	Tritium (³ H)	zeer zachte β

De directe emissiebronnen voor de zoute wateren zijn de opwerkingsfabrieken en de productieplatforms voor olie en gas. Via de grote rivieren lozen kerninstallaties, industrieën, ziekenhuizen en laboratoria indirect radioactieve stoffen op de zoute wateren.

Alle genoemde bronnen lozen ook radioactieve stoffen via de lucht. In de literatuur wordt de input van de bovengrondse kernproeven alleen in de zoute wateren gekwantificeerd. Voor de overige bronnen zijn de lozingen naar de atmosfeer veelal bekend, maar literatuur maakt geen melding van de bijdrage van de depositie op de kwaliteit van de zoute wateren. Via modelstudies kunnen deze bijdragen wel worden geschat. Dit valt echter buiten de opdracht van dit rapport. Een aparte studie voor een dergelijke modellering verdient aanbeveling.

Aanbevolen wordt een modelstudie te verrichten naar de invloed van de atmosferische depositie van radioactieve stoffen op de waterkwaliteit.

2.2 Stofeigenschappen van doelvariabelen

Tabel 2.2:1 in Bijlage 1 geeft een samenvatting van de WSV-stofstudies voor radioactieve stoffen. In internationaal verband (Hoofdstuk 6) worden de nucliden antimoon (^{125}Sb) en technetium (^{99}Tc) als belangrijke doelvariabelen beschouwd en deze zijn derhalve ook in deze paragraaf opgenomen. Het ministerie van VROM schrijft de waarden van de parameters die bij modelstudies worden gebruikt, dwingend voor (Laheij et al., 1996, verder de RIBRON-studie genoemd). In de WSV-studies is aangetoond dat volgens de literatuur deze waarden voor een aantal gevallen niet correct zijn. Deze conclusie moet aan het ministerie van VROM worden voorgelegd. Zolang deze wijziging nog niet van kracht is, moeten de waarden uit de RIBRON-studie bij de modelstudie worden gebruikt.

Aan het ministerie van VROM moeten de verschillen voor de distributiecoëfficiënt uit de RIBRON-studie en de WSV-studies worden voorgelegd.

Hieronder volgt een verklaring van de belangrijkste parameters uit Tabel 2.2:1 in Bijlage 1.

- De halveringstijd $T_{1/2}$ wordt voornamelijk gebruikt bij berekening van de radioactiviteit op tijdstip t :

$$A(t) = A(0) e^{(-\ln 2 \cdot t / T_{1/2})}$$

- De eenheid Becquerel (Bq) is de maat voor het aantal deeltjes dat per seconde vervalst. De activiteit van een nuclide is uit de vervaltijd $T_{1/2}$ en het isotoopnummer als volgt uit te drukken in massa:
 1. 1 Bq = aantal deeltjes per seconde
 2. Het aantal deeltjes in 1 gram = het getal van Avogadro / het isotoopnummer
 3. De helft van het aantal deeltjes vervalst in $T_{1/2} \cdot 364,25 \cdot 24 \cdot 60 \cdot 60$ jaar.
 4. 1 deeltje vervalst in $\ln 2 / T_{1/2} \cdot 364,25 \cdot 24 \cdot 60 \cdot 60$ seconde

5. Zo komen we tot de volgende formule voor de relatie gewicht en radioactiviteit:
 6. $\text{Gewicht} = (\text{activiteit} * \text{getal van Avogadro} * \ln 2) / (T_{1/2} * 364,25 * 24 * 60 * 60 * \text{isotoopnummer})$
 7. Bijvoorbeeld voor $^{226}\text{Radium}$ levert dit het volgende resultaat:
 8. $1 \text{ gram } ^{226}\text{Ra} = (1 \text{ Bq} * 6,22 \cdot 10^{23} * \ln 2) / (1600 * 364,25 * 24 * 60 * 60 * 226) = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$.
- De oude maat voor radioactieve stoffen Curie (Ci) is de activiteit van 1 gram Radium. Dus is

$$1 \text{ Ci} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$$
 - De dosis bij een besmettingsweg van radioactieve stoffen wordt uitgedrukt in Sievert (Sv). Dit staat met een wegingsfactor in verband met de hoeveelheid energie per kilogram. De dosisconversiefactor is de effectieve dosis per ingenomen activiteitseenheden met de dimensie Sv/Bq.
 - De Nederlandse overheid heeft als maat voor in vergunning te geven of gegeven lozingen in lucht en water de radiotoxiciteitsequivalent RE ingevoerd. Dit is de activiteit die bij opname in het lichaam een effectieve dosis van 1 Sievert geeft.

2.3 Achtergrondwaarden van radioactieve stoffen

Onder achtergrondwaarde wordt meestal verstaan: de concentratie die in het water of sediment voorkomt zonder dat er een vervuilsbron aanwezig is. Voor een aantal nucliden staan achtergrondwaarden in de literatuur vermeld. De gebruikte waarden zijn de concentraties die in de diepe oceanen zijn gemeten. Deze waarden worden gepresenteerd in de tabellen 2.3:1 en 2.3:2 in Bijlage 2.

Bij het vaststellen van de normen voor radioactieve stoffen is het uitgangspunt dat de huidige niveaus voor radioactieve stoffen in zowel de zoete als de zoute wateren gelijk zijn aan de achtergrondwaarde. Voor de vaststelling van de achtergrondwaarden zijn alleen locaties met een duidelijke vervuilsbron buiten beschouwing gelaten. Dit zijn met name de locaties die worden beïnvloed door de lozingen van de fosfaatverwerkende industrie, zoals Schaar van Ouden Doel en de Nieuwe Waterweg. De streefwaarden zijn afgeleid van de aldus bepaalde achtergrondwaarden.

De Nederlandse kustwateren vertonen verhoogde concentraties door de lozingen van de opwerkingsfabriek in Le Havre. Deze concentraties zijn het hoogst in de kustzone en het laagst in de Westerschelde en de Waddenzee. De concentratie in het zeewater in de omgeving van Le Havre ligt rond de 15 Bq/m^3 . Langs de Nederlandse kust neemt dit af tot ongeveer 9 Bq/m^3 . In de Waddenzee en de Westerschelde liggen de concentraties rond de 4 Bq/m^3 . De achtergrondconcentratie voor antimoon is ongeveer $0,5 \text{ Bq/m}^3$. Deze concentraties worden voor de Britse kust gemeten. De tabellen 2.3:1 en 2.3:2 in Bijlage 2 geven de huidige niveau's en de streefwaarden uit de vierde Nota waterhuishouding (Ministerie V&W, 1998) weer.

De SIME-werkgroep van de OSPAR vindt monitoring van een aantal doelvariabelen belangrijk. In de volgende sub-paragrafen is een samenvatting van een literatuurstudie opgenomen voor die doelvariabelen die niet tot het huidige meetnet behoren. De radionucliden technetium en

antimoon zijn bij de WSV-studie buiten beschouwing gelaten. Er bestaat wel een stofdocument over plutonium-isotopen.

2.3.1 ⁹⁹Techneetium

Op het moment dat in de WSV-studies de doelvariabelen werden gekozen, werden de lozingen van de opwerkingsfabrieken van ⁹⁹Techneetium (⁹⁹Tc) als niet belangrijk beoordeeld. In 1994 zijn de waterlozingen van dit radionuclide door de Britse opwerkingsfabriek Sellafield ongeveer met een factor 50 verhoogd. Dit komt door een verandering in de opwerkingsfabriek met als doel de lozingen van nucliden te reduceren. Voor een aantal hoog radiotoxische radionucliden is dit ook gerealiseerd. Er zijn echter nadelige gevolgen, nl. de verhoogde lozingen van ⁹⁹Tc. Hierdoor is de beoordeling van doelvariabele voor deze nuclide gewijzigd. In 1995 loosde de opwerkingsfabriek in Le Havre 0,1 TBq ⁹⁹Tc, terwijl Sellafield 190 TBq in het milieu bracht (Oslo and Paris Commissions, 1997).

⁹⁹Tc is een nuclide dat zich snel in het milieu verspreidt en door een hoge halfwaardetijd lang in het milieu blijft. Eerst werd de verhoging in de Ierse Zee vastgesteld. Sneller dan de gangbare modelberekeningen voorspelden, kwam het front bij de Noorse kust aan. Na 2,5 jaar (in november 1996) werden de concentraties in de Noordse kustwateren hoger (Oslo en Paris Commissions, 1998).

⁹⁹Tc hoopt in geringe mate op in vis, maar in grote mate wel in kreeften en zeewier. De concentraties liggen een factor 30 onder de interventieniveaus voor kernrampen. De dosisberekeningen in de directe omgeving van Sellafield tonen aan dat de gevolgen geen groot risico vormen voor de mens (Oslo en Paris Commissions, 1998).

De verdeling van ⁹⁹Tc als tracer vormde de basis voor een gecombineerd Frans/Duits/Brits onderzoeksproject. De meetresultaten geven een goed overzicht over de verdeling van ⁹⁹Tc in de Europese kustwateren. Met de resultaten van twee bemonsteringstochten (in februari 1991) konden de meetgegevens gebruikt worden voor verificatie van een verspreidingsmodel. De gegevensset is in overeenstemming met de modelresultaten van BSH. Door gebrek aan ruimtelijke dekking en stationariteit tijdens sommige tochten konden de modelresultaten en de metingen niet worden vergeleken. Er zijn nauwelijks verschillen tussen de meetresultaten van ⁹⁹Tc in de verschillende Nederlandse zoute watersystemen. De concentraties variëren van 1,1-2,8 Bq/m³ (Hermann et al, 1995)

2.3.2 Plutonium-isotopen

Het radionuclide ²³⁹Pu is een activeringsproduct. Het ontstaat door de vangst van neutronen in uranium. Het nuclide splitst bij de incorporatie van snelle neutronen. Het is daarom geschikt als basismateriaal voor een kernbom. De twee opwerkingsfabrieken vormen met hun lozingen de belangrijkste bron van vervuiling voor de Noordzee. Plutonium adsorbeert sterk aan gesuspendeerd materiaal en aan de waterbodem. Plutonium accumuleert vooral in lagere organismen maar heeft de tendens om in hogere trofische niveaus af te nemen. De concentraties in de Noordzee zijn erg laag en vormen nauwelijks een risico voor de mens.

2.3.3 Antimoon

Antimoon (Sb) is een splijtingsproduct dat bij verval beta- en gammastraling uitzendt. De vervaltijd is 2,760 jaar. De totale invoer van ^{125}Sb van Sellafield en Le Havre is ongeveer 1,8 PBq tot aan het einde van 1992. Na correctie voor verval komt dit neer op 0,3 PBq. De lozingen van Le Havre zijn een factor 5 hoger dan die van Sellafield. Metingen uit gecombineerd Frans/Duits/Brits onderzoek tonen de dominantie aan van Le Havre als bron van ^{125}Sb in noordwest Europese wateren. De lozingen worden onmiddellijk gedetecteerd tot aan de kust van Noorwegen toe. Maar in juli 1991 was het gebied waar de concentraties significant hoger waren dan de achtergrond beperkt tot het Kanaal en de Duitse Bocht (Herman et.al 1995).

2.4 Standaardisatie voor zwevende stof en sediment

In Nederland is het gebruikelijk om gehalten in zwevende stof en sediment te standaardiseren. De samenstelling van het sediment, met name het lutum- en organische-stofgehalte, beïnvloedt de meetresultaten van verontreinigingen. Om zowel in tijd als plaats monsters onderling te kunnen vergelijken en om gehalten te toetsen aan normen, is een standaardiseringsformule ontwikkeld.

2.4.1 Standaardbodemformule

De standaardbodemformule van de Commissie Integraal Waterbeheer (CIW) gaat uit van een lineaire relatie tussen het gehalte (C_{gemeten}) met lutum (L) en organische stof (OC). Het draaipunt van de rechte lijn ligt bij de waarde "a" op de "x"-as.

$$C_{\text{gemeten}} = a + b * L + c * OS$$

De meetresultaten worden omgerekend naar een standaardmonster dat een samenstelling heeft van 25% lutum en 10% organisch stof.

$$C_{\text{ZS, standaard}} = C_{\text{ZS, gemeten}} \cdot \frac{a + b \cdot 40 + c \cdot 20}{a + b \cdot \% \text{lutum} + c \cdot \% \text{org. stof}}$$

Hierin is:

$C_{\text{ZS, standaard}}$	gestandaardiseerde gehalte
$C_{\text{ZS, gemeten}}$	gemeten gehalte
% lutum	gemeten percentage lutum in zwevende stof
% org. stof	gemeten percentage organische stof in zwevende stof
a,b,c	constanten afhankelijk van de parameter, zie Bijlage 3.

Om extremen door deze correctie te voorkomen zijn voor de gemeten hoeveelheden organische koolstof en lutum grenzen gesteld, waarbij correctie niet wordt uitgevoerd (zie Bijlage 3).

2.4.2 Sedimentformule

Bij het standaardiseren van sedimentmonsters uit het mariene milieu loopt men tegen problemen aan. De monsters zijn vaak erg zandig, waardoor de ondergrenzen voor lutum en organisch koolstof moeten worden aangepast. Het contaminantgehalte in de mariene sedimentmonsters is erg laag. De vergelijking van monsters in tijd en/of plaats verliep onbevredigend.

Locaties met, logisch beschouwd, eenzelfde vervuilingsgraad kwamen in verschillende normeringsklassen uit, als gevolg van verschillen in bodemsamenstelling. Hierdoor kunnen mariene sedimenten die zijn gecorrigeerd met de standaardbodemformule toch niet met elkaar worden vergeleken.

Voor mariene sedimenten gaat Smedes (1997a) uit van een ander bindingsmodel en komt tot een andere afleiding voor een standaardiseringsformule. Deze zogenaamde sedimentformule wordt nu gebruikt voor het standaardiseren van mariene sedimentmonsters. De formule is ook bruikbaar voor monsters van zwevende stof. In principe is de sedimentformule ook bruikbaar voor monsters uit het zoete water, maar dit is geen gangbare praktijk. Voor zoet water monsters worden de formules van de standaardbodemformule uit Bijlage 3 gebruikt.

De sedimentformule gaat er van uit dat zanddeeltjes geen bindingscapaciteit hebben. Wel kan in het zandskelet de verontreinigende stof van nature voorkomen, maar deze contaminanten kunnen niet meer vrij komen. Dit is de waarde "z" in de formule. Alleen de contaminanten die aan lutum en organische stof gebonden zijn, kunnen door processen als diffusie, bioturbatie en resuspensie weer in de waterfase vrijkomen. Verder bleek uit onderzoek met multiple regressie dat de verdeling over lutum en organische koolstof voor de diverse metalen niet significant verschillend is. Voor alle metalen is daarom aangenomen dat het gehalte dat aan lutum bindt 2,5 maal hoger is dan het gehalte dat aan organisch koolstof bindt. Voor organische verontreinigingen is, analoog aan de standaardbodemformule, alleen binding aan organische koolstof als standaardiseringsvariabele opgenomen. Dit leidt tot een lineaire relatie tussen gehalte en de gezamenlijke standaardiseringsvariabelen.

De sedimentformule veronderstelt een lineair verband tussen de standaardiseringsvariabelen. De "z" is het snijpunt op de "y"-as, waarop het gehalte van het monster staat aangegeven en is het draaipunt van de lijn. De helling van het verband tussen gehalte en de standaardiseringsvariabelen (Organisch Koolstof (OC) en Lutum (L)) geeft de maat van de vervuiling aan.

Dit leidt voor metalen tot de formule:

$$C_{stb} = \frac{C_m - z}{0.02 L_m + 0.05 OS_m} + z$$

en voor organische microverontreinigingen tot:

$$C_{stb} = C_m \frac{10}{OS_m}$$

Bijlage 4 beschrijft de sedimentformule met meer detail en geeft een procedure voor de keuze om sediment te zeven en te toetsen aan een norm.

Voor radionucliden moet het verband tussen de contaminant en de standaardiseringsparameters organische koolstof en lutum nog worden vastgesteld. Dit kan met het onderzoeksvoorstel zoals beschreven in Bijlage 5. Voor ¹³⁷Cesium is bekend dat het zowel aan lutum als aan organische stof bindt (Comans et al, 1989). Voor ²¹⁰Lood kan men er van uitgaan dat

het zich op dezelfde wijze gedraagt als het niet-radioactieve isotoop. Voor de andere nucliden maakt (Mudge et al, 1997) melding van een relatie met de korrelgrootteverdeling, d.w.z. dat er in ieder geval een relatie met de lutumfractie moet zijn.

De gehalten radioactieve stoffen in zwevende stof en/of sediment in het mariene milieu dienen gestandaardiseerd te worden met de sedimentformule. Hiervoor dient eerst aanvullend onderzoek plaats te vinden.

De relatie tussen doelvariabelen voor radioactieve stoffen en de binding aan organisch koolstof en lutum moet nog worden vastgesteld. In bijlage 3 is een onderzoeksvoorstel opgenomen.

3 Doel en opzet van het huidige meetnet

Tot 1994 mat het RIKZ het water van de Noordzee en de Westerschelde in een zeer lage frequentie en op een beperkt aantal punten. Om precies te zijn werd totaal- α , rest- β en tritium op zeven locaties gemeten met een meetfrequentie van vier keer per jaar. Verder stelde het RIVM, in opdracht van VROM, op vier locaties van drie radioactieve stoffen individuele gehalten vast. ^{90}Sr werd in jaar-mengmonsters bepaald. Twee isotopen van cesium werden in 4 steekmonsters in water gemeten. De filosofie achter deze monitoringactiviteiten was niet meer bekend.

In 1994 is in een gezamenlijke notitie van het RIKZ en RIZA de opzet van het meetnet geëvalueerd en een plan van aanpak voor de jaren 1995 t/m 2000 geformuleerd (de Jong, et.al., 1994). De voorgestelde wijzigingen zijn echter beperkt doorgevoerd. Met de implementatie van de overige wijzigingen is gewacht op het uitkomsten van de WSV-nota's.

