

## Uran i alunskifer

*Prøvetaking og målemetoder*



**Referanse:**

Aleksandersen TB. Uran i alunskifer, prøvetakning og målemetoder.  
Teknisk dokument nr. 10. Østerås: Statens strålevern, 2016.

**Emneord:**

Alunskifer. Uran. Prøvetakning. Målemetode.

**Resymé:**

Ulike forslag til prøvetakningsstrategier og målemetoder for å undersøke urankonsentrasjonen i områder med forhøyet uraninnhold.

---

**Reference:**

Aleksandersen, TB. Uranium in alum shale, methods for sampling and measurement.  
Teknisk dokument nr. 10 Østerås: Norwegian Radiation Protection Authority, 2016.  
Language: Norwegian.

**Key words:**

Alum shale. Uranium. Sampling. Measurement.

**Abstract:**

Several suggestions on how to conduct a survey to determine uranium content in areas with elevated levels of uranium.

---

Prosjektleder: Thomas Aleksandersen

*Godkjent:*



Per Strand, avdelingsdirektør, avdeling sikkerhet, beredskap og miljø

---

36 sider.

Publisert 2016-01-08.

Statens strålevern, Postboks 55, No-1332 Østerås, Norge.

Telefon 67 16 25 00, faks 67 14 74 07.

E-post: nrpa@nrpa.no

www.nrpa.no

ISSN 2387-5240 (online)

## **Uran i alunskifer, prøvetakning og målemetoder**

Thomas B. Aleksandersen

**Statens strålevern**  
Norwegian Radiation  
Protection Authority  
Østerås, 2016

# Innhold

---

<b>Innledning</b>	<b>6</b>
<b>1 Mobilitet og heterogenitet</b>	<b>7</b>
1.1 Mobilitet	7
1.2 Heterogenitet.	7
<b>2 Prøvetakning</b>	<b>8</b>
2.1 Grunnleggende prinsipper og planlegging	8
2.1.1 Pilotundersøkelse	8
2.1.2 Inndeling i målvolumer	8
2.1.3 Antall prøver	8
2.1.4 Representative prøver (3D->2D->1D)	8
2.1.5 Prøvemengde	9
2.1.6 Reduksjon av prøvemengde	9
2.1.7 «Homogenisering»	9
2.2 Prøvetagningsstrategier <sup>6</sup>	9
2.2.1 «Simple random sampling» Enkel tilfeldig prøvetakning.	9
2.2.2 «Systematic grid sampling» Systematisk prøvetakning	9
2.2.3 «Random within blocks» Tilfeldig innenfor boks.	10
2.2.4 «Stratified sampling» Prøvetagning i strata.	10
2.3 Prøvetagning for å redusere variansen i resultatet. <sup>6</sup>	10
2.3.1 «Composite sampling» Sammenslåing av prøver til blandprøver.	10
2.3.2 «Ranked set sampling» Rangerte sett med prøver.	11
<b>3 Litt om statistikk: antall prøver og usikkerhetsberegninger</b>	<b>12</b>
3.1 Konfidensnivå:	12
3.2 Heterogenitet i volumet:	13
<b>4 Tilgjengelighet og vurdering av analysemetoder.</b>	<b>15</b>
4.1 Generelt om vurderinger av lab-metoder:	15
4.2 Litt om felt-metoder:	15
<b>5 Gammaspectrometri i laboratorium.</b>	<b>16</b>
<b>6 X-Ray Fluorescens (XRF) – lab</b>	<b>17</b>
<b>7 Radiokjemi / alfaspektrometri</b>	<b>18</b>
<b>8 Instrumentell nøytronaktivering analyse (INAA) / forsinket nøytrontelling (DNC)</b>	<b>19</b>
<b>9 ICP–MS: Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry</b>	<b>20</b>
<b>10 XRF i felt</b>	<b>21</b>

---

<b>11</b>	<b>Gammapektrometri i felt</b>	<b>22</b>
<b>12</b>	<b>Oppsummering og forslag til krav.</b>	<b>23</b>
12.1	Krav til antall prøver.	23
12.2	Krav til masse per prøve.	23
12.3	Krav til forhold rundt reduksjon av prøvemasse før analyse.	23
12.4	Krav til analysen.	23
12.5	Krav til vurdering mot grenseverdien.	23
12.6	Krav til dokumentasjon.	24
	<b>Referanseliste:</b>	<b>25</b>

---

## Innledning

Denne rapporten inneholder betraktninger rundt prøvetakningsstrategier og målemetoder for å bestemme uraninnhold i alunskifer. Teksten er basert på informasjon innhentet etter et omfattende litteratursøk. Mange ulike metoder har blitt nevnt i litteraturen, men det er kun de mest lovende metodene som blir belyst i denne rapporten. Metodene og kravene er i hovedsak tiltenkt bedrifter som skal undersøke aktivitetskonsentrasjon i områder hvor uranholdig masse skal fjernes. Deponier for alunskifer kan også benytte seg av denne teksten, og det anbefales at de selv har muligheten til å ta prøver eller måle på avfallet ved ankomst. Om dette er nødvendig vil avhenge av hvor strenge krav deponiet stiller til bedriften, det er mulig å se for seg scenarier der bedriften vil sende inn materiale med aktivitetskonsentrasjon over grenseverdien uten å bruke ekstra tid og penger på å bestemme aktivitetskonsentrasjonen mer nøyaktig.

Rapporten er skrevet på oppdrag fra seksjon for miljø og atomsikkerhet for å bedre forvaltnings- og beslutningsgrunnlaget på området. Noen av betraktningene kan være noe utopiske og derav vanskelige, men ikke umulig å utføre i praksis.

# 1 Mobilitet og heterogenitet

## 1.1 Mobilitet

Uranet i alunskiferen kan lekke ut under forskjellige forhold.<sup>1</sup> Dette er ganske komplekst, og det går ikke an å gi et svar som vil gjelde for alle tilfeller. Det kan vurderes om det skal være nødvendig med en utlekkingsstest for hvert område som skal klassifiseres om materialet ikke skal deponeres. Grunnen til kompleksiteten er at uranet er bundet til ulike materiale, som har ulike forutsetninger for at uranet kan lekke ut. Uranet kan være bundet til fragmenter av zirkon eller titanitt, som kan være antatt jevnt fordelt i alunskiferen. Dette uranet vil ikke lekke ut av naturlige årsaker.<sup>2</sup> Uran kan også være bundet til K-feltspat og organisk materiale, og mengden uran korrelerer positivt med mengden av stoffene i alunskiferen. Lokalt kan variasjonen av organisk materiale være mellom 10 og 50 %. Uranet som er bundet til K-feltspat og organisk materiale kan lekke ut om det blir utsatt for syrer eller oksidasjon. Uranet blir da mobilt og løselig i vann. Om det er jern- eller mangan oksider til stede kan uran bli fanget inn og bundet det igjen. Om oksidene blir utsatt for anaerobt og reduserende miljø vil uranet igjen bli frigjort.

Uranet som eventuelt lekker ut vil «aldri» bli en ny kilde til radongass og således ikke et like stort radiologisk problem, men uran er giftig i seg selv og kan forurense drikkevannskilder.

Thorium viser veldig liten grad av mobilitet<sup>1</sup> og Radium er moderat mobilt, blant annet i kontakt med luft vil det danne radiumnitrat som er vannløselig.<sup>2</sup>

I feltarbeidet<sup>3</sup> ble det observert store forskjeller mellom aktivitet av uran og aktivitet av datteren radium og dennes døtre. Urannivået lå på mellom 20 og 60 % av radiumnivået i prøvene som ble analysert på gammallaboratoriet. Prøven med lavest relativt uraninnhold var fra et område med mye kalium i alunskiferen. Det er derfor åpenbart at det ikke holder å måle uran i overflaten av et område for å gjøre seg en oppfatning av radium/radonfaren til området. Målingene understøtter teorien om at uran er mye mer mobilt enn radium, men vi har ingen forutsetninger for å anslå hvor stor andel av radiumet som har lekket ut.

## 1.2 Heterogenitet.

Mengden uran i alunskiferen vil kunne variere, og generelt vil uraninnholdet øke med andelen organisk materiale i alunskiferen.<sup>4,5</sup> For flater som har vært utsatt for vær og vind er det å regne med at det kan oppstå store forskjeller på grunn av mobilisering og avrenning. Hvor dypt inn i fjellvegger eller ned i bakken dette vil være tilfelle er ikke undersøkt. Det kan eksistere store lokale heterogeniteter også for stein som ikke har vært mye utsatt for vær og vind; en prøve på om lag 11,5kg ble delt inn i 16 mindre prøver og inneholdt mellom 0,02 % og 0,6 % uran.<sup>4</sup> Det ble ikke videre undersøkt om dette var representativt for denne type bergart.

Det ble gjennomført et feltarbeid hvor det ble samlet inn prøver fra ulike steder fra en vegg med alunskifer. Avstanden mellom hvert punkt var grovt sett ca. 8m. Resultatene for Ra-226 er vist i tabellen under. Ra-226 ble valgt da det er mindre mobilt enn uran.

Ra-226 (lab)	2,03 Bq/g	2,25 Bq/g		2,51 Bq/g	0,84 Bq/g
Ra-226 (felt)	2,3 Bq/g	2,6 Bq/g	2,3 Bq/g	3,2 Bq/g	1,5 Bq/g

Alle resultatene er i samme størrelsesorden, og det er ingen dramatiske forskjeller. Det er verdt å merke seg at feltmålingene tar for seg et veldig stort «prøvevolum» i forhold til prøvevolumet for laboratoriemålingene.

---

## 2 Prøvetakning

### 2.1 Grunnleggende prinsipper og planlegging

#### 2.1.1 Pilotundersøkelse

Det lønner seg å starte med en pilotundersøkelse gjort over hele området/massen som skal klassifiseres.<sup>6</sup> Ved å få en pekepinn på aktivitetskonsentrasjonen, og variasjonen av denne over området, så kan man få informasjon som bidrar til å velge rett strategi for prøvetakning og analyse. Med informasjon om aktivitetskonsentrasjon kan lagringen og eventuell mellomlagring av avfallet planlegges før utgravingen begynner.

#### 2.1.2 Inndeling i målvolumer

Det kan hende at området/massen man er ute etter å klassifisere er så stort at det vil være vanskelig eller upraktisk å klassifisere alt sammen under ett. Det kan derfor være hensiktsmessig å dele dette opp i flere målvolumer (også kalt «decision units» i litteraturen<sup>6</sup>) og så bestemme aktivitetskonsentrasjon for hvert enkelt målvolum for seg.

#### 2.1.3 Antall prøver

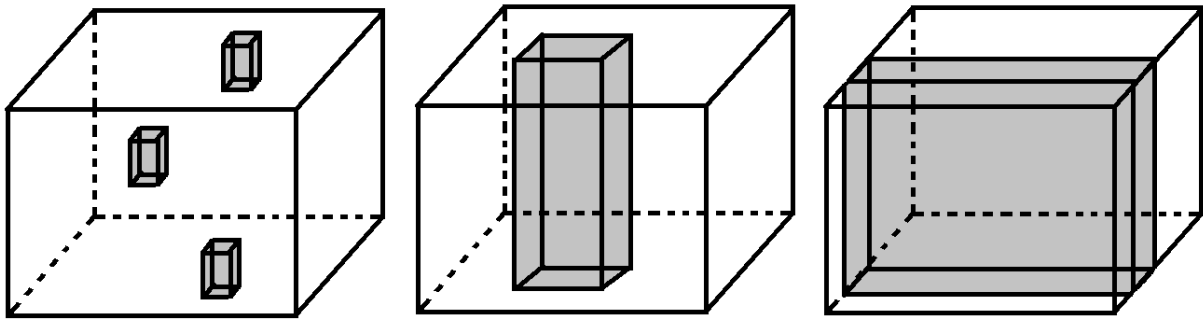
En tommelfingerregel er at det skal tas mellom 4-10 prøver per målvolum.<sup>6,7</sup> Minimum 4 prøver burde være et absolutt krav, både fordi feil kan forekomme og for å få et anslag av variasjonsbredden i aktivitetskonsentrasjon. I kapittelet om statistikk står det mer om beregninger av antall prøver som vil være nødvendig for hvert enkelt målvolum.

#### 2.1.4 Representative prøver (3D->2D->1D)

Det å ta representative prøver er den vanskeligste og viktigste delen av å bestemme aktivitetskonsentrasjon for et målvolum. Det grunnleggende prinsippet er at alt materiale i volumet har en like stor mulighet til å bli tatt ut som en prøve for analyse.<sup>8</sup> En alt for ofte brukt metode er å ta noe av det materialet som er lettest tilgjengelig, en såkalt «grab sample». Det er i litteraturen beskrevet som det absolutt verste forsøket på å ta representative prøver.<sup>8</sup> For å sikre at man tar en representativ prøve, må alle mulige prøver identifiseres og så skal det tas et tilfeldig utvalg med datamaskin eller tabeller, det å ta utvalg på måfå er ikke godkjent.<sup>6</sup>

De fleste målvolum vil opprinnelig være på en 3D skala (3 variable dimensjoner). For å gjøre prøvetakningen enklere finnes det måter å redusere ned til 2D eller 1D.<sup>8</sup> Hvis man ser for seg at man skal grave opp de øverste 20 cm av en fotballbane så kan man gå fra 3D til 2D ved å ta kjerneprøver som går 20 cm dypt, altså dekker hele den ene dimensjonen. Når man har tatt opp denne kjerneprøven så kan det for eksempel gjøres til 1D ved at det velges ut et tilfeldig 2cm sjikt fra en slik kjerneprøve. Hvis man tar hele sjiktet, er dybden den eneste dimensjonen. Det er ingen lov som sier at man ikke kan redusere utvalget av mulige prøver stegvis, så lenge alle utvelgelser gjøres tilfeldig.





