



RAPPORT

INTERCOMPARAISON 2003 DE SPECTROMETRIE GAMMA POUR LA MESURE D'ECHANTILLONS DE L'ENVIRONNEMENT

Projet : GRM 2003 / 04
Auteurs : François Bochud
Thierry Buchillier
Jean-François Valley
Hansruedi Völkle
Version : 8 janvier 2004

Sommaire

1. Introduction	2
2. Chronologie de la campagne	2
3. Composition des sources de référence	2
4. Équipement et méthodes des laboratoires	3
4.1. Détecteurs	3
4.2. Logiciels	4
4.3. Géométries	4
4.4. Corrections de sommation et de densité	4
4.5. Étalonnages	5
4.6. Comparaison avec la campagne 2000	5
5. Résultats et analyse	5
5.1. Généralités	5
5.2. Grandeurs d'évaluation	6
5.3. Déviations normées	6
5.4. Limites de détection	7
6. Conclusion	8
7. Annexe I : Participants	9
8. Annexe I : Équipement et méthode	10
8.1. Équipement	10
8.2. Méthodes	12
9. Annexe : Résultats de mesure	13
10. Annexe : Limites de détection et activités de référence	16

1. Introduction

L'Institut universitaire de radiophysique appliquée (IRA) est mandaté par l'Office fédéral de métrologie et d'accréditation (METAS) pour la détermination et la diffusion de l'unité d'activité. La Section de surveillance de la radioactivité (SUEr) de l'Office fédéral de la santé publique (OFSP) est responsable pour la surveillance de la radioactivité dans l'environnement.

Cette année, l'IRA-METAS et la SUEr ont proposé à l'ensemble des laboratoires effectuant des mesures d'activité dans l'environnement et les produits de consommation de participer à une intercomparaison de spectrométrie gamma. Sur les seize laboratoires suisses concernés par ce type de mesure, tous répondent positivement. Un échantillon de sol certifié par l'Agence internationale pour l'énergie atomique (AIEA) est alors envoyé à chaque participant.

Outre la vérification d'une mesure précise, les buts de cette intercomparaison sont d'évaluer la cohérence des limites de détection et des incertitudes de mesure indiquées par les divers laboratoires.

2. Chronologie de la campagne

La chronologie de la campagne est rappelée dans le Tableau 1.

Tableau 1 : Chronologie de la campagne.

Date	Évènement
11 avril 2003	Circulaire d'invitation, avec délai de réponse au 30 avril 2003.
27 juin 2003	Envoi des sources et des documents avec délai pour le retour des résultats au 31 août 2003
20 septembre 2003	Réception des derniers résultats
9 octobre 2003	Distribution du présent rapport aux participants
6 novembre 2003	Réunion de discussion relative à cette intercomparaison

3. Composition des sources de référence

Les échantillons de référence de cette intercomparaison ont été préparés par l'AIEA à Vienne (échantillon IAEA-375). Il s'agit d'un sol (20 cm supérieurs) prélevé sur les terres de la ferme collective "Staryi Viskov" à Novozybkov (République russe) en juillet 1990. Le matériau a été séché et moulu afin d'obtenir des particules de taille inférieure à 0.3 mm. L'échantillon a été caractérisé par un grand nombre de laboratoires du monde entier. Le Tableau 2 présente les caractéristiques qui nous intéressent dans le cadre de ce travail.

La date de référence de la présente intercomparaison a été fixée au 1^{er} juillet 2003. Une correction de décroissance sur activités de référence a été appliquée sur les radioéléments suivants : Am-241, Cs-134, Cs-137, Ru-106 et Sb-125.

Tableau 2: Caractéristiques des échantillons utilisés dans le cadre de cette intercomparaison (date de référence : 31.12.1991). La colonne N se rapporte au nombre de laboratoires acceptés par l'AIEA pour établir la valeur indiquée. La colonne R/I indique si la valeur est considérée comme étant une valeur recommandée (R) ou informative (I). La dernière colonne indique la valeur prise comme référence lors de la présente intercomparaison.

Radionucléide	Activité [Bq/kg]	Intervalle de confiance 95%	N	R/I	Activité au 01.07.2003 [Bq/kg]
Am-241	0.13	0.15 - 0.11	6	I	0.1276
Cs-134	463	472 - 454	87	R	9.756
Cs-137	5280	5360 - 5200	91	R	4048.7
K-40	424	432 - 417	84	R	424
Ra-226	20	22 - 18	37	R	20.0
Ru-106	56	58 - 53	26	R	0.023
Sb-125	77	79 - 74	38	R	4.28
Th-228	21	25 - 17	6	I	21.0
Th-232	20.5	21.9 - 19.2	11	I	20.5
U-234	25	32 - 17	5	I	25.0
U-238	24.4	29.8 - 19.0	7	I	24.4

4. Équipement et méthodes des laboratoires

Le questionnaire comportait des questions relatives aux équipements et aux méthodes. Les réponses sont présentées en annexe (voir section 9).

4.1. Détecteurs

À l'exception d'un laboratoire qui a mesuré l'échantillon avec deux instruments, tous les laboratoires ont utilisé un seul spectromètre. Ces 16 détecteurs se répartissent selon le Tableau 3. L'efficacité nominale est indiquée pour 11 instruments. La Figure 1 présente graphiquement la distribution. La sensibilité moyenne est d'environ 28%.

