

## **2. NRG-rapport**



December 1998

810387-99.21997/C

## Uranium in stof uit hangar 8 van Schiphol-Oost

Auteur: A.W. van Weers

Revisies		Rapportnummer 810387-99.21997/C
A	Concept voor Interne Review, datum	
0	Concept voor Externe Review, datum	
1	Eindrapport, datum	
<b>Opgesteld door:</b> Auteur: A.W. van Weers		<b>Goedgekeurd door:</b> R. Huiskamp Productgroep Radiaton & Environment
<b>Beoordeeld door:</b> R. Huiskamp Verificateur		



## INHOUD

1. INLEIDING	5
2. URANIUM	7
2.1 Voorkomen	7
2.2 Verrijken en verarmen	8
2.3 Radiologische eigenschappen	8
3. BEMONSTERING VAN STOF IN HANGAR 8	11
3.1 Plaatskeuzen	11
3.2 Bemonsteringswijze	11
3.3 Monstervoorbehandeling	12
3.3.1 Filterbussen	12
3.3.2 Luchtstoffilter	12
4. GAMMASPECTROMETRIE	13
4.1 Stofmonsters I en II (filterbussen)	13
4.2 LUCHTSTOF	13
5. FLUORIMETRIE	15
6. RÖNTGENDIFFRACTIE	17
7. ALFASPECTROMETRIE	19
7.1 Methode	19
7.2 Resultaten	19
8. MASSASPECTROMETRIE	21
9. DISCUSSIE	23
9.1 Vergelijking analyseresultaten	23
9.2 Herkomst gedeponeerd stof	23
9.3 Luchtstof	24
9.4 Stralingshygiënische aspecten	24
9.4.1 Inleiding	24
9.4.2 Gedeponeerd stof	24
9.4.3 Luchtstof	25
10. CONCLUSIES	27



## 1. INLEIDING

Op 4 oktober 1992 stortte een Boeing 747 van EIAI neer in de Bijlmer. Wrakstukken van het vliegtuig werden in hangar 8 van Schiphol-Oost bijeengebracht. In ieder geval bevonden zich in de stuurvlakken in de staart van het vliegtuig balansgewichten die verarmd uranium bevatten.

Circa 130 kilogram is onder meer bij inspectie van de wrakstukken in hangar 8 teruggevonden en met vermelding van de herkomst naar de Centrale Organisatie Voor Radioactief Afval (COVRA) afgevoerd. Van de rest van de totale hoeveelheid kon het lot niet vastgesteld worden. Hoewel daar geen directe aanwijzingen voor zijn, zou bij het inspecteren en sorteren van de wrakstukken verarmd uranium in de vorm van stof in hangar 8 verspreid kunnen zijn als zich op de wrakstukken dat uranium in verspreidbare vorm zou hebben bevonden. Verspreiding van verarmd uranium in de vorm van stof kan ook zijn opgetreden als in hangar 8 oppervlakken van dergelijke balansgewichten mechanisch zijn bewerkt door bijvoorbeeld schuren of polijsten. Nu, jaren later, zijn de mogelijkheden om de wijze van eventuele verspreiding vast te stellen zeer beperkt. Wel kan onderzoek van het nu in de hal nog aanwezige stof aanwijzingen opleveren voor een verspreiding in het verleden.

Op verzoek van de Enquêtecommissie Vliegramp Bijlmermeer heeft NRG door analyse van twee in hangar 8 verzamelde stofmonsters onderzocht of verspreiding van verarmd uranium in hangar 8 heeft plaatsgevonden. De resultaten van dat onderzoek zijn in dit rapport vastgelegd. Tevens wordt ingegaan op enkele stralingshygiënische aspecten van uranium-houdend stof in de lucht.





## 2. URANIUM

### 2.1 Voorkomen

Uranium behoort met thorium tot de natuurlijk voorkomende zware elementen aan het einde van het periodiek systeem van de elementen. Het element uranium komt niet in stabiele vorm voor, maar wordt aangetroffen als niet-stabiele (radioactieve) isotopen. De belangrijkste daarvan zijn U-238 en U-235 die vanaf het ontstaan van de aarde al aanwezig waren en die beide aan het begin staan van een vervalreeks waarin door radioactief verval uit het ene radioactieve isotoop een volgend radioactief isotoop wordt gevormd. In de vervalreeks van U-238 komt nog een ander uraniumisotoop, U-234, voor. In tabel 1 zijn de kenmerken van de belangrijkste natuurlijk voorkomende uranium-isotopen vermeld.