In de notitie uit 1994 is het meetdoel als volgt geformuleerd: "Het doel van het meten van radioactieve stoffen in de zoute wateren is om de verontreinigingsgraad van radioactieve stoffen in algemene zin vast te stellen, en, daar waar specifieke bronnen aanwezig zijn, te monitoren op de individuele nucliden die bij lozing vrijkomen. Bij overschrijding van zoet naar zout is de inspanning gerelateerd aan de monitoring welke in de zoete wateren wordt uitgevoerd." Het parameterpakket en de meetlocaties zijn afgestemd op mogelijk te traceren bronnen.

Westerschelde

De meetlocaties in de Westerschelde (Schaar van Ouden Doel, Sas van Gent en Vlissingen) zijn gekozen om de invloed van de lozingen door de kerncentrales bij Doel, het onderzoekcentrum bij Doel, de ertsindustrieën in België, de invloed van de kerncentrale te Borssele en van de fosfaatverwerkende industrie in Nederland te kunnen monitoren (^3H , ^{226}Ra in water, ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{210}Pb , ^{210}Po in zwevende stof).

Waddenzee

Aan de ingang van de Waddenzee (Marsdiep) wordt de activiteit afkomstig uit de Noordzee gemeten. Voor de overgang van de Eems-Dollard naar Noordzee (Huibertsgat) kunnen de lozingen via Duitsland, Delfzijl en de Eemshaven worden nagegaan.

Noordzee

De bronnen die de concentratie in de Noordzee beïnvloeden zijn

- 1.) De opwerkingsfabrieken in Frankrijk en Engeland. Deze fabrieken lozen o.a. ^{90}Sr .
- 2.) De fosfaatverwerkende industrie en de productieplatforms (^{226}Ra in water en ^{210}Pb en ^{210}Po in zwevende stof).
- 3.) De kerncentrales (^3H in water, ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{58}Co , ^{60}Co in zwevende stof).

De volgende locaties werden bemonsterd:

- Walcheren 20 km uit de kust om de activiteit afkomstig uit het Kanaal (Frankrijk) na te gaan. Dit is gewijzigd in Walcheren 70 km uit de kust.
- Noordwijk 10 voor de lozingen via de grote rivieren. Het is waarschijnlijk beter om locatie Noordwijk 2 als locatie te kiezen.

- Noordwijk 70 controleert de invloed van de opwerkingsfabriek Le Havre.
- Terschelling 100 controleert de invloed van Sellafield. In 1995 is de meetinspanning verplaatst naar een locatie verder uit de kust: Terschelling 235.

Tabel 3:1 en Figuur 3.1 (opgenomen als blz. 67 van dit rapport) geven een overzicht van het meetprogramma van radioactieve stoffen in de zoute wateren in de periode tot 1999. In de periode 1975 tot en met 1994 werden voornamelijk totaal- α , rest- β en tritium op zeven locaties met een lage meetfrequentie gemeten. De oorspronkelijke opzet was een raai benadering. In 1995 is het programma aangepast en is relatie met de bronnen gelegd. Vooruitlopend op de uitkomsten van de WSV-studies zijn in 1995 de volgende wijzigingen wel doorgevoerd:

- De al eerder genoemde wijziging van locaties verder uit de kust van Walcheren 20 in Walcheren 70 en Terschelling 100 in Terschelling 235, dit om de lozingen van respectievelijk Le Havre en Sellafield te monitoren;
- De locatie Hansweert is uit het meetprogramma geschrapt. In het meetprogramma van het zoete water is als een locatie tussen Schaar van Ouden Doel en Vlissingen, Sas van Gent opgenomen in het meetprogramma;
- De meetfrequentie is op een aantal locaties verhoogd;
- Tenslotte is er een aanvang gemaakt met het verrichten van metingen in zwevende stof.

In de notitie wordt aanbevolen om raai onderzoeken te doen en de invloed van lozingen van productieplatforms van olie en gas te onderzoeken.

In de evaluatie van het CCRX-meetprogramma radioactieve stoffen (de Jong & Kal, 1995) wordt vooral door de Hoofdingspectie voor de Milieuhygiëne, Toezicht Straling, Stof en Producten van het ministerie van VROM aangedrongen om het onderzoek in Noordzee water uit te breiden. Deze afdeling van VROM onderschrijft de wens om onderzoek te doen naar lozingen door productieplatforms van olie en gas.

Tabel 3.1

Het meetprogramma in de zoute wateren sinds 1995: keuze meetlocaties met meetfrequentie van de verschillende doelvariabelen in de compartimenten water (W) of zwevende stof (ZS).

Table 3.1

The monitoring programme in the marine waters since 1995: choice of monitoring sites with the monitoring frequency of the different target variables in the media water (W) or suspended matter (ZS).

	totaal- α		rest- β		^3H	^{226}Ra	^{90}Sr	Y-nucl.	^{210}Pb
	W	ZS	W	ZS	W	W	W	ZS	ZS
Westerschelde									
Schaar van Ouden Doel*	13	13	13	13	13	6	6	13	6
Sas van Gent*	13	6	13	6	13	6		6	6
Vlissingen	13	4	13	4	6	6	6	4	4
Noordzee									
Noordwijk 10	13	4	13	4	13	6		4	4
Noordwijk 70	6		6		6		6		
Walcheren 70	6		6		6		6		
Terschelling 235	6		6		6		6		
Waddenzee									
Marsdiep	6		6		6	6			
Eems-Dollard									
Huibertsgat	6		6		6	6			
Bocht v. Watum		4		4				4	4

*Schaar van Ouden Doel en Sas van Gent worden in het monitoringprogramma van de zoete wateren gemeten.

4 Meetmethoden tot 1999

In de loop van de tijd heeft het laboratorium Radiochemie van het RIZA andere meetapparatuur aangeschaft en werden de verschillende meetmethodes geoptimaliseerd. De prestatiekenmerken zijn sterk verbeterd, zoals bijvoorbeeld tot uiting komt in het bereiken van lagere detectiegrenzen. Dit hoofdstuk behandelt de bestaande analyse-technieken. Het toevoegen van doelvariabelen aan het meetprogramma vereist de ontwikkeling van bijbehorende meetmethoden door het radiochemisch laboratorium van het RIZA. Tabel 4.1 is een samenvattend overzicht van de hoogte van de detectiegrenzen in de loop van de tijd.

Tabel 4.1

Detectiegrenzen in de loop van de tijd.

Table 4.1

Detection limits in the course of time.

Parameter	periode		
	verleden - 1990	1-1-90 tot 1-1-94	1-1-94 tot heden
totaal- α *	120	110	50
rest- β *	25	25	25
tritium*	5000	5000	1000
²²⁶ Radium-226*	-	10	5
⁸⁹ Strontium en ⁹⁰ Strontium*	-	6	6
totaal- α **	12	12	12
totaal- β **	30	30	30
γ -nucliden**	-	1	1
²¹⁰ Lood en ²¹⁰ Polonium**	-	1	1

* metingen in water in Bq/m³ of mBq/l

*measurements in water Bq/m³ of mBq/l

** metingen in zwevende stof in Bq/kg

** measurements in suspended matter in Bq/kg

4.1 Metingen in water

4.1.1 Totaal- α

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.001, afgeleid van NVN 5622)

De totaal- α activiteitsconcentratie wordt bepaald volgens de indampmethode. Hierbij wordt een hoeveelheid ongefiltreerd gehomogeniseerd water direct drooggedampt op een telschaal van 20 cm diameter tot een indamprest van maximaal 3 gram. De totaal- α -activiteit wordt gemeten m.b.v. een proportionele gasdoorstroom telbuis. De telopbrengst van de totaal- α -activiteit wordt gekalibreerd met ²⁴¹Americium als ijkstandaard, waarbij voor (zelf)absorptie wordt gecorrigeerd. De metingen worden in duplo bepaald. Voor zoutwater ligt de detectiegrens voor totaal- α op ongeveer 50 Bq/m³.

4.1.2 Totaal- β

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.005, huismethode)

Onder de totaal- β activiteitsconcentratie wordt de bepaalde activiteitsconcentratie verstaan, dus inclusief de activiteitsconcentratie afkomstig van natuurlijk kalium (⁴⁰K). Lage maximale β -energieën < 60 keV, zoals die van tritium, worden niet vastgesteld. De rest- β activiteitsconcentratie is de totaal- β activiteitsconcentratie verminderd met de activiteitsconcentratie van ⁴⁰K.

Zout water heeft een hoog gehalte aan kaliumionen, hierdoor is het moeilijk om via de totaal- β meting de rest- β activiteitsconcentratie vast te stellen. Verhogingen van de rest- β activiteitsconcentratie kunnen voor zout water-

monsters beter worden bepaald d.m.v. een directe meting met de norit-methode. Deze methode berust op de adsorptie aan actieve kool, in het bijzonder van de meerwaardige kationen. Het nadeel van deze methode is dat ook andere éénwaardige alkalimetalen niet in de rest- β activiteitsconcentratie worden meegenomen, met uitzondering van ^{137}Cs dat aan AMF (Ammonium-Molybdaat-Fosfaat) adsorbeert. Doordat sommige radionucliden niet met deze bepalingmethode worden meegenomen, kan de rest- β activiteits-concentratie te laag zijn en moet rekening worden gehouden met een uitkomst van $< 90\%$. De telopbrengst van de rest- β -activiteit wordt gekalibreerd met kaliumchloride (^{40}K), volgens NVN 5627.

De totaal- β activiteitsconcentratie wordt bepaald door de rest- β activiteitsconcentratie op te tellen bij de activiteitsconcentratie van natuurlijk kalium (^{40}K). De concentratie aan kalium wordt vlamfotometrisch bepaald (conform NEN 6642). Uit deze concentratie wordt de activiteitsconcentratie van ^{40}K berekend, volgens NVN 5627.

De detectiegrens voor de rest- β activiteitsconcentratie ligt op ongeveer 25 Bq/m³.

4.1.3 Tritium

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.010, conform NEN 6420)

Van het gedestilleerde monster wordt een telpreparaat gemaakt met scintillatievloeistof. De activiteitsconcentratie van tritium wordt door middel van vloeistofscintillatietelling bepaald. De gemeten tritium-activiteitconcentratie wordt voor radioactief verval gecorrigeerd naar de bemonsteringsdatum. De detectiegrens bedraagt ongeveer 1000 Bq/m³.

4.1.4 ^{89}Sr Strontium en ^{90}Sr Strontium

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.040, conform NEN 5637).

Voor zout water wordt er 1 liter water in behandeling genomen. Het verkregen carbonaatneerslag wordt opgelost in salpeterzuur. De salpeterzuurconcentratie wordt vervolgens verhoogd tot 70% waardoor het strontium en het barium (en een deel van het calcium) als nitraten neerslaan. Na verdere scheiding m.b.v. 99% salpeterzuur, worden eventueel aanwezige storende radionucliden verwijderd door coprecipitatie met bariumchromaat en ijzerhydroxide. Daarna kan het gezuiverde strontium als carbonaat worden neergeslagen.

Van het neerslag wordt een telmonster gemaakt, dat zo spoedig mogelijk daarna geteld wordt om het teltempo ten gevolge van ^{89}Sr en ^{90}Sr tezamen te bepalen. Bij de aanwezigheid van voldoende ^{90}Sr kunnen na 14 dagen (radioactief evenwicht tussen ^{90}Sr en ^{90}Y) uit de verhoging van het teltempo door ingroei van ^{90}Y de activiteitsconcentraties van ^{90}Sr en ^{89}Sr worden berekend. De detectiegrens voor ^{90}Sr in zout water ligt op ongeveer 10 Bq/m³.

4.1.5 ^{226}Ra Radium

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.050, huismethode)

Van het monster wordt met ammoniumsulfaat een neerslag gemaakt waarbij BaSO_4 ontstaat. Radium gedraagt zich chemisch identiek als barium, zodat deze met het BaSO_4 neerslaat. Het neerslag wordt over een glasfilter gefiltreerd, opgelost, opnieuw neergeslagen en daarna gefiltreerd over een asvrij filter. Na gloeien wordt het neerslag circa 4 weken bewaard, zodat storende nucliden (zoals ^{228}Ra) vrijwel geheel vervallen zijn. Hierna wordt het neerslag geteld met een proportionele doorstroom gastelbuis.

Het meetprincipe berust op het meten van het α verval van ^{226}Ra naar ^{222}Rn . Voor α -activiteit wordt gecorrigeerd door de ingroei van radon dochters. De detectiegrens voor ^{226}Ra is ongeveer 8 Bq/m³.

4.2 Metingen in zwevende stof en sediment

De monsters van zwevende stof en waterbodem worden zo nodig eerst gezeefd over een grove zeef om grote bestanddelen te verwijderen. Daarna worden de monsters gevriesdroogd en gehomogeniseerd door ze fijn te malen.

4.2.1 γ -stralers

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.020, conform NVN 5623)

De detectie van γ -emitters gebeurt met een high-purity-coaxial-Ge(P-type)-halfgeleiderdetector gekoppeld aan een meerkanaalsanalysator en een geautomatiseerde gegevensverwerking voor de identificatie van de individuele nucliden en concentratiebepalingen. Het spectrum van 80 tot 2000 keV wordt in 4096 kanalen opgenomen. Het gemeten blanco achtergrondspectrum wordt van het spectrum van het monster afgetrokken. De gemeten activiteiten van de aangetoonde radionucliden worden voor radioactief verval gecorrigeerd naar de bemonsteringsdatum. De detectiegrens varieert en bedraagt ongeveer 1 Bq/kg. De waarde is onder meer afhankelijk van de hoeveelheid beschikbaar materiaal, de gecalibreerde meetgeometrie en de teltijd.

4.2.2 Totaal- α en totaal- β

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.002 (totaal- α in sediment) en W 8140 3.004 (totaal- β in sediment))

De klassieke activiteitsconcentraties aan totaal- α en totaal- β in sediment worden gelijktijdig gemeten m.b.v. een gasdoorstroom proportionele teller. Het gevriesdroogde monster wordt gelijkmatig over een gladde telschaal verdeeld, die van tevoren met siliconenvet is ingesmeerd. De calibratie van de telopbrengst is identiek aan de methode voor watermetingen. De detectiegrens voor totaal- α in sediment is ongeveer 12 Bq/kg en voor totaal- β in sediment ongeveer 30 Bq/kg.

4.2.3 Lood-210 en Polonium-210

(RIZA werkvoorschrift W 8140 3.030, afgeleid van NVN 5694)

Na ontsluiting van ongeveer 1 gram gevriesdroogd analysemonster wordt het ^{210}Po via een platingstap op een telplaatje gebracht. Voor het vaststellen van het chemisch- en het telrendement wordt ^{208}Po als interne tracer gebruikt. Het telpreparaat wordt met behulp van een α -spectrometrie-opstelling geteld. Indien er sprake is van een radiochemisch evenwicht tussen ^{210}Pb en ^{210}Po , zijn beide massieke activiteitsconcentraties gelijk aan elkaar. Als er geen radiochemisch evenwicht is, kan na de eerste analysegang door ingroei van ^{210}Po , gedurende een bepaalde tijd (ca. 3 maanden), zowel ^{210}Pb als ^{210}Po apart worden bepaald. De detectiegrens voor ^{210}Pb en ^{210}Po bedraagt ongeveer 1 Bq/kg.

5 Gegevensanalyse 1985-1997

Aanvankelijk was het uitgangspunt van de gegevensanalyse gebaseerd op de meetlocaties van het huidige meetnet. Echter, in de periode 1985 t/m 1997 zijn de meetlocaties gewijzigd. Hierdoor zou de analyse plaats vinden over veel te korte tijdreeksen. De gegevens van de meetlocaties in hetzelfde watersysteem zijn bij elkaar gevoegd om zo tot een beperkte gegevensset met lange tijdreeksen te komen. Indien er voor een jaar meetresultaten van meerdere locaties voor een watersysteem beschikbaar waren, zijn minimum, maximum en mediaan voor het watersysteem uit de volledige gegevensset berekend.