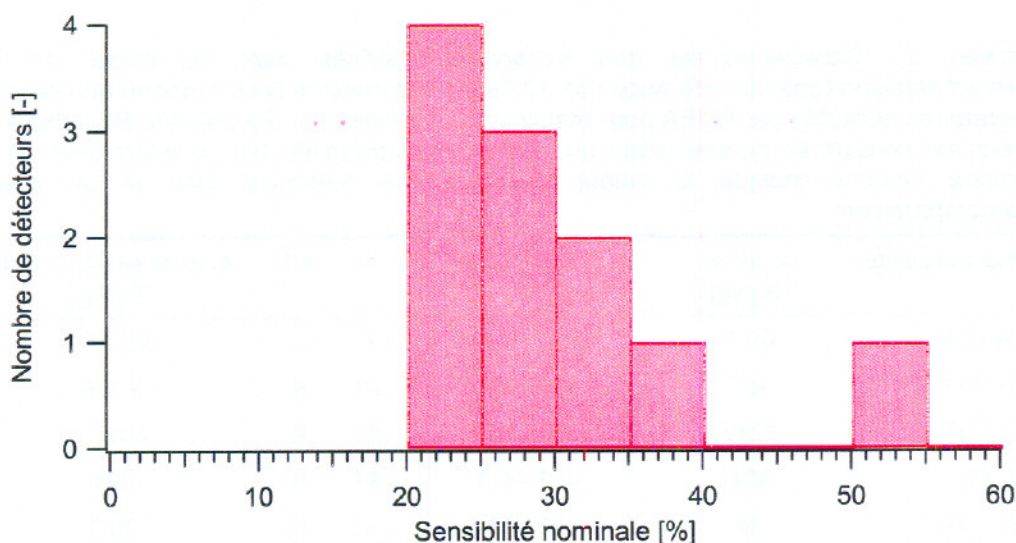


Figure 1 : Distribution des sensibilités nominales des détecteurs (relative à celle d'un détecteur NaI 3"x3" pour les photons de 1.33 MeV d'une source de Co-60 placée à 25 cm du détecteur).

Les détecteurs ont été mis en service entre 1985 et 2000. Les fabricants des détecteurs se répartissent entre PGT-Canberra (7), Eurisys-Enertec (6), Ortec (1), non-indiqué (2). Le Tableau 3 présente les types de détecteurs. On notera la présence d'un détecteur à scintillation de type iodure de sodium.

Tableau 3 : Types de détecteurs ayant participé à l'intercomparaison.

	Principe de détection			
	HPGe type p	HPGe type n	HPGe type non indiqué	NaI
À puits	3	-	1	-
Pas à puits	7	3	1	1

4.2. Logiciels

Onze laboratoires utilisent les produits d'Intertechnique : Intergamma (2) et Interwinner (9). Trois laboratoires utilisent le produit de Canberra (Genie 2000 ou Genie VMS) et un celui d'Ortec (GammaVision).

4.3. Géométries

Sous le titre "Géométrie utilisée", on entend la géométrie dans laquelle le résultat rapporté a été obtenu. Étant donné la quantité relativement faible d'échantillon à disposition, chaque laboratoire a été amené à confectionner une géométrie particulière. Le volume moyen est d'environ 150 ml et varie entre environ 4 ml et 1000 ml.

4.4. Corrections de sommation et de densité

Des corrections de sommation sont appliquées par trois laboratoires. Il faut noter que pour les sources mesurées dans un puits, les sommations sont très importantes, et l'on doit en principe utiliser un étalonnage spécifique pour chacun des nucléides.

D'après les informations reçues, seuls cinq laboratoires ont effectué une correction d'autoabsorption prenant en compte la densité de l'échantillon. Les autres laboratoires n'ont pas indiqué explicitement s'ils appliquaient ou non une telle correction.

4.5. Étalonnages

L'origine des étalonnages est diverse : 4 laboratoires utilisent des solutions préparées par IRAMETAS, 3 par AEA-Amersham, 3 par l'AIEA, 2 par le PTB et 5 par d'autres institutions.

4.6. Comparaison avec la campagne 2000

Des 18 laboratoires qui avaient pris part à l'intercomparaison de 2000, 14 ont participé cette année. Le nouveau laboratoire est celui de l'Université de Neuchâtel.

Onze laboratoires ont utilisé le même détecteur lors des deux campagnes. La distribution des marques ne s'est guère modifiée.

Concernant les logiciels, le produit d'Intertechnique est toujours en tête. Des 14 laboratoires qui ont participé aux deux campagnes aucun n'a changé de marque et 5 ont effectué une mise à jour de version.

5. Résultats et analyse

5.1. Généralités

Bien que certains laboratoires aient réalisé plusieurs mesures, ils n'ont chacun fourni qu'une seule valeur et incertitude. Les durées de mesures sont indiquées en annexe (voir section 9) et synthétisées dans la Figure 2. Les fluctuations observées sont importantes et certaines durées dépassent ce qu'on peut raisonnablement attendre d'une mesure de routine. Néanmoins, aucune restriction n'avait été formulée dans les directives de la présente intercomparaison.

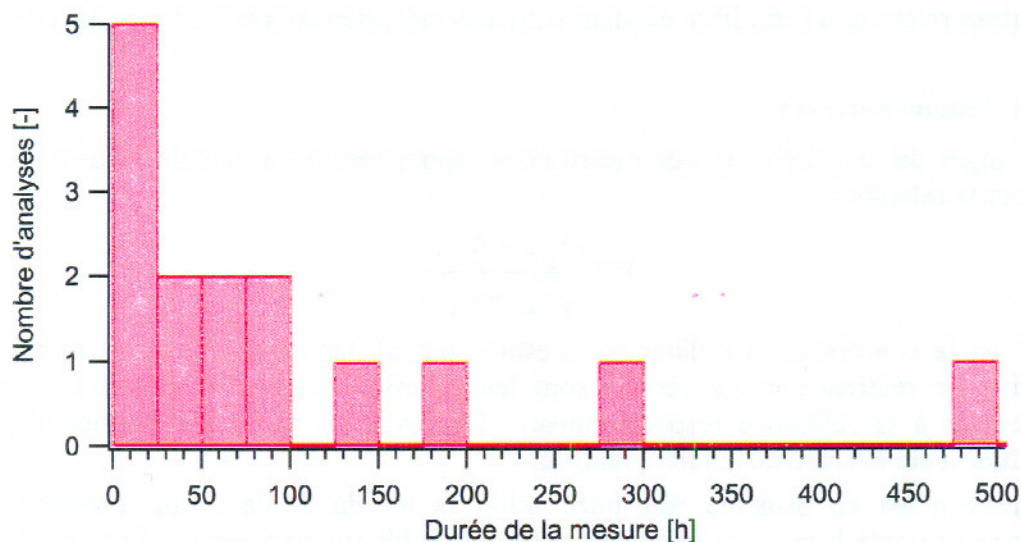


Figure 2 : Distribution des durées de mesure.