Prøvetakning fra 3D (venstre) til 2D (midten) til 1D (høyre).

### 2.1.5 Prøvemengde

I litteraturen<sup>6</sup> står det en del om hvor stor en prøve burde være, men det meste av dette baserer seg på størrelsen til det største av korn, eller partikler som prøven består av.<sup>6,8</sup> Det er vanskelig å overføre denne tankegangen til fjell og stein som ikke består av korn eller små deler naturlig. Fjellet blir knust i biter med ulike metoder og det ikke er forutsetninger for å vite om de små bitene er forskjellig fra de store bitene. Et foreslått utgangspunkt er å ta ut om lag 1-2kg masse til en primærprøve.

### 2.1.6 Reduksjon av prøvemengde

Et laboratorium vil sjelden kunne måle på den fullstendige massen til en primærprøve. Det vil derfor være nødvendig å redusere prøvemengden. Dette kan gjøres i flere steg, og det kan være hensiktsmessig å gjøre en reduksjon før prøven sendes til laboratoriet. I «Theory of Sampling»<sup>8</sup> står det beskrevet mange avanserte metoder for å velge ut materiale som skal til den nye prøven. For alunskifer er det antagelig ikke nødvendig å gjøre det så avansert som beskrevet for de beste metodene. Et enkelt forslag er å legge materialet utover i en linje (1D), og så skrape tilfeldig valgt materiale ned i en ny boks. Hver reduksjon av prøvemengde vil øke usikkerheten i resultatet (fundamental feil), avhengig av hvor fint det knuses og hvordan man velger ut andelen som skal til analyse.

### 2.1.7 «Homogenisering»

Prøven skal knuses og blandes godt før alle reduksjoner i størrelse og før analyse. Om det er praktisk mulig kan dette også gjøres før primærprøvene velges ut. Prosessen vil føre til mindre variasjon i resultatene og kan redusere antall nødvendige analyser for klassifisering.

## 2.2 Prøvetagningsstrategier<sup>6</sup>

### 2.2.1 «Simple random sampling» Enkel tilfeldig prøvetakning.

Hovedprinsippet for denne og alle andre prøvetagningsmetoder som skal være tilfeldige er at alle mulige prøver som kan tas fra volumet har en mulighet til å bli tatt ut for analyse. I litteraturen står det at alle mulige prøver blir lokalisert og nummerert, så trekkes tilfeldige tall til man har fått nok prøver. Hvis man trekker det samme tallet på nytt er det to muligheter å løse det på; enten velge et sted like i nærheten, eller trekke et nytt tall. Begge løsningene er «lovlige». Det å gå bort og plukke en prøve på måfå er ikke godkjent metode for å ta en tilfeldig prøve, og de tilhørende beregninger for tilfeldig valgte prøver blir ikke gyldige. En svakhet med metoden er at visse områder kan få mye tettere prøvetagning en andre.

### 2.2.2 «Systematic grid sampling» Systematisk prøvetakning

Her velges ett tilfeldig punkt, og ut fra dette punktet trekker man linjer slik at det dannes et rutenett med enten like store kvadrater eller triangler. I hvert knutepunkt tar man en prøve. Avstand mellom hvert knutepunkt må tilpasses antallet prøver som skal tas fra volumet. Denne metoden er som regel raskere å utføre i praksis, da man kan gå faste avstander mellom hver prøvetagning i stedet for å finne hvert punkt

som metoden over. Metoden har dog en svakhet ved at hvis det er en periodisk variasjon i målvolumet som samsvarer med avstandene mellom hvert prøvetakningspunkt så vil sluttresultatet kunne bli feil.

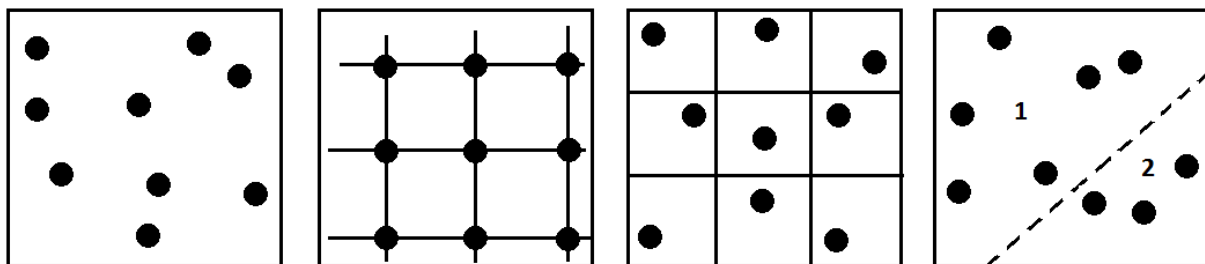
### 2.2.3 «Random within blocks» Tilfeldig innenfor boks.

Dette er en metode som er en kombinasjon av de foregående. Området som skal klassifiseres deles opp i et antall kvadrater som man vil ta prøver fra. Inne i hvert kvadrat velges ett punkt helt tilfeldig. På denne måten vil hele området bli representert, og man unngår problem med eventuelle periodiske heterogeniteter.

### 2.2.4 «Stratified sampling» Prøvetagning i strata.

Hvis en pilotstudie viser at det er systematisk heterogenitet i målvolumet, kan det være gunstig å dele opp målvolumet i regioner slik at hver region blir omtrent homogen. Så følger man en av de ovennevnte prøvestrategiene for å ta prøver, og vektet hvert stratum med hvor mange prøver som blir tatt derfra. Da får man et samlet resultat for hele målvolumet med lavere standardavvik enn hvis man hadde målt på alle prøver fra hele målvolumet under ett.

Dette må ikke forveksles med å dele opp målvolumet for å gjøre en bestemmelse / klassifisering av hvert stratum. Der det er stor heterogenitet og mulighet for å segregere massen kan det allikevel være en idé å dele opp i flere målvolumer for å unngå blanding av lavradioaktive masser med høyradioaktive masser.



Fra Venstre: Tilfeldig prøvetakning, systematisk prøvetakning, tilfeldig innen for boks og prøvetakning i strata.

## 2.3 Prøvetagning for å redusere variansen i resultatet.<sup>6</sup>

Det finnes metoder for å kontrollere variansen i resultatet, og således kan det bidra til å redusere antall prøver til analyse om forholdene er rette. Dette gjøres ved å ta flere prøver enn det antall som skal analyseres og så sende utvalgte deler av materialet til analyse. Merk at de nevnte metodene ikke vil redusere minimumskravet for individuelt innsendte prøver til analyse, men kun redusere sannsynligheten for at fler enn minimum må analyseres.

### 2.3.1 «Composite sampling» Sammenslåing av prøver til blandprøver.

Om det er mye billigere å ta prøver enn det er å analysere dem, kan det lønne seg å kombinere flere prøver tatt i felt til en blandprøve som sendes til analyse. Dette vil føre til mindre fundamental feil og lavere variasjon i resultatene som igjen generelt vil føre til at færre prøver trengs å analyseres. For eksempel kan man i stedet for å ta 20 store prøver og sende inn til analyse, ta 50 mindre prøver og lage 10 blandprøver som sendes til analyse. På denne måten kan det oppnås omtrent samme sikkerhet i svaret, med halvert kostand for analyse. Dette kan gjøres veldig enkelt i felt ved å velge ut litt materiale fra forskjellige steder nær det valgte prøvetakningspunktet og samle det i samme beger, i stedet for fylle opp begeret med materiale kun tatt fra senter av prøvetakningspunktet. Det er verdt å merke seg at prøver fra ulike strata ikke skal blandes inn i samme blandprøve.

---

### 2.3.2 «Ranked set sampling» Rangerte sett med prøver.

Dette er en annen måte for muligens å redusere antall prøver som sendes til analyse. Først finner man en enkel metode for å rangere prøvene (f.eks. på grunnlag av XRF-analyse). Så velger man ut  $m \times m$  prøver, og deler dem opp i  $m$  sett. Så velger man den med lavest aktivitet fra sett 1, den med nest lavest aktivitet i sett 2, osv. til man har en prøve fra hvert sett. De valgte prøvene blir sendt inn til analyse. Repeter til alle prøvene som har blitt tatt har vært igjennom prosedyren. Om man for eksempel har samlet inn 25 prøver, kan de deles inn i  $3 \times 3 + 4 \times 4$  for innsending av 7 individuelle prøver, eller  $5 \times 5$  for innsending av 5 individuelle prøver. Denne metoden vil gi et resultat med lik eller lavere variasjon mellom prøvene enn for enkel tilfeldig prøvetagning ved innsending av likt antall prøver.

---

## 3 Litt om statistikk: antall prøver og usikkerhetsberegninger

**Antall prøver:** Tommelfingerregel er 4-10 fra hvert volum som skal klassifiseres.<sup>7</sup> Antallet vil variere avhengig av flere elementer; **konfidensnivå, usikkerhet i målingene og heterogenitet i volumet.** Dette er snakk om antall prøver nødvendig for å klassifisere volumet rent matematisk, og det skal aldri tas færre prøver enn beskrevet i kravene på side 18. Betraktningene i dette kapittelet gjelder **normalfordelte** resultater om ikke annet er nevnt. **Log normal** fordeling kan også oppstå for slike prøver og da må det egne beregninger til.

### 3.1 Konfidensnivå:

Konfidensnivå er rett og slett hvor sikker en vil være på at den «egentlige» verdien til målvolumet ligger innenfor usikkerhetsintervallet, eller at den «egentlige» verdien ligger under en grenseverdi. Når det gjelder klassifisering mot grenseverdier benyttes som regel konfidensnivå på 90 % eller 95 %, alt ettersom hvor stor risiko det utgjør om materialet feilaktig klassifiseres som under grenseverdien. Dette må veies opp mot de praktiske og økonomiske ulempene med å fylle opp ett deponi med masser som kan ha aktivitet under grenseverdien. Det anbefales å benytte 90 % konfidensnivå, (da vil det samtidig være mer enn 98 % sikkert at aktiviteten ikke overskrider to ganger grenseverdi).

**Usikkerhet i målingene:** Ingen målemetode kan garantere rett svar, og derfor må måleresultatene alltid oppgis med en tilhørende usikkerhet i resultatet. Beskrivelsen av usikkerheten gjøres ved et intervall og hvor sikker man er (konfidensnivå) på at det riktige svaret ligger innenfor dette intervallet.<sup>7</sup> Ved standard usikkerhet, eller ved ett standardavviks usikkerhet er konfidensnivået på ca. 68 % ved tosidig normalfordeling. Der et vanlig å øke konfidensnivået ved å utvide usikkerhetsintervallet med en dekningsfaktor, denne metoden brukes i tilfeller der man er interessert i å vite hva verdien er. For klassifisering etter grenseverdi, skal det brukes Student's t-Distribution (ensidig).<sup>6</sup> Denne tar hensyn til at det er få prøver og at det som er interessant er om aktiviteten er under grenseverdien. Et eksempel på hvordan man kan oppgi et måleresultat med fullstendig informasjon er gitt her:

Aktivitetskonsentrasjonen av uran i alunskiferen er 3,03 Bq/g +/- 0,27Bq/g. Det antas tosidig normalfordeling og usikkerheten er oppgitt med en dekningsfaktor k=2 som gir et konfidensnivå på ca. 95 %.

Opphavet til usikkerheten i hver enkelt måling kan være så mangt, blant annet;

kalibrering, oppløsningen, drift/bias i måleinstrumentet, andre forhold med prøven eller prøvetakning. Miljøfaktorer som kulde/regn kan innvirke på prøven eller instrumentet. Usikkerheter fra andre målinger som vekt og volum må også med hvis det har innvirkning på resultatet. I beregningene må det skilles mellom usikkerheter som kommer fra prøvetakning og usikkerheter som kommer fra analysen av prøven.

Noen måleinstrumenter vil oppgi et usikkerhetsintervall i svaret, og man er da nødt til å gjøre seg kjent med hvilke usikkerheter som det tas hensyn til (for det er sikkert ikke alle) og hvilken dekningsfaktor/konfidensnivå som er brukt. Når alle usikkerhetene knyttet til målingen og analysen er identifisert kan de under visse forutsetninger kombineres med følgende formel:

$$u_{analyse} = \sqrt{u_x^2 + u_y^2 + u_z^2}$$

$u_x^2 + u_y^2 + u_z^2$  representerer absolutt usikkerhet ved ett standardavvik fra hvert enkelt bidrag. For at formelen skal kunne brukes må bidragene være uavhengige av hverandre og kun summert sammen.<sup>7</sup>

Usikkerheten i prøvetakningen er vanskeligere å bestemme nøyaktig for uran alunskifer, men det skal i hovedsak ta høyde for at massen er heterogen. Under er et forslag til hvordan en slik usikkerhet kan beregnes, basert på mengden prøvemateriale som blir sendt til analyse. Formelen er balansert slik at den vil gi omtrent 10 % usikkerhet ved minimalt analysert masse.

$$u_{prøve}(\%) = 10\% - \frac{m_{analysert} * 10^8}{m_{volum}}\%$$

$u_{prøve}(\%)$  er hvor mange % usikkerhet i middelverdien ved ett standardavvik. Denne skal ikke settes til lavere enn 5 %, selv om formelen kan gi et slikt resultat.

