

RAPPORT

INTERCOMPARAISON EN SPECTROMÉTRIE GAMMA SUR DES ÉCHANTILLONS DE SOLUTION AQUEUSE

Auteurs : Claude Bailat, Thierry Buchillier, François Bochud, Sandrine Zufferey et Sybille Estier
Version : 6.10.2006

Sommaire

1. Introduction	1
2. Chronologie de la campagne	3
3. Composition des sources et valeurs de référence	3
3.1.1. Confection des sources	3
3.1.2. Radioéléments et concentrations radioactives	4
4. Équipement et méthodes des laboratoires	5
5. Résultats et discussion	8
5.1. Concentrations radioactives	8
5.2. Cohérence des incertitudes	12
6. Conclusion	14
7. Remerciements	14

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 de la surveillance de la radioactivité dans l'environnement.

Cette année, l'IRA 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. Un échantillon composé de deux radionucléides dans une solution aqueuse a été remis simultanément à chaque participant et a été mesuré en condition réelle. Sur les 24 laboratoires suisses concernés par ce type de mesure, 18 ont participé (voir Tableau 1).

Tableau 1 :Liste des participants à l'intercomparaison 2006.

Jost Eikenberg	Paul Scherrer Institut, Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit 5232 Villigen - PSI	056 310 23 40	jost.eikenberg@psi.ch
Pascal Froidevaux	Institut de radiophysique appliquée Grand-Pré 1 1007 Lausanne	021 623 34 80	pascal.froidevaux@chuv.ch
Markus Zehringer	Kantonales Laboratorium BS, Sanitätsdepartement Kannenfeldstrasse 2, Postfach 4012 Basel	061 385 25 17	markus.zehringer@kl.bs.ch
André Meier	SUVA, Sektion Physik Rösslimattstrasse 39 6005 Luzern	041 419 54 37	andre.meier@suva.ch
Ernst Schmid	Bundesamt für Bevölkerungsschutz des VBS, Labor Spiez AC-Zentrum 3700 Spiez	033 228 16 36	ernst.schmid@babs.admin.ch
Susanne Pfenninger	Kantonales Laboratorium ZH Fehrenstrasse 15, Postfach 8032 Zürich	043 244 71 27	susanne.pfenninger@klzh.ch
Gilles Triscone	EIG, Laboratoire de Physique Nucléaire Rue de la Prairie 4 1202 Genève	022 338 05 26	gilles.triscone@hesge.ch
Jean-Luc Loizeau	Université de Genève, Institut F.A. Forel Rte de Suisse 10 1290 Versoix	022 950 97 21	jean-luc.loizeau@terre.unige.ch
Pavol Vojtyla	CERN, Safety Commission 1211 Genève 23	022 767 38 93	Pavol.Vojtyla@cern.ch
Claudine Bajo	Kanton Aargau, Amt für Verbraucherschutz Obere Vorstadt 14 5000 Aarau	062 835 30 22	claudine.bajo@ag.ch
Thomas Kaufmann	Amt für Lebensmittelkontrolle und Verbraucherschutz Vonmattstrasse 16, Postfach 6002 Luzern	041 248 84 05	Thomas.Kaufmann1@lu.ch
Erwin Grieder	EAWAG, SURF Ueberlandstrasse 133, Postfach 611 8600 Dübendorf	044 823 51 64	erwin.grieder@eawag.ch
Sybille Estier	OFSP, Section Surveillance de la Radioactivité Ch. du Musée 3 1700 Fribourg	026 300 91 65	sybille.estier@bag.admin.ch
Urs Ackermann	Amt für Lebensmittelsicherheit und Tiergesundheit GR Planaterrastrasse 11, Postfach 7001 Chur	081 257 26 72	urs.ackermann@alt.gr.ch
Peter Wernli	Kernkraftwerk Leibstadt AG Hotlabor UCH 5325 Leibstadt	056 267 84 81	peter.wernli@kkl.ch
Patrick Franz	Kernkraftwerk Beznau Chemielabor 5312 Döttingen	056 266 73 18	patrick.franz@nok.ch
Ulrich Vögeli	Kantonales Laboratorium BE Muesmattstrasse 19 3012 Bern	031 633 11 22	ulrich.voegeli@gef.be.ch
Andreas Leupin	Hauptabteilung für die Sicherheit der Kernanlagen, Abt. Strahlenschutz 5232 Villigen - HSK	056 310 39 32	andreas.leupin@hsk.ch

2. Chronologie de la campagne

La chronologie de la campagne est rappelée dans le Tableau 2.