5.2. Grandeurs d'évaluation

Pour chaque radionucléide, on a présenté graphiquement l'ensemble des résultats (et leur incertitude au niveau de confiance de 95%) en annexe à la section 10. Les valeurs sont présentées par ordre croissant de l'activité. On notera les points suivants :

- L'Am-241, en raison de sa faible activité, n'a été évalué par aucun laboratoire.
- Le Cs-134 est relativement bien évalué, mais a tendance à être surestimé.
- La fluctuation de la mesure du Cs-137 est relativement grande lorsqu'on la compare aux incertitudes affichées par les différents laboratoires. La valeur moyenne est néanmoins clairement en accord avec la référence.
- Le K-40 tend à être légèrement sous-estimé, mais l'écart à la référence est faible.
- Les laboratoires à même de mesurer le Ra-226 le font correctement hormis deux laboratoires qui paraissent nettement en dessus de la valeur de référence.
- Le Sb-125 n'a été mesuré que par deux laboratoires. Les valeurs sont compatibles avec la référence.
- La mesure du Th-228 est clairement en accord avec la valeur de référence. On notera néanmoins que les incertitudes indiquées par les laboratoires sont souvent inférieures à celle de la référence.
- Le Th-232 est en moyenne correctement estimé.
- L'U-234 et l'U-238 sont correctement estimés.

On notera encore que seuls le Cs-134, le Cs-137 et le K-40 (à une exception près) ont été mesurés par tous les laboratoires. Hormis le Ra-226 et le Th-228, uniquement une minorité de laboratoires a été à même de mesurer les autres radioéléments.

On notera encore que certains laboratoires se sont abstenus de communiquer des résultats d'activités relatives aux radioéléments naturels qui ne pouvaient être mesurés directement par spectrométrie gamma. Les laboratoires ayant fourni de tels résultats l'ont fait sur la base d'hypothèses relatives à l'équilibre existant entre ces radioéléments et leurs produits de filiation.

5.3. Déviations normées

Afin de juger de la cohérence des incertitudes rapportées, on a calculé la déviation normée définie par la relation :

$$u = \frac{|A_{\text{mes}} - A_{\text{réf}}|}{\sqrt{s_{\text{mes}}^2 + s_{\text{réf}}^2}}, \quad (1)$$

où A_{mes} est la concentration radioactive mesurée par un laboratoire, $A_{\text{réf}}$ est la concentration radioactive de référence et s_{mes} et $s_{\text{réf}}$ sont les incertitudes-types associées à la mesure du laboratoire et à la référence respectivement. La déviation normée u permet d'apprécier si l'incertitude a été évaluée de manière réaliste.

La variable u est en principe distribuée selon la loi de Student (qui converge vers une distribution normale lorsque le nombre de degrés de liberté augmente). Les critères indiqués dans le Tableau 4 sont généralement admis.

Tableau 4 : Critère d'interprétation de la grandeur statistique u.

Valeur de u	Interprétation
$u < 1.64$	Les valeurs ne diffèrent pas de manière significative
$1.64 < u < 1.96$	Les valeurs ne diffèrent probablement pas de manière significative
$1.96 < u < 2.58$	On ne peut rien dire
$2.58 < u < 3.29$	Les valeurs diffèrent probablement de manière significative
$3.29 < u$	Les valeurs diffèrent de manière significative

Le Tableau 5 présente l'ensemble des déviations normées des mesures effectuées dans le cadre de cette intercomparaison. Les valeurs différant au moins probablement de manière significative ont été mises en évidence en italique (valeurs supérieures à 2.58) ou en caractères gras (valeurs supérieures à 3.29).

On observe qu'environ 19% des valeurs mesurées (15 mesures sur un total de 79) sont significativement différentes de la référence et qu'environ 9% (6 mesures sur un total de 79) sont probablement différentes de la référence. Le radioélément qui pose le plus de problèmes est le Cs-137 que cinq laboratoires ont mesuré de manière significativement différente de la référence.

Globalement, la situation est meilleure que lors de la campagne de l'année 2000 où l'on avait observé environ 38% de valeurs mesurées significativement différentes de la référence (39 mesures sur un total de 108). On notera encore que les laboratoires qui ont mesuré le plus de radioéléments différents ont tendance à avoir moins d'incohérences dans l'estimation de leurs incertitudes.

Tableau 5 : Déviations normées par laboratoire et par radionucléide.

	Laboratoires														
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
Cs-134	4.28	0.72	0.48	3.23	1.25		0.28	1.24	8.39	0.24	0.17	0.64	3.75	0.24	1.29
Cs-137	3.69	0.50	3.41	8.32	1.08	4.82	1.32	0.08	8.24	13.1	1.56	5.53	2.23	1.61	2.50
K-40	<i>3.18</i>	1.09	1.07	0.75	0.35	9.56	0.55	0.79	<i>3.06</i>	<i>3.14</i>	1.18	8.90	0.62	0.29	2.50
Ra-226		0.54	9.96	5.50				2.28			<i>2.71</i>	0.67		0.06	0.50
Ru-106															
Sb-125							1.86					0.67			
Th-228		0.76	0.89	0.80				2.00	1.75	0.71	0.06		2.30	0.40	0.22
Th-232		0.92						3.34		0.71	0.77		<i>2.77</i>	0.30	1.24
U-234		1.05						0.25		2.34	0.58				
U-238								0.13		2.47	0.80				1.27

5.4. Limites de détection

Les limites de détection estimées par les laboratoires sont présentées en annexe à la section 11 pour chaque radionucléide.

