

**HPGe-analyse van 20 monsters t.b.v. assessment
t1 meting verspreiding boorspecie Westerscheldetunnel**

L.B. Venema and R.J. de Meijer¹
J.Limburg²

¹Nuclear Geophysics Division,
Kemfysisch Versneller Instituut,
Rijksuniversiteit Groningen
Zernikelaan 25,
9747 AA GRONINGEN

²MEDUSA EXPLORATIONS BV
Zernikelaan 25,
9747 AA GRONINGEN

juni 2000

1. Inleiding

In het kader van de monitoring van het boortunnelresidue zijn 20 Westerschelde monsters bij het KVI aangeboden om het gehalte aan ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{137}Cs en ^{60}Co te bepalen. De monsters zijn op 25 april 2000 op het KVI aangekomen. De beschrijving van deze monsters, zoals gegeven door het RIKZ, staan getabelleerd in tabel 1. Eveneens opgenomen in tabel 1 zijn de monsterregistratienummers die door het KVI intern gebruikt worden.

Tabel 1: Monsterlocaties en karakterisatie

Nummer	Lokatie	Positie			KVI Nummer
		X	Y	Diepte (m)	
1	Vaarwater langs Paulinapolder	38500	375800	20	00-ZM-094
2	Everingen	39700	378000	12	00-ZM-095
3	Everingen	43500	379000	12	00-ZM-096
4	Pas van Temeuzen	49700	374300	28	00-ZM-097
5	Pas van Baarland	49800	377000	7	00-ZM-098
6	Middelgat	51700	379500	10	00-ZM-099
7	Middelgat	53900	383800	7.5	00-ZM-100
8	Middelgat	54400	385500	20	00-ZM-101
9	Middelgat	56300	386100	20	00-ZM-102
10	Overloop van Hansweert	60000	383900	15	00-ZM-103
11	Schor van Baalhoek	65700	375180	0	00-ZM-104
12	Platen van Hulst	54200	376200	0	00-ZM-105
13	Mosselbanken	40800	374840	0	00-ZM-106
14	Gat van Borssele	42700	381200	0.5	00-ZM-107
15	Slikken van Everingen	48300	378900	0	00-ZM-108
16	Biezelingsham	53500	384600	0	00-ZM-109
17	Slurry boorspecie				00-ZM-110
17	Idem (duplo)				00-ZM-111
18	Kleimonster 1 (dec/jan)				00-ZM-112
19	Kleimonster 2 (feb/mrt)				00-ZM-113
20	refmonster				00-ZM-114

2. Monsterbehandeling

De monsters werden gevriesdroogd aangeleverd in bruine 1 liter flessen. De gehele monsters zijn overgebracht in 1 liter Marinellibekers voor de γ -spectrometrische bepalingen, na weging op een Mettler PM6000. De volumina zijn bepaald in de Marinellibeker met een nauwkeurigheid van ongeveer 20 ml. De aldus bepaalde dichtheden staan vermeld in tabel 2. De monsters zijn vervolgens luchtdicht afgesloten ("ingesealed") om het ontsnappen van ^{222}Rn tegen te gaan. Na insealen zijn de monsters drie week opgeslagen om het evenwicht tussen ^{226}Ra en dochter te kunnen garanderen. Deze procedure wijkt af van de procedure die eerder is gevolgd, onder meer voor de Schelde monsters als gerapporteerd in [Ven88]. De nu gevolgde procedure kan, afhankelijk van het bemeten materiaal leiden tot gerapporteerde ^{238}U waarden die typische 10% (maximaal 20%) groter zijn dan voorheen.

3. Meetapparatuur

De metingen van γ -straling met $120 < E_\gamma < 2700$ keV zijn uitgevoerd met een 6 cm ϕ x 8 cm HPGe-detector in een lage-achtergrond opstelling (een loodkasteel met een wanddikte van 10 cm). Alle γ -metingen zijn uitgevoerd in een standaard meetopstelling met een vaste geometrie ten opzichte van de Ge-detector. Het telrendement van deze geometrie is absoluut gekalibreerd met waterige oplossingen van diverse nucliden met bekende activiteit. Er is gecorrigeerd voor zelfabsorptie in het monster.