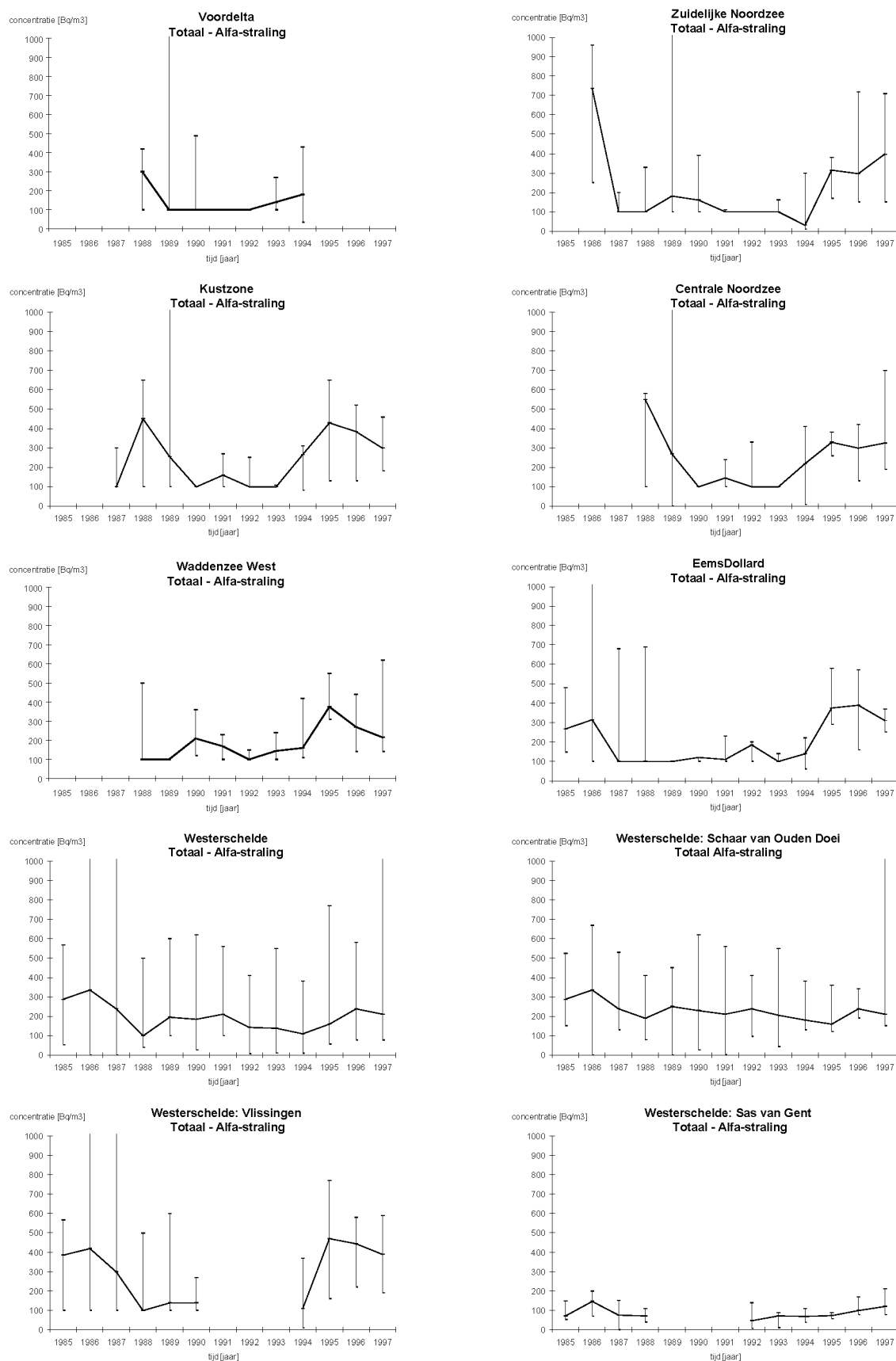
Tabel 6.2:3 geeft een overzicht van de relatie tussen meetlocatie en watersysteem. Voor het watersysteem Westerschelde was meestal voor alle locaties een lange tijdreeks voorhanden. Voor dit watersysteem zijn de tijdreeksen van de onderliggende locaties opgesteld en apart geanalyseerd.

De gegevens zijn vergeleken met de normen uit de vierde Nota waterhuishouding (tabel 6.1:2). De toetsing is verricht aan de mediaan. In de werksessie om het meetprogramma voor radioactieve stoffen voor de periode 1999 - 2005 vast te stellen, werd door de beheerders de voorkeur gegeven aan toetsing aan het 90-percentiel. Deze voorkeur is niet opgenomen in de lijst van aanbevelingen. Conform de gedachte achter de normen in de vierde Nota waterhuishouding zijn de concentraties in dit rapport getoetst aan de mediaan en wordt dit ook voor de toekomstige toetsingen aanbevolen.

5.1 Totaal- α -straling

Voor veel watersystemen is het algemene beeld: een afname in de periode 1990 t/m 1993, gevolgd door een toename (figuur 5.1:1). De locatie Schaar van Ouden Doel in de Westerschelde vormt hierop een uitzondering. Er zijn verschillende verklaringen voor deze trendbreuk in de periode 1990 t/m 1993. In de eerste plaats was in deze periode de tijd tussen monsternamen en analyse zeer lang. Aanvankelijk zou het RIVM de metingen verrichten. Eind 1993 zijn de metingen uit deze periode uiteindelijk verricht aan driemaands-mengmonsters door het radiochemische laboratorium van het RIZA. De monsters hadden een andere voorbehandeling; ze werden aangezuurd. Door adsorptie aan de fles en/of verval konden de meetresultaten lager zijn. De locatie Schaar van Ouden Doel behoort tot het "zoete" meetprogramma en hier speelden deze problemen niet. Dit is de meest voor de hand liggende verklaring. De situatie is in een laboratorium nagebootst, maar de resultaten konden de hypothese niet bevestigen.

Figuur 5.1:1 Totaal- α in diverse watersystemen in de loop van de tijd.
Figure 5.1:1 Total- α in various water systems in the course of time.



Tabel 5.1:1

Kengetallen van de totaal- α activiteit in Bq/m³ water in de periode 1995 t/m 1997. Streefwaarde is 100 Bq/m³ voor oppervlaktewater en 500 Bq/m³ voor de Noordzee.

Table 5.1:1

Figures for the total- α activity in Bq/m³ water in the period 1995 to 1997. Target value is 100 Bq/m³ for surface water and 500 Bq/m³ for the North Sea.

Watersysteem/locatie	min.	max.	med.	gem. med.	toetsratio*	
					zoet	zout
Westerschelde	57	2320	210	203.3	2.1	0.42
Schaar van Ouden Doel	120	2320	210	203.3	2.1	0.42
Sas van Gent	57	210	100	98.0	1.0	0.20
Vlissingen	160	770	445	435.0		0.89
Voordelta	-	-	-	-		
Kustzone	130	650	385	371.7		0.77
Zuidelijke Noordzee	150	720	325	340.0		0.65
Centrale Noordzee	130	700	325	318.3		0.65
Waddenzee West	140	620	270	286.7		0.54
Eems-Dollard	160	580	375	358.3		0.75

* ratio = mediaan/streefwaarde

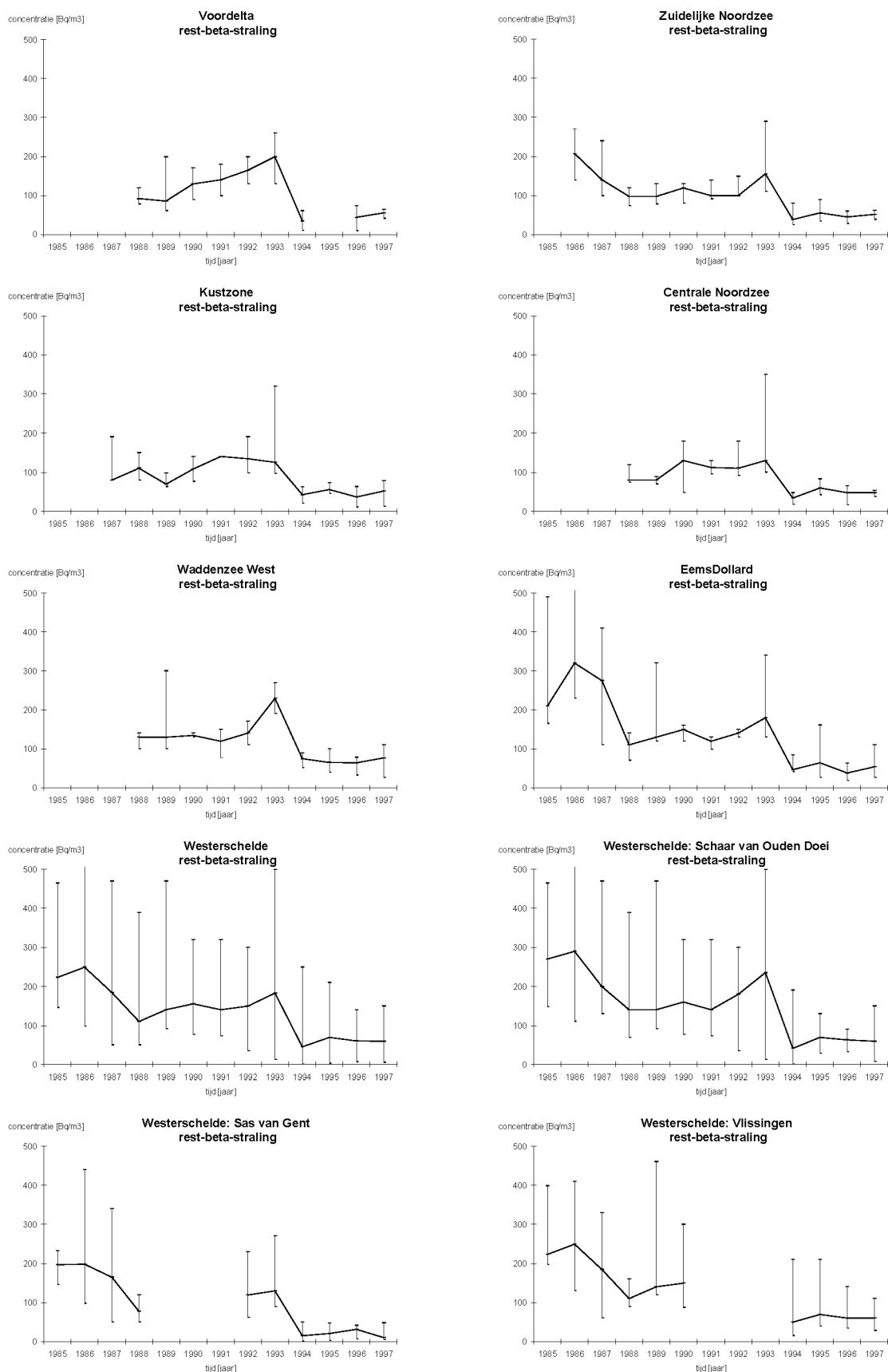
Ook de verminderde lozingen door de kunstmestindustrie in de Nieuwe Waterweg kunnen de meetcijfers verklaren. In de periode 1990 t/m 1993 zijn ook de meetcijfers op de locatie Nieuwe Waterweg een factor drie lager dan de voor- en navolgende jaren, vermoedelijk als gevolg van de verminderde lozingen van de kunstmestindustrie. Modellerings zou deze hypothese kunnen bevestigen. Bij Schaar van Ouden Doel was geen sprake van verminderde lozingen.

Tabel 5.1:1 gaat daarom alleen uit van de gegevens vanaf 1995. Hieruit blijkt dat de streefwaarde voor oppervlaktewater bij Schaar van Ouden Doel wordt overschreden. Dit komt door lozingen van de fosfaatverwerkende industrie, die nucliden als ²¹⁰Polonium en ²²⁶Radium loost. Stroomafwaarts neemt bij Sas van Gent de concentratie af. Bovendien is op deze locatie de spreiding in meetresultaten gering. Een mogelijke verklaring voor de geringe spreiding ligt in een lagere zout concentratie bij deze locatie in vergelijking met de locaties op de Noordzee.

Bij Vlissingen neemt de concentratie weer toe. Hiervoor kunnen de lozingen van de opwerkingsfabriek in Le Havre (in Frankrijk) verantwoordelijk zijn. Naar het noorden toe neemt de concentratie op de Noordzee af, zoals wordt verwacht bij lozingen die uit het Kanaal komen. Alleen zijn de concentraties in de Eems-Dollard hoog, hetgeen toch op een mogelijke verontreinigingsbron duidt.

In de ons omringende landen wordt deze parameter niet gemeten. Een vergelijking met literatuurwaarden kan niet worden gegeven. In de Westerschelde wordt de streefwaarde voor oppervlaktewater overschreden. Nergens wordt de streefwaarde voor zout water overschreden.

Figuur 5.1:1 Totaal- α in diverse watersystemen in de loop van de tijd.
Figure 5.1:1 Total- α in various water systems in the course of time.



5.2 Rest- β -straling

De hoogste rest- β -activiteit worden gemeten in de Westerschelde, hetgeen een gevolg is van de lozingen van de fosfaatverwerkende industrie van nucliden $^{210}\text{Lood}$. Stroomafwaarts op de Westerschelde nemen de concentraties af. De concentraties bij Vlissingen en in de watersystemen voordelta, kustzone, zuidelijke Noordzee en centrale Noordzee zijn ongeveer gelijk. Door lozingen van de nuclide $^{90}\text{Strontium}$ uit Le Havre zou afnemende concentratie naar het noorden worden verwacht. Opvallend zijn de hogere waarden in de watersystemen Eems-Dollard en Waddenzee, waar de echt verantwoordelijke bronnen niet direct bekend zijn. In geen van de watersystemen wordt de streefwaarde overschreden.

Tabel 5.2:1

Kengetallen van de rest- β activiteit in Bq/m^3 water in de periode 1985 t/m 1997. De streefwaarde is 200 Bq/m^3 voor zoet oppervlaktewater en 300 Bq/m^3 voor de Noordzee.

Table 5.2:1

Figures for the residue- β activity in Bq/m^3 water in the period 1985 to 1997. The target value is 200 Bq/m^3 for fresh water and 300 Bq/m^3 for the North Sea.

Watersysteem/locatie	min.	max.	med.	gem. med.	toetsratio*	
					zoet	zout
Westerschelde	1	530	135	126.5	0.68	0.45
Schaar van Ouden Doel	1	530	140	133.7	0.70	0.47
Sas van Gent	1	440	98.5	96.4	0.47	0.33
Vlissingen	10	260	70	91.5		0.23
Voordelta	130	61	92	105.4		0.31
Kustzone	10	320	95	92.0		0.32
Zuidelijke Noordzee	25	290	99	108.9		0.33
Centrale Noordzee	100	48	80	83.1		0.27
Waddenzee West	190	78	125	116.4		0.42
Eems-Dollard	19	690	130	141.3		0.43

* ratio = mediaan/streefwaarde

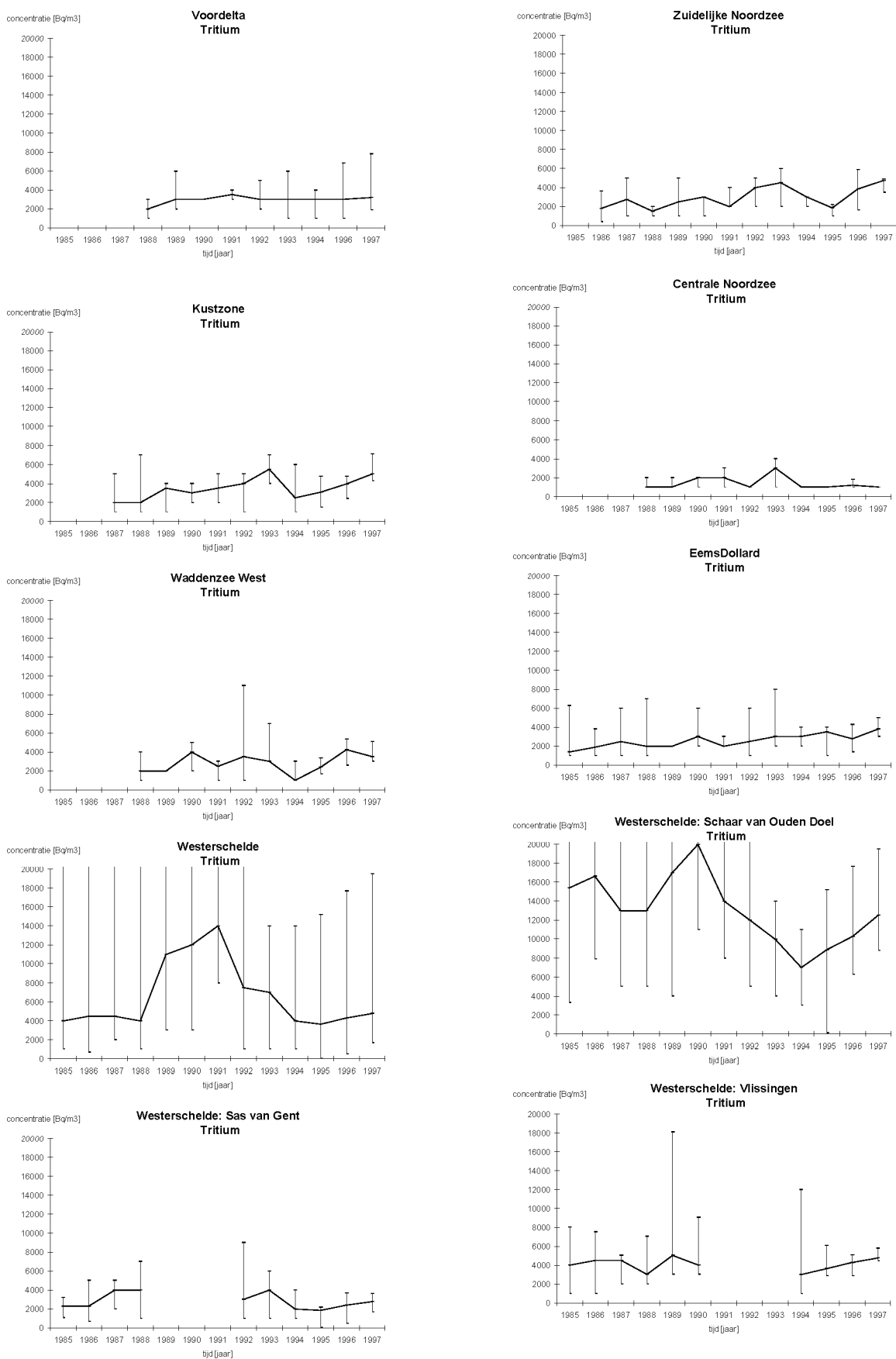
Pieken door lozingen, zoals heeft plaats gevonden na het ongeluk in Tsjernobyl (1986) of de lozing van $^{90}\text{Strontium}$ door Le Havre (Hermann et al 1995), zijn in de meetresultaten van de parameter rest- β niet terug te zien.

Voor rest- β is een andere trendbreuk dan bij totaal- α te zien. Op alle locaties, ook bij de locatie Schaar van Oude Doel zijn de waarden vanaf 1994 lager. De meest voor de hand liggende verklaring is de wijziging van meetapparatuur. In de ons omringende landen wordt geen rest- β gemeten en kan een vergelijking met literatuurwaarden niet plaats vinden.

