
Rapport de l'exercice de mesure dans le cadre de l'intercomparaison 2020 en spectrométrie gamma

Destinataire : Aux laboratoires de mesure de la radioactivité

Version du : 16.12.2020

Auteurs : Thierry Buchillier, Claude Bailat, François Bochud, IRA

Sybille Estier et Philipp Steinmann, OFSP

Table des matières

1.	Introduction	1
2.	Préparation des échantillons et valeurs de référence.....	3
3.	Résultats et discussion	5
3.1.	Résultats communiqués par les participants	5
3.2.	Méthode d'analyse des résultats	8
3.3.	Discussion des résultats.....	17
4.	Conclusions.....	20
5.	Remerciements	20
6.	Annexe : liste des participants	21

1. Introduction

L'Institut de radiophysique (IRA) est mandaté par l'Institut fédéral de métrologie (METAS) pour la détermination, le maintien et la diffusion de l'unité d'activité, le becquerel. La Section de la radioactivité de l'environnement (URA) de l'Office fédéral de la santé publique (OFSP) est responsable de la surveillance de la radioactivité dans l'environnement. Comme de coutume, l'IRA et l'URA ont invité l'ensemble des laboratoires effectuant des mesures d'activité dans l'environnement et les produits de consommation à participer à l'intercomparaison annuelle de spectrométrie gamma.

L'organisation et l'analyse des données de l'intercomparaison suivent autant que possible les prescriptions des normes suivantes :

1. BIPM, IEC, IFCC, ISO, IUPAC, IUPAP and OIML, Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, 1995.

2. ILAC, ILAC Guidelines for the Requirements for the Competence of Providers of Proficiency Testing Schemes, ILAC G13, 2007.
3. ISO/IEC, Proficiency testing by interlaboratory comparisons. International Standard Organization, ISO Guide 43, 1997.
4. ISO/IEC, Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparisons. International Standard Organization, ISO 13528, 2005.

Le thème de l'intercomparaison cette année est la mesure d'un échantillon d'eau contenant plusieurs radionucléides et totalisant un nombre de lignes à identifier assez important. Dix radionucléides ont été introduits dans l'échantillon de l'intercomparaison avec une activité certifiée par l'IRA : Mn-54, Co-57, Co-60, Cd-109, I-131, Ba-133, Cs-134, Cs-137, Eu-152 et Am-241. Certains d'entre eux sont présents dans l'environnement en cas d'accident dans une centrale nucléaire, certains sont utilisés dans le domaine médical et certains sont destinés plutôt à la métrologie. L'objectif était d'exercer la capacité à identifier un assez grand nombre de lignes dans le spectre, parfois avec des interférences entre 2 radionucléides.

Sur les 30 laboratoires suisses concernés par ce type de mesure, 21 ont participé et ont fourni des résultats. La liste des participants est présentée dans l'annexe. Le Tableau 1 résume les équipements utilisés par ces participants.

Tableau 1. Détecteurs et méthodes d'étalonnage utilisés par les laboratoires

Participants	Détecteur	Mise en fonction	Eff. [%]	Logiciel	Étalonnage, type	Date
Amt für Lebensmittelsicherheit und Tiergesundheit GR	HPGe type p, Ortec GEM-25P4	2005	25.6	InterWinner ver.5.05	Intergamma CMI CBSS2	2019
Centre de Recherche Nestlé	Ortec type p GEM 40P4-S	2004	40	LVIS v2.5.1.0	Intergamma CMI CBSS2	2017
CERN DGS-SEE	Canberra GC 5019	2015	50	G2K 3.4 Apex 1.4	LabSOCS	-
Dienststelle Lebensmittelkontrolle und Veterinärwesen (DILV)	Ortec type n GMX 30P4	2006	32.8	InterWinner ver. 7.0	CMI CBSS2	2019
EAWAG	Canberra GR 2719	1990	27.1	Genie 2000 3.4.1	NIST NG7	2015
ENSI Eidgenössisches Nuklearsicherheitsinspektorat	No 1 Canberra GC 5019 p-type et No 3 Canberra GC5019 p-type	2008 et 2017	50 50	Interwinner 8.00	LabSOCS	2020 2017
hepia haute école du paysage, d'ingénierie et d'architecture	Eurisys type p EGPC 155 P15	1997	32	Interwinner 8.0	IRA et DAMRI	2000
Institut de radiophysique	HPGe p Ortec GEM 23185 HPGe p Canberra GCW4523 HPGe n Ortec GMX 35P4-76	1986 2001 2012	23 45 39	Genie 2000 Apex Gamma	IRA	2010 2020 2012
Kanton Aargau DGS	HPGe type p PGT IGC27	1989	27.7	Winner ver. 6.0	DA6 Std 2019	2019
Kantonales Laboratorium BE	HPGe type p Canberra GC 2018	2014	23.1	Genie 2000	LabSOCS/Isocs	2020