Tabel 1: Kenmerken van de belangrijkste uranium-isotopen

Uranium isotoop	Halveringstijd in jaren	Wijze van verval	Vervalproduct
U-238	$4,47 \cdot 10^9$	alfa	Th-234
U-234	$2,44 \cdot 10^5$	alfa	Th-230
U-235	$7,04 \cdot 10^8$	alfa	Th-231

In natuurlijk uranium komen de U-isotopen voor in een verhouding voor van U-238 : U-234 : U-235 = 99,3: 0,0056: 0,72. Dat betekent dat in natuurlijk uranium de elementhoeveelheid vrijwel volledig wordt bepaald door het isotoop U-238, voor een klein deel door U-235 en voor een verwaarloosbaar deel door U-234. In verband met de grote verschillen in halveringstijd ziet het beeld er anders uit wanneer we de bijdragen tot de radioactiviteit beschouwen. In natuurlijk uranium verhouden die voor U-238 : U-234 : U-235 zich als 1 : 1 : 0,046. Eén milligram natuurlijk uranium bevat:

12,5 Bq U-238  
12,5 Bq U-234 en  
0,57 Bq U-235,

waarbij 1 Bq gedefinieerd is als één vervallende kern per seconde.

De concentratie van uranium in materialen kan dus uitgedrukt worden als element-concentratie en als activiteitsconcentratie. De eerste wordt vrijwel geheel door U-238 bepaald en de tweede door U-238 en U-234 in gelijke mate met een kleine bijdrage van U-235.

Uranium komt overal in de bodem voor en de concentraties lopen sterk uiteen. In tabel 2 zijn enkele voorbeelden gegeven waarbij het voorkomen is uitgedrukt zowel als element-concentratie als activiteitsconcentratie van U-238, waaruit die van de andere twee U-isotopen berekend kunnen worden.

Tabel 2: Voorbeelden van natuurlijk voorkomen van uranium in verschillende grondsoorten en gesteenten

Aard van het materiaal	U-concentratie mg/kg	U-238 concentratie Bq/kg
Lichte klei	2,8	35
Zware klei	8,1	100
Marokkaans fosfaaterts	121	1500
Zirkoon	405	5000
Monaziet	2430	3000

## 2.2 Verrijken en verarmen

Uranium wordt toegepast als nucleaire "brandstof" in kerncentrales, waarin de geproduceerde energie grotendeels afkomstig is van de splijting van de kernen van U-235. In de meest toegepaste typen kernreactoren voor elektriciteitsproductie, de kokend-water- en drukwaterreactoren, wordt geen natuurlijk uranium toegepast maar uranium dat is verrijkt in het aandeel van U-235. Van de daartoe ontwikkelde methoden wordt in Nederland de ultracentrifuge-techniek toegepast op een in gasvorm gebrachte verbinding van uranium met fluor. De verrijking van het gehalte van U-235 in het product van 0,7 % tot 2 à 3 % houdt in dat er tevens een bijproduct ontstaat van uranium waarin het gehalte van U-235 juist is verlaagd. Dat uranium wordt "verarmd uranium" genoemd. Het verrijgingsproces maakt gebruik van het verschil in atoommassa tussen U-238 en U-235. Het nog lichtere U-234 ondergaat daarom ook een aanmerkelijke verrijking in het product. Verarmd uranium is ten opzichte van natuurlijk uranium daarom niet alleen verarmd wat betreft U-235 maar ook wat betreft U-234. Het is dit verarmd uranium dat toegepast is in de balansgewichten van de stuurvlakken van de El Al Boeing. Verarmd uranium is daardoor te herkennen aan een verhouding U-238 : U-235 : U-234 die duidelijk afwijkt van de van nature voorkomende verhouding. De mate van verarming wordt bepaald door de verhouding van de uranium-inzet in het verrijgingsproces tot de productie van het verrijkt uranium. Een karakteristieke verhouding van het voorkomen van de U-isotopen in verarmd uranium is:

U-238 : U-234 : U-235 = 99,7 : 0,0018 : 0,3, met activiteitsverhoudingen als:

U-238 : U-234 : U-235 = 1,0 : 0,32 : 0,019.

## 2.3 Radiologische eigenschappen

Bij de opname van uranium in het lichaam door inslikken of inademen komen radioactieve stoffen in het lichaam, die bij radioactief verval een stralingsdosis in het lichaam afgeven. Dit gebeurt ook onder normale omstandigheden voortdurend door de aanwezigheid van geringe hoeveelheden uranium in ons voedsel en in stof die in de ademlucht voorkomt. De radiologische of stralingshygiënische karakteristieken van uranium-isotopen worden het duidelijkst aangegeven door de stralingsdosis die de opname van een eenheids-activiteitshoeveelheid in het lichaam veroorzaakt. Als eenheid van stralingsdosis wordt daartoe de sievert (Sv) gebruikt. De door

810387-99.21997/C

allerlei natuurlijke bronnen jaarlijks door de Nederlandse bevolking ontvangen stralingsdosis bedraagt circa 2500  $\mu\text{Sv}$  (microsievert) en is slechts voor een verwaarloosbaar deel afkomstig van inslikken en inademen van uranium. In tabel 3 zijn de stralingshygiënische karakteristieken van de hier besproken natuurlijke uranium-isotopen vermeld. Ze hebben betrekking op uranium in slecht oplosbare oxide-vorm. Daaruit blijkt, dat inhalatie van uranium een beduidend hogere stralingsdosis veroorzaakt dan inslikken van eenzelfde hoeveelheid.