Figuur 5.2:1 Rest- β in diverse watersystemen/locaties in de loop van de tijd

Figure 5.2:1 Residue- β in various water systems/sites in the course of time

Figuur 5.3:1 Tritiumconcentraties in de loop van de tijd.
Figure 5.3:1 Tritium concentrations in the course of time.



5.3 Tritium

Tritium wordt in relatief grote hoeveelheden geloosd door kerncentrales en opwerkingsfabrieken. Ook in de atmosfeer worden aanzienlijke hoeveelheden tritium gevormd, die vooral door natte depositie in het water terecht komen. Voor de zoute wateren komen de grootste lozingen van de opwerkingsfabrieken Sellafield en Cap La Hague.

In het water van de Noordzee is de invloed van de lozingen van Cap La Hague zichtbaar. De concentraties tritium nemen van zuid naar noord af. In de loop van de tijd treden geen veranderingen in de concentratie op. De vastgelegde tritium-concentraties komen overeen met de meetresultaten van de ons omringende landen.

Tabel 5.3:1

Kengetallen van de tritium-activiteit in kBq/m³ water in de periode 1985 t/m 1997. De norm voor oppervlaktewater en de Noordzee is 10 kBq/m³.

Table 5.3:1

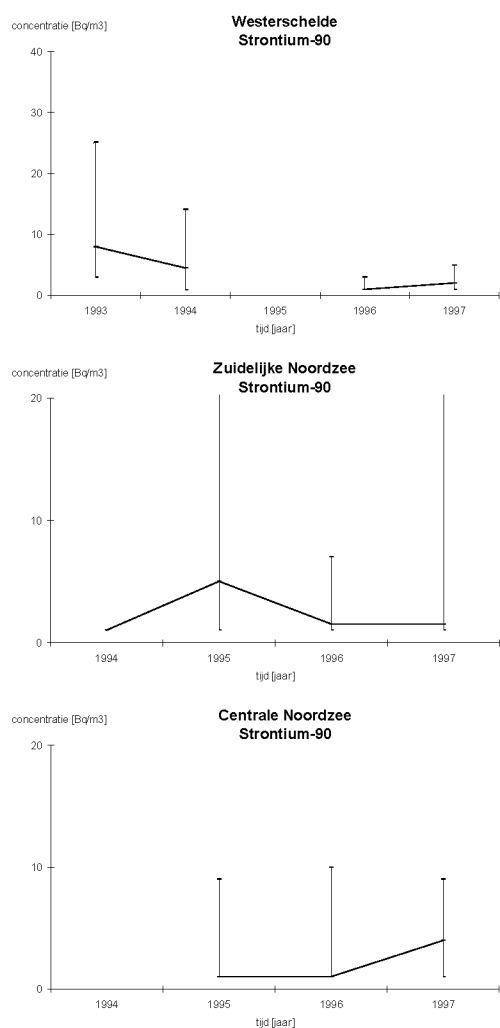
Figures for the tritium activity in kBq/m³ water in the period 1985 to 1997. The standards for surface water and the North Sea are both 10 kBq/m³.

Watersysteem/locatie	min.	max.	med.	gem. med.	literatuur	toetsratio*	
						zoet	zout
Westerschelde	0.05	30.10	4.50	7.29	7.1-19.2	0.45	0.45
Schaar van Ouden Doel	0.10	30.10	13.00	13.06		1.30	1.30
Sas van Gent	0.05	9.00	2.60	2.87		0.26	0.26
Vlissingen	1.00	18.00	4.15	4.08			0.42
Voordelta	1.00	7.80	3.00	2.97	2.1-5.2		0.30
Kustzone	1.00	7.10	3.10	3.34	1.1-4.1		0.31
Zuidelijke Noordzee	0.40	6.00	2.50	2.71	1.3-2.5		0.25
Centrale Noordzee	1.00	4.00	1.00	1.42			0.10
Waddenzee West	1.00	11.00	2.75	2.82			0.28
Eems-Dollard	1.00	8.00	2.50	2.57			0.25

* ratio = mediaan/streefwaarde

In de Westerschelde zijn de lozingen van de kerncentrales bij Doel te traceren. Vanaf Schaar van Ouden Doel naar Vlissingen wordt de concentratie ongeveer gehalveerd van gemiddelde 11 kBq/m³ tot 5 kBq/m³. Bij Schaar van Ouden Doel in de Westerschelde nemen de concentraties af door een reductie in emissies van de kerncentrales in België. Dit is in overeenkomst met de metingen in de grote rivieren. Bij andere kerncentrales wordt ook minder tritium geloosd dan voorheen. De streefwaarde werd in 1990 nog met een factor 2 overschreden.

Figuur 5.4:1 ^{90}Sr Strontiumconcentraties in de loop van de tijd.
Figure 5.4:1 ^{90}Sr Strontium concentrations in the course of time.



5.4 Strontium

De laatste jaren liggen de concentraties rond de streefwaarde. ^{90}Sr wordt voornamelijk door opwerkingsfabrieken in het zout watermilieu gebracht. Verder speelt de atmosferische depositie na kernwapenproeven een rol. Het concentratieverloop in de tijd is volledig gerelateerd aan de emissie van deze bronnen. 1964 was een piek jaar door de atmosferische depositie na een kernwapentest. In Duits onderzoek werden concentraties tot 40 Bq/m^3 gemeten in het watersysteem Noordzee internationaal. Hierna nemen de concentraties weer af tot ongeveer 10 Bq/m^3 . Daarna nemen ze weer toe tot ongeveer 20 Bq/m^3 . In deze periode loosden de opwerkingsfabrieken meer radioactieve stoffen. Hierna dalen de concentraties weer, door emissiereducties. Alleen in 1986 zijn hoge concentraties vastgesteld vanwege het ongeval in Tsjernobyl.

Tabel 5.4:1

Kengetallen van de ^{90}Sr -activiteit in water Bq/m^3 in de periode 1993 t/m 1997. De norm is 10 Bq/m^3 voor oppervlaktewater en 15 Bq/m^3 voor de Noordzee.

Table 5.4:1

Figures for the ^{90}Sr activity in water Bq/m^3 in the period 1993 to 1997. The standard is 10 Bq/m^3 for surface water and 15 Bq/m^3 for the North Sea.

Watersysteem/locatie	min.	max.	med.	gem.	literatuur	toetsratio*	
						med.	
							zoet zout
Westerschelde	1	25	4.5	5			0.45 0.30
Schaar van Ouden Doel	1	18	8.5	9			0.85 0.57
Sas van Gent	1	25	6	6			0.60 0.40
Vlissingen	1	13	2	6			0.13
Voordelta					9.4-16.9		(0.88)
Kustzone					9.0-15.6		(0.82)
Zuidelijke Noordzee	1	40	1.5	2	4.4-14.5		0.10
Centrale Noordzee	1	10	1	2	3.9-13.8		0.07
Waddenzee West					12.3-30		(1.41)
Eems-Dollard							
Franse kust					3.5		(0.23)
Britse kust					1.6		(0.11)

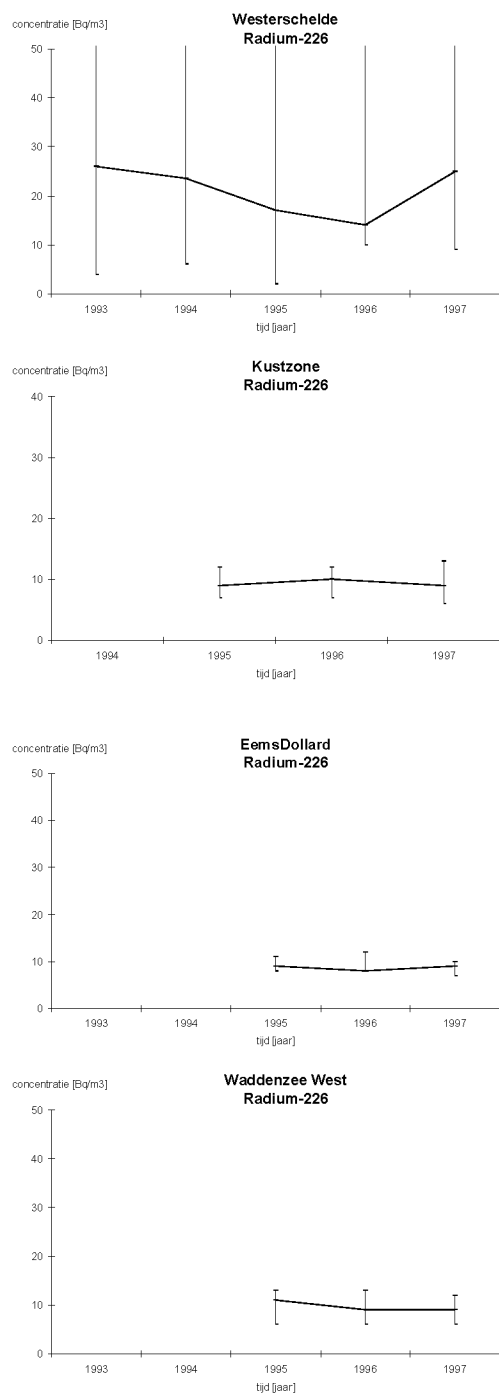
* ratio = mediaan/streefwaarde (literatuurgegevens en niet van eigen monitoringprogramma)

De invloed van de emissies van de opwerkingsfabriek in Cap La Hague is zichtbaar in de geografische verspreiding. In de Westerschelde neemt de concentratie stroomafwaarts toe door de emissies van deze industrie. In de Noordzee neemt de concentratie van zuid naar noord af door de lozingen van deze opwerkingsfabriek.

In het Nederlandse deel van de Noordzee zijn geen duidelijke invloeden van de emissies van Sellafield waarneembaar. In de centrale Noordzee zijn geen verhogingen geconstateerd. Uit de verhouding $^{90}\text{Sr}/^3\text{H}$ zou wel de invloed van Sellafield kunnen blijken.

De concentraties van de afgelopen vijf jaar variëren van een detectiegrens van 6 Bq/m^3 tot een maximum van 32 Bq/m^3 , op plaatsen waar de invloed van Cap La Hague groot is. De gemeten concentraties komen overeen met waarden die in de literatuur worden gerapporteerd (Van Elteren et.al, 1996e).

Figuur 5.5:1 ^{226}Ra Radiumconcentraties in de loop van de tijd.
Figure 5.5:1 ^{226}Ra Radium concentrations in the course of time.



De strontium-lozingen zijn de laatste jaren toegenomen. Frans/Duits/Brits onderzoek toont aan dat er in november 1990 een grotere lozing van ^{90}Sr door de opwerkingsfabriek in Le Havre heeft plaats gevonden. Hierna verplaatst de pluim zich langzaam naar het noorden. In november 1992 is de pluim aangekomen bij de kust van Jutland. Vooral uit de verhouding $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ is deze verhoogde lozing duidelijk aantoonbaar. De invloed van het water uit de Baltische Zee en van Sellafield heeft een verhouding $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ van tussen de 3 tot 6, terwijl het water van Le Havre hoofdzakelijk ^{90}Sr bevat. Water van beide bronnen bij elkaar komen is de verhouding 1/1. Omdat Le Havre meer ^{125}Sb loost, dan Sellafield kan voor hetzelfde doel ook de verhouding $^{125}\text{Sb}/^{90}\text{Sr}$ worden gebruikt (Hermann et.al., 1995).

Een drietal conclusies nu luidt:

1. De metingen bij Schaar van Ouden Doel moeten worden hervat.
2. De metingen zijn arbeidsintensief; de parameter moet beperkt in het meetplan worden opgenomen.
3. Richt het meetnet zo in dat de verhouding van $^{90}\text{Strontium}$ en tritium, $^{137}\text{Cesium}$ en/of $^{125}\text{Antimoon}$ is vast te stellen.

5.5 $^{226}\text{Radium}$, $^{210}\text{Lood}$ en $^{210}\text{Polonium}$

Deze stoffen worden door de fosfaatverwerkende industrie geloosd en zijn o.a. gevestigd aan de Westerschelde en de Nieuwe Waterweg. Verder komen deze stoffen vrij bij productieplatforms voor de winning van olie en gas. De radiotoxiciteit van $^{226}\text{Radium}$ is even hoog als het bekende radionuclide plutonium, maar wordt in veel grotere hoeveelheden in het milieu gebracht. De dochter $^{210}\text{Polonium}$ hoopt zich op in crustaceën. Uit metingen blijkt dat de lozingen van de fosfaatverwerkende industrie in Nederland een collectieve dosis van tenminste 300 mentsievert per jaar veroorzaakt.

Tabel 5.5:1

Kengetallen van de $^{226}\text{Radium}$ -activiteit in Bq/m^3 water. De streefwaarde voor zoet water en voor de Noordzee is $5 \text{ Bq}/\text{m}^3$.

Table 5.5:1

Figures for the $^{226}\text{Radium}$ activity in Bq/m^3 water. The target value for fresh water and the North Sea is $5 \text{ Bq}/\text{m}^3$.

Watersysteem/locatie	min.	max.	med.	gem. med.	literatuur	zoet	zout
Westerschelde	2	79	18	24.0	22-27	3.6	3.6
Schaar van Ouden Doel	25	79	40	39.2		8	8
Sas van Gent	10	16	13	13.0		2.6	2.6
Vlissingen	8	37	15.5	15.0			5
Voordelta							
Kustzone	6	13	9	9.3			1,9
Zuidelijke Noordzee							
Centrale Noordzee							
Waddenzee West	6	13	9	9.2	6.8		1,9
Eems-Dollard	7	12	9	8.7			1,7

* ratio = mediaan/streefwaarde

De hoogste concentraties $^{226}\text{Radium}$ zijn vastgesteld op de Westerschelde bij Schaar van Ouden Doel. Stroomafwaarts nemen de concentraties af. Ook op de Noordzee worden geen verhogingen vastgesteld.

Rond de productie van productieplatforms van olie en gas in de Nederlandse kustwateren heeft geen monitoring plaats gevonden. Uit literatuur is bekend dat het productiewater op gas- en olieplatforms ongeveer $20 \text{ GBq}/\text{a}$ van zowel ^{228}Ra als ^{226}Ra lozen met een radionuclide concentratie tot $^{240} \text{ Bq}/\text{l}$ bevat (Baxter, 1996). Er zijn geen Nederlandse

metingen die dit kunnen bevestigen. Hiervoor is aanvullend onderzoek noodzakelijk.

Er zijn enkele meetresultaten van $^{210}\text{Lood}$ en $^{210}\text{Polonium}$ beschikbaar. Opvallend zijn de hoge gehalten die voor de kustzone in 1996 zijn vastgesteld, welke de streefwaarde overschrijden. De gemiddelde waarden van $^{210}\text{Lood}$ en $^{210}\text{Polonium}$ zijn aan elkaar gelijk, waaruit blijkt dat de twee stoffen in evenwicht verkeren.

Tabel 5.5:2

Meetgegevens van $^{210}\text{Lood}$ en $^{210}\text{Polonium}$ in Bq/kg droog zwevende stof.

Table 5.5:2

Monitoring data about $^{210}\text{Lead}$ and $^{210}\text{Polonium}$ in Bq/kg suspended matter (dry weight).

Watersysteem	Locatie	Jaar	min.	max.	med.	ratio*
$^{210}\text{Lood}$						
Westerschelde	Vlissingen	1996	51	77	64	0.64
Westerschelde	Vlissingen	1997	62	63	62	0.62
Kustzone	Noordwijk 10	1996	160	160	160	1.6
Eems-Dollard	Bocht v. Watum	1996	64	87	82	0.82
Eems-Dollard	Bocht v Watum	1997	78	85	79	0.79
$^{210}\text{Polonium}$						
Westerschelde	Vlissingen	1996	51	77	64	0.64
Westerschelde	Vlissingen	1997	62	63	62	0.62
Kustzone	Noordwijk 10	1996	160	160	160	1.6
Eems-Dollard	Bocht v. Watum	1996	64	87	82	0.82
Eems-Dollard	Bocht v. Watum	1997	78	85	79	0.79

* ratio = mediaan/streefwaarde

5.6 $^{137}\text{Cesium}$

De cesium-emissies van Cap La Hague zijn veel lager geweest dan die van Sellafield. De lozingen van de opwerkingsfabriek in Sellafield nemen wel af. Deze verschillen zijn ook terug te vinden in het Noordzeewater. In het watersysteem internationaal zijn de concentraties groter dan 80 Bq/m^3 , terwijl de concentratie in het zuidelijke deel van de Noordzee varieert van $6\text{--}27 \text{ Bq/m}^3$. Deze laatste waarde komt overeen met de waarden die in het Nederlandse monitoringprogramma in de zoute wateren zijn vastgesteld. De concentraties zijn in de loop van de tijd gedaald. De analyse van de resultaten in de Westerschelde is moeilijk, omdat cesium-isotopen adsorberen aan ammonium-molybdaat-fosfaat. Hierdoor is de detectiegrens lager.

De concentraties in de Nederlandse kustwateren zijn verhoogd door de lozingen van de opwerkingsfabrieken in Le Havre en Sellafield. Dit leidt tot een hogere concentratie langs de Britse oostkust en de centrale Noordzee in vergelijking met de andere bestudeerde gebieden. Er is een dalende trend in het Noordzee water voor ^{137}Cs door afname lozingen Sellafield. Door invloed van de hogere lozingen van Sellafield zijn de concentraties in het watersysteem centrale Noordzee het hoogst (tot 17 Bq/m^3). De concentraties in de rest van de kustzone zijn het hoogst en variëren tussen 6 en 12 Bq/m^3 . (Hermann et al, 1995).

De gecombineerde radiocesium concentratie $^{134}+^{137}\text{Cs}$ is niet direct vergelijkbaar met alleen ^{137}Cs . De ^{134}Cs component is variabel in de lozing en omdat het een veel kortere halfwaardetijd heeft, zijn in het algemeen de concentraties hoger dichtbij het lozingspunt. In het Kattegat is stratificatie aangetoond, die op de centrale Noordzee afwezig is. Vanaf 1986 vertonen

de wateren van het Kattegat, Skagerrak en de kust van Noorwegen verhoogde concentraties ^{134}Cs door het ongeval in Tsjernobyl. De Oostzee is door dit ongeval een significante bron voor ^{134}Cs geworden. De invoer van ^{137}Cs via deze weg is beduidend lager (Hermann et al, 1995).