4. Metingen

De meet- en analyseprocedure geschiedt conform de Nederlandse voormorm voor γ -spectrometrische bepalingen NVN 5623 [VN91]. De natuurlijke radionucliden die verwacht mogen worden zijn ^{40}K , en de nucliden van de ^{232}Th -reeks en ^{238}U -reeks.

De activiteit van nucliden uit de ^{238}U reeks wordt bepaald aan de hand van het verval van ^{214}Bi en ^{214}Pb . Door het insealen is de activiteitsconcentratie van ^{226}Ra gelijk aan die van ^{214}Bi en ^{214}Pb . De ^{232}Th activiteit is bepaald m.b.v. enkele γ -lijnen van dochternucliden. De activiteit van ^{40}K volgt uit de 1461 keV γ -lijn. De inhouden van de pieken zijn gecorrigeerd voor de achtergrondstraling in de meetopstelling.

Daarnaast worden de activiteitsconcentraties van de antropogene radionucliden ^{137}Cs en ^{60}Co bepaald. Deze nucliden zijn het gevolg van bovengrondse kernproeven, het reactorongeluk te Tsjernobyl en reguliere emissie van de nucleaire industrie. In ongestoord sediment van voor 1945, zullen deze radionucliden niet voorkomen. Het nuclide ^{60}Co , met een verhoudingsgewijs korte halveringstijd van 5.3 jaar, kan alleen waargenomen worden in zeer recente sedimentlagen.

5. Resultaten

Activiteitsconcentraties, in becquerel per kilogram monster, berekend uit de gemeten piekinhouden, zijn vermeld in tabel 2. De opgegeven onzekerheden geven of één standaardafwijking (1σ) ten gevolge van telstatistiek weer of zijn de externe fouten van de gewogen gemiddelde berekening (1σ). Systematische onzekerheden, ten gevolge van onzekerheden in de absolute rendementskalibratie, zijn niet opgegeven, maar bedragen ten hoogste 5%. Sommeringseffecten, ten gevolge van gelijktijdige detectie van twee of meer γ -kwanten, worden in deze metingen niet meegenomen.

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

KVI No	Dichtheid	⁴⁰ K	²³⁸ U	²³² Th	¹³⁷ Cs [#]	⁶⁰ Co [#]
	+					
00-ZM-094	1.6	331(20)	12.8(0.4)	7.16(0.15)	0.96(0.04)	0.09(0.03)
00-ZM-095	1.4	325(20)	13.4(0.4)	5.74(0.19)	0.9(0.1)	<0.3
00-ZM-096	1.6	507(30)	15.7(0.4)	6.0(0.3)	1.78(0.14)	<0.4
00-ZM-097†	1.3	533(30)	19.5(0.8)	23.2(1.1)	1.0(0.2)	<0.8
00-ZM-098	1.9	343(20)	18.4(0.6)	5.0(0.3)	1.02(0.17)	<0.6
00-ZM-099	1.4	314(20)	15.5(0.6)	12.0(0.6)	0.57(0.15)	<0.5
00-ZM-100	1.5	345(20)	9.88(0.18)	7.7(0.3)	0.46(0.06)	<0.18
00-ZM-101†	1.3	308(19)	94(2)	12.1(0.6)	1.61(0.05)	0.11(0.03)
00-ZM-102	1.5	334(20)	11.7(0.3)	9.1(0.4)	0.48(0.09)	0.23(0.10)
00-ZM-103	1.9	264(16)	7.8(0.3)	5.6(0.2)	0.25(0.09)	<0.3
00-ZM-104	0.9	421(30)	32.9(0.9)	26.7(0.6)	4.2(0.2)	0.92(0.10)
00-ZM-105	1.8	331(20)	12.9(0.3)	10.5(0.3)	0.67(0.07)	<0.2
00-ZM-106	1.8	311(19)	10.05(0.20)	7.8(0.4)	0.68(0.10)	0.24(0.11)
00-ZM-107	0.5	459(30)	23.0(0.6)	25.0(0.9)	7.6(0.3)	3.91(0.13)
00-ZM-108	1.3	413(30)	21.8(0.6)	22.2(0.7)	4.30(0.19)	1.84(0.12)
00-ZM-109	1.5	390(20)	22.0(0.7)	20.7(0.5)	3.52(0.14)	1.24(0.07)
00-ZM-110	0.2	730(50)	42.7(1.8)	41.1(1.2)	<1.4	<1.4
00-ZM-111	0.3	760(50)	44.1(1.1)	41.7(1.2)	<0.7	<0.7
00-ZM-112	1.2	750(50)	38.5(1.7)	38.5(1.4)	<1.2	<1.1
00-ZM-113	1.6	740(50)	31.1(1.0)	38(1.2)	<0.8	<0.7
00-ZM-114†	1.6	353(20)	23.4(0.6)	6.1(0.3)	0.49(0.15)	<0.5
00-ZM-114a	1.7	354(20)	11.3(0.3)	5.61(0.19)	0.67(0.06)	<0.17
00-ZM-114b†	1.7	362(20)	29.4(0.6)	6.4(0.4)	0.8(0.2)	<0.8