On observe une excellente cohérence entre ces limites et la valeur effective des sources mesurées : chaque fois qu'une activité est rapportée, la limite de détection annoncée est inférieure à la valeur de référence. Inversement, lorsque aucune activité n'est rapportée, la limite de détection annoncée est supérieure à la valeur de référence.

6. Conclusion

De manière générale, cette intercomparaison a permis de faire le point sur les possibilités de mesure en spectrométrie gamma dans l'environnement en Suisse.

Pour les laboratoires concernés, cela a été l'occasion de tester leurs méthodes de mesure sur un échantillon réel, très bien déterminé du point de vue métrologique et nécessitant un conditionnement dans une géométrie pouvant être inhabituelle.

Les résultats obtenus sont bons. On constate néanmoins de grandes différences entre les laboratoires. Si quasiment tous les laboratoires sont à même de mesurer les éléments courants que sont le Cs-134, le Cs-137 ou le K-40, les autres radioéléments n'ont été mesurés que par une minorité de laboratoires. Les laboratoires qui ont mesuré le plus petit nombre de radioéléments sont généralement ceux dont la mission est dédiée à la surveillance des produits de consommation. Les laboratoires ayant mesuré le plus grand nombre de radioéléments ont généralement davantage de moyens et une mission plus large de surveillance de l'environnement ou de recherche et développement.

Les limites de détection annoncées par les laboratoires ont également été testées. Sur l'ensemble des radioéléments investigués, aucune incohérence n'a été observée.

Finalement, la cohérence des incertitudes de mesure a été analysée. Là aussi, la situation varie d'un laboratoire à l'autre. On observe une corrélation entre le nombre de radioéléments mesurables par un laboratoire et la cohérence de ses incertitudes par rapport à la valeur de référence : plus un laboratoire est à même de mesurer un grand nombre de radioéléments, meilleure est la cohérence de ses incertitudes de mesure.

7. Remerciements

Les organisateurs tiennent à remercier chaleureusement les participants pour le soin qu'ils ont apporté au bon déroulement de cette campagne de mesure. Un remerciement tout particulier est adressé aux personnes qui ont assisté à la séance du 6 novembre 2003 à Fribourg. La discussion a conduit à quelques modifications que nous espérons avoir fidèlement reproduites dans le présent rapport.

8. Annexe I : Participants

Laboratoire	Personne de contact	Adresse
Abteilung für Strahlenhygiene und Entsorgung	Herr Jost Eikenberg	5232 Villigen PSI
Centre d'hydrogéologie Uni NE	Herr Heinz Surbeck	Case Postale 2 2007 Neuchâtel
EAWAG	Herr Jürg Beer	Ueberlandstrasse 133 8600 Dübendorf
École d'ingénieurs de Genève Laboratoire de physique nucléaire	Monsieur Gilles Triscone	Rue de la Prairie 4 1202 Genève
Institut F.A. Forel	Monsieur Jean-Luc Loizeau	Rte de Suisse 10 1290 Versoix
Kantonales Labor + Lebensmittelkontrolle	Herr Urs Ackermann	Planaterrastrasse 11 7000 Chur
Kantonales Laboratorium	Frau Claudine Bajo	Kunsthauseweg 50 5000 Aarau
Kantonales Laboratorium	Herr A. Herrmann	Kannenfeldstrasse 2 4012 Basel
Kantonales Laboratorium	Herr U. Vögeli	Muesmattstrasse 19 3013 Bern
Kantonales Laboratorium	Herr Hans Guggisberg	Spannerstrasse 20 8510 Frauenfeld
Kantonales Laboratorium	Herr E. Gisler	Fehrenstrasse 15 8032 Zürich
Labor Spiez	Herr Ernst Schmid	Bevölkerungsschutz des VBS 3700 Spiez
Section Surveillance de la Radioactivité	Herr Hansruedi Völkle	Ch. du Musée 3 1700 Fribourg
Sektion Mer HSK	Herr Markus Schibli	5232 Villigen HSK
TIS sect. environnement	Monsieur Pavol Vojtyla	CERN 1211 Genève 23

9. Annexe I : Équipement et méthode

9.1. Équipement

Laboratoire	Détecteur	Mise en fonction	ϵ [%]	Logiciel	Corr de somm.	Corr. de densité	Durée de mesure [h]
Abteilung für Strahlenhygiene und Entsorgung Villigen PSI	HPGe type p PGT IGC30	1993	38	InterWinner ver. 5.0	non	?	55.6
Centre d'hydrogéologie Uni NE Neuchâtel	HPGe à puits type p Eurisys Mesures EGPC 155 P15	1998	25	InterGamma	non	?	44.4
EAWAG Dübendorf	HPGe puits GCW 3523-7915 30-LB	1991	30	InterWinner ver. 5.0	non	?	24
EIG Laboratoire de physique nucléaire Genève	HPGe à puits type p Eurisys Mesures EGPC 155 P15	1997	32	InterWinner ver. 4.0	oui	oui	490
Institut F.A. Forel Versoix	HPGe à puits type p Ortec GWL-110230	1985		Gamma Vision ver. 5.1	non	?	90.6
Kantonaies Labor + Lebensmittelkontrolle Chur	HPGe Intertechnique Enertec EGPC20	1990	20	InterWinner ver.5.0	non	?	24
Kantonaies Laboratorium Aarau	HPGe type p PGT IGC27	1989	27.7	InterWinner ver. 5	oui	?	67.5
Kantonaies Laboratorium Basel	HPGe type p Eurisys Mesures EGPC 28-180-R	1998		InterWinner ver. 4	non	oui	16.4
Kantonaies Laboratorium Bern	HPGe type p Enertec EGPC20	1986	20.6	InterWinner ver. 4.1	non	oui	296
Kantonaies Laboratorium Frauenfeld	NaI - Armee			Canberra AE98 Genie 2000	non	?	18
Kantonaies Laboratorium Zürich	HPGe type p PGT IGC25	1989	25.3	InterGamma ver. 5.45	oui	?	138.9
Labor Spiez Spiez	HPGe type n Canberra GR 3018	2001	32	Canberra Genie VMS ver. 4.0 modif. LS Stand 2003	non	oui	98.2
	HPGe type n Canberra BE 5030	1999	55	Canberra Genie VMS ver. 4.0 modif. LS Stand 2003	non	oui	98.1