$m_{analysert}$  er den totale massen som faktisk har blitt analysert/målt på.

$m_{volum}$  er den totale massen til hele målvolumet.

#### Noen eksempler for beregning av usikkerhet i aktivitetskonsentrasjon:

Usikkerheten i kalibreringen til måleinstrumentet er oppgitt til å være 6 % med 95 % konfidensnivå og antatt normalfordelt. Om konsentrasjonen er 3,03 Bq/g vil 6 % tilsvare 0,182 Bq/g, og for å regne om til standard usikkerhet deler man på dekningsfaktoren som er 2 (ved 95 % konfidensnivå), og ender opp med en usikkerhet på +/- 0,09Bq/g.

Oppløsningen på en vekt er på 1g, det vil si at usikkerheten fra avrundingen er +/- 0,5 g. Det er her like sannsynlig å måle 0,5 g feil som å måle 0,1 g feil, og usikkerheten er derfor ikke normalfordelt. For å regne om til standard usikkerhet (normalfordeling ett standardavvik) må man først regne om usikkerhetsintervallet til Bq/g. La oss si at vekten viser 10 gram og da veier prøven mellom 10,49 og 9,5 gram.  $30,3 \text{ Bq} / 10,49 \text{ g} = 2,888 \text{ Bq/g}$ .  $30,3 \text{ Bq} / 9,5 \text{ g} = 3,189 \text{ Bq/g}$ . Så tar man bredden på intervallet og deler på  $2 * 3^{0,5} = (3,189 - 2,888) / 2 * 3^{0,5} = 0,087 \text{ Bq/g}$ , og usikkerheten blir dermed +/- 0,087 Bq/g.

### 3.2 Heterogenitet i volumet:

Heterogent målvolum vil gi opphav til ulike måleresultat, og jo større forskjellene er, jo større vil standardavviket bli. Det anbefales å velge prøvetaknings- strategier for å redusere effekten av dette mest mulig, enten ved å dele et målvolum inn i flere strata, eller å benytte seg av sammenslåing eller rangering av prøver. Er volumet veldig heterogent, så kan det være at måleresultatene ikke lenger er normalfordelt, og da må man ta høyde for dette i videre utregninger og beregninger. Det finnes ulike metoder for å undersøke om en serie med måleresultater er normalfordelt, en Shapiro – Wilk test<sup>9</sup> for antall prøver ( $n < 50$ ) er forklart i eksempelet i appendiks 4. Et histogram kommer og godt med for å undersøke fordelingen. Har man en normalfordeling kan man kvantifisere spredningen av målte verdier ved å beregne variansen for prøvene slik;

$$s^2 = \frac{1}{n - 1} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2$$

$s^2$  står for variansen av prøveresultatene og vil øke med heterogeniteten i materialet.

$x_i$  står for måleresultat fra prøve nummer i.

$\bar{x}$  står for gjennomsnitt av måleresultatene.

$n$  står for antall prøver.

### Klassifisering mot grenseverdien og beregning av antall prøver:

Hvordan de tre ovennevnte faktorene samvirker for å undersøke om et volum skal klassifiseres etter en grenseverdi er gitt i formelen under:

$$UCL = \bar{x} + t_{1-\alpha} \sqrt{\frac{s^2}{n} + u_{analyse}^2 + u_{prøve}^2}$$

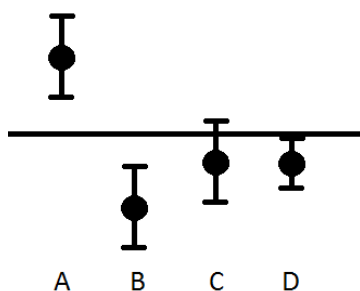
**UCL** står for øvre konfidensgrense, er UCL lavere enn grenseverdien kan målvolumet klassifiseres som under grenseverdien.

$t_{1-\alpha}$  står for dekningsfaktoren, som er avhengig av valgt konfidensnivå og frihetsgrader i systemet. Antall frihetsgrader er lik antall prøver minus antall strata. Den aktuelle verdien for dekningsfaktoren finner man i tabellverk; Student's t-distribusjon (one-sided). Ved 4 prøver og 90 % konfidensnivå er denne faktoren 1,638.

$s^2/n$  står for standardavviket til middelveidien/gjennomsnittet av måleresultatene.

$u_{analyse}^2 + u_{prøve}^2$  står for kombinert standard usikkerhet fra analyse og prøvetakning for en typisk prøve.

Denne formelen kan brukes til å undersøke om det holder med **n** prøver for å bevise at aktiviteten er under grenseverdien, og kan derfor benyttes av en bedrift for å anslå om minstekravet til antall prøver (beskrevet i oppsummeringen) vil være tilstrekkelig. Det er to komponenter her som er ukjent, og det er  $\bar{x}$  og  $s^2$ . Begge faktorene kan beregnes ved hjelp av en pilotstudie utført med feltinstrumenter eller prøvetakning. Om mulig kan de to komponentene anslås ved annen informasjon eller erfaring. Om man ikke er interessert i å gjøre en slik beregning på forhånd for å undersøke om det er nødvendig med mer enn minimum antall prøver, så anbefales det allikevel å ta noen ekstra prøver mens man likevel er i gang. De ekstra prøvene trenger ikke analyseres med en gang, men kan ligge i bakhånd om resultatet blir slik som i situasjon C i figuren under. Formelen over viser at det ikke vil være til hjelp å ta et stort antall prøver, om man ikke samtidig har kontroll på usikkerheten i hvert enkelt måleresultat. En illustrasjon på hvordan resultater med tilhørende usikkerheter kan havne i forhold til grenseverdien er vist under.



**A:** Aktiviteten ligger langt over grenseverdien. **B:** Aktiviteten ligger langt under grenseverdien. **C:** Aktiviteten ligger under grenseverdien, men usikkerheten i resultatet gjør at målvolumet ikke kan klassifiseres som under grenseverdien. Sannsynligheten for at denne situasjonen oppstår er antagelig liten i forhold til A/B. **D:** Samme aktivitet som i C, men det er foretatt flere prøvetakninger og/eller bedre analyser for å redusere usikkerhetsintervallet, slik at målvolumet kan klassifiseres som under grenseverdien.

---

## 4 Tilgjengelighet og vurdering av analysemetoder.

### 4.1 Generelt om vurderinger av lab-metoder:

Det er et skille mellom metoder som massespektrometri (ICP-MS)/røntgen fluorescense (XRF) og metoder som baserer seg på måling av radioaktivitet (alfaspektrometri, gammaspektrometri og INAA/DNC). For de første metodene er det relativt mange tilbydere rundt om, og det er funnet én så langt som er akkreditert i Norge. Mange av laboratoriene er store og kan tilby flere ulike metoder for å analysere uran i materialer, og vil da antagelig kunne bistå i valg av beste metode. For de radiometriske metodene så er det funnet to kommersielle laboratorier som utfører slike analyser, det er IFE og det er Becquerel Labs (Canada). Det er antagelig flere tilsvarende laboratorium utenlands.

For hver lab-metode har det blitt utviklet et ark med konsentrert informasjon. Arket inneholder også en tabell som en hurtig oversikt over metodens viktigste vurderingspunkter:

- Fargeskalaen går fra grønt(bra), gul(OK), oransje(noe tvilsom) til rødt(ubrukelig) og er en indikasjon på hvor tilfredsstillende metoden er.
- Tallene i parentes forteller hvor mange kilder informasjonen er hentet fra.
- Prisene er veiledende og er antatt lavere ved større antall innsendte prøver.
- Større prøver vil generelt bety bedre statistikk eller færre analyser.
- Det antas at deteksjonsgrensene som laboratoriene oppgir er med 95 % konfidensnivå. Det vil si at det bare er 5 % sannsynlig at uranet i prøver med aktivitet lik eller høyere enn deteksjonsgrensen ikke blir detektert.
- Usikkerheten i målingen er også oppgitt ved 95 % konfidensnivå, lavere usikkerheter vil gjøre at man kan gjøre en rett vurdering tettere opp mot grenseverdiene enn med store usikkerheter.
- Tidsbruken for prepping/analyse er antatt faktisk tid som laboratoriet vil bruke per prøve. Som regel vil et kommersielt laboratorium oppgi en dato med god tid for innlevering av alle resultater, men flere vil tilby å gjøre det raskere for en ekstra kostnad, og da vil tidsbruk prepping/analyse være en begrensning om den er lang. Alle metodene som er nevnt burde kunne produsere noen resultater innen en uke.
- Hvis det står akkreditert; ja, så betyr det at det er funnet minst ett laboratorium som er akkreditert for metoden. Om laboratoriet som velges er akkreditert for metoden så er dette bra, men det holder at laboratoriet viser til gode resultater i SLP'er eller tilsvarende.

### 4.2 Litt om feltmetoder:

Det finnes masse forskjellige håndholdte feltinstrumenter fra forskjellige leverandører, men de er generelt en del usikrere å jobbe med enn lab-metoder. Kalibreringene fra leverandøren er ikke alltid passende for de faktiske forhold som målingen utføres ved. Om man ikke gjør en egen kalibrering av hvert instrument, eller sjekker målingene opp mot laboratorieanalyser så kan det være at feltmålinger ikke er gode nok til å klassifisere alunskifer til å være under grenseverdiene. De kan alltid fungere som en metode for å gjøre en pilotstudie for å vurdere intern variasjon i området som skal klassifiseres, og dette arbeidet er nyttig i seg selv.

Deteksjonsgrensene som blir oppgitt for slikt utstyr må også tas med en klype salt. Som regel er det basert på veldig enkle utregninger som f.eks. «to ganger bakgrunnsnivå».

Det er også mulig å sette opp et midlertidig feltlaboratorium som muligens kan gi noe bedre svar, men det stiller ekstra krav til kompetanse og det vil antagelig bli billigere og enklere i de fleste tilfeller å sende prøver inn til laboratorieanalyser.

## 5 Gammaspektrometri i laboratorium.

Analyser som blir gjort på et gammaspektroskopi laboratorium er i hovedsak gjort med høyoppløselige HPGe detektorer, på prøver med lav aktivitet.

Gammastrålingen fra radioaktive nuklider måles ved at strålingen vekselvirker med detektorkrystallen og avsetter hele eller deler av sin energi. Dette setter flere elektroner i bevegelse og lager en strøm som blir gjort om til en spenningspuls og forsterket. Pulshøyden på denne er direkte relatert til energien på det innkommende fotonet. Hver radioaktiv isotop som sender ut gammastråling har sitt eget unike «foton-fingeravtrykk» og med metoden kan både type isotop og aktivitetskonsentrasjon bestemmes.

Sammenligningsskjema for laboratorieanalyser	
Pris per analyse	2500kr (3)
Størrelse på prøven	10-500 g (3)
Deteksjonsgrense	0,01 Bq/g* (1)
Usikkerhet i målingen	10 % (1)
Tidsbruk prepping/analyse	20min/2-21d** (2)
Akkrediterte målinger?	Ja (1)
Muligheter for SLP?	Ja (3)

\*Deteksjonsgrensen er avhengig av måletiden.  
\*\*Avhenger av U-datteren som skal måles på.

Ikke alle isotoper er like lett å detektere med gammaspektroskopi, og U-238 er en av dem. Derfor så måler man på aktivitetsnivået i døtrene for å bestemme nivået av U-238, (se appendiks 2 for uranserien). For naturlig forekommende U-238 er det som regel likevekt nedover i kjeden frem til og med Ra-226, men dette må undersøkes om det skal måles på Ra-226 eller døtre. Etter Ra-226 kommer Rn-222 som lett unnslipper prøven. Ved å for eksempel vakuumpakke prøven i en tett aluminiumpose, kan Rn-222 gassen holdes fanget slik at tilsvarende likevekt bygges opp igjen i løpet av 3 uker. Om raskere svar kreves er det også mulig å måle på Pa-234m, men da med høyere deteksjonsgrense enn beskrevet i tabellen.

### Bruksområder:

Måling av lave/middels aktiviteter av radioaktiv stråling, egner seg godt for overvåkning av radioaktive nuklider i miljøprøver.