* De dichtheid (ρ in kg/l) van het materiaal in onze meetbakers.

[#] < x : de detectielimiet voor dit nuclide voor deze meettijd.

[†] Monster bevat stenen (slakken?)

De verscheidenheid in de resultaten in het Westerschelde gebied (Monsters 00-ZM-094 t/m 109) valt op. Direct eruit springend zijn monsters 101 (op grote diepte uit het Middelgat) met een zeer sterk ²³⁸U signaal (94 Bq/kg vergeleken met maximaal 35 Bq/kg), monster 96 en 97 met een sterk verhoogd ⁴⁰K signaal (>500 vergeleken met maximaal 450 Bq/kg) en monster 107, en in mindere mate 108, 109 en 104 met een relatief hoog ⁶⁰Co aandeel.

De monsters van de boorwerkzaamheden (110-113) zien er heel anders uit. Het ⁴⁰K aandeel van deze monsters wijkt significant af van het materiaal uit de Westerschelde zelf. Het ontbreken van ¹³⁷Cs en ⁶⁰Co is karakteristiek voor deze monsters, aangezien dit materiaal niet blootgestaan heeft aan antropogene invloeden van na 1940. De duplo-monsters 110 en 111 zijn consistent. Kleimonster 1 (112) en kleimonster 2 (113) wijken significant van elkaar af in de ²³⁸U-concentratie. Hierbij moet opgemerkt worden dat deze monsters op verschillende tijdstippen uit de speciestroom zijn genomen (112 voor 113).

Het monster 114 vertoont evenals monster 101 een duidelijk afwijkende $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ verhouding. Dit monster bleek een reproductiemeting te zijn van een eerder resultaat (98-zm-565) en de meetresultaten (^{238}U) wijken significant af (vergelijk tabel 3). Ten gevolge van het veranderde meetprotocol (insealen) zijn afwijkingen mogelijk, maar afwijkingen groter dan 20% worden toch niet verwacht [Gra00].

Tabel 3: Activiteitsconcentraties in Bq.kg^{-1} (droog gewicht) uit eerdere rapportage [Ven98].

KVI-mar	ρ^*	^{40}K	^{238}U	^{232}Th	^{137}Cs	^{60}Co
98-zm-563	1.7	317 ± 19	8.1 ± 0.3	5.41 ± 0.16	0.74 ± 0.05	<0.6
98-zm-564	1.7	311 ± 19	7.5 ± 0.3	5.32 ± 0.16	0.66 ± 0.05	<0.6
98-zm-565	1.7	345 ± 21	10.5 ± 0.4	5.6 ± 0.2	0.63 ± 0.08	<0.6
98-zm-566	0.8	450 ± 30	21.5 ± 0.7	24.5 ± 0.8	6.08 ± 0.19	2.24 ± 0.08
98-zm-567	1.4	700 ± 40	25.0 ± 0.7	32.0 ± 0.8	< 0.4	<0.6
98-zm-568	1.6	990 ± 60	30.8 ± 1.1	10.2 ± 0.4	< 0.5	<0.6

*De dichtheid (ρ in kg/l) van het materiaal in onze meetbekers.