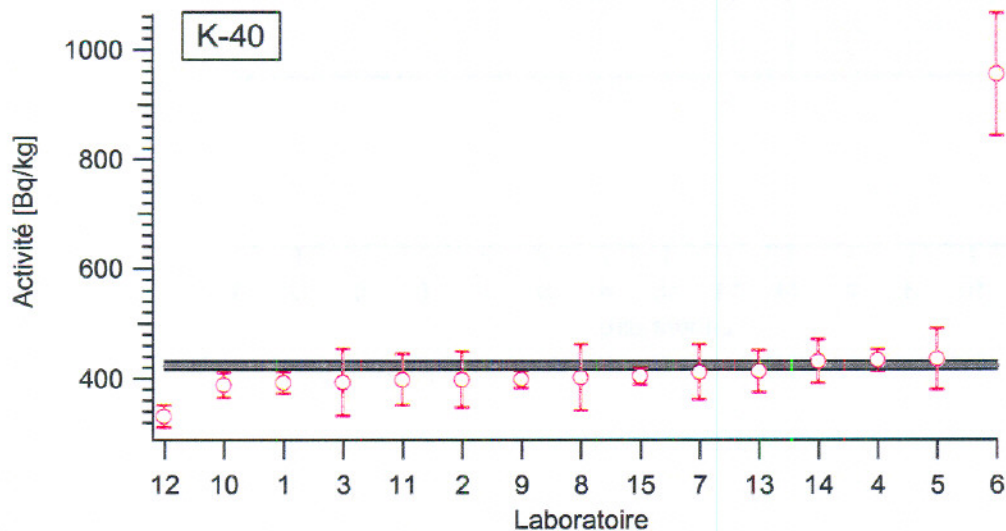
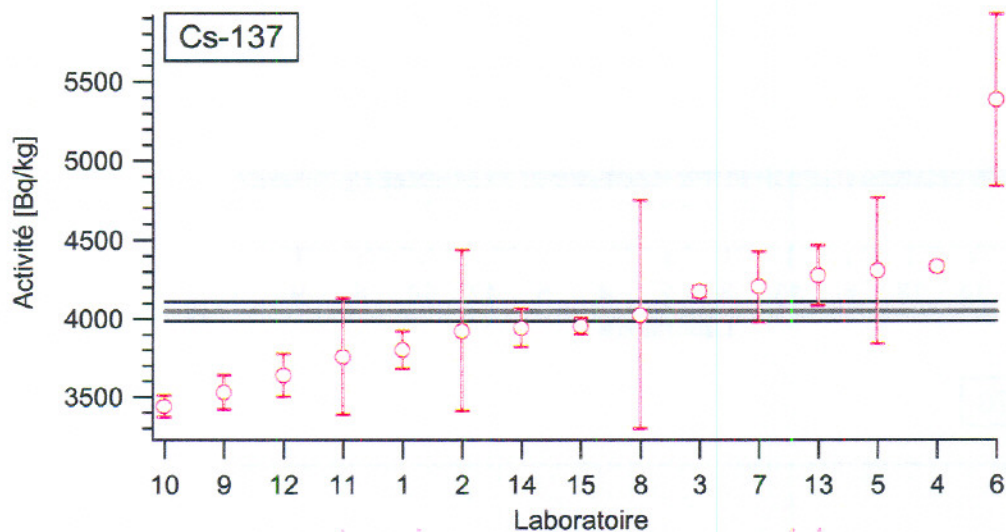
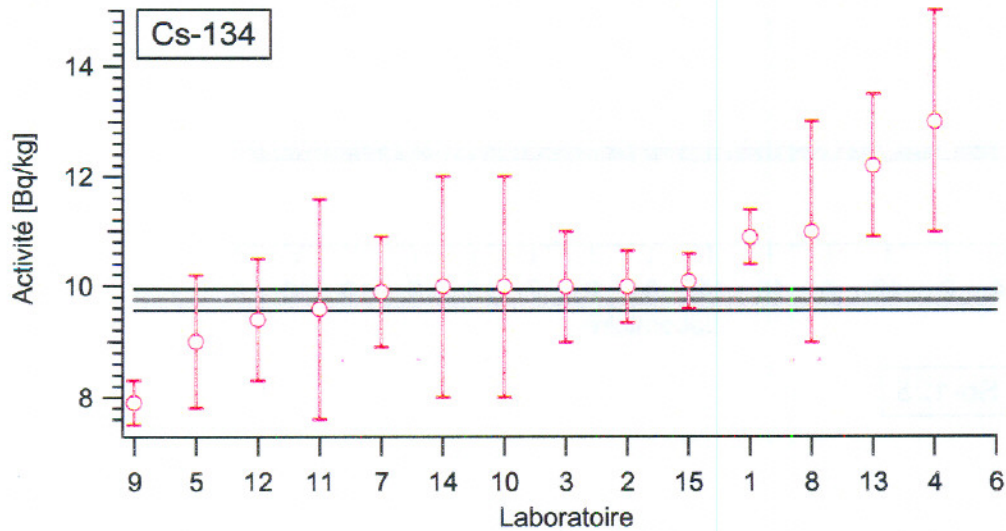
Laboratoire	Détecteur	Mise en fonction	ε [%]	Logiciel	Corr de somm.	Corr. de densité	Durée de mesure [h]
Section Surveillance de la Radioactivité Fribourg	HPGe type n Eurisys Mesures EGNC20	1987	20	InterWinner ver. 5	non	?	88,9
Sektion Mer Villigen HSK	HPGe type p PGT IGC22	1987	22.2	InterWinner ver. 4.1	non	?	15
TIS sect. environnement Genève 23	HPGe type p Canberra GC5019	1997	50	Genie 2000 ver. 1.4	non	non	48