### Fordeler/ulemper:

- Analysetiden kan tilpasses aktivitetsnivået i prøven og ønsket presisjon.
- Naturlig bakgrunnsstråling fra urandøtre i bakken rundt laboratoriet kan innvirke på resultatene. Selv om dette skulle bli tatt høyde for kan det allikevel øke usikkerheten i resultatene for prøver med aktivitet rundt 0,1 Bq/g. For prøver med aktivitet rundt grenseverdien på 1Bq/g så vil usikkerheten fra dette være neglisjerbar.
- Det er en fordel at man kan vurdere aktivitetskonsentrasjon av andre radioaktive nuklider i prøven i samme analyse. Blant annet kan man undersøke hvorvidt det er likevekt i kjeden ved å måle på både Pa-234m og Ra-226 døtre.
- Selv om prisen for denne metoden er relativt dyr så vil muligheten til å måle på store prøvemengder gjør at de statistiske usikkerhetene blir mindre, og man kan da måle på færre prøver enn metoder med små prøvemengder.
- Størrelsen på prøven kan bli begrenset hvis aktiviteten er høy nok til å overbelaste detektoren, men det vil sjeldent være et problem for alunskifer.
- Avhengig av hvilke urandøtre som laboratoriet måler på, så kan svartiden fra laboratoriet variere fra noen dager til flere uker.
- Teknisk utfordrende, burde stille krav til dokumentasjon av metoden fra laboratoriet.

### Konklusjon:

Metoden egner seg for bestemmelse av uranaktivitet i alunskifer.



## 6 X-Ray Fluorescens (XRF) – lab

Prinsippet for denne metoden går ut på å bombardere prøven med høyenergetisk røntgenstråling.<sup>10</sup> Når elektroner fra indre elektronskall rundt et atom blir slått løs, så vil et annet elektron lenger ute hoppe ned på den ledige plassen. Da sendes det samtidig ut fotonstråling som er karakteristisk for energiforskjellen mellom elektronskallene og for det atomet. En scintillasjonsdetektor fanger opp fotonene og gir data til å lage et energispektrum som kan brukes til å bestemme mengden av ulike atomer i prøven.

Sammenligningsskjema for laboratorieanalyser	
Pris per analyse	300kr (2)
Størrelse på prøven	Ca. 1-10 g (1)
Deteksjonsgrense	Ca. 0,1 Bq/g (5)
Usikkerhet (ved grenseverdi)	20-30 % (0)
Tidsbruk prepping/analyse	1t/10min (0)
Akkrediterte målinger?	Ja (2)
Muligheter for SLP?	Ja (0)

I laboratoriet vil prøven først bli presset til små «pellets», og i noen tilfeller tilsatt en intern standard. Dette gjør at innholdet i prøven kan kvantifiseres med noe større sikkerhet. Det finnes også metoder for å måle på løsninger i vann.

### Bruksområder:

Arkeologiske prøver, da metoden regnes som «ikke-destruktiv»<sup>11</sup>, klassifisering av bergarter og kvantifisering av ønskede og uønskede grunnstoffer i mineraler og malmer til utvinning.

### Fordeler/ulemper:

- At deteksjonsgrensen er nær grenseverdien vil gjøre det vanskelig å klassifisere materialet som under grenseverdi på grunn av høye usikkerheter, det er dog god presisjon (lav usikkerhet) ved høyere konsentrasjoner av uran.
- Det er lite interferenser rundt signalet fra uran, derfor er det lettere å bestemme rett mengde uran i prøven.
- Sub-sampling av den innsendte prøven vil øke usikkerheten ytterligere.
- Det virker ikke som om laboratoriemetoden kommer med signifikante forbedringer over håndholdte XRF-instrumenter når det gjelder deteksjonsgrensen.
- Høyt jerninnhold kan komplisere analysen.
- Rask analysetid og mange laboratorier som tilbyr denne type analyser.
- Får informasjon fra flere elementer i samme analyse, for eksempel tungmetaller.

### Konklusjon/Anbefaling:

Metoden kan antagelig brukes hvis det er interessant å bestemme aktiviteten til uranholdig alunskifer med aktivitet  $> 0,5\text{Bq/g}$ .

## 7 Radiokjemi / alfaspektrometri

Prinsippet for alfaspektroskopi er ikke så fjernt fra gammaspektroskopi, men hovedarbeidet for å få et godt resultat ligger i prøveprepareringen.

Før en prøve kan analyseres med alfaspektroskopi er det ønskelig å separere uranet. Ved separering av uran unngår man interferenser fra andre alfa-emittere i prøven. Dette gjøres med en serie syrebad og utfellinger til man til slutt elektro-deponerer rett nuklide på en skive. En perfekt prøve er «uendelig» tynn (ett atomlag), sirkulær og homogen.<sup>12</sup> Denne skiven vil så plasseres foran detektoren, og man kan måle energien til alfa-partiklene som treffer detektoren. På denne måten kan man få et spektrum med topper som korresponderer til alfa-stråling fra prøven. Det finnes flere ulike detektortyper for alfa-spektroskopi, blant annet; «Surface Barrier Detectors» (SBD) og halvlederdetektorer.<sup>13</sup>

Sammenligningsskjema for laboratorieanalyser	
Pris per analyse	6000 kr (1)
Størrelse på prøven	1 g (1)
Deteksjonsgrense	0,02 Bq/g (2)
Usikkerhet i analysen	10 % (1)
Tidsbruk prepping/analyse	1 uke (1)
Akkrediterte målinger?	Ja (1)
Muligheter for SLP?	Ja (1)

### Bruksområder:

Det er mange forskjellige bruksområder, selv om nuklidene som måles er begrenset til alfa-emittere. Det brukes blant annet til analyse av både miljøprøver og biologiske prøver.

### Fordeler/ulempes:

- Prøven må løses opp helt, dette kan være krevende og vil generere en del avfall.
- Tidkrevende metode med omtrent en uke fra mottak av prøver til resultatene foreligger. Noen av prøvene kan analyseres i samme «batch», men er det mange vil dette måtte gjøres i flere tidkrevende omganger.
- Teknisk utfordrende metode, burde stille strengere krav til dokumentasjon av metoden fra laboratoriet.
- Fordel å kunne måle dirkete på strålingen fra U-238.

### Konklusjon/anbefaling:

Det ser ut til at metoden vil fungere for å bekrefte U-238 aktivitet i alunskifer. Flere titalls prøver til laboratoriet vil kunne ta veldig lang tid å få preppet/analysert.

## 8 Instrumentell nøytronaktivering analyse (INAA) / forsinket nøytrontelling (DNC)

Dette er to forskjellige analysemetoder, men utgangspunktet er veldig likt. Metodene er basert på at prøven blir bestrålt med en kraftig nøytronkilde som vil gi opphav til mange eksiterte atomer. Nøytronkilden er i de fleste tilfeller en atomreaktor, men det er også mulig å produsere nøytroner med en LINAC som bestråler et bestemt «target», eller fra bestemte radioaktive kilder.

Målinger på den resulterende strålingen kan fortelle mengden av ulike atomer i prøven. For INAA så måles det på gammastråling for å bestemme mengden av en rekke atomer.<sup>10</sup> For DNC så skjerms det for gammastrålingen og det måles på nøytroner som stammer fra eksiterte fisjonsprodukter fra U-236\* i prøven<sup>14</sup>. U-236\* dannes spontant ved at U-235 fanger inn nøytroner, fisjonsproduktene vil være opphavet til omtrent 94 % av nøytronene fra prøven.

Sammenligningsskjema for laboratorieanalyser	
Pris per analyse	Ca. 200 kr (1)
Størrelse på prøven	0,05-40 g (2)
Deteksjonsgrense	0,007 Bq/g (4)
Usikkerhet i målingen	3 % (1, DNC)
Tidsbruk prepping/analyse	5-10min (2)
Akkrediterte målinger?	Ja (1)
Muligheter for SLP?	Ja (0)

### Bruksområde:

Metoden er ikke-destruktiv, og brukes derfor ofte i arkeologi for å bestemme opphavet til gjenstander. Den er også godt egnet til å måle uraninnhold i prøver i et bredt aktivitetsnivå.

### Fordeler / ulemper:

- Det er en klar fordel med metoden at man kan måle på et større volum, om det kan måles på hele prøven som ble tatt i feltet fjerner man effektivt mange usikkerheter forbundet med «sub-sampling».
- Automatisering av måleprosessen gjør at målingene kan utføres raskt.
- Det er og teoretisk mulig å benytte denne metoden i et felt-laboratorium om man bruker de alternative nøytronkildene, men det vil antagelig kreve mer avansert personell enn for «vanlige» feltmålinger.
- Målemetoden takler også «ekstremverdier» av uraninnhold i alunskifer.
- Ettersom prøvene får forhøyet radioaktivitet etter nøytronbestråling, så må prøvene mellomlagres i rundt 24 timer, det meste er kortlivet.
- Det er begrenset med aktører som tilbyr denne typer analyser, men ettersom det krever lite av tid og materialer så er analysene allikevel relativt billige (analyseres i «batcher» så prisen per prøve er billigere jo flere prøver som sendes inn).
- For INAA er det en fordel at det er mulig å få svar på flere elementer av prøven, ikke bare uraninnholdet, der dette kan være interessant.
- For DNC er det en fordel at det vil være lite matriseeffekter og interferenser, dette gjør at resultatene er sikrere.
- En ulempe med DNC er at det i prinsippet måles på U-235, og man er avhengig av at det er et naturlig forhold mellom U-235 og U-238 for nøyaktig beregning av U-238. I naturlige forekomster som alunskifer og annet sediment/bergmateriale er det dog sannsynlig at det naturlige forholdet er opprettholdt.

### Konklusjon / anbefaling:

De nevnte metodene ser ut til å være meget godt egnet på alle punkter til å beregne aktivitet av U-238 i alunskifer og annet materiale.

## 9 ICP-MS: Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry

Det finnes flere varianter av denne metoden, blant annet «Laser ablation ICP-MS» hvor man bruker laser for å skyte løs atomene man skal måle på. Fokuset vil ligge på metoden hvor man bruker syreblandinger for å løse opp prøven i veldig små partikler. Etter at prøven er løst opp i vann og syrer, kan også en kjent referanse legges til den totale massen som skal analyseres. Løsningen blir så omgjort til gassform, før den sendes igjennom plasma hvor den blir atomisert og ionisert. Avanserte ICP-MS maskiner vil bombardere den ioniserende gassen med motstrøms gass for å fjerne eventuelle molekyler. Magnetiske felt vil så sortere bort atomer som ikke ble ionisert, før nye magnetiske felt bestemmer hvilke atomer som treffer detektoren(e) hvor/når. Til slutt vil det dannes et massespekter hvor linjene er sortert etter vekten til partiklene som treffer detektoren(e).<sup>15</sup>

Sammenligningskjema for laboratorieanalyser	
Pris per analyse	300-1000kr (2)
Størrelse på prøven	Ca. 1-4 g (2)
Deteksjonsgrense	0,002 Bq/g (4)
Usikkerhet i målingen	6-10 % (1)
Tidsbruk prepping/analyse	2t/10min (0)
Akkrediterte målinger?	Ja (1)
Muligheter for SLP?	Ja (0)

Metoden har fått positiv omtale i flere artikler/tekster, blant annet blir det sagt at: «Massespektroskopi er uvurderlig for å bestemme U i geologiske prøver»<sup>10</sup> «ICP-MS er teknikken som man har jobbet mest med for å få til gode resultater for U»<sup>10</sup>. I et arbeid gjort av NGU har de sammenlignet resultater opp mot prøver målt med gammaspektroskopi på HPGe detektorer og fått samsvarende resultater.<sup>16</sup>

### Bruksområder:

Denne metoden kan brukes til veldig mye, fra geologiske til biologiske og krim-tekniske undersøkelser.

### Fordeler/ulempers:

- Sub-sampling av prøven som blir innlevert fører til høyere usikkerheter i sluttresultatet (ikke inkludert i estimatet i tabellen over).
- Uranatomene kan være bundet til andre elementer i alunskiferen, slik at flere syrer må benyttes for å skille ut uranatomene. Dette kan føre til at uraninnholdet blir underestimert. Gode protokoller og økning av usikkerhetsintervallet vil redusere sjansen for å gjøre feil vurdering.
- Det er «lett» å måle på U med massespektroskopi, fordi det er lite annet som interferer med så høy masse/atomnummer.<sup>10</sup>
- Bredt dynamisk område på 8-9 dekader gjør at alle nivåer av Uran kan bestemmes.
- Det er flere laboratorier både innenlands og utenlands som utfører denne typen analyser, dog uvisst om alle har protokoller for å måle på Uran i alunskifer.
- Metoden har lang fartstid og teknologien blir stadig bedre.

### Konklusjon:

Metoden er egnet for å determinere uranaktivitet i alunskifer.

## 10 XRF i felt

XRF kan også benyttes i felten i to forskjellige konfigurasjoner. Det som det er skrevet mest artikler om er den såkalte «field portable XRF» eller pXRF. Dette er en transportertbar «strålekasse» som får plass i et vanlig bagasjerom i bil og kan settes opp i felt.<sup>11</sup> Denne kan brukes til å ta målinger omtrent på samme måte som i laboratoriet. I nyere tid har det blitt produsert flere håndholdte XRF-instrumenter, slik at man kan måle på prøver «in-situ». Denne kommer komplett, enten med radioaktiv kilde eller røntgenrør for bestråling, detektor og en skjerm som viser resultatene i en tabell. For videre vurdering er det den håndholdte løsningen som er mest relevant, da denne løsningen er mer praktisk anvendelig og det antas at resultatene er tilsvarende resultatene fra pXRF.