Uit controle van het archief bleek dat de meting in tabel 3 plaats heeft gehad aan kleinere monsters en is gecontroleerd of een inhomogeniteit van het monster de afwijking zou kunnen veroorzaken. Het monster bevat twee stenen en twee nieuwe meting zijn gestart met een half monster zonder stenen (00-ZM-114a) en een half monster met stenen (00-ZM-114b). Deze analyses hebben plaatsgevonden aan niet ingesealde monsters, wat het vergelijken met de in 1998 gemeten waarde vereenvoudigd.

De meetresultaten tussen de monsters 98-zm-565 en 00-zm-114a zijn consistent. De afwijking die in monster 114b zit blijkt te kunnen worden toegeschreven aan één van de twee stenen (een slak?). Gezien de grote invloed van het voorkomen van slakken op het eindresultaat zijn de overige monsters op stenen gecontroleerd en deze zijn aangetroffen in de monsters 97 en 101. De extreem hoge ^{238}U waarde van monster 101 kan veroorzaakt zijn door het voorkomen van slakken in het monster.

Conclusies en aanbevelingen

Dit rapport poogt op een aantal vragen een antwoord te geven. De centrale vraag is of het, op basis van de onderhavige monstergegevens en de in juli '99 uitgevoerde MEDUSA survey [Lim99], mogelijk is om m.b.v. MEDUSA de verspreiding van baggerspecie in de Westerschelde te volgen. Het antwoord kan, gegeven alle nu bekende informatie, positief zijn:

Zolang de samenstelling van het gestorte materiaal vergelijkbaar is met monsters 110 t/m 113, kan dit materiaal radiometrisch duidelijk onderscheiden worden van het sediment dat in de Schelde gevonden wordt (monsters 94 t/m 109). Dit betekent dat reeds geringe verplaatsingen (laagdiktes van een aantal mm) te volgen zijn.

Bij deze stelling kunnen natuurlijk een aantal opmerkingen gemaakt worden:

De detecteerbare laagdikte

De uitspraak over de minimale dikte van de specielaag die gedetecteerd kan worden, gezien de radiometrische eigenschappen van specie en achtergrond, is gebaseerd op eerder werk dat is gedaan in opdracht van RIKZ (zie [Ven99] en de referenties daarin). In dit werk is de verspreiding van havenslib gestort op Loswal Noordwest gevolgd, en is – op basis van de geïnterpoleerde sedimentkaarten – een afschatting gemaakt van de minimale dikte van de opgebrachte laag die terug gezien wordt in de op MEDUSA gebaseerde sedimentkaarten. Er zijn vele methodes om een dergelijke afschatting uit de

meetgegevens af te leiden. Een voor de hand liggende afchatting kan gemaakt worden door uit te gaan van de minimaal meetbare variaties in sediment samenstelling. Deze waren in geval van de Loswal – geïntegreerd over een groot gebied – in de orde van 1 à 2%, waarbij de gevonden slibpercentages varieerden tussen 0 en 40%. Uitgaande van een laagdikte van 30 cm die “gezien” wordt door het meetsysteem, en uitgaande van 2% nauwkeurigheid levert dat een detecteerbaar laagje van zo’n 6 mm.

Op deze afchatting is het nodige af te dingen. Ten eerste is in de afchatting uitgegaan van een “gemiddelde” respons van het systeem op straling uit de voornoemde laag van 30 cm. In realiteit is deze respons exponentieel afhankelijk van de diepte vanwaar de straling komt. MEDUSA ziet dus weliswaar ongeveer 30 diep in het materiaal, maar ziet de toplaag verreweg “het best”. Dit betekent dat de dikte van de te volgen laag in werkelijkheid dunner is dan de genoemde 6 mm. Verder is het zo, dat de radiometrische verschillen tussen achtergrond en opgebracht materiaal in de Schelde groter is dan in het Loswal geval. Daarmee wordt de gevoeligheid nogmaals vergroot, en de detecteerbare laagdikte, geïntegreerd over een groot gebied, kleiner dan 6 mm. Tenslotte rest de opmerking dat op het moment van schrijven er door NGD een studie wordt verricht naar een preciezere afchatting van deze lagen.