Tableau 2 : Chronologie de la campagne

Date	Événement
9 mai	Circulaire d'invitation, avec délai de réponse au 9 juin 2006
10 juillet	Envoi des échantillons aux participants, avec délai de réponse au 1 septembre 2006
8 août	Communication des premiers résultats
8 septembre	Communication du dernier résultat Distribution du présent rapport aux participants
8 novembre	Réunion de discussion relative à cette intercomparaison

3. Composition des sources et valeurs de référence

3.1.1. Confection des sources

Les échantillons de référence de cette intercomparaison ont été préparés par l'IRA. Il s'agit d'un récipient étanche en polyéthylène mou d'environ 500 ml de type Semadeni-108 contenant une solution aqueuse d'acide nitrique 0.1 M et deux radioéléments présents lors de retombées d'accident nucléaire (Co-57 et Ba-133). De plus, les énergies des gamma émis par ces deux radionucléides sont intéressantes. Effectivement, le Ba-133, en plus de plusieurs lignes marquées, a une émission proche en énergie de celle de l'I-131 et le Co-57 a une énergie d'émission dans une zone de recouvrement des courbes d'étalonnage en efficacité.

20 échantillons ont été préparés à partir de 10 litres de solution. La matière radioactive a tout d'abord été mise en solution dans 100 ml de HNO₃ à 0.1 M, puis diluée dans 10 litres de HNO₃ à 0.1 M également (1.002 kg/l). Les 10 litres ainsi obtenus ont alors été homogénéisés pendant 4 heures à l'aide d'un barreau magnétique. Les échantillons individuels de 500 ml ont été finalement confectionnés et mesurés pour contrôle par spectrométrie gamma. Le Tableau 3 indique les masses de chaque échantillon.

Tableau 3 : Masse des échantillons préparés lors de ce travail. L'incertitude (k=2) est de 0.01 g.

Numéro de l'échantillon	Masse [g]
1	509.27
2	512.26
3	515.16
4	514.63
5	520.21
6	512.76
7	513.70
8	503.21
9	519.33
10	517.63
11	514.56
12	513.00
13	519.62
14	506.24
15	515.28
16	514.15
17	516.03
18	513.42
19	518.30
20	275.76

3.1.2. Radioéléments et concentrations radioactives

La mesure des concentrations radioactives de référence a été effectuée sur les solutions mères non diluées avec des activimètres secondaires d'IRA-METAS garantissant le rattachement aux étalons internationaux. Les concentrations radioactives de référence ainsi obtenues sont indiquées dans le Tableau 4.

La date de référence de la présente intercomparaison a été fixée au 1^{er} août 2006 12:00 TEC. Lorsque des résultats de mesure ont dû être corrigés pour la décroissance radioactive, les périodes du Tableau 5 ont été prises en compte, (Référence : Decay Data Evaluation Project, <http://www.nucleide.org/NucData.htm>).

Tableau 4 : Concentrations radioactives de référence au 1^{er} août 2006 12:00 TEC.

Nucléide	Conc. radioactive	Incertitude élargie (k=2)	
	[Bq/kg]	[Bq/kg]	[%]
Co-57	1564.7	9.7	0.62
Ba-133	726.5	2.6	0.36

Tableau 5 : Périodes de référence prises en compte lors des calculs de décroissance effectués lors de cette étude.

Nucléide	Période	Incertitude élargie (k=2)	
	[j]	[j]	[%]
Co-57	271.80	0.05	0.02
Ba-133	3849.74	2.19	0.06

4. Équipement et méthodes des laboratoires

Le Tableau 6 résume les équipements utilisés par les participants et le Tableau 7 les méthodes d'analyse.

Tableau 6 : Résumé des équipements des différents laboratoires.