Sammenligningsskjema for feltanalyser	
Pris for et instrument	100-200kkr
Størrelse på prøven	1-4 cm <sup>3</sup>
Deteksjonsgrense	0,1 Bq/g
Usikkerhet i målingen	10-20 %
Tidsbruk prepping/analyse	1-5min
Muligheter for sammenligning	Ja
Risiko personell	Liten
Vanskelighetsgrad	Lett

### Bruksområder:

Håndholdt XRF er stadig i mer bruk av arkeologer og geologer, da de kan tas med over alt og gi raske svar hvor som helst. Det brukes også for å finne sjeldne jordmetaller med tanke på utvinning.

### Fordeler/ulempes:

- Deteksjonsgrenseberegningene kan være noe tvilsomme.
- Kalibreringen gjøres mot standarder med bestemte sammensetninger. Er prøven som måles på forskjellig så kan resultatene bli feil.<sup>17</sup> Antallet ulike kalibreringer for hvert instrument og hvor gode de er kan variere fra leverandør til leverandør. Er man usikker kan noen prøver brukes til å lage nye kalibreringsstandarder i samarbeid med leverandør. Eventuelt kan svarene sammenlignes med analyser utført på et laboratorium.
- Enkel i bruk, «point-and-click» og se på skjermen hvor resultatene oppdateres stadig.
- Veldig rask metode.
- Måler kun på et veldig begrenset område og dybde. Det er dog mulig å ta flere målinger på omtrent samme sted for å få et større vurderingsgrunnlag.
- Gir nesten fullstendig elementanalyse.
- Vekt mellom ca. 1-1,5 kg er overkommelig.
- Ettersom instrumentet er en strålekilde burde det stilles strengere krav til opplæring for bruk av instrumentet.
- Batteritiden er god nok for en dags arbeid.

### Konklusjon:

Selv om metoden er rask og enkel så er det mye som skal på plass for å få gode og sikre resultater. Det virker lite sannsynlig at metoden kan brukes til å vurdere aktivitetskonsentrasjonen opp mot grenseverdi på 0,1Bq/g, men etter å ha testet metoden i feltarbeidet ble det klart at vurdering mot grenseverdi 1Bq/g går an.<sup>3</sup>

## 11 Gammaspektrometri i felt

Alle radioaktive nuklider sender ut gamma eller røntgenstråling. Energien til fotonene som blir sendt ut er en signatur til hver enkelt isotop, og med gammaspektroskopi kan energien til hvert enkelt foton måles. Det finnes flere ulike krystaller som kan brukes til dette formålet; NaI, BGO, HPGe for å nevne noen. Det blir fokusert på NaI og BGO i denne evalueringen, da de krystalltypene er billigst og enklest/mest praktisk til bruk i felt. Det finnes flere måter man kan benytte seg av en slik aktivitetsmåler i et feltarbeid. En metode som er mye brukt for å undersøke kontaminering i bakken er å holde detektoren pekende nedover 1m over bakken. Da vil man måle stråling fra et stort område på en gang. Eventuelt kan man holde den et stykke over bakken, pekende mot f.eks. en fjellvegg. Det er også mulig å ha en skjermet detektor som måler i nær avstand til en fjellvegg, eller på prøver tatt på stedet, dette ble testet i feltarbeidet.<sup>3</sup>

Sammenligningsskjema for feltanalyser	
Pris for et instrument	30-60kkr
Størrelse på prøven	1-∞ g
Deteksjonsgrense	0,02Bq/g
Usikkerhet i målingen	10-20 %
Tidsbruk prepping/analyse	10-70min
Muligheter for sammenligning	Ja
Risiko personell	Ubetydelig
Vanskelighetsgrad	Lav/Middels

### Bruksområder:

Metoden har vært mye brukt til geologiske undersøkelser, blant annet i jakten på rike uranforekomster. Denne metoden passer også bra i en beredskapssituasjon og senere oppfølging av kontaminerte områder. Med tilstrekkelig kompetanse kan HPGe detektorer benyttes for bedre resultater.

### Fordeler/ulempes:

- Kan gi svar på aktivitetskonsentrasjonen til flere isotoper samtidig, deriblant U-238 (via datterprodukter), Th-232 (via datterprodukter) og K-40.
- Muligheten for å måle på et større område er en klar fordel, men man er nødt til å undersøke dybdefordelingen av det radioaktive materialet for å få fornuftige svar, da detektoren ser mest av det som er nærmest.
- Det kreves et forarbeid med kalibrering av detektoren basert på hvilken type målinger man har lyst til å utføre, noen av instrumentene kalibreres gjerne mot en stor flat «pad» med kjent aktivitet. Om forholdene i felten avviker stort fra dette vil målingene ha økt usikkerhet.
- Det vil kreves en del opplæring for rett bruk av instrumentet og tilhørende matematiske beregninger for å bestemme aktivitetskonsentrasjonen.
- Noen av systemene kan være avhengig av tunge materialer for skjerming. Det er mulig å sette fra seg detektoren og bringe prøver til detektoren for å minske problemet.
- Lite interferenser fra Cs-137 i alunskifer gjør det enklere å måle på U-238 døtre for detektorer med dårlig oppløsning (NaI).
- Som regel benyttes U-238 døtre langt ned i kjeden for å beregne aktiviteten, om det ikke er likevekt hele veien så blir resultatene feil.

### Konklusjon:

Det finnes så mange forskjellige systemer for dette at det blir umulig med en entydig konklusjon. Det må stilles krav til både utstyr, personell og undersøkelse av dybdeprofilen for at målingene kan benyttes til klassifisering. Problemstillingen vedrørende dybdeprofil gjelder ikke for prøver målt med feltinstrumentet.

---

## 12 Oppsummering og forslag til krav.

I rapporten er det forsøkt beskrevet flere muligheter for en bedrift for å kartlegge og klassifisere et område med alunskifer. Klassifiseringen burde gjøres før massen er gravd opp der dette er praktisk mulig. Det er funnet lite litteratur som er spesifikt myntet på alunskifer, mesteparten av teorien dreier seg om forurensede partikler i et jordsmonn. Det antas at det er «enklere» å beregne aktivitetskonsentrasjonen til uran i alunskifer, som vil ligge mer eller mindre jevnt fordelt over hele området, enn å finne områder som kan ha blitt forurenset. Derfor er også noen av beregningene og kravene enklere og mindre strenge her. Forslaget til krav er basert på de retningslinjer som er funnet i øvrig litteratur, men modifisert for formålet uran i alunskifer. Kravene er også basert på antagelser om heterogenitet i målvolumet, og det er åpent for justering opp eller ned når mer erfaring om alunskifer blir tilgjengelig.

### 12.1 Krav til antall prøver.

Det stilles krav til et minimum antall individuelle prøver som skal analyseres for uraninnhold. Antallet er basert på en veileder hos Miljødirektoratet angående undersøkelser av forurenset grunn, men gjort enklere. (Se Appendiks 3).

**1:** Det skal alltid tas minimum 4 individuelle prøver til analyse for hvert enkelt målvolum.

**2a:** For prøvetagning over et gitt areal skal det tas minimum 1 prøve per 1000m<sup>2</sup>, og minimum 1 prøve per 1m dyp. For lange og tynne målvolum; minimum 1 prøve per 40m.

**2b:** For prøvetagning av oppsamlet masse skal det tas minimum 1 prøve per 1000 tonn masse.

**3:** Om en pilotstudie viser at målvolumet er omtrentlig homogent kan kravene **2a/b** senkes.

### 12.2 Krav til masse per prøve.

Massen på en primærprøve burde være på rundt 1kg for å ha god sjanse for å ta en representativ prøve. Denne kan med fordel være satt sammen til en blandprøve fra flere mindre prøver. For eksempel 5 prøver á 200 gram kan settes sammen til en 1kg blandprøve.

### 12.3 Krav til forhold rundt reduksjon av prøvemasse før analyse.

Det er få laboratorier som har mulighet til å måle på 1kg masse om gangen. Det er en forutsetning at alle steg i reduksjonen av massen foregår på en slik måte at prøven fortsatt er representativ etter hver massereduksjon. Det strider mot kravene å lage mange prøver ut av en primærprøve, med mindre resultatene fra dem sammenstilles til ett resultat for hele prøven.

Det er derimot greit å dele opp en primærprøve for analyse til ulike formål. For eksempel kan 1kg prøve blandes godt og så sendes 0,4 kg til ett laboratorium for analyse av urankonsentrasjon og 0,6 kg til et annet for analyse av f.eks. surhet/syreinnhold.

### 12.4 Krav til analysen.

Analysene skal gjøres på et laboratorium som kan dokumentere kvaliteten av resultatene. Der feltmetoder er benyttet til klassifisering må grundig dokumentasjon på opplæring av personell og kvaliteten på utstyret leveres. Der det er mistanke om avrenning eller utvasking så burde noen av prøvene plukkes ut til analyse for både U-238 og Ra-226.

### 12.5 Krav til vurdering mot grenseverdien.

Det kreves et konfidensnivå på minimum 90 % for at gjennomsnittskonsentrasjon av uran i alunskiferen for hvert enkelt målvolum ligger under grenseverdien.

---

## **12.6 Krav til dokumentasjon.**

Alle forhold som berører prøvetakning, analyse og statistiske utregninger på resultatene skal dokumenteres og gjøres gjennomskiktig, slik at det kan gjøres en vurdering hvorvidt kravene er tilfredsstillende og beregningene er utført riktig.



---

## Referanseliste:

- 1: Fjermestad, H. «Mobilitet av uran og andre metall i bergarter i ny vegtrasé på Gran, Hadeland» Masteroppgåve 30 stp. 2013 ved Universitet for Miljø- og Biovitenskap.
- 2: Mironova, A. 2013 «Problem with NORM nuclides in Alum shale areas – implications for road construction» Term Paper for Course Radioecology UMB.
- 3: Aleksandersen, T. B., Gäfvert T. and Kolstad A. K. 2014 «Feltrapport fra Slemmestad: målinger på alunskifer» Intern rapport, Statens strålevern.
- 4: Vine, J. D. 1962 «Geology of Uranium in Coaly Carbonaceous Rocks» pp 139. Geological survey professional paper 356-D, Prepared on behalf of the U.S. Atomic Energy Commission.
- 5: Armands, G. 1972 Geochemical studies of uranium, molybdenum and vanadium in a Swedish Alum shale. I: Hessland, I. (red.) b. XXVII Stockholm contributions in geology, pp. 1-148. Stockholm; University of Stockholm.
- 6: Stewart, R. B. et al. 2002 «RCRA Waste Sampling Draft Technical Guidance. Planning, Implementation, and Assessment» Office of Solid Waste, U. S. Environmental Protection Agency.
- 7: Bell, S. 2001 «A Beginner's guide to Uncertainty of Measurement» *Measurement good practice guide No 11 issue 2*, National Physical Laboratory (NPL).
- 8: Petersen, L., Minkinen, P. and Esbensen, K. H. 2005 «Representative sampling for reliable data analysis: Theory of Sampling» *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems 77 (2005) 261-277*, Elsevier.
- 9: Shapiro, S. S. and Wilk, M. B. 1965 «An Analysis of Variance Test for Normality (Complete Samples).» *Biometrika 52:591-611*.
- 10: Wolf, S. F. 1999 Analytical Methods for Determination of Uranium in Geological and Environmental Materials. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry v. 38, pp. 623-651*.
- 11: S. M. Shackley, «Portable X-ray Fluorescence Spectrometry (pXRF): the Good, the bad, and the Ugly,» *Archaeol. Southwest Magazine, 26 [2] (2012)*. Hentet fra [www.archaeologysouthwest.org](http://www.archaeologysouthwest.org) 22 mai 2014.
- 12: *Tutorial 4.4 – Alpha Spectrometry 1: Principals.(PDF-versjon)* United States Environmental Protection Agency. Hentet fra [www.epa.gov](http://www.epa.gov) 14 juli 2014.
- 13: «Practical Notes on Alpha Spectrometry» Dr. Westmeier GmbH (Company, Germany). Hentet fra [www.mab-muenchen.de](http://www.mab-muenchen.de) 17 juli 2014.
- 14: «Analytical Techniques in Uranium Exploration and Ore Processing» *Technical Reports Series No. 341*, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1992.
- 15: PerkinElmer Inc. «The 30-Minute Guide to ICP-MS, Technical Note.» Hentet fra [www.perkinelmer.com](http://www.perkinelmer.com) 23 juni 2014.
- 16: Watson, R. J, et al. 2013«Radontrygge byggeråstoffer. Vurdering av kartleggingsmetoder og fastsettelse av grenseverdier for pukkbergarter.» NGU Rapport nr: 2013.031.
- 17: Kalnicky, D. J. and Singhvi, R. 2001 «Field portable XRF analysis of environmental samples» *Journal of Hazardous Materials 83 (2001) pp 93-122*.

---

## Appendiks 1 Ordliste

**Akkreditering:** Et uavhengig organ har gjennomgått prosedyrer og resultater fra laboratoriet og funnet at det er tilfredsstillende utført i henhold til internasjonale standarder.