Het “slakken probleem”

Her en der zijn in de Schelde kabels geplaatst die zijn afgedekt met slakken (afvalmateriaal uit de metaalindustrie). Deze slakken bestaan uit steentjes (typisch een paar cm groot) die gekenmerkt worden door een verhoogde ^{238}U concentratie. De monsters zijn gecontroleerd op de aanwezigheid van dergelijke steentjes, en inderdaad zijn ze aangetroffen in monsters 97, 101 en in het controlemonster 114. De eerste twee monsters zijn terug te vinden op kaart A1 in de appendix. Deze kaart laat de locaties van de monsters zien, daarnaast geeft de grootte van de cirkel die de monsterlokatie aangeeft, de totale activiteit van het onderhavige monster weer. Op kaart A1 vinden we monsters 97 en 101 terug op plaatsen waarvan uit de MEDUSA t0 meting van juli '99 bekend is dat er slakken liggen. Ter verduidelijking zijn in de appendix de ^{238}U verspreidingskaart en de geluidskaart van de t0 survey toegevoegd. Daarop is op beide plaatsen een sterk verhoogd geluidsnivo te zien, hetgeen indicatief is voor een grove bodemgesteldheid (stenen of schelpen). Daarnaast zijn beide gebieden verhoogd in ^{238}U -gehalte. Een combinatie van geluidmeting en radiometrie kan dus gebruikt worden om de slaklokaties te onderscheiden.

Gevolgen voor de t1 meting?

De vraag is nu of voornoemde slakken storend kunnen zijn voor het volgen van het verspreiden van gestorte boorspecie. Daarvoor is het belangrijk te onderkennen dat (a) de fingerprint van de slakken (hoog ^{238}U gehalte, relatief weinig ^{40}K en ^{232}Th) sterk verschilt van de fingerprint van het gestorte materiaal (hoog ^{40}K , verhouding U en Th ongeveer 1:1). Ondanks de sterke stroming in de Schelde is het verspreiden van de slakken op grote schaal erg onwaarschijnlijk. Dit gegeven wordt gesteund door de t0 meting met MEDUSA, immers, in deze meting zijn geen patronen aan te wijzen die duiden op verspreiding van “lawaaig” en ^{238}U -verrijkt materiaal. Het is echter wel zaak om dergelijke gebiedjes met slakken nauwkeurig in kaart te brengen.

Brokken of slurrie?

In tegenstelling tot eerdere verwachtingen, blijkt een groot deel van het gestorte materiaal te bestaan uit zeer compacte brokken Boomse klei. Hoewel het niet geheel duidelijk is, of de consistentie van deze brokken wordt aangetast zodra ze in de Schelde geloosd worden, gaat men er bij RIKZ van uit dat het materiaal zich verzamelt op de bodem en zich relatief langzaam onder invloed van de stroming verspreidt over het gebied.

Uitvoering van de t1 meting

Dit impliceert dat de inspanning om het materiaal te "volgen" in de vorm van een t1 meting met MEDUSA, zich vooral zal moeten richten op metingen rondom de dumplokatie. Hierbij dient aangetekend te worden dat het gebied met grotere raaïendichtheid bevaren dient te worden dan in de t0 survey gebeurd is. De ruimtelijke variatie in het gebied is zo groot, dat de afstand tussen de raaien eerder in de orde van 50 tot enkele honderden meters zal moeten liggen, i.p.v. de kilometers die in de t0 gebruikt zijn. Daarbij moeten de aanbevelingen uit het t0 datarapport niet veronachtzaamd worden. In één van die aanbevelingen, het bijplaatsen van gewicht op de sleepkabel, is inmiddels voorzien.

De t1 meting zal primair als doel moeten hebben om te zien of het materiaal zich verspreidt, en, zo ja, welke kant(en) de pluim op wijst. De raaïendichtheid zal al na gelang de gevonden variaties moeten worden aangepast. Dit zal betekenen dat, indien zich "slakkengebieden" in het meetgebied bevinden, deze met grotere raaïendichtheid in kaart moeten worden gebracht. Datzelfde geldt voor de het volgen van de verspreiding van het geloosde materiaal. Ook bij het volgen van de pluim zal de raaïendichtheid aan de variabiliteit moeten worden aangepast. Eerdere suggesties om ook op de plaatsen waarop men uiteindelijk de afzetting van het gestorte materiaal verwacht, te meten, komen, gezien de verwachte trage verspreidingssnelheid van het geloosde materiaal, voorlopig te vervallen.