Participants	Détecteur	Mise en fonction	Eff. [%]	Logiciel	Étalonnage, type	Date
Kantonaies Laboratorium BS	Ortec type p GEM 50P4-84	2009	50	Interwinner 7.1	CMI 9031-OL-806/13	2020
Kantonaies Labor Zürich	HPGe type p PGT Ge-IGC 25	1989	25.3	Interwinner 7.1	Mix 565	1999
KKB - Axpo Power AG	Canberra type p GC 3518	2009	35	Interwinner 8.0	Kal.Std Zwiilag (Nr. 52)	2017
KKW Gösgen-Däniken AG	Ortec type p GEM 25 43-P 11897 B	-	28	InterWinner 8.0	Ref. Mischstandard QCYB41	2016
KKM - BKW Energie AG	Canberra BeGe	2019	60	Genie 2000 Apex 1.4.1	LabSOCS	2020
Laboratorio cantonale Ti	HPGe type p, Ortec GEM30	2003	30	Interwinner ver. 5.0	Intergamma CMI CBSS2	2017
Labor Spiez	HPGe type n Canberra GR 3018	2001	32	Genie 2000 Apex	LabSOCS	2016
OFSP	Ortec type n GMX 30-83-A type n	2013	30	Winner 7.0	Intergamma CMI CBSS2	2018
Paul Scherrer Institut	Ortec type p GEM 30P4-70	2012	30	InterWinner 8.1	Eckert-Ziegler 1827-72-1 et 111944	2019
SUVA	HPGe type p Ortec GEM 20-70	2012	23	InterWinner 8.0	Intergamma CMI CBSS2	2012
Zwiilag	Ortec type p	2005	30	InterWinner 8.0	Eckert&Ziegler GCRB13919	2017

2. Préparation des échantillons et valeurs de référence

Préparation de la solution de l'intercomparaison

L'échantillon choisi cette année est une solution radioactive artificielle contenant les dix radionucléides Mn-54, Co-57, Co-60, Cd-109, I-131, Ba-133, Cs-134, Cs-137, Eu-152 et Am-241.

Un batch de 14 litres de solution HCl 0.1 M a été préparé avec des entraîneurs de chaque espèce chimique. Les radionucléides individuels ont été ajoutés gravimétriquement dans cette solution. Ils provenaient soit de solutions certifiées par le laboratoire primaire de l'IRA (IRA-METAS), soit de solutions mesurées sur le HPGe de référence du groupe de radiométrie (Tableau 2). Les activités sont donc rattachées aux étalons nationaux et internationaux.