5.7 Cobalt-isotopen

De radionucliden ^{58}Co en ^{60}Co zijn activeringsproducten die ontstaan na het invangen van een neutron. ^{60}Co -bronnen worden op allerlei terreinen toegepast, zoals radiotherapie, gammagrafie en doorstraling. Voor de Nederlandse kerncentrales geldt dat de hoogste dosis afkomstig is van de nuclide ^{60}Co . In de Maas zijn verschillende keren pieken met verhoogde gehalten van de nuclide ^{58}Co vastgesteld. In vergelijking met andere bronnen dragen voor zowel het zoute- als het zoete water de lozingen van cobalt-isotopen nauwelijks bij aan de stralingsdosis.

5.8 Relatie individuele nucliden met totaal- α en rest- β

Bij de metingen in het zoete oppervlaktewater is er een duidelijke relatie tussen de verhogingen van totaal- α en $^{210}\text{Polonium}/^{226}\text{Radium}$ en rest- β en $^{210}\text{Lood}$. De metingen aan deze individuele nucliden zijn nog te schaars om dergelijke relaties in de zoute wateren vast te stellen. De meetresultaten in de Eems-Dollard van totaal- α en rest- β zijn hoog, terwijl er geen relatie bestaat met lozingen van de procesindustrie. Hiervoor is aanvullend onderzoek nodig.

Er is onderzoek naar de bronnen nodig om de relatief hoge waarden voor totaal- α en rest- β in de Eems-Dollard te verklaren.

Figuur 6.1:1

Watersysteembenadering voor monitoring.

Figure 6.1:1

Water system approach for monitoring.



6 Monitoring vanaf 1999

6.1 Informatiebehoefte

6.1.1 Algemene opzet monitoringprogramma

Vanaf 1996 is de meetstrategie de raaienadering, zoals in figuur 3.1 weergegeven, vervangen door een watersysteembenadering. De locaties worden zo gekozen dat ze representatief zijn voor een watersysteem. Figuur 6.1:1 toont de indeling van de zoute wateren in watersystemen. Na een evaluatie is het monitoringprogramma in de zoute wateren vanaf 1996 onderverdeeld in twee soorten meetnetten (Swertz & Laane, 1996). Deze keuze was gebaseerd op de informatiebehoefte en statistisch onderzoek:

- Intensief meetnet, waarin per watersysteem meerdere locaties worden bemonsterd met een hoge meetfrequentie.
- Extensief meetnet, waarin één locatie per watersysteem wordt bemonsterd met een lage meetfrequentie.

Tabel 6.1:1 geeft het aantal locaties per watersysteem en de meetfrequentie weer. Voor het sediment wordt een driejaarlijks programma ingericht, waarbij achtereenvolgens de Wadden, de Noordzee en de zoute Delta worden bezocht. Meer dan één maal in de drie jaar is niet nodig vanwege de langzamere veranderingen in de sedimentgehalten. Het meetnet in zwevende stof blijft voorlopig gehandhaafd om op korte termijn trends te kunnen aantonen. De meetfrequentie voor zwevende stof bedraagt vier maal per jaar en wordt alleen verricht op de hoofdlocaties van de belangrijkste watersystemen. Als de $\log K_d > 4$ wordt aanbevolen de stof in zwevende stof te meten en niet in het compartiment water.

Tabel 6.1:1

De meetfrequentie en het aantal locaties per watersysteem voor de compartimenten water en sediment uitgesplitst voor het intensieve en extensieve meetnet.

Table 6.1:1

The monitoring frequency and the number of sites per water system for the water and sediment compartments broken down for the active and inactive measuring networks

	Water		Sediment	
	Intensief	Extensief	Intensief	Extensief
aantal metingen in het watersysteem	10-20	1-4	11	1
aantal locaties per watersysteem	1-4	1	11	1
meetfrequentie per locatie	4-12	1-4	1/3	1/3

Voor het intensieve meetnet is de informatiebehoefte:

1. **Normtoetsing:** het voor een jaar berekenen van de toetswaarde voor een stof om te kunnen toetsen aan de milieukwaliteitsdoelstelling en/of achtergrondwaarden;
2. **Trenddetectie:** een trend is een systematische temporele verandering in de concentratie van een stof gedurende een bepaalde tijdsperiode. Bij de meetfrequentie is als criterium gesteld dat trends van 50% binnen tien jaar zijn gedetecteerd.

Voor het extensieve meetnet is de informatiebehoefte:

1. **Normtoetsing:** of de toetswaarde onder de streefwaarde blijft een 'vinger aan de pols' functie;
2. **Probleemindicatie:** officieel vallen de metingen onder projectmatig onderzoek.

Verder wordt bij de inrichting van het meetnet rekening gehouden met de internationale verplichtingen. Door de maatschappelijke perceptie van radioactieve stoffen is het meten ook van belang.

6.1.2 Normen voor radioactieve stoffen in zout water

Tot de vierde Nota waterhuishouding werd goedgekeurd in de Tweede Kamer golden de normen uit de Evaluatienota Water (Tabel 6.1:2). In de Evaluatienota Water, kortweg ENW genoemd, zijn de normen in oorsprong bedoeld als 'signalerings'-waarden voor drinkwater. In principe mochten de grenswaarden uit de ENW gebruikt worden voor de concentraties in de zoute wateren, maar gezien de oorspronkelijke betekenis was dit niet zinvol.

In de vierde Nota waterhuishouding zijn geen Maximaal Toelaatbare Risico's (MTR's) voor radioactieve stoffen afgeleid. Als streefwaarden fungeren de huidige achtergrondgehalten. Achtergrondgehalten zijn vergelijkbaar met de huidige meetwaarden op locaties zonder duidelijke verhogingen. De overschrijding van de streefwaarden moet aanleiding geven tot nader onderzoek. In dit rapport zijn, vooruitlopend op de beslissing van de Tweede Kamer, de waarden getoetst tegen de nieuwe normenset. Bij de huidige normenset voor radioactieve stoffen geldt geen standaardisatie van gehalten en toetsen aan het 50-percentiel. Voor alle radioactieve stoffen geldt dat de streefwaarden de werkelijke achtergrondgehalten zijn. Dit houdt in dat voor kunstmatige radionucliden de streefwaarde nul is.

Tabel 6.1:2

Normen voor radioactieve stoffen, ENW: Evaluatienota Water (V&W, 1994), NW4: vierde Nota waterhuishouding (V&W, 1998).

Table 6.1:2

Standards for radioactive substances. ENW: Evaluatienota waterhuishouding (V&W, 1994), NW4: fourth policyplan on water (V&W, 1998).

Parameter	grenswaarde ENW in water (Bq/m ³)	streefwaarde NW4 in zout water (Bq/m ³)	streefwaarde NW4 in zwevende stof (Bq/kg)
totaal-α	100	500	
rest-β	1000	300	
³ H	200.000	500	
²²⁶ Ra		5	
⁹⁰ Sr		15	
¹³⁷ Cs		20	
²¹⁰ Po			100
²¹⁰ Pb			100
⁵⁸ Co			10
⁶⁰ Co			10
¹³¹ I			-
overige γ- stralers			2

6.1.3 Nationale en internationale verplichtingen

De nationale verplichtingen voor het meten van radioactieve stoffen zijn vastgelegd in de Kernenergiewet van 1960. Op grond van deze wet heeft de minister van V&W de taak om een landelijk meetprogramma voor radioactieve stoffen in stand te houden met het oog op de gevaren van fallout en van buiten de grenzen komende radioactieve verontreinigingen. Door de lange tijdreeksen kunnen verhoogde concentraties met de achtergrondsconcentraties worden vergeleken.

De internationale verplichtingen voor de zoute wateren zijn vastgelegd in het Euratomverdrag uit 1957. Krachtens artikel 36 van dit verdrag verstrekken de Lidstaten periodiek inlichtingen over de radioactiviteit in het milieu. De verzamelde gegevens worden door de Euratom-commissie gebundeld in een reeks verslagen. Voor Nederland worden de gegevens aangeleverd door het Laboratorium voor Stralingsonderzoek van het RIVM.

In de OSPAR-werkgroep 'Concentrations, trends and effects of substances in the marine environment' (SIME), zijn recent enkele discussies gevoerd over het monitoren van radioactieve stoffen (tabel 6.1:3). Het doel van monitoring wordt gezien als de schatting van de individuele- en de collectieve dosis (SIME, 1996a).

Tabel 6.1:3

Doelvariabelen van OSPAR (uit SIME, 1997)

Table 6.1:3.

Target variables of OSPAR (from SIME, 1997).

Nucliden primaire interesse		Nucliden secundaire interesse	
Kunstmatige radionucliden			
¹⁴ C	niet voor monitoring	³ H	eenvoudig meetbaar, norm
⁶⁰ Co	γ-straler	⁵⁴ Mn	γ-straler
⁹⁰ Sr	opwerkingsfabrieken	⁵⁸ Co	γ-straler
⁹⁹ Tc	γ-straler	⁶⁵ Zn	γ-straler
¹⁰⁶ Ru	γ-straler	⁹⁵ Zr	γ-straler
¹²⁵ Sb	γ-straler	⁹⁵ Nb	γ-straler
¹³⁷ Cs	γ-straler; kerncentrales	¹⁰³ Ru	γ-straler
¹⁴⁴ Ce	niet bekend	^{110m} Ag	γ-straler
²³⁷ Np*	lage concentraties; Am representatief	¹⁵⁴ Eu	γ-straler
²³⁸ Pu*	lage concentraties; Am representatief	¹⁵⁵ Eu	γ-straler
^{239/240} Pu*	lage concentraties; Am representatief	²⁴² Cm	lage conc.; Am repr.
²⁴¹ Pu**	lage concentraties; Am representatief	^{243/244} Cm*	lage conc.; Am repr.
²⁴¹ Am	γ-straler, representatief voor ³⁷ Np, ²³⁸ Pu, ^{239/240} Pu, ²⁴¹ Pu, ²⁴² Cm en ^{243/244} Cm		
"Natuurlijke" radionucliden.			
²¹⁰ Pb	procesindustrie		
²¹⁰ Po	procesindustrie		
²²⁶ Ra	procesindustrie		

* Deze nuclide zijn α-emitters. Het is toegestaan dat de rapportage gelimiteerd is tot totaal-plutonium en totaal-curium.

Van vetgedrukte nucliden zijn monitoringgegevens beschikbaar in het opslagsysteem Donar.

Het toetsen aan normen heeft eenzelfde insteek. Het Maximaal Toelaatbaar Risico (MTR) omvat de concentratie die na een schatting van de effectieve volgdoos en vermenigvuldiging van een risicofactor, een risico 10⁻⁶ per bron oplevert. Voor radioactieve stoffen zijn geen MTR's afgeleid. Bij de huidige concentraties wordt het MTR niet eens benaderd. Als streefwaarde voor radioactieve stoffen is het achtergrondniveau gekozen. Als de radionucliden deze waarden overschrijden, is nader onderzoek noodzakelijk. Met de resultaten van de metingen zijn geen risico-schattingen gemaakt. Wel zijn voor alle doelvariabelen de waarden van de parameters opgenomen die voor een dergelijke berekening noodzakelijk zijn. In (Laheij et al., 1996), (Leenhouts et al., 1996) en (Heling & v.d. Steen, 1994) zijn beschrijvingen opgenomen van de modellen die voor de risico-schattingen kunnen worden gebruikt.

De bescherming van het milieu is voor radioactieve stoffen volledig op de mens gericht. Als de mens voldoende is beschermd, dan is ook het milieu voldoende beschermd.

De nationale meetverplichtingen zijn vastgelegd in de Kernenergiewet. De internationale verplichtingen zijn in de verdragen van Euratom en OSPAR opgenomen.

6.2 Meetstrategie

De meetstrategie geeft de criteria om tot een goed ontwerp van een meetnet te komen. In paragraaf 6.2.1 wordt ingegaan op de keuze van doelvariabelen. Slechts een beperkt aantal bronnen lozen radionucliden. Een doelvariabele wordt representatief voor de lozing van een bepaald bron geacht. Afhankelijk van de stoffeïenschappen vindt de bepaling van de doelvariabele in water, zwevende stof of sediment plaats (paragraaf 6.2.3). Paragraaf 6.2.2 handelt over de locatie keuze waarbij de relatie tussen watersystemen en bronnen, die dit watersysteem direct of indirect beïnvloeden belangrijk is.

6.2.1 Doelvariabelen

Tabel 6.1:3 geeft het advies voor de doelvariabelen van de OSPAR weer. De relatie tussen nuclide en bron ontbreekt (SIME, 1997). De WSV-studie gaat er van uit dat een doelvariabele representatief is voor de lozingen van een bepaalde lozingsbron. In tabel 6.1:3 is tevens het commentaar opgenomen van diverse Nederlandse experts. Veel nucliden zijn interessant om te meten, maar doordat ze bij hun verval γ -straling uitzenden gemakkelijk te detecteren. Alleen de nucliden ^3H , ^{241}Am , ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{210}Pb , ^{210}Po en ^{226}Ra zijn opgenomen in het DONAR opslagsysteem.

Met het laboratorium is afgesproken dat waarden van overige γ -stralers boven het detectieniveau worden gemeld aan de opdrachtgever.

Tabel 6.2:1 legt de relatie tussen de verontreinigingsbronnen voor de zoute wateren en de nucliden. De nucliden zijn zowel representatief voor de directe- en indirecte lozingen op het water als voor de lozingen in de atmosfeer. Voor de fosfaat-ertsverwerkende industrie en de productieplatforms van olie en gas geldt dat het moedernuclide radon in de atmosfeer terecht komt. In water zijn echter de dochters Radium, Lood en Polonium traceerbaar (Elteren et al., 1996a). Het nuclide ^{241}Am is een gammastraler die als representatief wordt beschouwd voor radiotoxische nucliden die door opwerkingsfabrieken worden geloosd. Het nuclide ^{137}Cs is een doelvariabele die zowel representatief is voor kerncentrales als voor opwerkingsfabrieken. Strontium is de belangrijkste doelvariabele voor opwerkingsfabrieken.

Bij de WSV-studie naar radioactieve stoffen is wel de nuclide ^3H in de lijst van nucliden van secundaire interesse opgenomen. Deze nuclide is gemakkelijk te detecteren en er bestaan zeer lange tijdsreeksen van. De radiotoxiciteit is zeer gering en de omgevingsfactoren beïnvloeden het resultaat van de meetgegevens vrij snel. Het verdient overweging om het monitoren van deze nuclide te beëindigen. Beleidsmakers achten monitoring van deze nuclide wel van belang.

In het Nederlandse monitoringprogramma zijn de indicatieve parameters rest- β en totaal- α opgenomen. Een aantal nucliden zenden bij verval α -deeltjes en/of β -deeltjes uit. Afhankelijk van hun energie worden ze gedetecteerd en opgenomen in de indicatieve parameter totaal- α of rest- β . Rest- β is totaal- β verminderd met de activiteit van ^{40}K . De energie van de β -deeltjes van tritium is te laag en wordt niet opgenomen in de parameter rest- β . Totaal- α en rest- β zijn indicatieve parameters en geen som-parameter. Er bestaat geen één op één relatie tussen de concentratie van een individueel nuclide en deze indicatieve parameters.

Aanvankelijk werd gedacht dat het vaststellen van deze parameters niet zinvol zou zijn. Er is geen risico-schatting mogelijk met de parameters totaal- α en rest- β . De WSV-studie stelt voor het zoete water, dat de indicatieve parameters bruikbaar zijn voor "early-warning-systems". Als deze parameters verhogingen vertonen moeten er radionucliden in hogere concentraties dan normaal zijn geloosd. Dit is in overeenstemming met de metingen in 1986, na het ongeval in Tsjernobyl. De parameter rest- β was verhoogd doordat de nucliden ^{137}Cs en ^{134}Cs in het milieu waren vrijgekomen.

Tabel 6.2:1

Overzicht van nucliden die de diverse bronnen lozen en de bijdrage van deze nucliden aan de indicatieve parameters totaal- α en rest- β .

Table 6.2:1

Overview of nuclides discharged by the various sources and the contribution of these nuclides to the indicative parameters total- α and residue- β .

Bron	Belangrijkste nucliden	Gamma-straling?	"Indicatieve" parameters
Kerncentrales	^{137}Cs	ja	rest- β
	^{60}Co	ja	rest- β
	^3H (tritium)	nee	geen bijdrage
Opwerkingsfabrieken	^{90}Sr	nee	rest- β
	^{241}Am	ja	rest- β
	^{137}Cs	nee	totaal- α
Industrieën/productieplatforms olie en gas	^{226}Ra	ja	totaal- α
	^{210}Pb	nee	rest- β
	^{210}Po	nee	totaal- α

Tabel 6.2:2 toont de uitkomst van een inventarisatiestudie van SIME over de metingen van de verschillende landen. Opvallend is dat geen enkel ander land dan Nederland de parameters totaal- α en rest- β bepaalt. Een reden hiervoor kan zijn dat met deze doelvariabelen geen risicoschatting mogelijk is.

Dit kan niet de enige reden zijn, want voor het zoete water van de Rijn en Maas worden deze parameters wel vastgesteld (Bayer, 1982; Joint Research Centre European Commission, 1994). De omgevingscondities in de zoute wateren beïnvloeden de concentraties van deze parameters zodanig dat metingen niet zinvol zijn. Beleidsmakers achten de functie van "early-warning-system" van deze parameters ook voor het zoute watersysteem van toepassing. Door de grote variatie door omgevingscondities is onderzoek naar deze functie van het meten van totaal- α en rest- β noodzakelijk.