Referenties

- [Gra00] Van der Graaf, E.R., ten Have, R. en Venema, L.B., *Assessment of radon tightness of various sample containers for gamma-ray spectrometry*, KVI rapport S66, 2000.
- [VN91] *Bepaling van de activiteit van gammastraling uitgaande nucleïden in een telmonster met behulp van halfgeleider-gammaspectrometrie*, Nederlandse voormorm, NVN5623, 1991.
- [Ven98] Venema, L.B., en de Meijer, R.J. *HPGe-analyse van 6 monster t.b.v. Westerscheldetunnel, bepalingen van ^{210}Pb en ^{137}Cs in een boorkern t.b.v. dateringen*, KVI rapport S50, 1998.
- [Lim99] Limburg, J et al., *Westerschelde t0 survey, een datarapport*, KVI rapport Z96, 1999.
- [Ven99] L.B. Venema, J. Limburg and R.J. de Meijer, *Radiometric t2-survey of Loswal Noordwest, Part III : Synthesis*, KVI Rapport Z91, 1999.

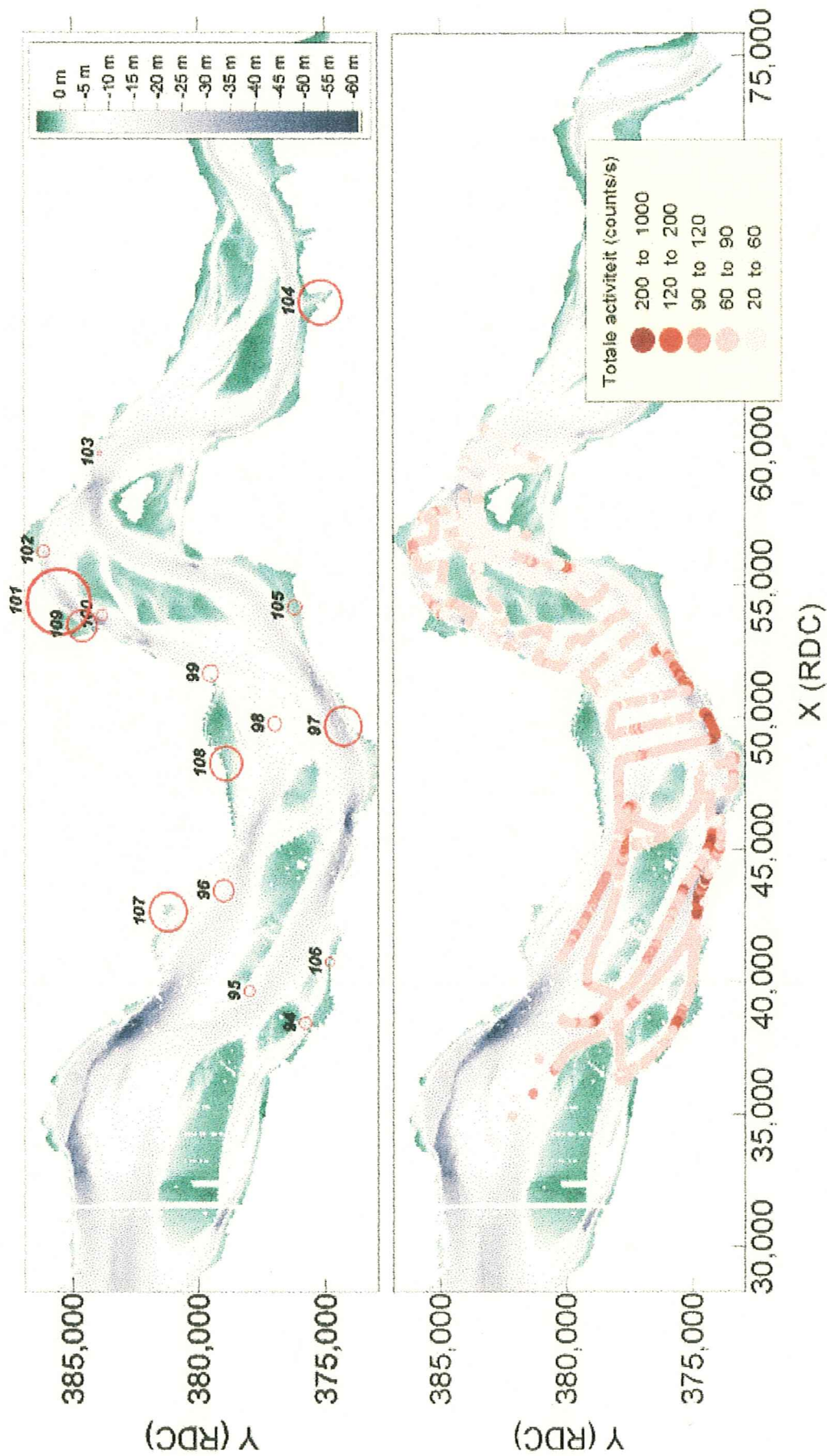
Noot: KVI rapporten zijn verkrijgbaar op aanvraag.