Tableau 2. Radionucléides dans la solution d'échantillon

Radionucléide	Solution utilisée	Solution originale	Rattachement
Mn-54	D1-Mn-54	M54Mn7A3	METAS + dilution
Co-57	D1-Co-57	M57Co36A1	METAS + dilution
Co-60	M60CoFSPE101	-	METAS + dilution
Cd-109	M109Cd17	-	Mesure HPGe 1
I-131	Mallinckrodt	-	Mesure HPGe 1
Ba-133	133Ba8FP01	-	METAS + dilution
Cs-134	GRM190722-Cs-134	M134Cs3A2	METAS + dilution

Radionucléide	Solution utilisée	Solution originale	Rattachement
Cs-137	GRM190722-Cs137	M137Cs25A2	METAS + dilution
Eu-152	M152Eu12A1	M152Eu11	METAS + dilution
Am-241	FSPE241Am9F1	M241Am9	METAS + dilution

La solution d'échantillon a été longuement agitée, puis répartie dans les flacons de 500 ml pour l'envoi aux participants. Trois flacons de mesure ont aussi été préparés au cours de cette opération, en vue d'un contrôle d'activité. Un flacon au début du transfert, un au milieu et un à la fin. Ils ont été mesurés sur le HPGe de référence du groupe de radiométrie. Ils ont confirmé les valeurs de concentration radioactive calculées à partir des facteurs de dilution gravimétrique.

Activité de référence des échantillons de l'intercomparaison

La concentration radioactive de référence des 10 radionucléides ajoutés dans les échantillons de l'intercomparaison est donnée dans le Tableau 3. La date de référence de l'intercomparaison a été fixée au 1.8.2020 12h00.

Notons que les deux valeurs d'activité de référence déterminées par le spectromètre de référence de l'IRA (Cd-109 et I-131) bénéficient d'une incertitude plus faible que celle atteignable dans l'échantillon final puisqu'elles ont été mesurées séparément et avant dilution.

Tous les participants ont reçu la même solution d'échantillon.

Tableau 3. Activités de référence des échantillons. Date de référence : 1.8.2020 12h00. Incertitude élargie à $k=2$.

Activité et incert.	Mn-54	Co-57	Co-60	Cd-109	I-131	Ba-133	Cs-134	Cs-137	Eu-152	Am-241
Concentration radioactive (Bq/kg)	42.90	6.43	21.86	22.38	72.64	21.87	10.64	10.56	33.95	10.72
Incertitude-type combinée (Bq/kg)	0.43	0.064	0.11	1.79	1.6	0.22	0.21	0.19	0.20	0.33

Les concentrations radioactives sont plutôt faibles et l'échantillon ne constitue donc pas une solution étalon.

Contrôle des prescriptions de l'ADR pour l'envoi

Les flacons envoyés aux participants avaient une activité totale inférieure à la limite de libération LL de l'ordonnance sur la radioprotection ORaP. Ils avaient aussi un indice de transport selon l'ADR 2016 bien inférieur à 1 (limite pour un transport exempté). Ceci a permis de les transmettre par les services de la poste.

Corrections d'autoatténuation

Comme l'échantillon est composé d'eau, l'autoatténuation des rayons gamma est identique à celle dans l'eau lors de l'étalonnage du détecteur. Il n'y a pas de correction à appliquer.

Corrections de sommations dues aux coïncidences vraies

Ce type de sommations est dû aux événements où deux photons d'énergie E_1 et E_2 émis simultanément par le radionucléide sont détectés ensemble dans le détecteur, ce que l'on

dénomme *coïncidences vraies*. Il s'ensuit une perte du nombre de coups dans les pics correspondants à E_1 et E_2 , et on observe des coups supplémentaires à l'énergie $E=E_1+E_2$.

Il n'y a pas ou peu d'effets de sommations γ - γ et γ -X pour Mn-54, Co-57, Cd-109, I-131, Cs-137 et Am-241.

Pour Ba-133, Cs-134 et Eu-152, il y a des lignes gamma (et/ou des rayons X) émises en coïncidence.

Quand l'échantillon est dans une position proche du détecteur, le risque de détection simultanée des gammas devient notable. L'erreur peut atteindre 10%, voire plus, selon la géométrie de mesure. Pour éviter ce phénomène, il faut placer la source à une distance suffisamment grande du détecteur (>15 cm) et disposer de la courbe d'efficacité correspondante. Mais ceci était difficile avec cet échantillon peu radioactif.