Tabel 6.2:2

Overzicht van doelvariabelen in andere landen (uit SIME, 1997).

Table 6.2:2

Overview of target variables in other countries (from SIME, 1997).

Land	Doelvariabele
Denemarken	^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{99}Tc
Frankrijk	gamma's (^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{100}mAg , ^{54}Mn , ^{154}Eu), ^{241}Am , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ en ^3H in water en organismen.
Duitsland	Water: ^{137}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , tritium, en minder frequent ^{99}Tc , $^{106}\text{Ru/Rh}$ en in sediment gamma's, $^{239+240}\text{Pu}$ en ^{241}Am , en Biota: Pu-isotopen, ^{241}Am , ^{90}Sr
Noorwegen	^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am en ^{90}Sr
Zweden	gamma's in melk en cesium isotopen
Engeland	MAFF-rapport zeer uitgebreide monitoring in water, zwevende stof, sediment en biota met een uitgebreid parameter pakket.

Indicatieve radiochemische doelvariabelen totaal- α en rest- β straling als doelvariabele van "early-warning-system" moeten nader worden onderzocht.

Voor de kerncentrales zijn de doelvariabelen tritium, cesium en radionucliden uit de uraanvervalketen belangrijk.

Bij de lozingen van opwerkingsfabrieken zijn dezelfde nucliden als bij kerncentrales van belang. Daarnaast zijn strontium-90 en americium-241 belangrijk.

De concentraties van technetium- en plutoniumisotopen zijn te laag om een monitoringprogramma voor op te stellen.

Als een gamma-emitter als doelvariabele is gekozen, worden alle gamma-emitters in een analyse-gang gedetecteerd.

6.2.2 Meetlocaties

Voor monitoring in de zoute wateren is de raai-benadering losgelaten. In de huidige meetstrategie wordt gestreefd naar informatie over de ruimtelijke verdeling van stoffen. De zoute wateren zijn verdeeld in elf watersystemen op basis van chemische- en hydrologische kenmerken (Swertz & Laane, 1996, zie ook figuur 6.1:2):

Zoute Delta	Noordzee	Waddengebied
1. Westerschelde	5. Voordelta	9. Waddenzee West
2. Oosterschelde	6. Kustzone	10. Waddenzee Oost
3. Veerse Meer	7. Zuidelijke Noordzee	11. Eems-Dollard
4. Grevelingenmeer	8. Centrale Noordzee	

Tabel 6.2:3 geeft een overzicht van welke bronnen een watersysteem beïnvloeden. Tevens is opgenomen of voor een bron de meting in het intensieve of extensieve meetnet behoort. Als een bron direct op het watersysteem loost behoren de metingen tot het intensieve meetnet. Bij indirecte lozingen is meting in een extensief meetnet voldoende. De locaties van het historisch meetnet zijn opgenomen voor de interpretatie van de gegevens van 1985 tot 1997, welke in het vorige hoofdstuk zijn beschreven.

Tabel 6.2:3 geeft eveneens een overzicht van de verschillende emissies naar de zoute watersystemen. De niet-nucleaire industrieën lozen ²²⁶Radium, ²¹⁰Polonium en ²¹⁰Lood. De kerncentrales lozen ¹³⁷Cesium en Tritium. De opwerkingsfabrieken lozen ⁹⁰Strontium en ²⁴⁰Plutonium, ²³⁹Plutonium.

De bronnen voor de Westerschelde zijn de kerncentrales bij Doel (België), het onderzoekscentrum in Mol (België) en de fosfaatverwerkende industrieën, zowel in Nederland als in België. Monitoring van de radionucliden uit de uraanvervalketen en tritium en cesium is van belang.

Procesindustrieën lozen op de Eems-Dollard. Monitoring van de radionucliden uit de uraanvervalketen is mogelijk belangrijk. Kerncentrales lozen niet op de Eems-Dollard. Dit blijkt niet uit de monitoringsgegevens van ²¹⁰Polonium, ²¹⁰Lood en ²²⁶Radium, maar wel uit de variabelen totaal-α en rest-β.

De lozingen via de grote rivieren is van belang in de Waddenzee. Monitoring van de radionucliden uit de uraanvervalketen en tritium en cesium is mogelijk belangrijk.

Tabel 6.2:3

Overzicht over de meetlocaties in de verschillende emissiebronnen.

Table 6.2:3

Overview of the monitoring sites of the various emission sources.

Watersysteem	Kerninstallatie	Industrie	Meetlocatie in huidig meetnet**
1. Westerschelde (intensief)	Kerncentrale in Doel; Onderzoekscentrum in Mol; Kerncentrale en opslag Borssele	Fosfaatverwerkende industrie	Schaar van Ouden Doel, Vlissingen, Hansweert, Sas van Gent Borssele
2. Oosterschelde	geen	geen	geen
3. Veerse Meer	geen	geen	geen
4. Grevelingenmeer	geen	geen	geen
5. Voordelta (intensief)	indirect		Walcheren 20
6. Kustzone (extensief)	indirect, onderzoekscentrum en opslag in Petten.	Boorplatforms, indirect	Noordwijk 10 Callantsoog
7. Zuidelijke Noordzee (extensief)	Opwerkingsfabriek en in Sellafeld en LeHavre		Noordwijk 70 Ter Heijde 70, Appelzak 20 Walcheren 70
8. Centrale Noordzee (extensief)	Opwerkingsfabriek en in Sellafeld en Le Havre		Terschelling 100 Terschelling 235 Rottermeroog 100
9. Waddenzee West (extensief)	indirect	indirect	Marsdiep
10. Waddenzee Oost (extensief)	indirect	indirect	
11. Eems-Dollard (extensief)		aluminiumindustrie bauxietoverslag	Huibertsgat-Oost Bocht van Watum

* in zwevende stof

**Meetnet vanaf 1995 is cursief

Voor watersystemen waar lozingen via de grote rivieren terecht komen, zijn de nucliden uit de uraanvervalketen (²²⁶Radium, ²¹⁰Lood en ²¹⁰Polonium), tritium en ¹³⁷Cesium voor monitoring belangrijk.

In de centrale Noordzee kan de invloed van de lozingen van de opwerkingsfabrieken die o.a. ^{90}Sr en ^{241}Am lozen, onderzocht worden.

Productieplatforms lozen nucliden uit de uraanvervalketen (^{226}Ra , ^{210}Pb en ^{210}Po). Er moet een projectonderzoek komen om de invloed van productieplatforms van olie na te gaan.

6.2.3 Compartimentkeuze

De concentraties in water zijn vaak laag. Een oplossing die vaak bij het meten in oppervlaktewater wordt genomen is het meten in de zwevende stof. De zwevende-stofconcentratie in de zoute wateren is vaak laag. Daarom kiest men als compartiment het sediment. Het voorstel is om waar mogelijk in zwevende stof te meten en anders in de waterbodem als $^{10}\log K_d > 4$. Probleem voor de Noordzee/Kustzone is dat er niet voldoende zwevende stof voorhanden is.

Aanbevolen wordt projectonderzoek te doen in enkele karakteristieke en reeds gezeefde bodemon monsters. Het zand is er dan uit en het oorspronkelijke zwevende stof blijft over.

In genoemd projectonderzoek dient uitgezocht te worden of gamma-stralers in sediment goed zijn aan te tonen.

Het product van een ionenwisselaar is een alternatief voor meten in biota of zwevende stof.

Standaardiseren maakt een goede vergelijking van monsters van uiteenlopende plaats en tijd mogelijk.

Het aanbevolen onderzoek om radioactieve stoffen in de waterbodem te standaardiseren, draagt bij aan de kennis van de standaardisatie van andere stoffen, met name metalen. Afhankelijk van de bindingseigenschappen is het advies om een stof al of niet in sediment/zwevende stof dan wel water te meten. De grens wordt gelegd bij een $^{10}\log K_d$ van 4. Tabel 6.2:4 geeft een overzicht van de $^{10}\log K_d$ en het bijbehorende advies voor een compartiment voor de belangrijkste doelvariabelen.

Tabel 6.2:4

Overzicht van $^{10}\log K_d$ van enkele belangrijke nucliden en het bijbehorende compartiment voor de meetinspanning.

Table 6.2:4

Overview of $^{10}\log K_d$ of some important nuclides and the relevant compartment for the sampling effort.

Nuclide	$^{10}\log K_d$ (Ribron)	$^{10}\log K_d$ (WSV)	Compartiment
^{137}Cs	3.5	3.9	zwevende stof
^{90}Sr	3	2.5	water
^3H			water
^{60}Co	5.3	5.3	zwevende stof/sediment
^{58}Co	5.3	5.3	zwevende stof/sediment
^{241}Am	6.3		zwevende stof/sediment
^{226}Ra	3.7	3.7	water
^{210}Pb	5.3	5.3	zwevende stof/sediment
^{210}Po	7.3	5.2	zwevende stof/sediment

6.3 Monitoringprogramma 1999 -2005

Als eerste stap in de informatiebehoefte is vastgesteld welke bronnen invloed hebben op welke watersystemen, hetgeen is weergegeven in tabel 6.2:3. Tevens is in deze tabel aangegeven of de aard van de bron aanleiding geeft tot intensieve- en extensieve metingen. Alleen de bronnen die direct op het watersysteem lozen behoeven intensieve metingen. Als tweede stap is de relatie tussen bron en doelvariabele in tabel 6.2:1 gezet. De laatste stap is het bepalen van het compartiment, zoals aangegeven. Tabel 6.3:1 geeft het resultaat voor de aanbeveling van het ontwerp van het meetnet voor radioactieve stoffen voor de periode 1-1-99 tot 1-1-2005. Bij het extensieve monitoringsprogramma is gekozen voor een meetfrequentie van vier keer per jaar op 1 locatie per watersysteem. Bij het intensieve onderzoek is de meetfrequentie twaalf maal per jaar op locaties die ook in het historisch bestand voor komen.

In 1999 wordt gestart met een monitoringprogramma in zwevende stof op gammastralers, Lood en Polonium. De locaties liggen in de Westerschelde, de kustzone, de Waddenzee en de Eems-Dollard. De locatie Schouwen 10 km uit de kust vervangt de locatie Walcheren 20 als vinger-aan-de-pols voor lozingen vanuit Cap Le Hague. Bij Schouwen 10 stroomt meer water langs dat door emissies aan de Franse kust is beïnvloed. Verder wordt een onderzoek naar metingen in de waterbodem opgezet. Het doel van dit onderzoek is om te bezien of metingen in de waterbodem de metingen in zwevende stof kunnen vervangen.

In Figuur 3.1 is al een overzicht gegeven van hoe het meetprogramma gedurende 1975-1999 is veranderd. In de periode 1975 tot en met 1994 werden voornamelijk totaal- α , rest- β en tritium op zeven locaties met een lage meetfrequentie gemeten. In de periode 1995 tot en met 1998 zijn een aantal nucliden aan het programma toegevoegd en is een relatie met de bronnen werd gelegd. De keuze van de meetlocaties kwam nog tot stand volgens een raai-benadering.

Het nieuwe meetprogramma 1999 tot 2005 verschilt in twee opzichten van het voorgaande monitoringsprogramma. Het eerste verschil is in de watersysteembenadering die de raaiopzet vervangt. Hierdoor zijn enkele locaties uit het programma 1975-1994 weer opgenomen. Ten tweede is er onderscheid gemaakt tussen een intensief- en extensief meetnet. Hierdoor is in vergelijking met het voorgaande programma, de meetfrequentie op enkele locaties omlaag gegaan. Figuur 6.3:1 en tabel 6.3:1 presenteren de meetlocaties en een overzicht van het meetprogramma vanaf 1999.

In opdracht van de Europese Unie monitoort het Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Duitsland (www.bsh.de) jaarlijks de Noordzee op radioactieve stoffen. Het Nederlandse monitoringsprogramma richt zich meer op de situatie in de kustwateren en is aanvullend op dit Europese programma.

Figuur 6.3:1

De locaties (DONAR-code) van het monitoring-programma 1999-2005 in de compartimenten:

O: water,

Δ: zwevende stof,

□: water en zwevende stof,

en met gearceerd de zoute watersystemen

Figure 6.3:1

The sites (DONAR-code) in the monitoring programme 1999-2005 in the compartments:

O: water,

Δ: suspended matter,

□: water and suspended matter, and with shaded the marine water systems.



Tabel 6.3:1

Monitoringprogramma radioactieve stoffen 1999 -2005, ZS: zwevende stof, Sed: sediment.

Table 6.3:1

Monitoring programme radioactive substances 1999-2005, ZS: suspended matter, Sed: sediment.

Watersysteem	Locatie	totaal- α				γ -stralers,	
		rest- β	tritium	^{226}Ra	^{90}Sr	totaal- α , rest- β , ^{210}Pb , ^{210}Po	
		water				ZS	Sed.
Westerschelde	Vlissingen	12	12	12	4	4	
Voordelta	Schouwen 10	12	4	4	4		
Kustzone	Noordwijk 2	4	4	4		4	
	Noordwijk 10**	4	4	4			
Zuidel. Noordzee	Noordwijk 70	4	4		4		11 *
Centrale Noordzee	Terschelling 235	4	4		4		11 *
Waddenzee West	Marsdiep noord	4	4	4			
	Doove Balg West					4	
Waddenzee Oost	Dantziggat	4	4	4		4	
Eems-Dollard	Huibertgat oost	4	4	4			
	Bocht van Watum					4	

γ -stralers = ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{58}Co , ^{241}Am en andere nucliden als boven detectiegrens

* Op korte termijn bestaande monsters analyseren, in principe op 11 locaties uit het sedimentprogramma van 1996. Indien niet voldoende materiaal van locaties uit genoemde gebieden voorhanden is kunnen Kustzone-monsters worden meegenomen. Afhankelijk van resultaten, kunnen in 2000 te bemonsteren locaties in het monitoringprogramma worden opgenomen.

** Alleen in 1999.

7 Conclusies en aanbevelingen

Monitoring radioactieve stoffen

Het monitoren van radioactieve stoffen heeft tot doel “een vinger aan de pols te houden”, dat is, met andere woorden, te controleren of de concentraties in het mariene milieu niet boven de streefwaarden uit komen. Bovendien is dankzij monitoring voldoende meetkennis aanwezig in geval zich een ernstige calamiteit dreigt voor te doen.

Het meetnet 1999 - 2005

Voor het meetnet 1999-2005 is eerst vastgesteld welke doelvariabelen relevant zijn voor welke bronnen. Hierbij worden de volgende conclusies getrokken:

1. Voor de kerncentrales zijn de radionucliden tritium, cesium-, en radionucliden uit de uraanvervalketen belangrijk;
2. Bij de lozingen van opwerkingsfabrieken zijn dezelfde nucliden als bij kerncentrales van belang. Daarnaast zijn ⁹⁰Strontium en ²⁴¹Americium belangrijke variabelen;
3. Voor de procesindustrie zijn de doelvariabelen ²¹⁰Lood, ²¹⁰Polonium en ²²⁶Radium belangrijk.

Verder is vastgesteld:

4. De concentraties van technetium- en plutoniumisotopen zijn te laag om in een monitoringprogramma op te nemen;
5. Als een gamma-emitter als doelvariabele is gekozen, worden alle gamma-emitters in een analyse-gang gedetecteerd;
6. De metingen van ⁹⁰Strontium zijn arbeidsintensief, daarom wordt de parameter beperkt in het meetplan opgenomen;
7. Alleen watersystemen die direct door een bron worden beïnvloed, behoren tot het intensieve meetnet, de overige systemen worden extensief bemeten.

Trendbreuken in totaal- α en rest- β

Tussen 1990 en 1993 zijn voor totaal- α lage waarden vastgesteld. Na deze periode nemen de concentraties weer toe. Er zijn drie mogelijke verklaringen:

1. In de periode 1990 t/m 1993 was de tijd tussen monsternamen en analyse extreem lang, zodat door absorptie aan de fleswand en verval de meetwaarden lager kunnen zijn uitgekomen.
2. In 1994 heeft het radiochemisch laboratorium nieuwe apparatuur met een lagere detectiegrens aangeschaft. Dit zou van invloed op de meetresultaten kunnen zijn.
3. Er was een tijdelijke lagere productie en lozing van de kunstmest-industrie in de Nieuwe Waterweg. In dezelfde periode met de lage meetresultaten in de Kustzone en Centrale Noordzee waren de waarden voor de locatie in de Nieuwe Waterweg ook een factor 2 en 3 lager dan voor en na 1990-1993.

Voor rest- β zijn de meetwaarden vanaf 1994 juist lager. De meest voor de hand liggende verklaring is de wijziging van meetapparatuur in deze periode.

Afspraken

1. Met het laboratorium is afgesproken dat waarden van overige γ -stralers boven het detectieniveau aan de opdrachtgever worden gemeld.
2. De metingen bij Schaar van Ouden Doel worden hervat.

Afstemming

Zowel voor het meetprogramma als voor de uitkomsten van de WSV-stofstudies moet het volgende worden afgestemd:

1. De verschillen voor de distributiecoëfficiënt uit de RIBRON-studie en de WSV-studies moeten aan het ministerie van VROM worden voorgelegd;
2. Het monitoringprogramma moet internationaal worden afgestemd, met name met het Duitse meetprogramma. Neem contact op met de Belgen om na te gaan of zij Cap La Hague volgen, en met Duitsland (DHI) in hoeverre wij gebruik kunnen maken van het IAEA-programma (het verplichte jaarlijkse onderzoek dat zij uitvoeren).

Onderzoek

Standaardiseren sediment

Standaardiseren dient om een goede vergelijking tussen monsters van uiteenlopende plaats en tijd mogelijk te maken. De gehalten radioactieve stoffen in zwevende stof en/of sediment in het mariene milieu dienen daartoe gestandaardiseerd te worden op de wijze van de sedimentformule.