Laboratoires	Détecteur	Mise en fonction	ϵ [%]	Logiciel	Étalonnage, type	date
Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit, PSI	HPGe type p Eurisy IGPC20-185-r	1995	30	InterWinner ver. 5.0	Amersham	2003
EAWAG	HPGe puits GCW 3523-7915 30-LB	1991	30	InterWinner ver. 5.0	OCYB	2003
EIG Laboratoire de physique nucléaire	HPGe à puits type p Eurisy EGPC 155 P15	1997	32	InterWinner ver. 5.0	IRA-METAS et DAMRI	2000
Université de Genève, Institut F.A. Forel	HPGe à puits type p Ortec GMX-50220-5	1990	57.8	Gamma Vision ver. 5.1	IRA-METAS	2000 2000
Amt für Lebensmittelsicherheit und Tiergesundheit GR	HPGe type p Ortec GEM-25P4	2005	25	InterWinner ver.5.05	BV500-9305- 05 Eu-152	1992 2006
Kantonales Laboratorium Aarau	HPGe type p PGT IGC27	1989	27.7	InterWinner ver. 5	IRA-METAS	2003
Kantonales Laboratorium Basel	HPGe type p Eurisy IGPC28-180-r	1998	28	InterWinner ver. 5.0	Amersham	1998
Kantonales Laboratorium Bern	HPGe type p Enertec EGPC20	1986	20.6	InterWinner ver. 6.0	Centre AC Spiez	1987
Kantonales Laboratorium Zürich	HPGe type p PGT IGC25	1989	25.3	InterGamma ver. 5.05	IRA-METAS	2000
Labor Spiez	HPGe type n Canberra GR 3018	2001	30	Canberra Genie VMS	AEA Technology Amersham	?
Institut de radiophysique appliquée	HPGe type n Canberra GCW 4523	1999	45	Genie 2000 Ver. 1.4	IRA-METAS	2002
HSK, Abteilung Strahlenschutz	HPGe type p PGT IGC22	1987	22.2	InterWinner ver. 6.0	Amersham	2005
SUVA, Sektion Physik	HPGe type p Ortec EGC 20R	1989	20	InterWinner ver. 6.0	Czeck Metrological Institute	2005
CERN, Safety Commission	HPGe type n Canberra GC 5019	1998	50	Genie 2000 Ver. 2 .1	NIST	1999

Laboratoires	Détecteur	Mise en fonction	ϵ [%]	Logiciel	Étalonnage, type	date
Amt für Lebensmittelkontrolle und Verbraucherschutz, Luzern	HPGe type n Intertechnique EGPC25	1990	25.8	InterWinner ver. 5.0	IRA-METAS	2000
OFSP, Section Surveillance de la Radioactivité	HPGe type p Ortec GEM40P4	2004	40	InterWinner ver. 6.0	Czeck Metrological Institute	2004
Kernkraftwerk Leibstadt AG	Tennelec CPUDS 30-20190 Et Canberra type p GC1318-7500SL	1989 et 1995	20 et 13	InterWinner ver. 5.1	IRA-METAS	2000
Kernkraftwerk Beznau	HPGe type p Canberra GC3018	1999	30.6	InterWinner ver. 4.1	Ba-133/Eu-152	2000

Tableau 7 : Résumé des méthodes d'analyse des différents laboratoires.