Certains logiciels de spectrométrie gamma permettent de faire cette correction directement, et d'autres logiciels dédiés permettent de calculer les facteurs de correction (EFFTRAN, ETNA, Genie 2K Labsocs, Gespecor, InterWinner, ...).

3. Résultats et discussion

Comme indiqué plus haut, l'objectif était d'analyser un échantillon produisant un spectre avec un bon nombre de pics, d'identifier les 10 radionucléides présents et de quantifier leur activité. Le spectre typique est illustré à la Figure 1.

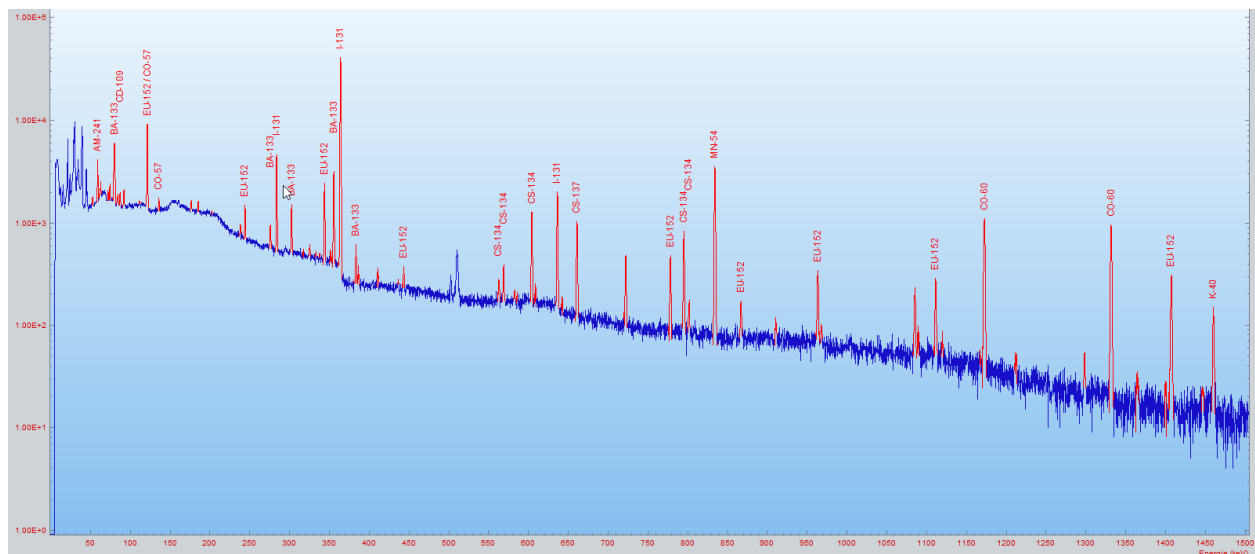


Figure 1. Allure du spectre de l'échantillon de l'intercomparaison

3.1. Résultats communiqués par les participants

Les laboratoires ont reçu un formulaire de protocole de résultats sur lequel ils ont fournis aussi des indications concernant leur détecteur et leur méthode de mesure (les informations du Tableau 1).

Le Tableau 4 présente l'ensemble des concentrations radioactives en Bq/kg et des incertitudes élargies relatives U (à $k=2$) communiquées par les laboratoires. Le numéro d'échantillon identifie le participant.