**Blandprøve:** En primærprøve satt sammen av flere mindre primærprøver.

**Fundamental feil:** Forskjellen mellom sammensetning av prøven og målvolumet.

**Konfidensnivå:** Hvor mye tillit man har til at den «egentlige» verdien ligger innenfor usikkerhetsintervallet oppgitt med måleresultatet.

**Kjerneprøve:** Bruker spesielt utstyr fra å ta en prøve som går dypt ned og beholder form og dybdeprofil når prøven tas opp.

**LINAC:** Lineærakselerator, instrument for å akselerere elektroner opp til flere MeV.

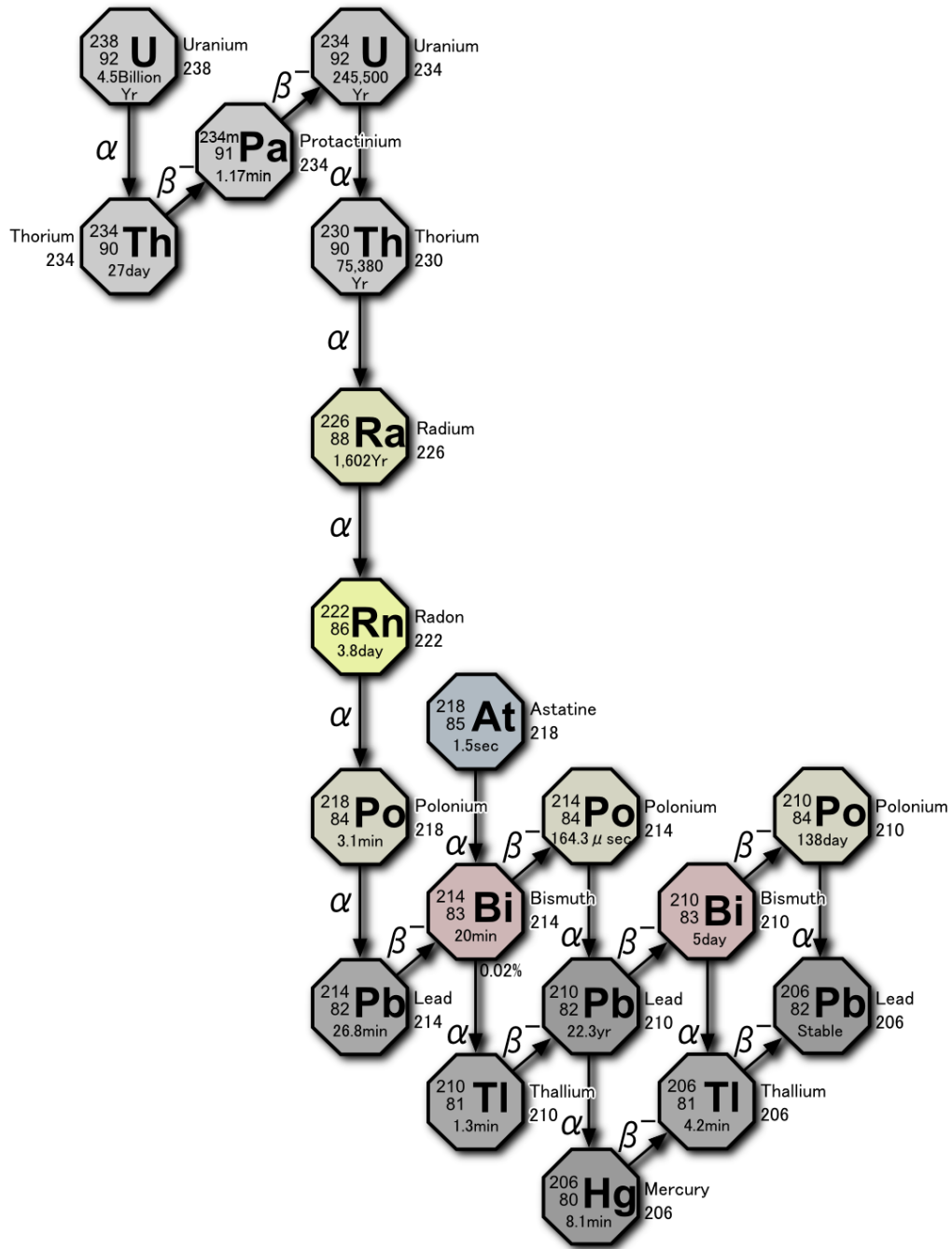
**Målvolum:** Det avgrensede volumet som det skal gjøres en egen karakterisering av.

**Primærprøve:** Prøven som blir tatt på stedet, før den eventuelt behandles eller reduseres.

**SLP:** Sammenlignende laboratorieprøver, laboratoriet mottar en fabrikkert prøve med ukjent aktivitet og gjennomfører normale måleprosedyrer. Resultatet sendes inn til vurdering sammen med resultatene fra andre laboratorier og resultatene sammenlignes med hverandre og den nominelle aktiviteten i prøven.

**Standard normalfordeling:** En fordeling hvor de fleste resultat havner nær middelveidien, og sannsynligheten for å trekke et annet resultat faller jevnt og likt på hver «side» av middelveidien.

Appendiks 2 Uranserien.



Appendiks 3: Tabell over antall prøver per areal, forurenset grunn.

Tabell 3 Minimum antall overflateprøver på lokaliteter med en diffus eller homogen forurensning og ulik størrelse på lokaliteten. Arealbruken er definert i figurene 1-3.

Størrelse (m <sup>2</sup> )							Økning i antall prøver per 1000 m <sup>2</sup> ved 5000-10 000 m <sup>2</sup>	Økning i antall prøver per 1000 m <sup>2</sup> ved > 10 000 m <sup>2</sup>
	<500	1000	2000	3000	4000	5000		
<b>Planlagt arealbruk</b>								
<b>Boligområder</b>	4	8	10	12	14	16	2	1
<b>Sentrumsområder, kontor og forretning</b>	4	8	8	10	12	14	2	1
<b>Industri og trafikkarealer</b>	4	8	8	8	10	12	2	1

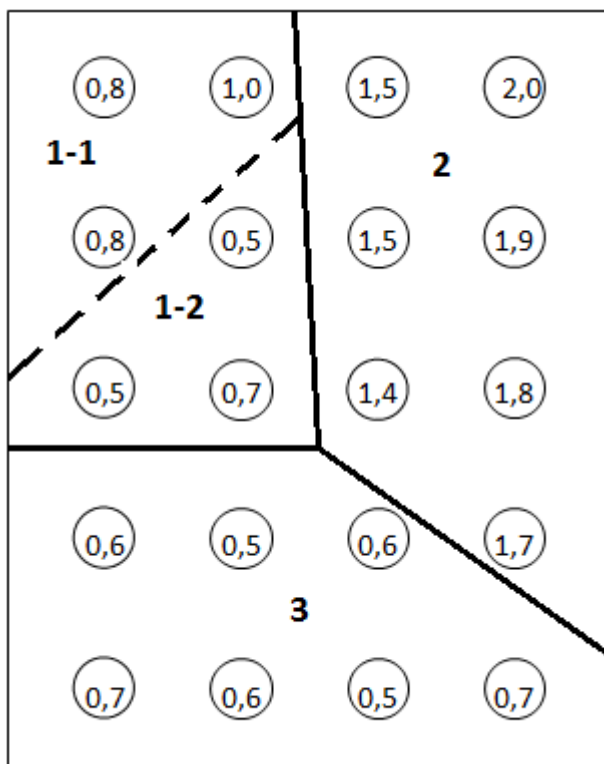
Tabellen er hentet fra en veileder om «Helsebaserte tilstandsklasser for forurenset grunn» laget av det som da het Statens forurensningstilsyn (Miljødirektoratet i dag).

#### Appendiks 4: Eksempel på bruk av prøvetaknings- og statistiske teknikker.

Et område på 160x200x2m skal graves ut fra bakken. Det er påvist alunskifer i grunnen, og derfor mistanke radioaktivitetskonsentrasjoner over grenseverdiene.

#### Pilotstudie

Selv om det ikke stilles krav til dette ble det gjennomført en pilotstudie med bruk av et instrument som måler gammastråling (fra Bi-214 og Pb-214), og resultatene av målingene er vist i figuren under. Målepunktene ble valgt systematisk med 40m mellomrom.



Måleresultater i Bq/g og inndeling av området.

#### Inndeling i målvolumer

Basert på målingene i pilotstudien så ble området delt inn i tre omtrent like store målvolumer. Målvolum 1 ble videre delt inn i to ulike strata, på grunn av aktivitetsfordelingen. Alle målingene foretatt på målvolum 2 viste seg å være høyere enn grenseverdien, så massen herfra blir sendt rett til deponiet uten bekostninger for videre prøvetakninger og analyser. Målvolum 3 viser mindre intern variasjon, og lavere aktivitet generelt, men på grunn av usikker dybdefordeling og at uran ikke blir målt direkte, så må allikevel prøvetakning og analyse gjøres for å bevise at aktiviteten i målvolumet er under grenseverdien på 1Bq/g.

#### Beregning av antall prøver til analyse

Totalarealet er på  $160 \times 200 = 32\,000\text{m}^2$ .

Hvert målvolum har da et areal på  $32\,000\text{m}^2 / 3 = 10\,667\text{m}^2$ . I følge retningslinjene skal det da tas minst 11 prøver per målvolum. For å undersøke om minimumskravet på 11 prøver er nok til å klassifisere materialet som under

grenseverdien så brukes formelen for beregning av øvre konfidensgrense (UCL) til å se om denne er under grenseverdien.

#### Målvolum 1:

Det velges å ta 6 prøver fra hvert stratum, slik at det blir 12 (n) prøver totalt. Gjennomsnittsverdien ( $\bar{x}$ ) er beregnet til ca. 0,72 Bq/g. Variansen ( $s^2$ ) i hvert stratum er ca. 0,01334 Bq/g (rundet opp). Ettersom denne blir beregnet med et instrument som måler på et volum som er mye større enn volumene som blir målt på i analysen, er det rimelig å anta at variansen vil være høyere for resultatene av analysen. Det ganges derfor med en faktor 2 for å være sikrere på at variansen ikke blir underestimert. Usikkerheten i analysen er antatt 5 % av middelveidien ved ett standardavvik; 0,036 Bq/g. Usikkerheten i prøvetakningen er antatt til maksverdi (10 % av middelveidien); 0,072 Bq/g. Dekningsfaktoren ( $t_{1-\alpha}$ ) er bestemt av antall frihetsgrader i systemet; antall prøver – antall strata = 12-2= 10, og konfidensnivået som skal være 90 %. Verdier for ( $t_{1-\alpha}$ ) finnes i tabellverk; Student's t-distribution (one-sided).

$$UCL = \bar{x} + t_{1-\alpha} \sqrt{\frac{s^2}{n} + u_{analyse}^2 + u_{prøve}^2}$$

$$UCL = 0,72 + 1,372 \sqrt{\frac{0,01334 * 2}{12} + 0,036^2 + 0,072^2}$$

$$UCL \cong 0,85$$

Ettersom UCL er beregnet til under grenseverdien ser det ut til at det vil holde med 12 prøver for å klassifisere målvolumet som under grenseverdien med et 90 % konfidensnivå.

#### Målvolum 2.

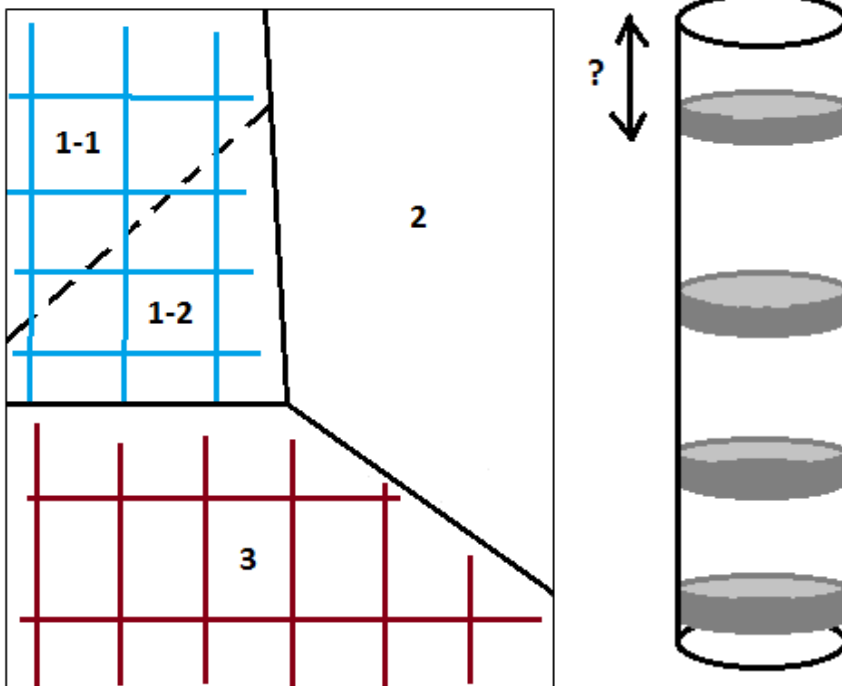
Aktiviteten ser ut til å være over grenseverdi, og massen blir sendt direkte til deponiet uten videre prøvetakning.