Laboratoires	Volume [ml]	Type de récipient	Distance [mm]	Corr de somm.
Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit, PSI	500	Ira-Suer	sur le détecteur	non
EAWAG	10ml 100ml	Tube Boîte circulaire	sur le détecteur	non
EIG Laboratoire de physique nucléaire	50	CEA Type E	6	Oui, ISOX
Université de Genève, Institut F.A. Forel	250 rempli à 40ml	Boîte cylindrique	sur le détecteur	non
Amt für Lebensmittelsicherheit und Tiergesundheit GR	500	Semadeni	sur le détecteur	non
Kantonales Laboratorium Aarau	500	Semadeni 1742	sur le détecteur	non
Kantonales Laboratorium Basel	250	Semadeni	sur le détecteur	Oui Debertin+Helmer
Kantonales Laboratorium Bern	1000	géométrie centre-AC de Spiez	sur le détecteur	non
Kantonales Laboratorium Zürich	450	Marinelli M450	sur le détecteur	non
Labor Spiez	250	1/4L Spiez	60	non
Institut de radiophysique appliquée	500	Semadeni 1742	sur le détecteur	Oui, Monte Carlo
HSK, Abteilung Strahlenschutz	1000	Boîte cylindrique	sur le détecteur	non
SUVA, Sektion Physik	500	Ira-Suer	140	non
CERN, Safety Commission	1000	Semadeni 1742	5	Oui, labsocs
Amt für Lebensmittel-kontrolle und Verbraucherschutz, Luzern	500	Semadeni	sur le détecteur	Oui, estimer selon les data IRA (2000-2005) et le rapport du PTB-2a-24
OFSP, Section Surveillance de la Radioactivité	520	Boîte cylindrique	sur le détecteur	Oui, Gespecor
Kernkraftwerk Leibstadt AG	1000	Marinelli	20	non
Kernkraftwerk Beznau	50	Boîte cylindrique	6	non

5. Résultats et discussion

Comme aucun formulaire de retour de résultat n'avait été distribué, les participants ont utilisé leur rapport courant de présentation des résultats. La majorité des documents reçus sont clairement rédigés et présentent les données utiles. Certains résultats, n'étaient toutefois pas mis en forme. Ceci provient probablement du caractère informel pouvant être associé à l'intercomparaison.

Tous les laboratoires ont identifié correctement les radionucléides de l'échantillon et ont indiqué les concentrations radioactives correspondantes. Seul cinq laboratoires ont fourni la durée de la mesure effectuée. Cinq laboratoires ont procédé à des corrections de sommations, dont trois en utilisant des logiciels commerciaux. Le logiciel d'analyse des spectres le plus usité est InterWinner (14 participants). Les versions s'étalent de la 4.0 à la 6.0.

5.1. Concentrations radioactives

Le Tableau 8 présente l'ensemble des valeurs telles qu'elles ont été rapportées par les laboratoires. La moitié des laboratoires exprime le résultat final en activité par unité de masse (Bq/kg) et (Bq/g), tandis que l'autre moitié exprime leurs résultats en activité par unité de volume (Bq/l) et (Bq/m³). Tous les laboratoires sauf un ont indiqué une incertitude de mesure sur leur rapport. Néanmoins, un laboratoire n'a pas précisé le facteur d'élargissement (k) retenu. Dans la majorité des cas (15/18), les laboratoires expriment leurs incertitudes de mesure finales avec un facteur d'élargissement k=2. Les données brutes de chaque laboratoire ont été mises en forme pour permettre une comparaison inter-laboratoire (voir Tableau 9). Le facteur d'élargissement a été choisi égal à 2. Les valeurs de concentrations radioactives ont été converties en Bq/kg. Les laboratoires numéro 15 et 18 ayant fourni plusieurs de mesures, la valeur moyenne a été retenue. Le laboratoire 15 a procédé à des mesures dans deux départements distincts avec des unités de volume différentes (Bq/m³ et Bq/l) rendant les résultats incompatibles (facteur 1000). Nous avons supposé que la valeur en (Bq/m³) était une erreur et avons corrigé les résultats en conséquence. De plus, les mesures du laboratoire 15 ayant été faites dans un volume d'un litre et nous avons encore supposé qu'ils avaient omis de multiplier par deux le résultat final de concentration radioactive et nous avons corrigé le tableau en conséquence.

Tableau 8 : Ensemble des résultats de concentrations radioactives bruts communiqués par chaque laboratoire. U : incertitude.