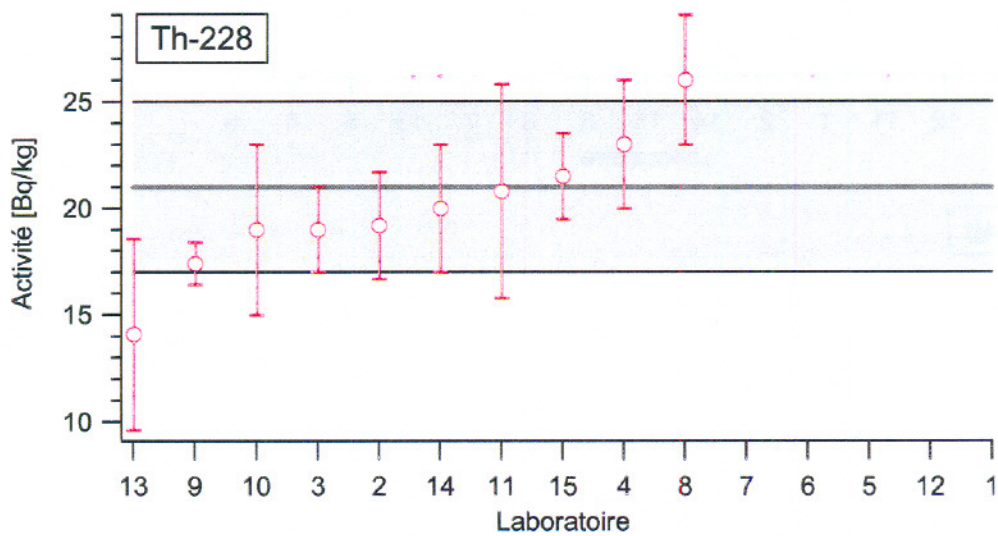
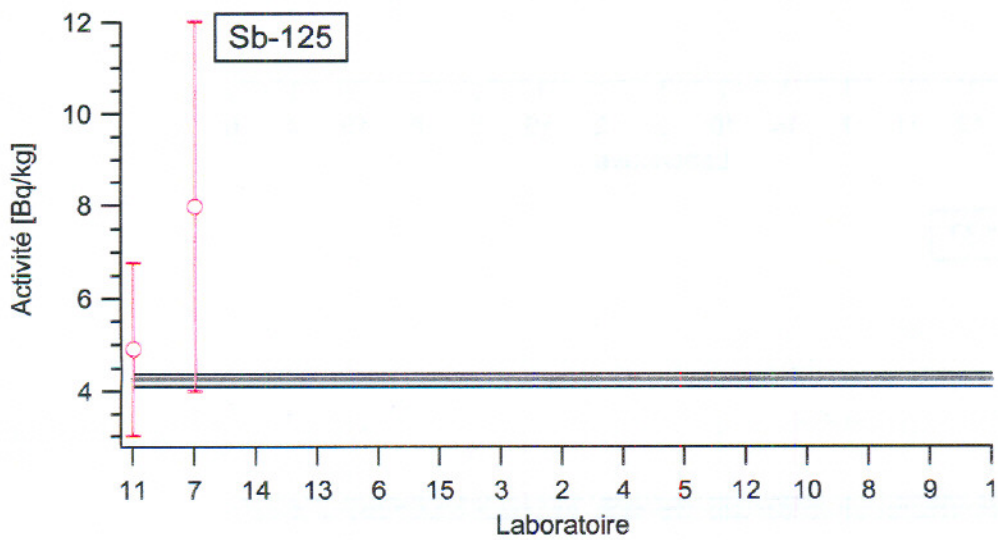
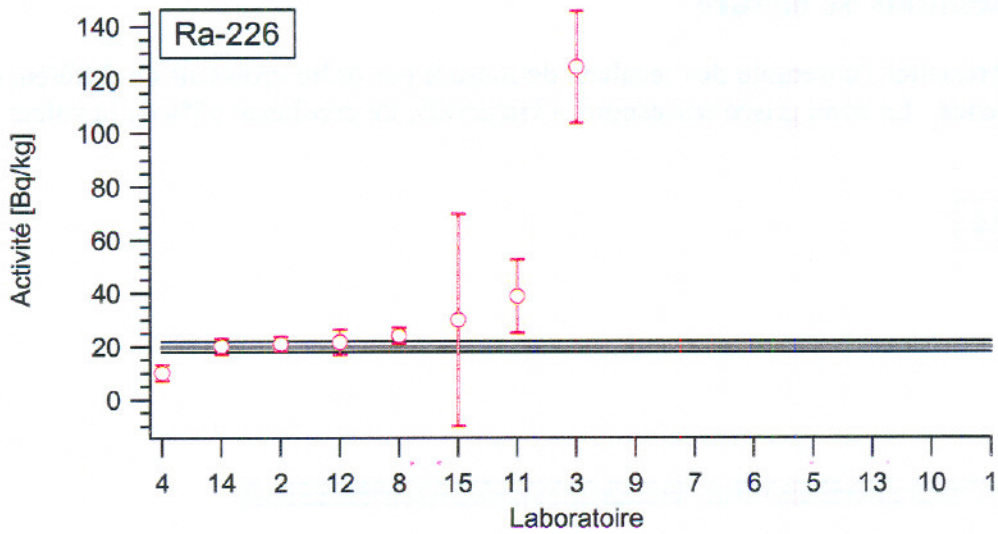
9.2. Méthodes