Tabel 3: Stralingsdoses als gevolg van inslikken of inademen van uranium-isotopen

U-isotoop	Inslikken $\mu\text{Sv/Bq}$	Inademen $\mu\text{Sv/Bq}$ <sup>a)</sup>
U-238	$4,5 \cdot 10^{-2}$	8,0 <sup>b)</sup>
U-234	$4,9 \cdot 10^{-2}$	9,4
U-235	$4,7 \cdot 10^{-2}$	8,5

<sup>a)</sup> Voor uranium dat in oxidevorm als zeer fijn stof wordt ingeademd

<sup>b)</sup> 1  $\mu\text{Sv/Bq}$  betekent éénmiljoenste sievert per Bq ingeademd U-isotoop

De stralingshygiënische aspecten van blootstelling aan inademing van uranium-houdend stof kunnen ook weergegeven worden als stralingsdosis per ingeademde hoeveelheid uranium-element ( $\text{Sv/gU}$ ). De uitkomsten daarvan lopen voor natuurlijk uranium en verarmd uranium uiteen omdat in het laatste per gram U-element beduidend minder U-235 en U-234 voorkomt. In tabel 4 zijn die stralingshygiënische karakteristieken van natuurlijk en verarmd uranium gegeven. Ze laten zien dat per ingeademde hoeveelheid uranium de stralingsdosis van natuurlijk uranium hoger is dan die van verarmd uranium.

Tabel 4: Vergelijking van de stralingsdoses als gevolg van inademing van 1 mg natuurlijk uranium, respectievelijk 1 mg verarmd uranium.

	Bq per mg uranium	$\mu\text{Sv/Bq}$	$\mu\text{Sv/mg uranium}$
<b>Natuurlijk uranium:</b>			
U-238	12,5	8,0	100
U-234	12,5	9,4	118
U-235	0,57	8,5	5
Totaal	25,57		223
<b>Verarmd uranium:</b>			
U-238	12,5	8,0	100
U-234	4,0	9,4	38
U-235	0,24	8,5	2,0
Totaal	16,74		140



### 3. BEMONSTERING VAN STOF IN HANGAR 8

#### 3.1 Plaatskeuzen

Op 25 november 1998 werd in aanwezigheid van en na overleg met twee vertegenwoordigers van de Enquêtecommissie door NRG in hangar 8 neergeslagen stof verzameld en werd een bemonsteringsapparaat geïnstalleerd voor het verzamelen van luchtstof. De plaatskeuze voor het verzamelen van neergeslagen stof was gebaseerd op het uitgangspunt dat de kans zo groot mogelijk moest zijn dat het stof niet recentelijk op de te bemonsteren oppervlakken was neergeslagen. Daarom werd bijvoorbeeld niet gekozen voor de inmiddels omhekte vloer waarop de brokstukken van het EIAI vliegtuig hadden gelegen. Die vloer was betrekkelijk stofvrij en volgens de vertegenwoordigers van de Enquêtecommissie deels bewerkt om verontreiniging met uranium te verwijderen. Daarom werd gekozen voor twee locaties in de directe omgeving van het omhekte vloergedeelte:

Locatie I : de horizontale steunvlakken van een verticale stalen drager van de halconstructie, aan beide zijden twee, op circa 60 cm boven de vloer en op circa 160 cm boven de vloer;

Locatie II : de bovenzijden van een drietal buizen die zich tussen circa 2 m en 2,5 m langs de muur bevinden op een overloop boven leegstaande kantoorruimten die direct aan het omhekte vloergedeelte grenzen.

Voor de verzameling van stof in de lucht werd gekozen voor plaatsing van de apparatuur binnen het omhekte vloergedeelte op circa 4 meter afstand van de bovengenoemde kantoorruimten.

#### 3.2 Bemonsteringswijze

De bemonstering van gedeponerd stof werd uitgevoerd met een steelstofzuiger die voor dit doel voorzien was van een filterbus met een absoluut filter met geringe luchtweerstand zodat voldoende luchtsnelheid door de zuigmond behouden bleef. De twee filterbussen waren tevoren gewogen zodat de totale hoeveelheid verzameld stof door weging vastgesteld kon worden.

Voor de bemonstering van in de lucht zwevend stof werd op 25 november 1998 een lucht-bemonsteringsapparaat opgesteld bestaande uit:

- een luchtpomp
- een filterhouder met een bij 60 °C voorgedroogd en gewogen glasvezelfilter
- een debietmeter
- een uurwerk

Op 25 november werden de standen van de debietmeter en het uurwerk genoteerd.