1. Voor toepassing in de sedimentformule dient de relatie tussen radionucliden en de binding aan organische koolstof en lutum te worden vastgesteld. In Bijlage 5 is een onderzoeksvoorstel opgenomen;
2. Aanbevolen wordt eenmalig representatieve sedimentmonsters op radioactiviteit te analyseren en vervolgens na te gaan of monitoring van sediment zinvol is;

Overige onderzoeksvragen

1. Aanbevolen wordt een modelstudie te verrichten naar de bijdrage van de atmosferische depositie van radioactieve stoffen op de waterkwaliteit;
2. Aanbevolen wordt een projectonderzoek te doen om de invloed van olie-productieplatforms in zee na te gaan;
3. De verwachting is dat Radium, Lood en Polonium in een vaste verhouding voorkomen. Deze kan gebruikt worden om lozing van een van de elementen aan te tonen;
4. De huidige en ook in dit rapport aanbevolen toetsprocedure gaat uit van het vergelijken van mediane concentraties met achtergrondwaarden. De vraag is of omdat hier sprake is van een risicotoetsing, de keuze in strijd is met de benadering voor Maximaal Toelaatbaar Risico en het 90-percentiel als toetswaarde;
5. De meerwaarde van indicatieve radiochemische parameters totaal- α -, rest- β -straling voor een "early-warning-system" kan nader worden onderzocht.
6. Is een ionenwisselaar een volwaardig alternatief voor meten in biota of zwevende stof?

Referenties

- Baxter, M.S., 1996.
Technologically enhanced Radioactivity: an overview.
J. Environ. Radioactivity Vol. 32 no.1-2: 3-117
- Bayer, A., 1982.
The radiological exposure of the population in the Rhine-Meuse Region. A forecast based on the information available at the end of 1980 on discharge from nuclear facilities.
Prepared under the terms of study contracts 1106 (2) -77-10 L/V and 1130(2)-78-10 L/V. Grand-Duchy, Luxemborg.
- Comans, R.N.J.; Haller, M.; Weijden, C.H. van der, 1989.
Reversibiliteit van cesium interactie met kleimineralen, gesuspendeerd slib, en sediment van Nederlandse waterbodems.
Eindrapport Cesium project in opdracht van RIZA onder contractnr. DB-255.
- Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996a.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Radium-226, Lead-210 and Polonium-210.
Delft University of Technology. Interfaculty Reacoer Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73861-34-9.
- Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996b.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Plutonium-239 and Plutonium-240.
Delft University of Technology. Interfaculty Reactor Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73861-36-5.
- Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996c.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Tritium.
Delft University of Technology. Interfaculty Reacoer Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73861-37-3.
- Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996d.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Caesium-134 and caesium-137.
Delft University of Technology. Interfaculty Reacoer Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73861-38-1.
- Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996e.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Strontium-90.
Delft University of Technology. Interfaculty Reacoer Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73861-39-x.
- Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996f.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Total alpha, total beta and rest beta.
Delft University of Technology. Interfaculty Reacoer Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73861-40-3.

Elteren, J.T. van; Goeij, J.J.M. de; Kok, J. de; Kolar, Z.I.; Wolterbeek, 1996g.
Radionuclides in Dutch watersystems research project: Cobalt-60.
Delft University of Technology. Interfaculty Reacoer Institute (IRI)
Department of radiochemistry. ISBN 90-73862-35-7.

Heling, R. Steen, J. van der, 1994.
Risks of unit discharges of naturally occurring radioactive matter by oil and
gas production platforms on the Dutch Part of the Continental Shelf.
KEMA rapport 40287-NUC 94-5272.

Herman, J.; Kershaw, P.J.; Bailly du Bois, P.; Guegeueniat, 1995.
The Distribution of artificial radionuclides in the English Cannel, southern
North Sea, Skageraak en Kattegat.
Journal of Marine Systems 6 (1995): 427-456.

Joint Research Centre European Commission, 1994.
Environmental Radioactivity in the European Community. 1987 - 1988 -
1989 - 1990.
DG XI: Environment, Nuclear Safety and Civil Protection (Luxembourg).
JRC, Environmental Institute (Ispra).

Jong, P. de; Kal, H.B., 1995.
Evaluatie CCRX meetprogramma radioactieve stoffen.
CCRX-rapport, 31 p.

Jong, E.J; Akkerman, I.; Zeijl, W.J.M. van, 1994.
Plan van aanpak jaren 1995 t/m 2000 metingen van radioactieve stoffen in
zout water.
RIZA memo d.d. 18-8-94.

Kleverling Buisman, A.S., 1996.
Handboek Radionucliden.
Beta Text, Bergen. ISBN 90-75441-02-3

Laheij, G.M.H.; Blaauboer, T.O.; Lembrechts, J.F.M.M., 1996.
Risicoberekening voor in het milieu geloosde radionucliden. Onderbouwing
richtlijn voor vergunningen (RIBRON) EERSTE HERZIENE VERSIE.
RIVM rapport nr. 6100503005.

Leenhouts, H.P.; Stoop, P.; Tuinen, S.T. van, 1996.
Non-Nuclear Industries in the Netherlands and radiological Risks.
RIVM rapport 610053003.

Mudge, S.M.; Assinder, D.J.; Bourne, G.S., 1997.
Radiological Assessment of the Ribble Estuary - I Redistribution of
Radionuclides.
J. Environ. Radioactivity Vol. 36 no.1: 1-19

Nies, H., 1990.
The Contamination of the North Sea Artificial Radionuclides during the year
1987.
...

Oslo en Paris Commissions (OSPAR), 1993.
Quality Status Report of the North Sea, Subregion 4.
North Sea Task Force.

Oslo and Paris Commissions (OSPAR), 1997.
Report on Liquid discharges from Nuclear Installations in 1995. Report on Mercury Losses from the Chlor-Alkali Industry (1982 - 1995).
OSPAR, London.

Oslo and Paris Commissions (OSPAR), 1998.
Technecium-99 contamination in the North Sea and in Norwegian Coastal Areas 1996 and 1997. Submitted by Norway.
HOD (1) 98/II/Info.2-E.

RAD, 1995.
Discharges of Radioactive substances by Non-Nuclear Industries.
OSPARCOM working group on radioactive substances, Lissabon, 1-3 february 1995.
RAD 95/4//1-E

SIME, 1996a.
Working Document for the development of a SIME Work Strategy for Radionuclides. Annex 31.
Ref. § 17.6

SIME, 1996b.
Environmental monitoring of marine radioactive contamination.
SIME/96/17/1-E

SIME, 1996c.
Dutch sources of emissions of lead-210 en Polonium-210 relevant for the marine environment: their impact on marine organism and possible health risks for consumers.
SIME/96/17/2-E

SIME, 1997.
Information on concentrations of radionuclides with significant environmental impact.
SIME (2) 97/4/8-E(L).

Smedes, F., J. Lourens & A. van Wezel, 1997a.
Zand, slib en zeven: standaardisering van contaminantgehalten in mariene sedimenten.
Rapport RIKZ-96.043, ISSN 0927-3980, 135 p.

Smedes, F., 1997b.
Het gebruik van de sedimentformule in de praktijk.
Werkdocument RIKZ/IT-97.638x, 8 p.

Swertz, O.C. & R.W.P.M. Laane, 1996.
Slimmere monitoring van verontreinigingen in de zoute wateren.
H2O 26, pp 763-766.

Swertz, O.C & J. Stronkhorst, 1998.
Chemische monitoring zoute wateren - Evaluatie 1988-1994 en strategie 1996-2000.
Werkdocument RIKZ/IT-98.107X.

Timmermans, C.W.M. & J. van der Steen, 1996.
Environmental and occupational impacts of natural radioactivity from some non-nuclear industries in The Netherlands.

J. Environ. Radioactivity Vol. 32 no. 1-2: 97-104.

Verkeer en Waterstaat, Ministerie van, 1994.

Evaluatienota Water, Regeringsbeslissing, Aanvullende beleidsmaatregelen en financiering 1994-1998.

Tweede Kamer, vergaderjaar 1993-1994, 21 250, nrs. 27-28. SDU, Den Haag, 164 p.

Verkeer en Waterstaat, Ministerie van, 1998.

Vierde Nota waterhuishouding, Regeringsbeslissing.

Ministerie van Verkeer en Waterstaat, Bestelling Ando bv, Den Haag, (070) 38507 08, 165 p.

Afkortingen

COVRA: Centrale Organisatie voor Verwerking van Radioactief Afval
DHI: Deutsche Hydrografische Institut
DONAR: Centrale opslagsysteem voor monitoringgegevens
ENW: Evaluatienota Water
IAEA: International Atomic Energy Agency
IMO: Internationale Maritieme Organisatie
MTR: Maximaal Toelaatbaar Risico
MWTL Monitoring Waterstaatkundige Toestand des Lands
Min.: Laagst waarde uit de reeks
Max.: Hoogst waarde uit de reeks
Med.: Mediane (middelste) waarde uit de reeks
N: Aantal waarnemingen in de reeks
N<: Aantal waarnemingen in de reeks kleiner dan de detectiegrens
NW4: Vierde Nota waterhuishouding
OSPAR: Commissie voor de bescherming van het mariene milieu in de Noordoost-Atlantische Oceaan
PCB: Polychloorbifenyyl
RIBRON: Risicoberekening voor in het milieu geloosde radionucliden.
Commissie Integraal Waterbeheer (CIW)
RIKZ: Rijksinstituut voor Kust en Zee
RIVO: Rijksinstituut voor Visserijonderzoek
RIZA: Rijksinstituut voor Integraal Zoetwaterbeheer en Afvalwaterbehandeling
RWS: Rijkswaterstaat
WSV: Watersysteemverkenningen
VROM: Ministerie van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer

Bijlage 1: Stofeigenschappen

Tabel 2.2:1

Belangrijke parameters van doelvariabelen.

Tabel 2.2:1

Important parameters of target variables.

Uit/From: Elteren et al 1996a, Elteren et al 1996b, Elteren et al 1996c, Elteren et al 1996d, Elteren et al 1996e, Laheij et al 1996, Keverling Buisman, 1996.

	¹²⁵ Sb	⁹⁹ Tc	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	⁹⁰ Sr	³ H
Radiotoxiciteit	Gemiddeld/3	Laag	Gemiddeld/3	Hoog	Hoog	Laag
halveringstijd (jaar)	2,76	2.13 10 ⁵	30.25	2.065	28.7	12.35
DF inhalatie (Sv/Bq)	3.3 10 ⁻⁹	3.2 10 ⁻⁹	6.7 10 ⁻⁹	9.6 10 ⁻⁹	7.7 10 ⁻⁸	1.810 ⁻¹¹
DF ingestie (Sv/Bq)	1.1 10 ⁻⁹	7.8 10 ⁻¹⁰	1.3 10 ⁻⁸	1.9 10 ⁻⁸	2.8 10 ⁻⁸	1.810 ⁻¹¹
RE inhalatie (Bq)	2 10 ⁸	3 10 ⁸	2 10 ⁸	1 10 ⁸	7 10 ⁶	6 10 ¹⁰
RE ingestie (Bq)	9 10 ⁸	1 10 ⁹	8 10 ⁷	5 10 ⁷	3 10 ⁷	6 10 ¹⁰
K _d (Laheij et al., 1996)	-	10 ²	3 10 ³	3 10 ³	10 ³	-
K _d (WSV-documenten)	n.v.t.	n.v.t.	8 10 ³	8 10 ³	3.5 10 ²	
BCF zeevis	-	30	10 ²	10 ²	3	0.8-1
BCF crustaceeën	-	10 ³	30	30	10	0.8-1
BCF mosselen	-	10 ³	30	30	10 ²	0.8-1
alfa	nee	nee	nee	nee	nee	nee
beta	ja	ja	ja	ja	ja	ja (laag)
gamma	ja	nee	ja	ja	nee	nee

	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	⁶⁰ Co	⁵⁸ Co	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb	²¹⁰ Po
Radiotoxiciteit	Zeer hoog/1	Hoog	Gemiddeld/3	Zeer hoog/1	Gemiddeld/3	Zeer hoog/1
halveringstijd (jaar)	24111	5.272	70.78 dagen	1600	22.3	138.38 dagen
DF inhalatie (Sv/Bq)	3.2 10 ⁻⁵	1.7 10 ⁻⁸	1.7 10 ⁻⁹	1.2 10 ⁻⁵	1.1 10 ⁻⁶	2.2 10 ⁻⁶
DF ingestie (Sv/Bq)	5.3 10 ⁻⁸	3.4 10 ⁻⁹	7.4 10 ⁻¹⁰	2.8 10 ⁻⁷	6.8 10 ⁻⁷	2.2 10 ⁻⁷
RE inhalatie (Bq)	2 10 ⁴	3 10 ⁷	5 10 ⁸	8 10 ⁴	9 10 ⁵	5 10 ⁵
RE ingestie (Bq)	2 10 ⁷	3 10 ⁸	1 10 ⁹	4 10 ⁶	1 10 ⁶	5 10 ⁶
K _d (Laheij et al. 1996)	10 ⁵	2 10 ⁵	2 10 ⁵	5 10 ³	2 10 ⁵	2 10 ⁷
K _d (WSV-documenten)	10 ⁵	2 10 ⁵	2 10 ⁵	5 10 ³	2 10 ⁵	1.7 10 ⁵
BCF zeevis	40	10 ³	10 ³	5 10 ²	210 ²	2 10 ³
BCF crustaceeën	8.9 10 ²	5 10 ³	5 10 ³	10 ²	10 ³	5 10 ⁴
BCF mosselen	3 10 ³	5 10 ³	5 10 ³	10 ³	10 ³	10 ⁴
alfa	ja	nee	nee	ja	nee	ja
beta	nee	ja	ja	nee	ja	nee
gamma	ja	ja	ja	nee	nee	nee

Vervaltijd: tijd waarin de helft van de deeltjes verval tot niet radioactief materiaal

DF: dosisconversiefactor (Bq/Sv)

RE: radiotoxiciteitsequivalent; de activiteit die bij opname in het lichaam een effectieve volgdosis van 1 Sv geeft. (Sv/Bq)

K_d: distributiecoëfficiënt (kg/l);

BCF: bioconcentratiefactor

alfa: zendt bij verval alfa-straling (He²⁺-deeltjes) uit

beta: zendt bij verval beta-deeltjes (elektronen of positronen) uit.

gamma: zendt bij verval gamma-deeltjes (energierijke fotonen) uit.

Bijlage 2: Achtergrondconcentraties

Tabel 2.3:1.

Concentraties in watersystemen in Bq/m³, behalve tritium (³H) in kBq/m³.

Table 2.3:1

Concentrations in water systems in Bq/m³, except for tritium (³H) in kBq/m³.

Uit/From: Herman et al, 1995 en Elteren et al 1996a, Elteren et al 1996b, Elteren et al 1996c, Elteren et al 1996d, Elteren et al 1996e, Elteren et al. 1996f

Watersysteem	¹²⁵ Sb	⁹⁹ Tc	¹³⁷ Cs	¹³⁴⁺¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Westerschelde	3.7	-	5.2	-	-	
Voordelta	5.9-12	0.7-1.3	6.8-12.4	6.2-10.9	9.4-16.9	
Kustzone	1.9-9.8	1.1	4-9.3	6-9.9	9.0-15.6	39
Zuidelijke N'zee	1.5-9.3	0.3-2.8	6.5-10.9	6.3-13.3	4.4-14.5	
Centrale N'zee	1.1-12.7	0.3-1.1	8.6-17.1	6.1-22.6	3.9-13.8	
Waddenz. West	4.8	0.9-1.9	5.9-9.1	-	-	7.1-16
Waddenz. Oost	3.8	-	3-10.1	-	-	7.1-16
(Franse kust)	11-17	0.6-(4.5)	11.3-12.5	6.6-12.2	12.3-30	
(Britse kust)	0.8	0.2	9.3-23.8	9-13.8	3.5	
achtergrond-concentratie	verwaarloosbaar	0.005	2.5		1.6	0.01
AC NW4			20		15	

Watersysteem	³ H	⁶⁰ Co	²²⁶ Ra*	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
Westerschelde	7.1-19.2	5	22-27	7-26	7-26
Voordelta		7-17			
Kustzone	2.1-5.2			1.4	2
Zuidelijke N'zee	1.1-4.1				
Centrale N'zee	1.3-2.5	14-22			
Waddenz. West			6.8	6.1	4.9
Waddenz. Oost					
AC NW4			5		

AC NW4: Achtergrondconcentratie vierde Nota waterhuishouding (V&W, 1998)

Tabel 2.3:2

Gehalte in zwevende stof in Bq/kg.

Table 2.3:2

Content in suspended matter in Bq/kg.

Uit/From: Herman et al, 1995, Elteren et al., 1996a, Elteren et al 1996b, Elteren et al 1996e, Elteren et al 1996.

Watersysteem	⁶⁰ Co	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb	¹³⁷ Cs	²²⁶ Ra*	²¹⁰ Po	²¹⁰ Pb
Westerschelde	5	100-111	141-152		22-27	7-26	7-26
Voordelta	7-17						
Kustzone		86	119			1.4	2
Zuidelijke N'zee							
Centrale N'zee	14-22						
Waddenz. West		103	56		6.8	6.1	4.9
Waddenz. Oost							
achtergrond-concentratie**							

AC NW4 2 100 100 100 5 - -
AC NW4: Achtergrondconcentratie vierde Nota waterhuishouding (V&W, 1998)

* metingen in water in Bq/m³.