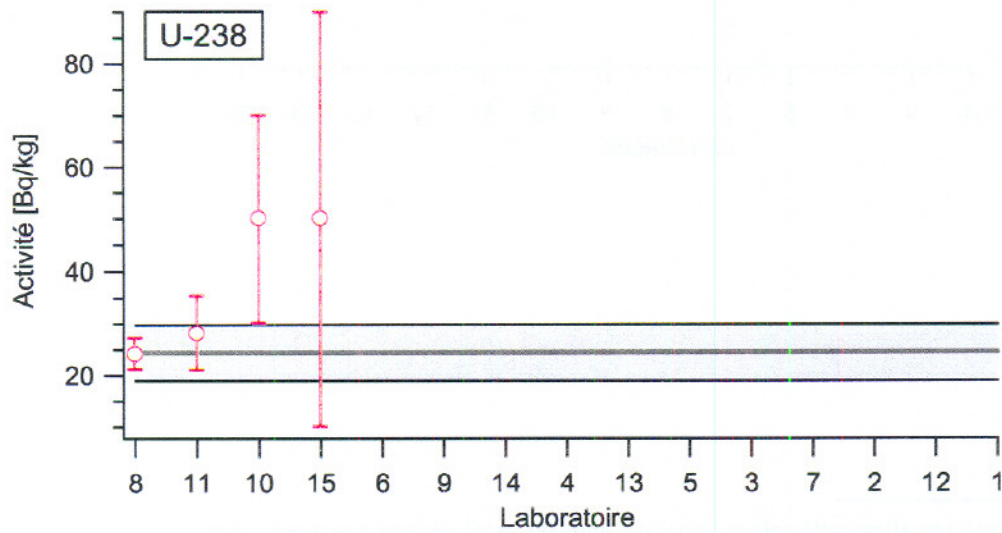
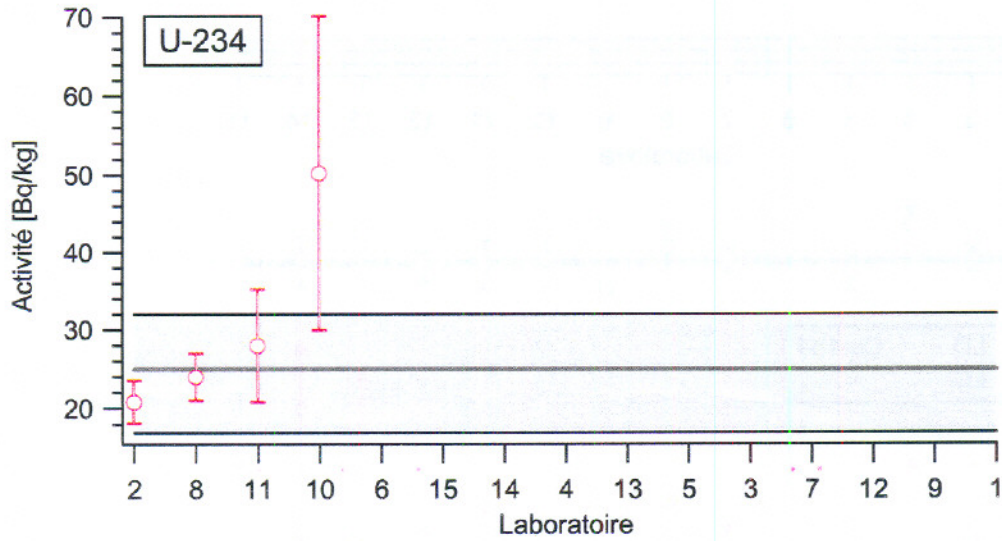
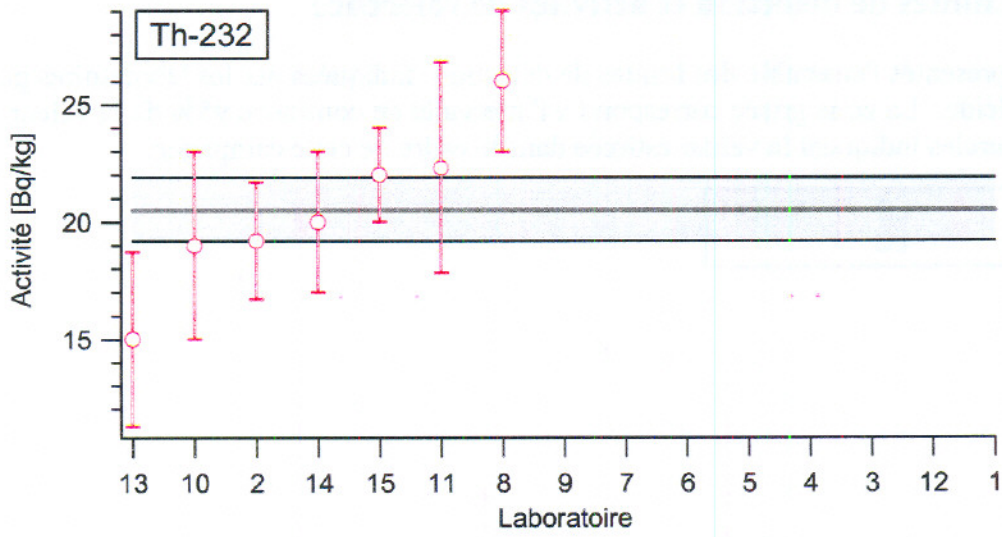
Laboratoire	Volume [ml]	Type de récipient	Distance [mm]	Étalonnage	
Abteilung für Strahlenhygiene und Entsorgung Villigen PSI	50	Icroux	sur le détecteur	Amersham	1997
Centre d'hydrogéologie Uni NE Neuchâtel	3.8 g	Tube	0	IAEA	1998
EAWAG Dübendorf	10 100	Tube Boîte circulaire	0 sur le détecteur	QCYB	2003
EIG Laboratoire de physique nucléaire Genève	50	CEA type E	0	Damri IRA-METAS	2000 2000
Institut F.A. Forel Versoix	5.9	Éprouvette de verre	0	IAEA IRA-METAS	1992 2000
Kantonaies Labor + Lebensmittelkontrolle Chur	250	Semadeni 1741	sur le détecteur	IRA-METAS	1999
Kantonaies Laboratorium Aarau	500	Semadeni 1742	sur le détecteur	IRA-METAS	2000
Kantonaies Laboratorium Basel	22.1 92.9	Boîte circulaire	sur le détecteur	Amersham	1998
Kantonaies Laboratorium Bern	53.2	Boîte circulaire	sur le détecteur		1987
Kantonaies Laboratorium Frauenfeld	250	PET-Flasche	sur le détecteur	empirique	
Kantonaies Laboratorium Zürich	20	Boîte circulaire	2.5	PTB	1995
Labor Spiez Spiez	53.6 128.8	Boîte circulaire Boîte circulaire	60 0	AEA	2001
Section Surveillance de la Radioactivité Fribourg	37	Boîte circulaire	sur le détecteur	IAEA	1998
Sektion Mer Villigen HSK	1000	PE-Weithalsflasche	sur le détecteur	PTB	1997
TIS sect. environnement Genève 23	68	Boîte circulaire		NIST	1999