Op 1 december werd de opstelling weer verwijderd nadat de nieuwe standen van de debietmeter en het uurwerk waren genoteerd. In 146,9 uur was 264 m<sup>3</sup> lucht door het luchtfilter gezogen (1,8 m<sup>3</sup>/uur). Uit de weging van het weer bij 60 °C gedroogde monster volgde een stofbelading van het filter van 6,3 mg. De luchtstofconcentratie bedroeg dus in de periode van bemonstering 24 µg/m<sup>3</sup>.

### 3.3 Monstervoorbehandeling

#### 3.3.1 Filterbussen

De filterbussen van de locaties I en II werden gewogen en leegggeschud. Het verkregen materiaal werd voor verwijdering van grove delen gezeefd over een DIN 4188 zeef met 800 µm maaswijdte. De zo verzamelde hoeveelheid stof bedroeg 41,9 gram voor monster I en 7,0 gram voor monster II. Door middel van gammaspectrometrie werd een schatting gemaakt van de U-concentratie in de twee monsters. Uit elk van de monsters werden vervolgens deelmonsters genomen van 2 gram voor analyse van de uranium-isotopen middels massaspectrometrie (monsters I MS en II MS) en middels alfaspectrometrie (monsters I AS en II AS). De laatstgenoemde monsters werden tevens gebruikt voor uraniumbepaling door middel van fluorimetrie. Tenslotte werden deelmonsters van respectievelijk circa 300 mg en 200 mg genomen voor karakterisering met röntgendiffractie (monsters I RD en II RD).

#### 3.3.2 Luchtstoffilter

Het luchtstoffilter werd na drogen gewogen voor de bepaling van de belading met luchtstof (zie 3.2). Tevens werd door een langdurige gammaspectrometrische meting zonder verdere monsterbehandeling nagegaan of het verzameld stof uranium bevatte.

## 4. GAMMASPECTROMETRIE

### 4.1 Stofmonsters I en II (filterbussen)

Vanwege de beperkte hoeveelheid stof, met name van monster II, was het niet mogelijk met het materiaal een standaard meetschaaltje geheel te vullen. De gammaspectrometrische bepalingen van uranium dienden vooral om de aanwezigheid van uranium vast te stellen en een betrouwbare schatting te verkrijgen van de concentratie. De meting levert de geschatte activiteitsconcentratie van U-238 die gebaseerd is op de bepaling van de gamma-uitzende dochter, Th-234, die in radioactief evenwicht is met de moeder U-238. De resultaten zijn in tabel 5 vermeld zowel als de gemeten activiteitsconcentratie van U-238 als de daaruit afgeleide elementconcentratie

Tabel 5: Geschatte concentraties U-238 en het element uranium in monsters I en II op basis van gammaspectrometrie

Monster	Gemeten U-238 in Bq per kg stof	Berekend uranium in mg per kg stof
I	146	12
II	342	27

Ze geven aan dat de U-concentratie in monster II ruim tweemaal zo hoog is als in monster I. De concentraties zijn voldoende hoog voor de bepaling van de U-isotopenverhouding door middel van massaspectrometrie en alfaspectrometrie van kleine deelmonsters (0,5 - 2 gram). Voor monster II kon tevens een schatting gemaakt worden voor de concentratie U-235. De uitkomst van 6,4 Bq/g wijst op een U-238/U-235 verhouding die ruim tweemaal zo hoog is als voor natuurlijk uranium. Naast het U-238 werd door gammaspectrometrie in beide monsters de aanwezigheid aangetoond van de van nature voorkomende radionucliden K-40, Ra-226, Pb-210, Ra-228 en Th-228. Tevens werd in beide monsters het kunstmatige radionuclide Cs-137 (cesium-137) aangetroffen. Dit radionuclide is in de periode tot 1964 door bovengrondse kernproeven en meer recent bij het Tsjernobyl reactor-ongeval in april 1986 in het milieu verspreid. Het Cs-137 in de stofmonsters is zeer waarschijnlijk afkomstig van laatstgenoemde bron, hetgeen aangeeft dat het stof op de bemonsterde locaties over een lange periode gedeponerd is.

### 4.2 LUCHTSTOF

Bij de gammaspectrometrische analyse van het luchtstofmonster op het glasvezel-vlakfilter kon geen uranium worden aangetoond. De totale activiteit van het U-238 op het filter moet daardoor minder dan 0,2 Bq bedragen hebben. De activiteitsconcentratie van U-238 in luchtstof in de bemonsteringsperiode van 25 november tot 1 december 1998 bedroeg dus minder dan 0,0008 Bq/m<sup>3</sup>. In het filter werd wel beryllium-7 (Be-7) aangetroffen, lood-210 (Pb-210) en kalium-40 (K-40). Die drie radionucliden zijn van verschillende natuurlijke oorsprong en worden altijd in de lucht aangetroffen.





## 5. FLUORIMETRIE

De bepaling van het uranium-gehalte van stoffen kan heel gevoelig gedaan worden met behulp van fluorimetrie. Daarom werden kleine deelmonsters van de opgeloste monsters I en II (zie alfaspectrometrie) gebruikt voor de uraniumbepaling. De resultaten van de fluorimetrische analyse worden verkregen als concentratie van het element uranium. Ze zijn in onderstaande tabel tevens gegeven zowel als elementconcentraties als de daarmee corresponderende activiteitsconcentraties van U-238.