N°	Unités			Concentrations radioactives			Nature incert.	
	Bq/kg	Bq/l	autres	Co-57	U	Ba-133		U [%]
1		X		1530	5%	710	5%	k=2
2								
3	X			1625	65.8	708	35.3	k=2
4	X			1506	122	717	56	k=2
5	X			1570	82	682	34	k=1
6	X			1525	25.36	694	9.016	k=2
7			Bq/g	1.523	0.015	0.717	0.029	k=2
8	X			1547	50	460	12	k=2
9		X		1440	50	682	11	k=2
10	X			1590	150	700	70	k=2
11		X		1668	100	662.3	33	k=2
12		X		1572	138	713	61	k=2
13		X		1530	180	700	80	k=2
14	X			1654	-	820	-	-
15			Bq/m3	812	1.2	307	1.1	k=1
			Bq/m3	811	1.2	307	1.2	k=1
			Bq/m3	798	1.2	321	1.2	k=1
			Bq/m3	789	1.2	327	1.2	k=1
		X		871	1.3	357	1.1	k=1
		X		866	1.3	350	0.7	k=1
		X		815	1.2	340	1.2	k=1
		X		816	1.2	342	0.9	k=1
16			Bq/m3	1.661E+06	2.651E+04	6.838E+05	1.585E+04	k=1
17		X		1593	57	764	18	-
18	X			1610	3.49	729	1.67	k=2
	X			1580	3.27	717	1.73	k=2

Tableau 9 : Ensemble des résultats de concentrations radioactives en Bq/kg mis en forme. U: incertitude (k=2). $\Delta\text{Co}_{\text{rel}}$ et $\Delta\text{Ba}_{\text{rel}}$ sont respectivement l'écart relatif à la référence pour le Co-57 et le Ba-133.

N°	Co-57	U [%]	Ba-133	U [%]	$\Delta\text{Co}_{\text{rel}}$ [%]	$\Delta\text{Ba}_{\text{rel}}$ [%]
1	1'527	5	709	5	-2.5	-2.5
2					--	--
3	1'625	4	708	5	3.7	-2.7
4	1'506	8	717	8	-3.9	-1.4
5	1'570	10	682	10	0.3	-6.6
6	1'525	2	694	1	-2.6	-4.8
7	1'523	1	717	4	-2.8	-1.4
8	1'547	3	460	3	-1.2	-58.0
9	1'437	4	681	2	-8.9	-6.8
10	1'590	9	700	10	1.6	-3.9
11	1'665	6	661	5	6.0	-10.0
12	1'569	9	712	9	0.3	-2.1
13	1'527	12	699	11	-2.5	-4.0
14	1'654	-	820	-	5.4	11.3
15	1'643	1	662	1	4.7	-9.8
16	1'664	2	685	2	5.9	-6.1
17	1'590	4	762	2	1.6	4.6
18	1'595	3	723	2	1.9	-0.6

L'ensemble des résultats mis en forme et leur incertitude (k=2) sont présentés dans la Figure 1. Après correction des valeurs du laboratoire 15 comme indiqué ci-dessus, on voit que les résultats sont relativement bons à l'exception de la mesure de Ba-133 du laboratoire 8. Les valeurs de concentration radioactive pour le Ba-133 ont tendance à être sous-estimées par les laboratoires, ce qui peut partiellement s'expliquer par l'absence de correction de sommation.

Nous avons ensuite calculé l'erreur relative, Δ , définie comme le rapport de la différence à la référence divisée par la référence, Tableau 4. La concentration radioactive de référence est résumée dans le Tableau 4. Cette erreur relative est représentée graphiquement dans la Figure 2. Les écarts maximaux entre la mesure et la référence sont respectivement de 9% et 58% pour le Co-57 et le Ba-133. La médiane des écarts relatifs est de +0.6% pour le Co-57 et de -3.7% pour le Ba-133.

On voit donc que les résultats restent majoritairement dans une fourchette de valeurs très acceptables.