** (literatuur over oceanen)

Bijlage 3: Standaardisering in zoete wateren (standaardbodemformule)

Van zware metalen en organische microvereenigingen is bekend dat ze sterk hechten aan bepaalde componenten in de zwevende stof in het water en in de waterbodem. De gemeten gehalten in zwevende stof en waterbodem is daarom afhankelijk van de gehalten van, met name, het organische-koolstof- en het lutumgehalte van de waterbodem en de zwevende stof. Het gehalte aan zwevende stof beïnvloedt de concentraties in water. Voor de stoffen die sterk adsorberen wordt daarom omgerekend naar water met een vaste hoeveelheid zwevende stof en naar standaard zwevende stof, en een waterbodem met gestandaardiseerde gehalten aan organisch koolstof en aan lutum. Om extremen voor deze correctie te voorkomen zijn voor de gemeten hoeveelheden grenzen gesteld voor organische koolstof en lutum, waarbij correctie niet nodig is.

De standaardisatie van concentraties in water vindt plaats via de formule:

$$C_{\text{totaal, standaard}} = C_{\text{totaal, gemeten}} \cdot \frac{1 + K \cdot \frac{30}{1000}}{1 + K \cdot \frac{ZS}{1000}}$$

Hierin is:

$C_{\text{totaal, standaard}}$	gestandaardiseerde gehalte
$C_{\text{totaal, gemeten}}$	gemeten gehalte
K	verdelingsconstante (l/g)
ZS	gemeten zwevende-stofconcentratie (mg/l)

Als de zwevende-stofconcentratie ontbreekt, wordt een waarde van 30 mg/l aangehouden, hetgeen neerkomt op het niet standaardiseren van de parameter.

Als minimumgrens voor de zwevende-stofconcentratie wordt 10 mg/l aangehouden.

De K-waarden voor radioactieve stoffen zijn opgenomen in tabel B.3:1.

Standaardisatie van gehalten in zwevende stof gebeurt via onderstaande formule:

$$C_{ZS, \text{standaard}} = C_{ZS, \text{gemeten}} \cdot \frac{a + b \cdot 40 + c \cdot 20}{a + b \cdot \% \text{lutum} + c \cdot \% \text{org. stof}}$$

Hierin is:

$C_{ZS, \text{standaard}}$	gestandaardiseerde gehalte
$C_{ZS, \text{gemeten}}$	gemeten gehalte
$\% \text{ lutum}$	gemeten percentage lutum in zwevende stof
$\% \text{ org. Stof}$	gemeten percentage organische stof in zwevende stof
a, b, c	constanten afhankelijk van de parameter, deze zijn beschreven in paragraaf F.3.

In eerste instantie wordt gekeken of het lutumpercentage zelf beschikbaar is in de invoer voor de toets. Als het lutum percentage voorkomt en het is tenminste 20%, dan wordt dit percentage toegepast in bovenstaande formule. Als het lutumpercentage minder is dan 20%, of het lutumpercentage is onbekend, dan wordt het te gebruiken lutumpercentage gelijk aan $0,63 \cdot \% \text{ KGF} < 16 \mu\text{m}$ (percentage van de korrelgroottefractie dat kleiner is dan 16 micrometer). Als naast het lutumpercentage ook de korrelgroottefractie ontbreekt, vindt geen correctie voor zwevende stof plaats. Dan wordt voor het lutumpercentage de waarde 40 gehanteerd. Als het uiteindelijke resulterende lutumpercentage kleiner is dan 2%, wordt de waarde 2% gebruikt in bovenstaande formule.

In eerste instantie wordt gekeken of het percentage organische stof aanwezig is in de invoer voor de toets. Als deze aanwezig is, wordt deze in bovenstaande formule toegepast. Als het niet aanwezig is, wordt gekeken of een waarde voor organische koolstof aanwezig is. Is dat het geval dan wordt het percentage organische stof bepaald uit $1,724 \cdot \% \text{ organisch koolstof}$. Als ook de meetwaarde voor organische koolstof afwezig is, dan wordt gekeken of een meetwaarde voor gloeirest aanwezig is. Is dat het geval, dan wordt het percentage organische stof gelijk aan $0,90 \cdot (100 - \text{gemeten percentage gloeirest})$. Als organisch stof, organische koolstof én gloeirest ontbreken, vindt er geen correctie plaats. Hiertoe wordt in bovenstaande formule de waarde 20 gehanteerd. De ondergrens voor organische stof is 2%. De bovengrens voor organische stof is 30%. Waarden buiten dit interval worden op de intervalgrens gelegd.

In de formules worden standaardisatiefactoren gebruikt. Deze factoren verschillen per te standaardiseren parameter. Onderstaande tabel bevat de standaardisatiefactoren, zoals opgenomen in Notove.

Tabel B3:1.

De K_d -waarden uit Tabel 2.2:1 en de K-waarden en standaardisatiefactoren, uit NOTOVE.

Table B3:1

The K_d values from table 2.2:1 and the K values and standardisation factors from NOTOVE.

Parameter	a	b	c	K (NOTOVE)	K_d RIBRON)	K_d (WSV)
Cd	0.4	0.007	0.021	130		
Cr	50	2	0	290		
Cu	15	0.6	0.6	50		
Hg	0.2	0.0034	0.0017	170		
Ni	10	1	0	8		
Pb	50	1	1	640		
Zn	50	3	1.5	110		
^{137}Cs	0	0	1	-999	3000	8000
^{210}Pb	50	1	1	640	20000	200000
^{210}Po	0	0	1	-999	20000000	170000
^{131}I	0	0	1	-999	20	
^{99}Tc					100	
^{60}Co					200000	200000
^{226}Ra					5000	5000

Bijlage 4: Standaardisering in zoute wateren (sedimentformule)

In 1997 is de sedimentformule gepresenteerd (Smedes, 1997). Deze is gebaseerd op:

- het feit dat in sedimenten vervuiling adsorbeert aan de fijne deeltjes (lutum) en de organisch stof, én
- in het silica-skelet van zand wel een natuurlijk gehalte aan metalen aanwezig is, maar geen meetbare hoeveelheid gebonden wordt als zand aan vervuiling wordt blootgesteld, d.w.z. dat het zand in een monster een verwaarloosbare bindingscapaciteit heeft.

Metalen

Gemeten metaal gehalten kunnen met formule (1) worden omgerekend naar standaardbodemsamenstelling (25% lutum en 10% OS).

$$C_{stb} = \frac{C_m - z}{0.02 L_m + 0.05 OS_m} + z$$

Hierin is C_m het gemeten metaal gehalte, L_m en OS_m respectievelijk het lutum- en organisch stof gehalte, en z een constante zijnde het gemiddeld in zand ingesloten gehalte van dat betreffende metaal. Deze z -waarden zijn vermeld in de eerste kolom van Tabel B4:1. Parallel aan de omrekening wordt de standaardafwijking (de fout) van de toetswaarde (C_{stb}) berekend uit de analysefouten van de afzonderlijke parameters. Hiervoor kan de volgende formule worden gebruikt:

$$s_{C_{stb}} = \sqrt{s_a^2 + s_b^2 + s_z^2}$$

met

$$s_a^2 = \frac{(s_{C_m}^A)^2 + (s_{C_m}^R)^2 C_m^2 0.01^2 + s_z^2}{(0.02 L_m + 0.05 OS_m)^2}$$

$$s_b^2 = \frac{[(s_{L_m}^A)^2 0.02^2 + (s_{L_m}^R)^2 L_m^2 0.0002^2 + (s_{OS_m}^A)^2 0.05^2 + (s_{OS_m}^R)^2 OS_m^2 0.0005^2] [C_m - z]^2}{(0.02 L_m + 0.05 OS_m)^4}$$

De standaardafwijkingen van de analyseresultaten moeten bij het analyserend laboratorium worden opgevraagd. Hierbij moet onderscheid worden gemaakt tussen de absolute (s^A) - en relatieve (s^R) standaardafwijking. Wanneer deze niet bekend zijn kan voor de absolute standaardafwijking de halve detectiegrens worden aangehouden, en voor de relatieve standaardafwijking 10% voor de metalen, en 5% voor lutum en OS. De natuurlijke variatie in z (standaardafwijking van z is s_z) is vermeld in Tabel B4:1. Indicatieve standaardafwijkingen van de diverse parameters zijn gegeven in Tabel B4:2.

Organische stoffen

Standaardisering voor organische contaminanten vindt plaats met behulp van de volgende formule.

$$C_{stb} = C_m \frac{10}{OS_m}$$

Doorberekening van de fouten met behulp van individuele standaardafwijkingen vindt plaats met de volgende formule:

$$S_{C_{stb}} = \sqrt{\left[\frac{(s_{C_m}^A)^2 + \left(\frac{s_{C_m}^R}{100}\right)^2 C_m^2}{C_m^2} + \frac{(s_{OS_m}^A)^2 + \left(\frac{s_{OS_m}^R}{100}\right)^2 OS_m^2}{OS_m^2} \right] \frac{100 C_m^2}{OS_m^2}}$$

Voor de standaardafwijking van organische microverontreinigingen analyses is opgave van het analyserend laboratorium van groot belang omdat dit per laboratorium veel kan verschillen. Als toch met een schatting moet worden gewerkt kan voor (s^A) weer de halve detectiegrens worden toegepast en moet de relatieve standaardafwijking (s^R) op 20% worden gesteld.

Wanneer zeven

Vanwege de doorwerking van analysefouten neemt bij OS_m gehalten kleiner dan 1% de betrouwbaarheid van de standaardisering sterk af. Afhankelijk van de analysespreiding van het analyserend laboratorium kan dit ook al bij hogere gehalten gebeuren. Als vuistregel geldt dat voor een monster met een OS_m gehalte lager dan 1% de zeeffractie moet worden geanalyseerd. De praktijk moet uitwijzen of deze grens mogelijk nog moet worden verhoogd.

Analyse en toetsing aan de norm

Stappen in de analyse:

1. Monsters homogeniseren;
2. Aan de hand van voorkennis kan beslist worden of monsters wel dan niet gezeefd moeten worden. Zijn OS_m gehalten altijd groter dan 1% dan verder met punt 4. Wanneer het OS_m gehalte niet bekend is voor een gebied moet dit voor zandige monsters eerst bepaald worden;
3. Monster zeven over 63 μm en homogeniseren;
4. Analyse van OS, lutum en contaminanten;
5. Resultaat van standaardisering berekenen $\div$ toetswaarde;
6. Fout in toetswaarde t.g.v. analyse spreiding berekenen $\div$ standaardafwijking;
7. Toetsen, wat o.a. deze twee toestanden kan opleveren:
 - A: toetswaarde is lager dan norm
 - B: toetswaarde+standaardafwijking is lager dan 1,25 maal de norm
8. In de beoordeling zijn er nu vier situaties mogelijk:
 - I Voldoet een monster aan A en B, dan wordt de norm niet overschreden.
 - II Wordt niet aan A en B voldaan dan wordt de norm overschreden.
 - III Voldoet een monster aan A maar niet aan B: het monster dan zeven en in de zeeffractie meten.
 - IV Een monster dat wel voldoet aan B maar niet aan A is een grensgeval in het normgebied. Het monster "zit op de norm". Zeven is zinloos omdat de standaardafwijking al vrij laag is.

Bij situatie II kan het voorkomen dat, als de fout erg groot is, daardoor de overschrijding niet significant is. Als de vuistregel voor wel of niet zeven goed wordt uitgevoerd, zal dat nooit het geval zijn en zal ook situatie III nooit voorkomen.

Tabel B4:1.

Natuurlijke achtergrondwaarden met standaardafwijking van diverse metalen in de zandfractie (z-waarde).

Table B4:1

Natural background values and the standard deviation of the various metals in the sand fraction (z-value).

Metaal	z mg/kg	s _z mg/kg
Arseen (As)	3	1.5
Cadmium (Cd)	0.03	0.06
Chroom (Cr)	13	6
Koper (Cu)	1	1
Kwik (Hg)	0.00	0.04
Nikkel (Ni)	2.5	1.1
Lood (Pb)	2	2.2
Zink (Zn)	8	9

Tabel B4:2

Typische en haalbare standaardafwijkingen om de doorwerking van analyse-spreiding in de resultaten van de sedimentformule te berekenen.

Table B4:2

Typical and feasible standard deviations to calculate the effect of analytical variation in the results of the sediment formula.

Parameter	s ^A mg/kg	s ^R %
Arseen (As)	0.5	6
Cadmium (Cd)	0.02	8
Chroom (Cr)	3	5
Koper (Cu)	0.5	6
Kwik (Hg)	0.02	5
Nikkel (Ni)	3	8
Lood (Pb)	3	8
Zink (Zn)	3	3
Organische micro-verontreinigingen	2xD.L	20 [#]
Lutum	0.5 ^{&}	3
OS	0.1 ^{&}	3

[&] in absolute%.

[#] Beter is uiteraard wel mogelijk.moeten blijken.

Bijlage 5: Onderzoeksvoorstel voor standaardisering

Inleiding en doel

Wanneer contaminanten, in dit geval gaat het om radionucliden, in het waterig milieu terechtkomen, zullen deze zich afhankelijk van hun eigenschappen verdelen over de waterfase en het sediment. Op het moment dat de vervuiling stopt gaat het sediment weer naleveren aan de waterfase. Voor contaminanten die overwegend aan het sediment gebonden zijn, is dat een belangrijk medium voor monitoring van de kwaliteit van een watersysteem. Omdat de binding van sediment afhangt van zijn samenstelling zal het ene sediment uit hetzelfde water meer opnemen dan het andere. De bindingscapaciteit is overwegend vertegenwoordigd in de fijne deeltjes en het al dan niet daaraan gebonden organische stof, zodat gehalten variëren met de toevallige samenstelling van het sediment. Standaardisering heeft tot doel de invloed van het verschil in sedimentsamenstelling op de meetresultaten te corrigeren. In Nederland is het gebruikelijk om het gemeten gehalte om te rekenen naar een vaste sedimentsamenstelling.

Toetsprincipe

Uit de doelstelling van standaardiseren volgt ook onmiddellijk het belangrijkste toetscriterium:

**Het resultaat van standaardisering moet voor
gelijk vervuilde monsters onafhankelijk zijn
van de samenstelling van het monster.**

Het is dan ook belangrijk om te weten welke parameters verantwoordelijk zijn voor de bindingscapaciteit of deze kunnen vertegenwoordigen. Omdat het zeer waarschijnlijk is dat radionucliden zich als ander metalen zullen gedragen en dus OS en lutum volgen is de meest logische stap deze als eerste te toetsen. Het toetsprincipe hier beschreven maakt het ook mogelijk om andere bruikbare parameters te identificeren. In beginsel worden in homogeen vervuilde gebieden (gelijk vervuilde) monsters met verschillende samenstelling genomen. Door middel van meervoudige regressie-analyse wordt naar verbanden gezocht tussen de parameters met de contaminanten.

In de praktijk is de voorwaarde van gelijk vervuilde monsters altijd een aanname. Tevens geldt dat er slechts weinig homogeen vervuilde gebieden zijn met een sterk variërende korrelgrootteverdeling. Het is dan ook beter hierin kunstmatig te voorzien doorde variatie in korrelgrootteverdeling door zeven of sedimenteren uit te voeren. De voorwaarde van gelijk vervuild kan worden afgedwongen door het sediment lange tijd met water te mengen of te schudden. Contaminanten verdelen zich dan over de grote- en kleine deeltjes, al naar gelang de bindingscapaciteit. Door daarna met gebruik van het mengwater het sediment te scheiden in verschillende fracties, wordt een maximale variatie in de deeltjes samenstelling verkregen: groter dan de natuur dat kan. Stoffen die in onvoldoende hoeveelheden aanwezig zijn voor een betrouwbare bepaling in de meest zandige fractie, kunnen aan het begin van de mengperiode worden toegevoegd.

Uitvoering

Op twee of meer voor het monitoringprogramma representatieve locaties, zoals de Noordzee en de Waddenzee, worden sedimentmonsters genomen. De hoeveelheid monster moet zodanig zijn dat deze tenminste 500 gram fractie $<63\mu\text{m}$ bevat en 1 kg $>63\mu\text{m}$ weegt. Dit monster wordt goed gemengd en, nadat een submonster is genomen voor directe analyse, in twee gelijke delen gesplitst^{opm foppe}. Aan het ene monster wordt een bekende hoeveelheid nucliden toegevoegd om goed meetbare gehalten te verkrijgen, maar niet meer dan vijf maal het gehalte dat nog realistisch is. Beide monsters van elke locatie worden in het aanwezigheid water van de bemonsteringslocatie gedurende een maand of langer gemengd op een rollenbank of door roeren. De hoeveelheid water moet zodanig zijn dat in rust tenminste 3 liter bovenstaande vloeistof aanwezig is en het sediment goed in suspensie blijft.

Na de mengperiode worden de monsters door zeven in fracties gesplitst^{fop 2}. Dit levert bijvoorbeeld de volgende monsters op: (1) ongezeefd, (2) $<63\mu\text{m}$, (3) $>63\mu\text{m}$, (4) $<20\mu\text{m}$, (5) $20-63\mu\text{m}$. Daarnaast is het nog mogelijk om via sedimentatie fracties te genereren (meer natuurlijk), de fractie $>63\mu\text{m}$ ultrasoon te behandelen, of de fractie $<20\mu\text{m}$ op te splitsen in heel fijn en wat minder fijn. Na vriesdrogen en homogeniseren worden in deze monsters de nucliden ten behoeve van de standaardisering (OS, lutum, Al, Li,) en macro parameters bepaald. Ook eventuele parameters die juist nucliden van adsorptieplaatsen kunnen verdringen komen voor analyse in aanmerking (Na, K, NH_4 , Ca^{2+} , etc). Het is hierbij belangrijk om de juiste analysetechniek te selecteren omdat bijv K niet met het mineraal deel moet worden bepaald. Afhankelijk van het uiteindelijke analyseschema moet de juiste hoeveelheid monster worden vastgesteld.

^{opm foppe} Als van geen enkele nuclide een resultaat te verwachten valt zonder toevoeging gaat de procedure verder met één monster.

^{fop 2} Als het water (na filtratie) ook wordt bemonsterd dan hebben we ook gelijk een idee van de K_d of

$K_{\text{standaardiseringsparameter}}$