10. Annexe : Résultats de mesure

Ci-dessous sont présentés l'ensemble des résultats de mesure par ordre croissant de différence à la valeur de référence. La zone grisée correspond à l'intervalle de confiance 95% de la valeur de référence.

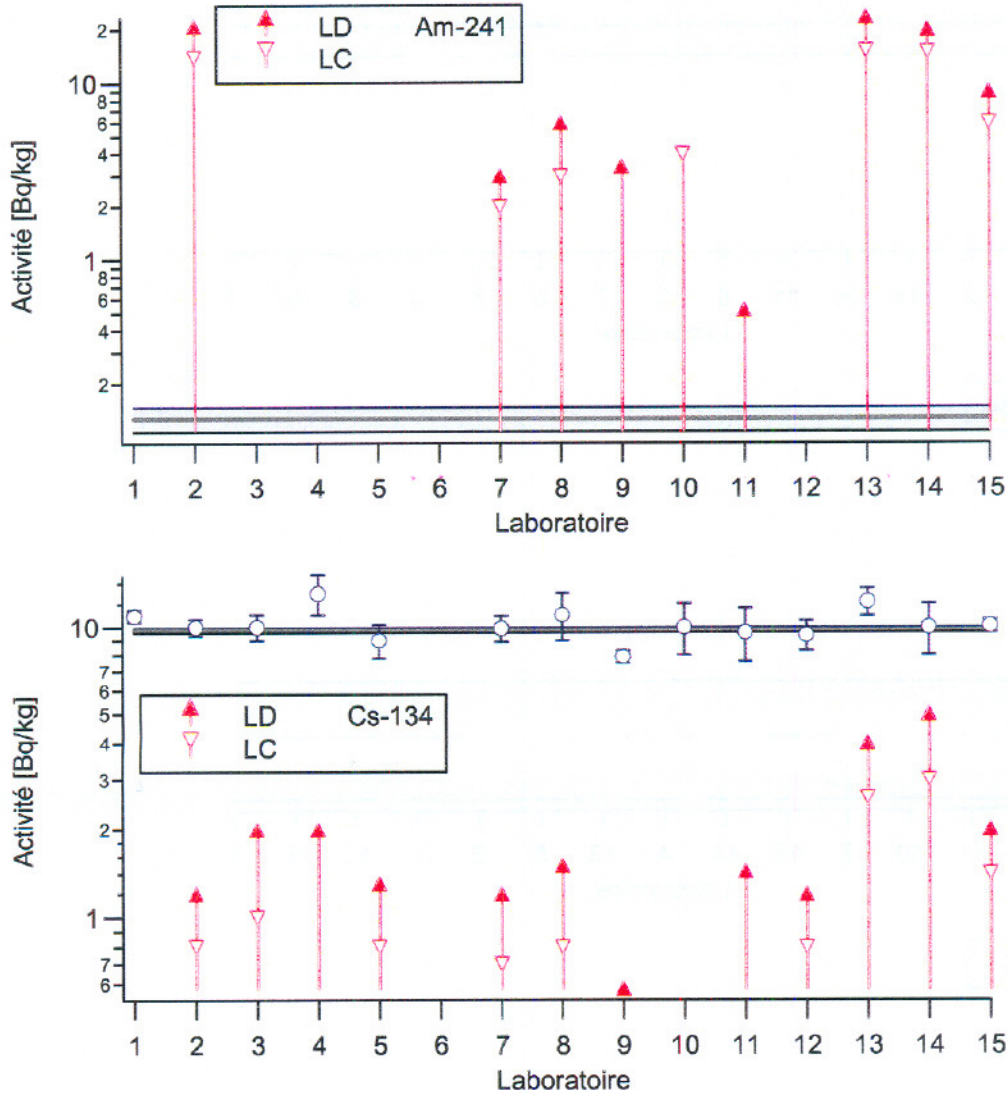






11. Annexe : Limites de détection et activités de référence

Ci-dessous sont présentés l'ensemble des limites de détection¹ indiquées par les laboratoires pour chaque radionucléide. La zone grisée correspond à l'intervalle de confiance 95% de la valeur de référence et les cercles indiquent la valeur estimée dans le cadre de cette campagne.



¹ L_C : Erkennungsgrenze (en allemand), critical level (en anglais), seuil de détection (en français).
L_D : Nachweisgrenze (en allemand), detection limit (en anglais), limite de détection (en français).