Tabel 6: Uraniumconcentraties in de stofmonsters I en II bepaald met fluorimetrie (mg/kg stof) en omgerekend naar de concentratie U-238 (Bq/kg stof)

Stofmonster	Gemeten uranium in mg per kg stof	Berekend U-238 in Bq per kg stof
I	7	86
II	21	257

De uitkomsten van de uraniumbepalingen met fluorimetrie zijn consistent met de schattingen op basis van gammaspectrometrie (zie tabel 5). Ook uit de fluorimetrie volgt een verhouding tussen de uraniumconcentraties van stofmonsters I en II van ca. 1 : 3. Uit de waarnemingen bij de monsterbereiding voorafgaand aan de fluorescentiemeting volgt dat in de meetpreparaten een niet verwaarloosbare en tussen beide monsters mogelijk verschillende mate van uitdoving van het fluorescentielicht optreedt. Deze uitdoving kan tot onderschatting van het U-gehalte in de monsters leiden. Dit verklaart waarschijnlijk de lagere uitkomsten van de fluorimetrie in vergelijking met gammaspectrometrie



## 6. RÖNTGENDIFFRACTIE

Met behulp van röntgendiffractie kunnen in een monster fijngemaakt materiaal de belangrijkste verbindingen van elementen op grond van hun kristalstructuur geïdentificeerd worden. De monsters I en II bevatten zo weinig uranium dat met röntgendiffractie geen analyse van de aard van de uraniumverbinding(en) mogelijk is. Wel konden met röntgendiffractie de belangrijkste verbindingen in stofmonsters geïdentificeerd worden. De resultaten zijn in tabel 7 samengevat.

Tabel 7: Kristallijne fasen in de stofmonsters I en II aangetoond met röntgendiffractie <sup>a)</sup>

Stofmonster	SiO <sub>2</sub> (zand)	CaSO <sub>4</sub> 2H <sub>2</sub> O (gips)	TiO <sub>2</sub> (pigment)	CaCO <sub>3</sub> (kalk)
I	xxxxx	xx	xx	spoor
II	xxx	x	x	x

<sup>a)</sup> Het aantal kruisjes is een relatieve maat voor het voorkomen van de desbetreffende verbinding in de monsters.

In beide monsters komt relatief veel kwarts (SiO<sub>2</sub>, zand) voor, in monster I meer dan in monster II. Ook werd in beide monsters CaSO<sub>4</sub>2H<sub>2</sub>O (gips) aangetroffen en TiO<sub>2</sub> (wit pigment toegepast in verf); ook hier in monster I wat meer dan in monster II.

Tenslotte werd in beide monsters wat CaCO<sub>3</sub> aangetoond. Het spectrum van de röntgendiffractie liet slechts twee heel zwakke reflectielijnen ongeïdentificeerd. Uit de hierboven vermelde resultaten volgt dat het stof van de monsters I en II pleisterwerk (gips) met verfresten bevat met waarschijnlijk nog een bijdrage van fijne "gronddeeltjes" mogelijk afkomstig van de betonvloer en van de omgeving van de hal.



## 7. ALFASPECTROMETRIE

### 7.1 Methode

Voor de bepaling van de uranium-isotopen door middel van de bij hun verval uitgezonden alfadeeltjes van karakteristieke energie, is het noodzakelijk dat de uranium-isotopen uit het monstermateriaal in zuivere vorm worden afgescheiden en vervolgens worden gemeten. De alfaspectrometrische bepaling van uranium-isotopen in de monsters I en II omvat daarom de volgende stappen:

- oplossen van het materiaal (ontsluiten)
- zuivering door middel van ionenwisselaar(s)
- elektrodepositie op r.v.s. plaatjes
- alfaspectrometrie

Bij het ontsluiten werd eerst een behandeling met een zuurmengsel in een open beker op een warm zandbad toegepast. Daarbij bleek dat de monsters niet volledig in oplossing konden worden gebracht. Daardoor werd vervolgens nog een ontsluiting in kleinere hoeveelheden in gesloten teflon drukvaten toegepast. Daarbij werd gebruik gemaakt van een magnetronoven.

Om niet alleen de verhoudingen van de uiteindelijk te meten activiteiten van de uranium-isotopen U-238, U-234 en U-235 te kunnen bepalen maar ook de uranium elementconcentratie werd bij het ontsluiten van de monsters een bekende activiteitshoeveelheid van U-232 toegevoegd. Dit maakt het mogelijk uit de gemeten activiteit van U-232 op het r.v.s.-meetpreparaat de efficiëntie van de afscheidingen en meting vast te stellen voor alle gemeten uranium-isotopen.