Monsterrapportage t0 - Appendix

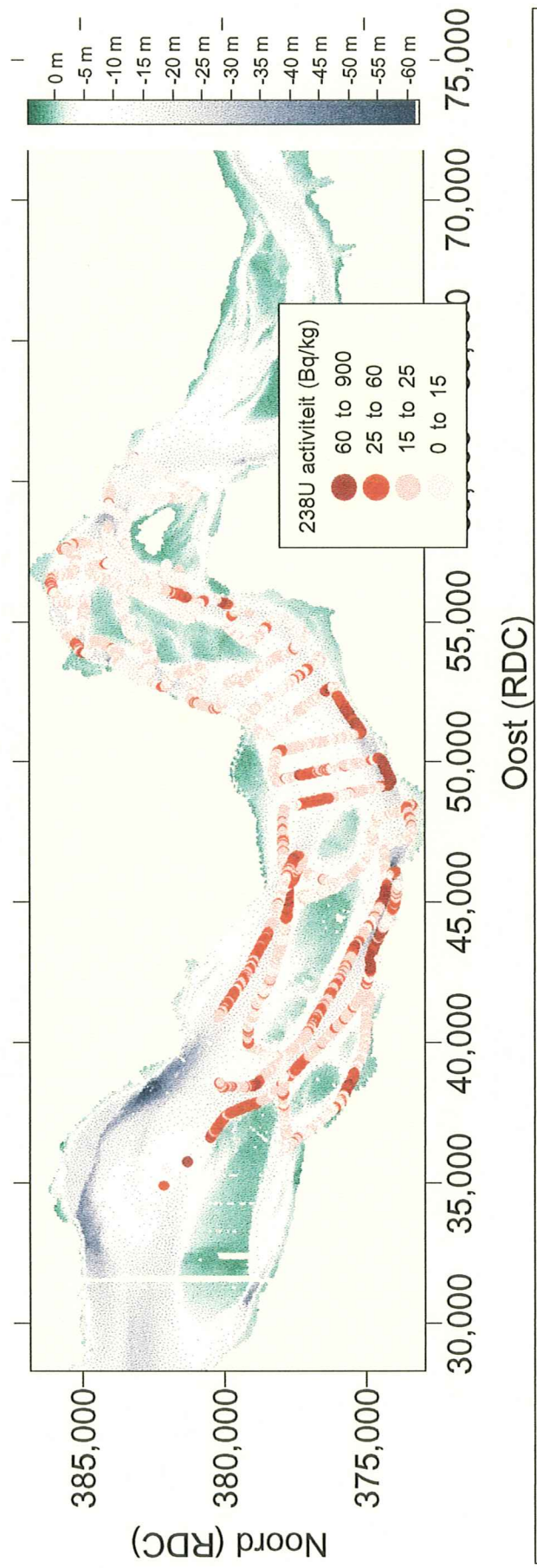
Deze appendix bevat de volgende figuren:

1. Grafiek A1: Dieptekaart plus monsterlokaties
2. Grafiek A2: ^{238}U verdeling
3. Grafiek A3: Geluidsverdeling

Boven: Westerschelde diepte (lodingen 1998, bron: RWS Dir. Zeeland). Inzet: monsterlokaties. In de labels zijn de K, U en Th waarden per monster genoteerd. De grootte van de lokatiecirkels is indicatief voor de totale activiteit van het monster.
 Onder: Idem, nu met Medusa data als inzet. Gegeven zijn de Medusa metingen van de totale activiteit.