#### Målvolum 3.

Ettersom det virker å holde med 12 prøver i målvolum 1, og målvolum 2 har lavere middelerverdi antas det at det vil holde med minimumskravet på 11 prøver for å klassifisere målvolumet som under grenseverdien.

#### **Prøvetakning.**

Et nytt prøvetakningsmønster blir laget for å passe til antallet prøver som nå skal tas. I hvert knutepunkt tas det opp en 2m lang kjerneprøve. Fra denne kjerneprøven velges 4 sjikt på omtrent 250g hver (den første dybden velges tilfeldig), og de samles til en blandprøve på ca. 1kg som sendes til laboratoriet for analyse. Det kunne alternativt blitt valgt ut ett større tilfeldig sjikt, men bedriften ville være sikre på god dekning i dybden.



### Analyse og resultater fra laboratoriet.

Prøvene ble sendt til et laboratorium med mulighet for flere ulike analyse metoder. En prøve fra hvert stratum (3 stk.) blir valgt til å måles på gammaspektrometri for å kontrollere om det er likevekt mellom U-238 og Ra-226. De resterende 20 prøvene blir analysert med nøytronaktiveringsanalyse som gir raskere og rimeligere svar for U-238. Alle primærprøvene blir blandet godt før 40g tas ut fra hver av dem til analyse. Resultatene fra laboratoriet er gitt i tabellen under. Usikkerhetene er oppgitt med 95 % konfidens, (dekningsfaktor 2, normalfordelt).

Prøve nr:	Målvolum 1-1				Målvolum 1-2				Målvolum 3			
	U-238	unc.	Ra-226	unc.	U-238	unc.	Ra-226	unc.	U-238	unc.	Ra-226	unc.
1	0,951	9 %			0,521	10 %			0,782	9 %		
2	0,832	13 %	0,857	18 %	0,671	10 %			0,532	10 %		
3	0,792	9 %			0,802	9 %			0,696	10 %		
4	1,202	8 %			0,432	11 %			0,571	15 %	0,611	20 %
5	0,851	9 %			0,455	11 %			0,529	10 %		
6	0,992	9 %			0,793	14 %	0,740	20 %	0,888	9 %		
7									0,505	10 %		
8									0,729	10 %		
9									0,651	10 %		
10									0,682	10 %		
11									0,957	9 %		
st.avvik prøve	0,15				0,166				0,149			
Gjennomsnitt	0,937				0,612				0,684			

### Vurdering av resultatene opp mot grenseverdien.

Det første som blir gjort er å undersøke om resultatene er normalfordelt. Dette ble gjort for alle resultatene med en Shapiro-Wilk test.<sup>9</sup> Utregningen for resultatene fra målvolum 3 er vist nedenfor, det kreves dog flere tabeller for koeffisienter som benyttes.

Shapiro-Wilk test				
	Sortert	$x(n-i+1)-x(i)$	$a(n-i+1)$	$a*diff$
x1	0,505	0,452	0,560	0,253
x2	0,529	0,359	0,332	0,119
x3	0,532	0,250	0,226	0,056
x4	0,571	0,158	0,143	0,023
x5	0,651	0,045	0,070	0,003
x6	0,682	0 b=		0,454

x7	0,696				Steg 1: Sorter måledata
x8	0,729	k=5	W=	0,934	Steg 2: Regn ut differansen mellom høyeste og laveste verdi, og forsett med nest høyest – nest lavest...
x9	0,782		wc (a=0,05)=	0,850	
x10	0,888		Normal?	OK!	Steg 3: Bruk en tabell for å finne koeffisientene for a(n-i+1).
x11	0,957				Steg 4: regn ut for b:
st.avvik	0,149				b= sum (a(n-i+1)*[x(n-i+1)-x(i)])

Steg 5: Finn standardavviket av prøvene og regn ut Shapiro-Wilk test statistikk med følgende formel:

$$W = \left[ \frac{b}{s\sqrt{n-1}} \right]^2$$

Steg 6: Sammenlign denne verdien med den kritiske verdien  $w_c$  gitt i tabell. Hvis  $W > w_c$  så kan man anta at normalfordeling er en passende modell for den underliggende populasjonen. Det vil si at spredningen i aktivitetskonsentrasjon er ca. normalfordelt, og de videre statistiske beregninger som krever dette kan benyttes.

Når det er etablert at resultatene antagelig er normalfordelt, kan man igjen dra frem denne formelen for å klassifisere målvolumet:

$$UCL = \bar{x} + t_{1-\alpha} \sqrt{\frac{s^2}{n} + u_{analyse}^2 + u_{prøve}^2}$$

#### Målvolum 1:

Ettersom dette volumet var delt inn i flere strata, så må først gjennomsnittet og standardavviket til gjennomsnittet regnes ut med de følgende formlene:

$$\bar{x} = \sum_{i=1}^M W_i \bar{x}_i \quad \text{og} \quad s_{\bar{x}}^2 = \sum_{i=1}^M W_i^2 \frac{s_i^2}{n_i}$$

**M** står for antall strata.

**W<sub>i</sub>** står for vektningen for hvert stratum, normalt blir denne **1/M**.

**s<sub>i</sub> og n<sub>i</sub>** står for standardavvik av prøvene og antall prøver for hvert stratum.

$$\begin{aligned} \bar{x} &= 0,5(0,937 + 0,612) = 0,775 \\ s_{\bar{x}}^2 &= 0,5^2 \left( \frac{0,15^2}{6} + \frac{0,166^2}{6} \right) = 0,0020857 \end{aligned}$$

( $t_{1-\alpha}$ ) ble bestemt da det ble undersøkt om 12 prøver var nok og var på 1,372.

**u<sub>analyse</sub>** usikkerheten for en gjennomsnittsprøve er 10 % med dekningsfaktor 2, så da blir dette 5 % ved ett standardavvik og videre lik  $0,7745 * 0,05 = 0,038725$ .

**u<sub>prøve</sub>** usikkerheten varierer mellom 5-10 % av gjennomsnittsverdien og blir beregnet slik:



$$u_{prøve}(\%) = 10\% - \frac{m_{analysert} * 10^8}{m_{volum}} \% = 10\% - \frac{12 * 0,04 * 10^8}{\frac{160 * 200 * 2}{3} * 1500} \% = 8,5\%$$

$u_{prøve}$  blir da  $0,7745 * 0,085 = 0,0658325$ . (det er antatt 1500kg masse per m<sup>3</sup>)

Når alle komponentene er funnet så beregnes øvre konfidensgrense: (OBS! Merk at  $\frac{s^2}{n} = S_x^2$  og regnes ut før det legges inn i formelen når det gjelder stratifiserte målvolum).

$$UCL = 0,7745 + 1,372\sqrt{0,0020857 + 0,038725^2 + 0,0658325^2}$$

$UCL \cong 0,90$  Bq/g ved 90 % konfidensnivå, ensidig Student's t-fordeling.

### Konklusjon

Øvre konfidensgrense for målvolum 1 er under grenseverdien, så dermed kan volumet klassifiseres som under grenseverdien. Gjennomsnittet og variansen i målvolum 3 er lavere enn i målvolum 1, og med tilsvarende utregninger kan det da enkelt vises at også dette målvolumet kan klassifiseres som under grenseverdien. Målingene med gammaspktrometri viser at det er likevekt fra U-238 og ned til Ra-226.

## VEDLEGG

# Feltrapport fra Slemmestad: målinger på alunskifer.



**Bakgrunn:**

På våren 2014 ble et prosjekt innledet for å styrke kunnskapen om målinger av uran i alunskifer, for å støtte opp under beslutninger fattet av forvaltningen.

Dette feltarbeidet ble utført for å få erfaring med bruk av instrumenter egnet til dette, spesielt med tanke på en teknikk som vi fra før hadde lite kjennskap til; X-ray fluorescence (XRF).

**Planlegging:**

Planleggingen av feltarbeidet startet tidlig, og etter sommeren ble de siste detaljene avklart. Det ble gjort avtale om lån og opplæring i bruk av et XRF instrument av Arne K. Bjerklund ved Holger Hartmann AS. Det ble også opprettet kontakt med geologisenteret i Slemmestad, og der fikk vi god hjelp av Inger-Marie M. Gabrielsen til å finne egnede områder for målinger og prøvetagning.

**Personell:**

- Trine Kolstad (statens strålevern)
- Torbjörn Gäfvert (statens strålevern)
- Thomas Bandur Aleksandersen (prosjektleder, statens strålevern)

**Måleinstrumenter:**

XRF: Thermo Scientific Niton XL3t GOLDD+



Gamma: Gamma Surveyor.

**Prøvetagningsutstyr:**

Hammer og meisel for å slå løs prøvemateriale.

Plastbokser med lokk for oppbevaring av prøvene.

**Fremgangsmåte:**

Da vi kom frem til veggen ble lokasjoner valgt, hvor det var mulig å finne mer eller mindre glatte overflater, da dette gir bedre målinger for XRF instrumentet. For hver lokasjon ble det foretatt en måling



med Gamma Surveyor og 5 målinger med XRF i et kryss. Når måling med begge instrumenter for en lokasjon var fullført så ble det tatt en prøve fra senter av området som ble målt.

### **Beskrivelse av valgte lokasjoner / prøvemateriale:**

Område 1: Relativt svart vegg av alunskifer.

Lokasjon 1. Svart område, relativt plant på punkt 1-1 og 1-5. Andre stedene var og svarte, men ikke like lett å få XRF'en helt inntil. Omtrent i midten av vegg

Lokasjon 2. Langt til venstre inne i buskene. Svart, et lite overheng.

Lokasjon 3. En stein fra bakken nedenfor vegg. Målte flere steder på steinen, siste måling 3-4 var på en bit inne i steinen etter at en bit var knekt av.

Lokasjon X4. Større stein som skilte seg ut fra de andre, oransje og svart. Ruglete overflate. Måling 4-4 var på en meget rusten og ruglete side av steinen. Signifikant høyere måleresultater av uran med XRF enn andre stedet.

Lokasjon G4 en pose fylt med småstein fra bakken nedenfor vegg.

Lokasjon 5. Et område med mye kalk antagelig, på høyre side i området. Bare målingen i midten ble gjort på sort stein, andre var hvite, og så en rustavrenning. Her var det og et overheng som kan påvirke gammaresultatene. Det ble tatt en måling til senere av midten igjen, etter at en bit var slått av, så målingen var på stein som ikke var like lenge eksponert for vær og vind.

Lokasjon 6. Enda et sted på vegg, nær bakken. Mye sort med noe gulgrøn masse på seg. Det virket som på denne at glattere overflate ga høyere resultat (måling 6-1 og 6-5 var relativt glatte).

Område 2: Her dro vi til et nytt sted med større og mer grå steiner ned fra en skrent. Dette var kanskje ikke alunskifer, men det var hensiktsmessig å teste utstyret på materiale med noe lavere aktivitet.

Lokasjon 7. Liten stein som Torbjörn målte på bakken med Gamma Surveyor.

Lokasjon 8. Stein funnet på samme område, med laveste aktivitet for uran vi fant.



*Til venstre: Område 1, alunskifervegg, til høyre: område 2, steinur.*

### Enkel preparering av prøver.

Etter feltarbeidet ble fullført så gjorde vi en enkel preparasjon av prøver som kan måles på XRF i en bestemt geometri, dette skal gi noe bedre resultater enn «rett på» målinger som vi gjorde i felten. Det ble valgt en enkel og grov preparasjonsmetode som kunne vært enkelt utført i felt ettersom vi er interessert i å undersøke XRF som en feltmetode. Det finnes for øvrig utstyr til å gjøre bedre prøvepreparering av slike prøver også til feltbruk.

Metoden var ganske enkel; pakke alunskiferen inn i en klut og gyve løs med en hammer.

Etterpå ble den knuste massen siktet slik at kun finkornet materiale havnet i prøven.