De alfаметing zelf, het alfaspectrum van de r.v.s.-plaatjes in een vacuümkamer met een "surface-barriërdetector", levert voor de verschillende U-isotopen het totale aantal getelde alfadeeltjes dat ze hebben uitgezonden. Daaruit kunnen hun onderlinge activiteitsverhoudingen worden bepaald en met behulp van de U-232-meting de activiteitsconcentraties in de oorspronkelijke monsters.

### 7.2 Resultaten

De resultaten van de alfaspectrometrische bepaling van U-isotopen in de stofmonsters I en II zijn in onderstaande tabel gegeven.

Tabel 8: Activiteitsconcentraties van U-238, U-234 en U-235 in de stofmonsters I en II en de uit U-238 afgeleide elementsconcentraties

Stofmonster	Gemeten U-238 in Bq per kg stof	Gemeten U-234 in Bq per kg stof	Gemeten U-235 in Bq per kg stof	Berekend uranium in mg per kg stof
I	97±3,2	24,3±1,2	2,2±0,3	7,8±0,3
II	329±10	53,9±2,2	5,6±0,5	26,3±0,8

Uit de resultaten volgen de in tabel 9 gegeven verhoudingen tussen de activiteiten van U-238 en de overige twee U-isotopen.

810387-99.21997/C

19-27

Tabel 9: Berekende activiteitsverhoudingen op basis van alfaspectrometrie

Stofmonster	U-234/U-238	U-235/U-238
I	0,25	0,023
II	0,16	0,017
Nat. U	1,0	0,045

De verhoudingen tussen de activiteiten van de U-isotopen in de monsters I en II wijken significant af van de natuurlijke verhoudingen. In beide monsters komen U-234 en U-235 in een lagere verhouding tot U-238 voor dan in natuurlijk uranium. De isotopenverhoudingen in monster II komen overeen met de karakteristieke verhoudingen in verarmd uranium. Die in monster I liggen iets minder van de natuurlijke verhoudingen verschoven. Daaruit volgt dat de relatief hoge elementconcentratie van uranium in monster II vrijwel uitsluitend bepaald wordt door verarmd uranium en in monster I deels door natuurlijk uranium. Over de herkomst van het verarmde uranium in het stof kan op basis van de verkregen meetresultaten geen uitspraak worden gedaan.

## 8. MASSASPECTROMETRIE

Voor de bepaling van de verhouding van het voorkomen van de isotopen van uranium in de stomonsters I en II werden kleine deelmonsters in teflon drukvaten met salpeterzuur en zoutzuur ontsloten. Uit het opgeloste materiaal werd vervolgens het uranium in gezuiverde vorm verkregen met behulp van ionenwisselaars. Het zuivere uranium werd thermisch geatomiseerd en geïoniseerd. De scheiding van de uranium-isotopen vond vervolgens plaats door versnelling in een elektrisch veld en door massascheiding in een magneetveld. Omdat van U-234 in verhouding tot U-238 en U-235 maar heel weinig atomen in natuurlijk of verarmd uranium voorkomen leent deze methode zich niet voor de bepaling van de isotopenverhouding U-234/U-238.

De resultaten van de massaspectrometrische analyse van de stofmonsters I en II zijn in tabel 9 gegeven. Ze tonen aan dat in beide monsters U-235 beduidend minder voorkomt dan in natuurlijk uranium en dat het uranium in de stofmonsters I en II verarmd is.

Tabel 9: Door massaspectrometrie bepaalde voorkomen van U-238 en U-235 in de stofmonsters I en II in vergelijking met het natuurlijke voorkomen.

Materiaal	atoomprocenten U-238	atoomprocenten U-235
Stofmonster I	99,77	0,23
Stofmonster II	99,66	0,33
Natuurlijk uranium	99,28	0,72





## 9. DISCUSSIE

### 9.1 Vergelijking analysesresultaten

De resultaten van de gammaspectrometrische analyse kunnen alleen wat betreft U-238 en U-235 (monster II) en alleen U-238 (monster I) vergeleken worden met die van alfaspectrometrie. Ondanks het semi-kwantitatieve resultaat van de gammaspectrometrie komen de resultaten met name voor monster II goed overeen (zie tabel 10).

Tabel 10: Vergelijking van de resultaten van gammaspectrometrie en alfaspectrometrie

Monster	Bepaling	Gammaspectrometrie	Alfaspectrometrie
I	U-238 (Bq/kg)	146	97±3
II	U-238 (Bq/kg)	342	329±10
II	U-238/U-235	53	59

Voor de U-elementen-concentratie kunnen de resultaten van drie analysemethoden vergeleken worden. Die vergelijking is in tabel 11 gegeven.