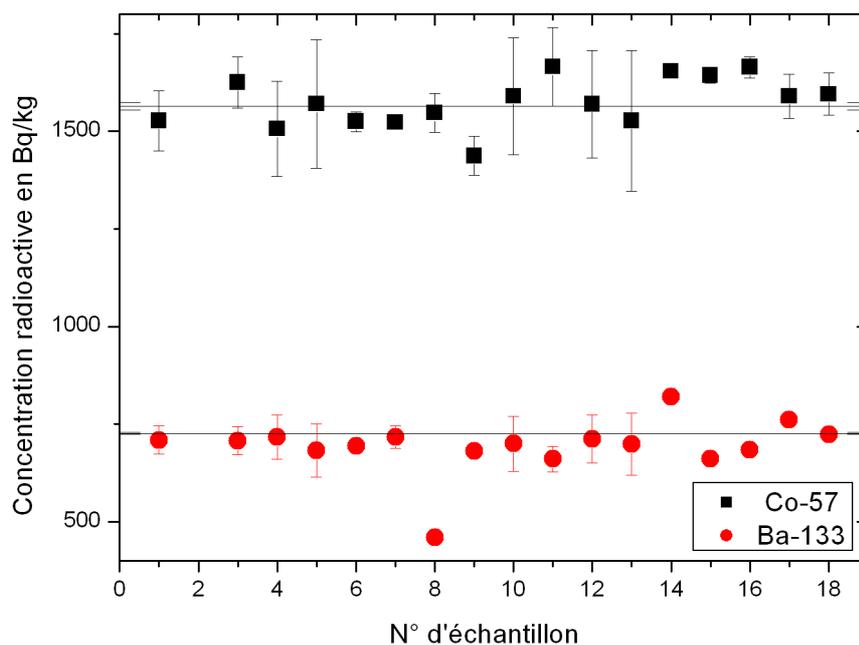


Figure 1 : Résultats de chaque laboratoire rapportés à la date de référence après mise en forme. Les barres d'incertitudes représentent une incertitude élargie à $k=2$. Les lignes horizontales représentent les valeurs de référence additionnées des barres d'incertitudes à $k=2$.

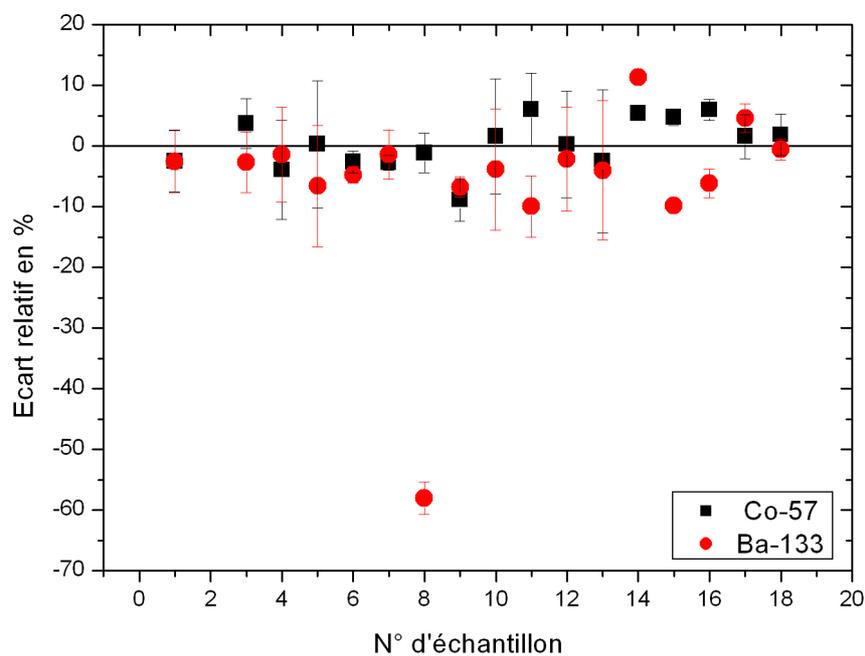


Figure 2 : Ecart relatif à la référence pour la concentration radioactive du Co-57 et du Ba-133. Les barres d'incertitudes représentent une incertitude reportée élargie à $k=2$.

5.2. Cohérence des incertitudes

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 ($k=1$) 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 10 sont généralement admis.

Tableau 10 : 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 11 présente l'ensemble des déviations normées des mesures effectuées dans le cadre de cette intercomparaison. Les valeurs différant de manière significative ont été mises en évidence *en italique* (valeurs supérieures à 2.58) ou en **caractères gras** (valeurs supérieures à 3.29). La Figure 3 représente ces valeurs de déviations normées graphiquement.

On observe que cinq laboratoires ont des incertitudes incohérentes. Cela pourrait s'expliquer par des incertitudes de type B (étalonnage, facteurs de correction, positionnement, etc.) sous-estimées.