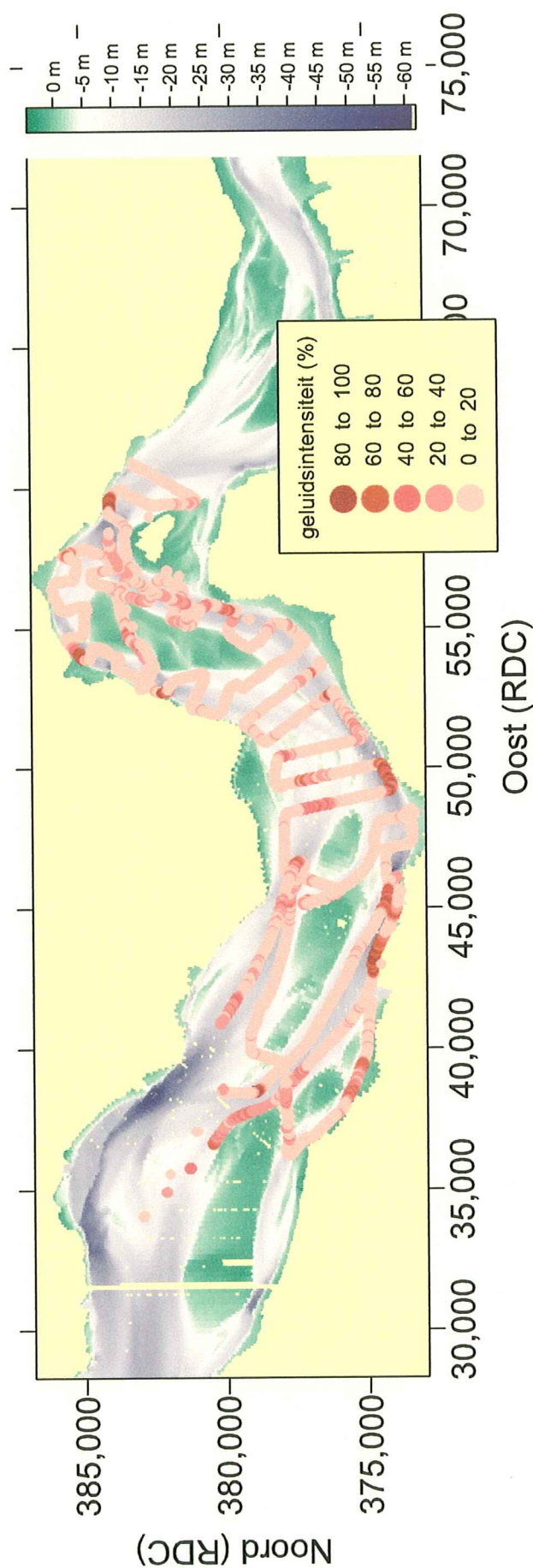


Westerschelde diepte (lodingen 1998, bron: RWS Dir. Zeeland)
 (inzet: ^{238}U activiteit gemeten langs de raaien)



Figuur A2: Dieptekaart van de Westerschelde, met daarin de ^{238}U activiteit (in Bq/kg) gevonden langs het gevaren traject. De grootste ^{238}U concentraties worden gevonden op plaatsen waar vermoedelijk slakken zijn gestort (met name aan de zuidoever van de Schelde, tussen km 42 en km 51). Dit gegeven wordt ondersteund door het feit dat het geluidssignaal op deze plaatsen ook verhoogd is (zie figuur A6).

Westerschelde diepte (Iodigen 1998, bron: RWS Dir. Zeeland)
(inzet: geluid in % van de maximaal meetbare intensiteit)



Figuur A3: Dieptekaart van de Westerschelde, met daarin geluidsniveau gemeten door de MEDUSA microfoon, langs het gevaren traject. Het geluidssignaal is gecorrigeerd met de korrelgroottevariaties in het gebied. De plaatsen waar "slakken" vermoed worden, zijn duidelijk zichtbaar in het geluidssignaal. Daarnaast bevinden zich er ook een aantal "luide" gebieden langs de noordoever van de Schelde. Op deze plekken bevinden zich vermoedelijk stenen die gebruikt zijn voor beschoeiing.