Tabel 11: Vergelijking van de U-elementbepaling volgens drie verschillende methoden

Methode	uranium-elementconcentratie (mg/kg)		
	Monster I	Monster II	Monster II/Monster I
Gammaspectrometrie	12	27	2,3
Fluorimetrie	6,9	20,6	3,0
Alfaspectrometrie	7,3	26,3	3,4

De vergelijking bevestigt dat de U-elementconcentratie door de fluorimetrie onderschat werd (zie hoofdstuk 5) en dat de gammaspectrometrische meting de concentratie van U-238 in monster I waarschijnlijk wat heeft overschat. De resultaten zijn consistent wat betreft de 2 à 3 maal hogere concentraties van uranium in monster II in vergelijking met monster I.

Er bestaat geen "normaal" stof. In situaties waarin de concentratie van stof in de lucht niet verband houdt met het werken met stoffen met een aanzienlijk verhoogd uranium-gehalte, zoals bijvoorbeeld fosfaaterts, zal de uraniumconcentratie in luchtstof meestal nog onder dat van lichte klei liggen. In die zin kan het uraniumgehalte van de stofmonsters I en II als verhoogd beschouwd worden.

### 9.2 Herkomst gedeponeerd stof

De onderling consistente resultaten van de gammaspectrometrie (U-238 en U-235 in monster II), de alfaspectrometrie (U-238, U-234 en U-235 in monsters I en II) en de massaspectrometrie (U-235 en U-238 in monsters I en II) geven duidelijk aan dat het uranium in beide monsters grotendeels afkomstig is van de verspreiding van fijn stof van verarmd uranium in het verleden. Bij welke handelingen en wanneer die verspreiding heeft plaatsgevonden blijven vragen die niet

op basis van de onderzoeksresultaten beantwoord kunnen worden. Wel kan uit de eerder besproken aanwezigheid van Cs-137 in de genoemde monsters afgeleid worden dat het op de monsterlocaties I en II aangetroffen stof zeer waarschijnlijk gedeponeerd is in een periode die tenminste de jaren 1986 tot heden omvat.

### 9.3 Luchtstof

De bepaling van de huidige concentratie van luchtstof in hangar 8 leverde een lage concentratie van  $24 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Voor zover bekend werden in de hal in de periode van monsternamen geen werkzaamheden uitgevoerd waarbij stof werd gevormd of gedeponeerd stof werd opgewerkt. De totale hoeveelheid luchtstof, 6,3 mg, die op het luchtstoffilter was verzameld was zo laag, dat pas bij een concentratie van U-238 van meer dan 32000 Bq/kg in dat stof de aanwezigheid van U-238 op het filter door gammaspectrometrie had kunnen worden aangetoond. De luchtstofbemonstering geeft dus alleen aan dat de stofconcentratie in de lucht van hangar 8 in de periode 25-11-1998 tot 1-12-1998 heel laag was, maar laat geen uitspraak toe over de verschillen of overeenkomsten met stof van monster I of II.

### 9.4 Stralingshygiënische aspecten

#### 9.4.1 Inleiding

Een evaluatie van de stralingshygiënische aspecten van de in dit rapport gegeven bevindingen is slechts mogelijk in de vorm van voorbeeldberekeningen op basis van veronderstelde ongunstige maar niet extreme arbeidsomstandigheden. De vraag of en in hoeverre in het verleden bij werkzaamheden in verband met de El Al Boeing of bij andere werkzaamheden zich bijzondere situaties van blootstelling van werkers hebben voorgedaan valt buiten het kader van deze studie. Dit geldt tevens voor mogelijke blootstellingen van andere personen in de hal dan de werkers.

#### 9.4.2 Gedeponeerd stof

Voor stof uit monster II kunnen de radiologische karakteristieken voor inhalatie berekend worden zoals in tabel 12 is aangegeven.

Tabel 12: Radiologische karakteristieken van stof uit monster II voor berekening van inhalatiedoses.

Nuclide	Bq/kg stof	$\mu\text{Sv}/\text{Bq}$ <sup>a)</sup>	$\mu\text{Sv}/\text{mg}$ stof <sup>a)</sup>
U-238	329	8,0	$2,6 \cdot 10^{-3}$
U-234	54	9,4	$5,1 \cdot 10^{-4}$
U-235	5,6	8,5	$4,8 \cdot 10^{-5}$
Totaal	389		$3,2 \cdot 10^{-3}$

<sup>a)</sup> Voor inhalatie van  $1 \mu\text{m}$  AMAD met uranium in slecht oplosbare oxide-vorm.

Op basis van deze radiologische karakteristieken kan nog geen schatting gemaakt worden van de stralingsdosis als gevolg van inhalatie van dit stof. Daarvoor is ook een concentratie van het stof in de lucht nodig, een ademdebiet in m<sup>3</sup>/uur en een blootstellingsduur. In tabel 13 is een dosisschatting gegeven voor een hypothetische situatie waarin veronderstellingen zijn gebruikt die leiden tot een hoge uitkomst voor de berekende dosis. Die pessimistische (conservatieve) veronderstellingen betreffen met name de hoge concentratie van 5 mg/m<sup>3</sup> van fijn luchtstof (1 µm AMAD) en een relatief lange blootstellingsduur (500 uur/jaar) voor werken bij een hoge stofconcentratie.