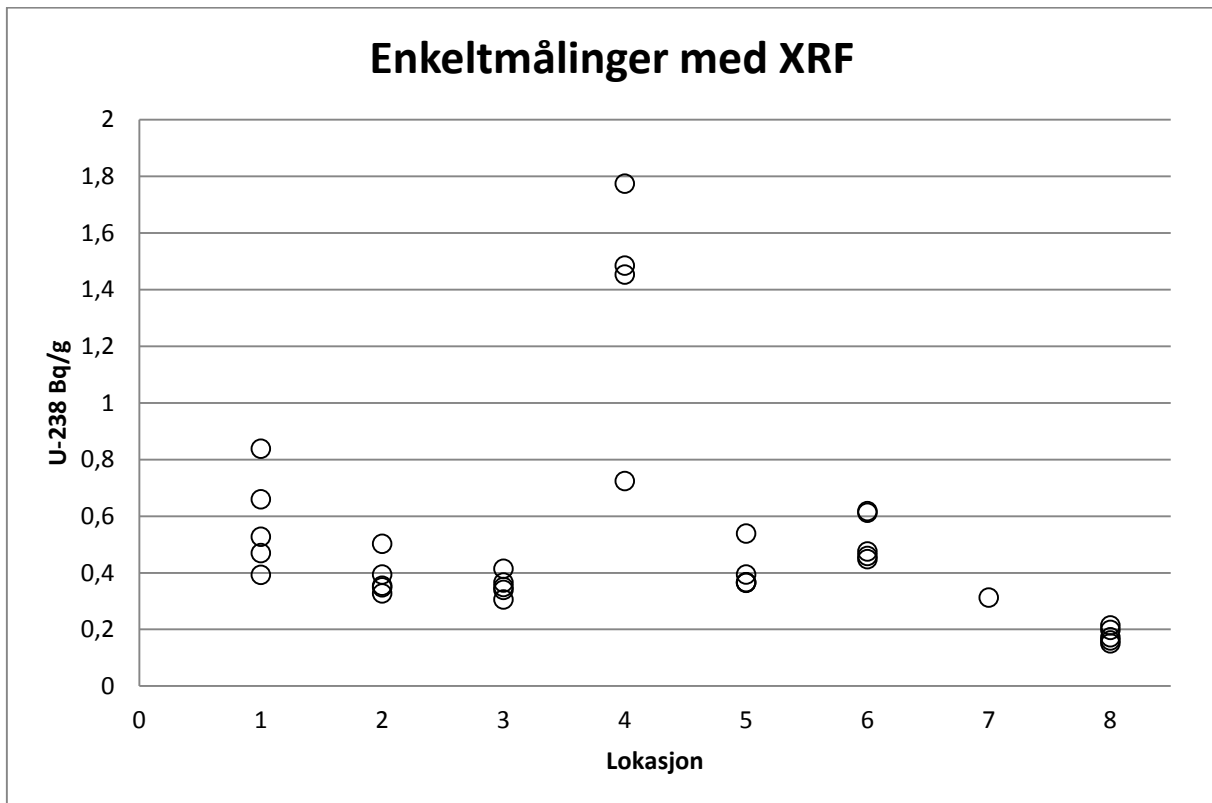
Så ble de minste bitene av det øvrige materialet samlet i våre W1-bokser for måling med gammaspektroskopi for å bestemme U-238 fra Pa-234m. Det ble senere gjort noe grundigere preparering av prøver som ble forseglet for måling av Ra-226 via datterprodukter.



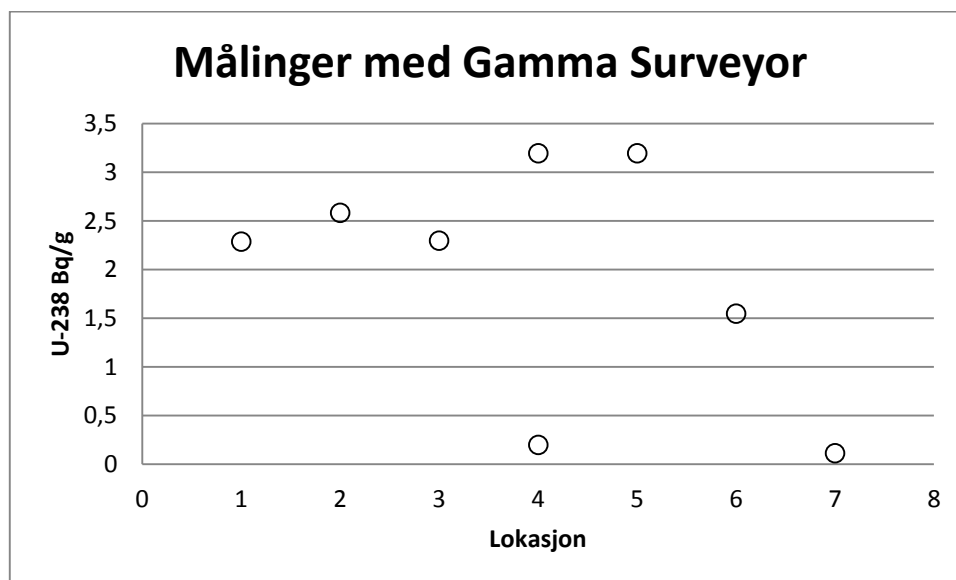
*Til venstre; prøver klare til å måles med XRF, til høyre; prøver i W1 til gammaspektroskopi.*

### Resultater:

De resultater vi fikk da vi var ute i felten (omregnet fra PPM til Bq/g).



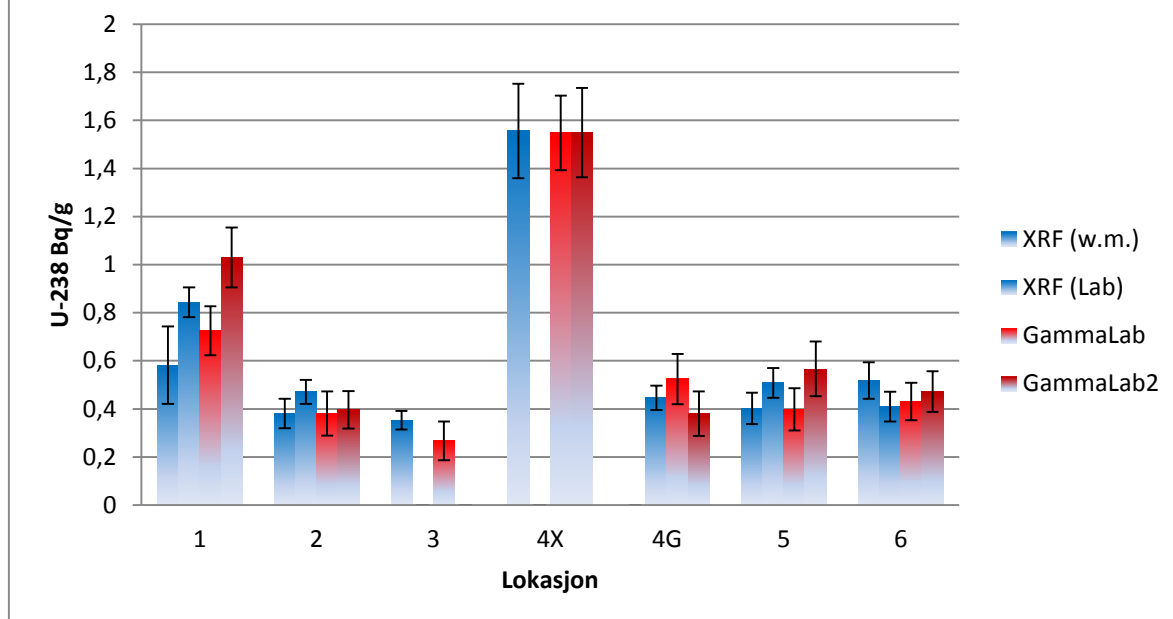
Figuren viser at det er rimelig jevnt nivå mellom hver måling og hvert område på veggen, men på lokasjon 1 så er det noe mer spredning. Lokasjon 4,7,8 var målt på andre type stein.



Her er det heller ikke store forskjeller mellom resultatene. For lokasjon 4, så ble posen i det ene tilfellet plassert ved siden av veggen, og i det andre tilfellet plassert over veien. Det ga klart høyere resultat å måle i nærheten av alunskiferveggen enn i «nøytralt» område.

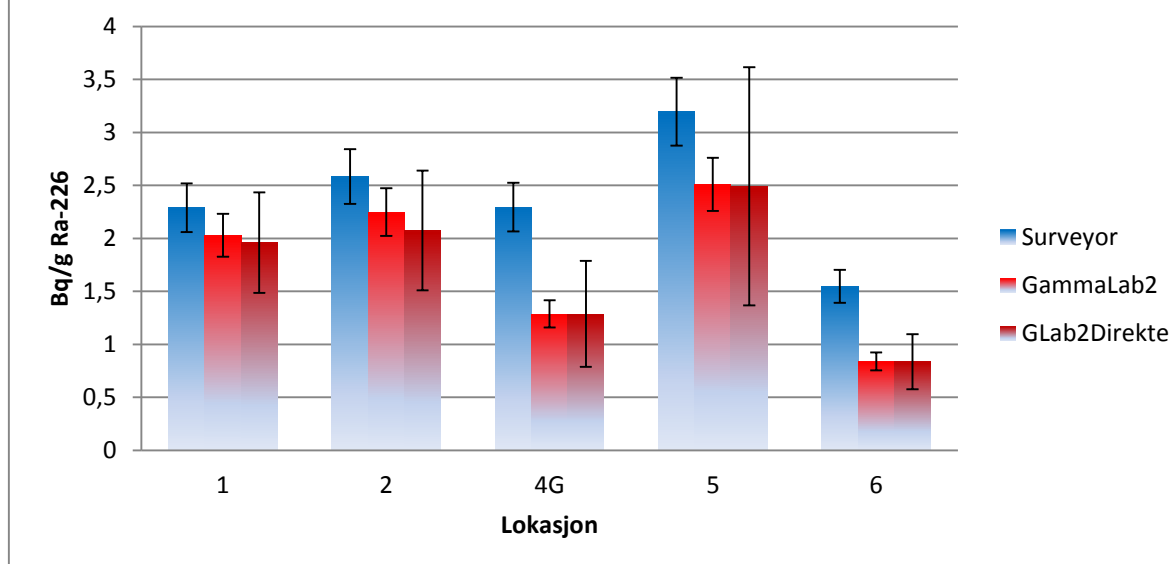
Det er lett å se at det ikke er samsvar mellom måleresultatene fra de ulike metodene her. Gamma Surveyor måler signifikant høyere verdier enn XRF'en, med unntak ved Lokasjon 7, som var måling på gråstein. Lokasjon 4 er for øvrig ikke lik for de ulike instrumentene.

## Sammenligning XRF og Gammalab



XRF (w.m.) er vektet snitt av feltmålingene gjort på hver lokasjon. XRF (Lab) er måling på en prøve preppet på lab til måling for XRF. Resultatene fra GammaLab er målinger på våre HPGe detektorer, hvor det er sett på toppene til Pa-234m for å bestemme innhold av U-238. Feilmarginene oppgitt er ved 2 standardavvik. I alle tilfeller ser det ut til at det er godt nok samsvar mellom målingene utført med XRF og med Gamma. Det er verdt å merke seg at dette er målinger på tre ulike mindre prøver tatt fra en stor prøve. Det er ikke å forvente at alle resultatene er like om det er stor lokal heterogenitet (f.eks. lokasjon 1).

## Sammenligning Gamma Surveyor og Gammalab



Målinger i felt med Gamma Surveyor, GammaLab2 er måling på Pb-214 og Bi-214 etter tre uker. GLab2Direkte så er aktiviteten bestemt direkte fra Ra-226 toppen. Den sistnevnte metoden virker å være mye mer treffsikker enn usikkerhetene tilsier.

**Diskusjon:**

Resultatene viser at både XRF'en og Gamma Surveyor har målt rett, selv om verdiene ble forskjellige. Det kommer av at Gamma Surveyor måler på Pb-214 og Bi-214, og det er ikke likevekt i kjeden fra U-238 og så langt ned. Det postuleres at for det ytterste laget som er utsatt for vær og vind, så har U-238 blitt delvis vasket ut av alunskiferen. Ra-226 blir igjen og fortsetter å produsere datterproduktene Pb-214 og Bi-214 omtrent like hyppig som før uranet forsvant. Dette var en interessant observasjon, vi er fornøyd med å finne ut at begge instrumentene fungerer som de skal, men det blir viktig å tenke på forutsetningene når man måler. Det er kanskje mulig å ha motsatt situasjon «lenger nede» dit alt U-238 har blitt vasket til. Der kan det være oppkonsentrering av U-238, men mindre av Ra-226 og derav Bi-214 og Pb-214. Det kan virke som om metodene kompletterer hverandre, og man må være ekstremt forsiktig med å ta slutninger om aktivitet i prøver som ikke ligger dypt og trygt i fjellet. De forskjeller man ser i sammenligningene er ikke større enn man kan forvente, og beror nok på at det ikke er målt på nøyaktig samme materiale/geometri. Det ser ut til at Gamma Surveyor har en tendens til å overestimere aktiviteten, men det kan komme av at det ikke blir målt på en «uendelig stor flate» som i kalibreringen. Bidrag fra bakken eller overheng vil gi ekstra tellinger til instrumentet, eventuelt kan det være at det er høyere aktivitet dypere inn i veggen (for eksempel hvis også noe Ra-226 har lekket ut). Ved å sammenligne resultatene fra målingene så ser det ut til at mellom 40 og 80 % av Uranet var vasket ut. Noe av Ra-226 kan også ha blitt vasket ut, men det er umulig å kvantifisere ut i fra de målingene vi tok.

#### **Konklusjoner:**

- Begge instrumentene fungerte tilfredsstillende i denne testen.
- Gamma Surveyor fungerer bare til «*in situ*» målinger, ikke til å måle på prøver.
- Med XRF vil det lønne seg å måle på flere punkter på grunn av instrumentet kun «ser» et veldig lite volum (0,2 cm<sup>3</sup>). Lokale heterogeniteter vil bli midlet ut ved flere målepunkter.
- Prøvemateriale som har blitt eksponert for vær og vind vil ikke nødvendigvis ha likevekt i hele urankjeden grunnet utvasking eller oppkonsentrering. Dette må derfor undersøkes før man kan klassifisere materialet.





Statens strålevern  
Norwegian Radiation Protection Authority