La mesure du Co-57 semble avoir induit moins d'incohérence d'incertitude. La déviation normée montre que les incertitudes de la mesure du Ba-133 sont légèrement sous-estimées, malgré une statistique plus pauvre. Ce qui se remarque également en observant les barres d'incertitudes de la Figure 1. La différence entre les deux nucléides reste cependant peu marquée.

Tableau 11 : Déviations normées par laboratoire et par radionucléide.

N°	Co-57			Ba-133		
	A _{mes}	S _{mes}	u	A _{mes}	S _{mes}	u
1	1'527	5	0.5	709	5	0.5
2			-			-
3	1'625	4	0.9	708	5	0.5
4	1'506	8	0.5	717	8	0.2
5	1'570	10	0.0	682	10	0.7
6	1'525	2	1.5	694	1	3.5
7	1'523	1	2.3	717	4	0.3
8	1'547	3	0.3	460	3	21.7
9	1'437	4	2.5	681	2	4.0
10	1'590	9	0.2	700	10	0.4
11	1'665	6	1.0	661	5	2.0
12	1'569	9	0.0	712	9	0.2
13	1'527	12	0.2	699	11	0.3
14	1'654	-	-	820	-	-
15	1'643	1	3.5	662	1	8.6
16	1'664	2	3.5	685	2	2.6
17	1'590	4	0.4	762	2	2.0
18	1'595	3	0.6	723	2	0.3

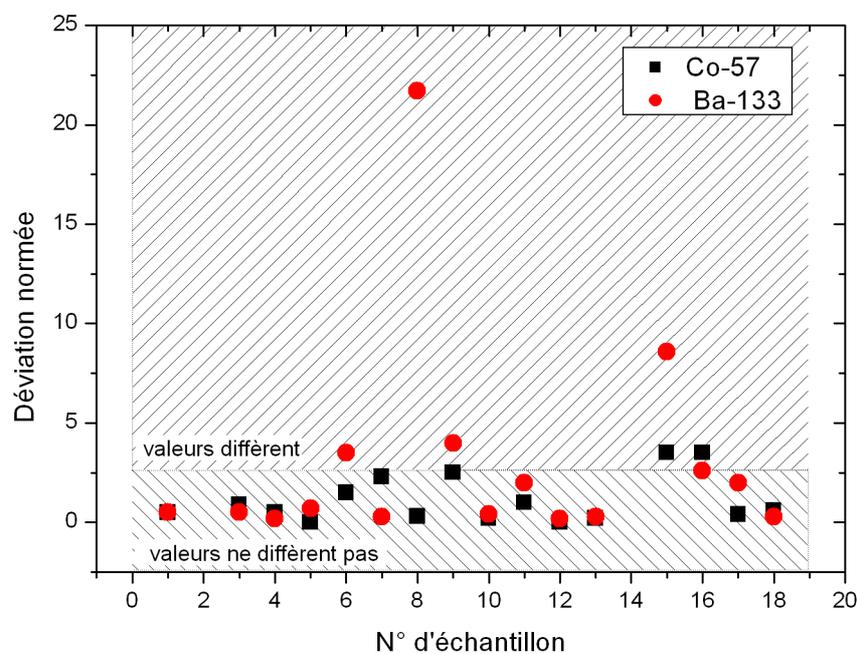


Figure 3 : Déviation normée pour la concentration radioactive du Co-57 et du Ba-133.

6. Conclusion

Tous les laboratoires ont identifié les deux radionucléides dans la solution à analyser. Les résultats sont donc bons, même si le laboratoire 15 a fourni des résultats incohérents qui auraient bénéficié d'un contrôle interne avant l'envoi. La mesure de la concentration radioactive de Ba-133 de l'échantillon 8 semble avoir également rencontré des problèmes, mais aucune explication n'est connue à ce jour. Autrement, la valeur médiane de l'écart à la référence est plutôt bonne et dénote une bonne maîtrise des outils de travail des participants. L'évaluation des incertitudes semble encore créer des problèmes et a conduit à quelques incohérences. La forme des rapports de mesure pourrait dans certains cas encore être améliorée en indiquant systématiquement et explicitement la date de référence et le type d'incertitude utilisée.

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.