Onder de veronderstelde conservatieve blootstellingscondities levert de dosisschatting een uitkomst van 10 µSv/jaar, hetgeen overeenkomt met ca. 0,4% van de gemiddelde stralingsdosis die door de Nederlandse bevolking jaarlijks uit natuurlijke bronnen wordt ontvangen.

De in tabel 13 berekende maximale inhalatie van 3 g stof per jaar correspondeert voor stof van monster II met een uranium-opname van 100 µg. Die hoeveelheid komt overeen met de onder normale Nederlandse omstandigheden zeer lage uranium-opname door de mens gedurende ca. 3 maanden.

Tabel 13: Conservatieve schatting van de stralingsdosis voor werkers bij inhalatie van luchtstof uit monster II

Verondersteld of berekend:	Waarde
Veronderstelde stofconcentratie in werkruimte (mg/m <sup>3</sup> )	5
Blootstellingsduur (uren/jaar)	500
Ademdebiet (m <sup>3</sup> /uur)	1,2
Totale hoeveelheid ingeademd stof (mg/jaar)	3000
Dosis per ingeademde mg stof (µSv)	3,2 10 <sup>-3</sup>
Jaardosis door ingeademd stof (µSv)	10

#### 9.4.3 Luchtstof

Als, pessimistisch, wordt verondersteld dat het tussen 25 november en 1 december in hangar 8 verzamelde luchtstof van dezelfde samenstelling is als stof van monster II, kan daarop een schatting gebaseerd worden van de dosis door inhalatie van dat stof. Voor het verkrijgen van een conservatieve uitkomst wordt uitgegaan van een continue blootstelling aan de gemeten stofconcentratie van 24 µg/m<sup>3</sup>. In tabel 14 zijn de uitkomsten gegeven.

Deze dosisschatting levert een uitkomst van 0,2 µSv als jaardosis, minder dan 0,01 % van de gemiddelde stralingsdosis die door de Nederlandse bevolking uit natuurlijke bronnen wordt ontvangen.

De in tabel 14 berekende maximale inhalatie van 48 mg stof correspondeert voor stof van monster II met een uraniumopname van circa 2 µg. Dat is evenveel als de geringe hoeveelheid die de mens onder normale omstandigheden in circa twee dagen opneemt.

Tabel 14: Conservatieve schatting van de stralingsdosis voor werkers bij inhalatie van luchtstof bij een gemeten concentratie van  $24 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en karakteristieken als van monster II.

Verondersteld of berekend:	Waarde
Veronderstelde stofconcentratie in werkruimte ( $\text{mg}/\text{m}^3$ )	0,024
Blootstellingsduur (uren/jaar)	1650
Ademdebiet ( $\text{m}^3/\text{uur}$ )	1,2
Totale hoeveelheid ingeademd stof ( $\text{mg}/\text{jaar}$ )	48
Dosis per ingeademde mg stof ( $\mu\text{Sv}$ )	$3,19 \cdot 10^{-3}$
Jaardosis door ingeademd stof ( $\mu\text{Sv}$ )	0,2

## 10. CONCLUSIES

- 10.1 De relatief hoge concentraties van uranium in de monsters I en II van gedeponeerd stof uit hangar 8 wijzen op een kunstmatige bron van verspreiding van uranium in hangar 8.
- 10.2 De verhoudingen van de uraniumisotopen in de stofmonsters I en II tonen aan dat het uranium in die monsters vrijwel volledig bestaat uit verarmd uranium.
- 10.3 De aanwezigheid van relatief hoge concentraties Cs-137 in de stofmonsters I en II geeft aan dat het op de monsterlocaties verzamelde stof daar gedeponeerd is in een periode die teruggaat tot het Tsjernobyl-reactorongeval van april 1986 en tussentijds niet is verwijderd.
- 10.4 Op basis van de meetresultaten kan wel worden geconcludeerd dat verarmd uranium in hangar 8 is verspreid maar kan niet vastgesteld worden bij welke werkzaamheden en wanneer dat heeft plaatsgevonden.
- 10.5 Uit stralingshygiënische karakteristieken van het stof uit monster II met de hoogste concentraties uranium volgt dat ook onder ongunstige blootstellingscondities de stralingsdosis als gevolg van inhalatie van dat stof een kleine fractie blijft van de jaarlijks uit natuurlijke bronnen ontvangen stralingsdosis. In hoeverre zich in het verleden meer extreme blootstellingsomstandigheden ten aanzien van stofconcentraties, uraniumconcentraties in stof en blootstellingsduur hebben voorgedaan kan op grond van het onderhavige onderzoek niet vastgesteld worden.
- 10.6 Continue blootstelling aan de nu gemeten lage stofconcentratie in de lucht van hangar 8 leidt, ook wanneer wordt verondersteld dat dit stof identiek is aan monster II, tot een heel kleine fractie van de jaarlijks uit natuurlijke bronnen ontvangen stralingsdosis.