Tableau 4. Résultats communiqués par les participants pour Mn-54, Co-57, Co-60 et Cd-109

Echant. No	Mn-54		Co-57		Co-60		Cd-109	
	Activité (Bq/kg)	U ($k=2$) (%)	Activité (Bq/kg)	U ($k=2$) (%)	Activité (Bq/kg)	U ($k=2$) (%)	Activité (Bq/kg)	U ($k=2$) (%)
1	43.63	3.2%	6.16	12.6%	21.83	3.2%	9.81	54.9%
2	45.9	10.0%	6.1	23.4%	22.7	10.2%	24.1	23.2%
3	42.1	6%	7.3	14%	21.5	4%	21.6	20%
4	41.9	8.9%	4.4	50.7%	21.1	8.8%	18.1	48.1%
5	44	12%	7	51%	23	10%	10	78%
6	44	15%	7.0	20%	23	15%	28	15%
7	43.5	2.24%	5.61	4.60%	21.5	1.83%	-	-
8	42.0	10.14%	5.86	20.53%	21.0	8.03%	15.3	36.39%
9	43.6	3.9%			22.0	3.2%	-	-
10	43.1	3.7%	4.9	73%	21.4	3.6%	17.2	58%
11	42	10%	6	10%	21	10%	18	30%
12	42.4	10%	4.5	10%	21.6	10%	19	41%
13	42.9	10%	11.2	20%	21.3	10%	-	-
14	41.7	3%	6.2	5%	18.9	3%	-	-
15	46	7.3%	5.0	75%	20.9	7.6%	-	-
16	43.2	11.2%	6.5	20.8%	22.3	5.8%	22.4	23.2%
17	41.4	4.0%	6.5	13.0%	21.50	4.0%	19.6	37.8%
18	41.5	10.3%	6.9	11.8%	21.1	10.4%	-	-
19	47	10%	5.8	20%	22.5	10%	21	60%
20	41.75	3.7%	6.227	10.0%	21.12	3.6%	-	-
21	43.83	10.7%	6.649	20.3%	21.69	10.6%	14.14	48.0%
Moyenne	43.2		6.3		21.6		18.4	
Éc.-t. relatif	4%		22%		4%		27%	
Maximum	47.0		11.2		23.0		28.0	
Minimum	41.4		4.4		18.9		9.8	

Tableau 5. Résultats communiqués par les participants pour I-131, Ba-133, Cs-134 et Cs-137

Echant. No	I-131		Ba-133		Cs-134		Cs-137	
	Activité (Bq/kg)	U (k=2) (%)	Activité (Bq/kg)	U (k=2) (%)	Activité (Bq/kg)	U (k=2) (%)	Activité (Bq/kg)	U (k=2) (%)
1	74.41	3.7%	21.23	4.2%	10.07	4.2%	10.49	5.3%
2	75.9	10.6%	22.0	10.8%	10.5	10.4%	11.2	10.6%
3	72.1	5%	24.8	5%	10.7	5%	10.4	8%
4	73.9	10.0%	22.5	8.9%	10.6	9.2%	10.6	9.3%
5	73	16%	23	16%	11	12%	11	13%
6	69	20%	20	15%	9.9	15%	11.0	15%
7	67.8	2.03%	18.8	1.98%	9.54	1.74%	10.6	2.44%
8	71.4	8.54%	21.3	5.58%	10.1	6.30%	10.6	10.73%
9	75.9	4.3%	24.0	4.6%	11.0	5.5%	10.9	5.6%
10	72.3	2.2%	22.2	3.2%	10.7	5%	10.5	4.7%
11	72	10%	22	10%	10	10%	10	10%
12	70.2	10%	20.8	10%	10.5	10%	10.7	10%
13	74.0	10%	22.6	10%	11.1	10%	10.8	10%
14	69.6	2%	21.6	3%	8.7	3%	10.6	3%
15	70.5	7.3%	28.1	8.2%	12.0	8.3%	11.1	10.1%
16	63.5	10.0%	24.3	9.6%	10.8	8.8%	10.5	12.4%
17	80.0	5.4%	21.9	11.1%	10.3	8.3%	9.7	3.7%
18	74.1	10.2%	22.9	10.9%	11.1	10.9%	10.5	11.6%
19	75	10%	23	10%	11	10%	11.6	10%
20	72.73	2.7%	21.52	2.6%	9.281	3.1%	10.36	4.6%
21	66.60	7.2%	21.18	6.1%	9.073	7.2%	10.59	11.7%
Moyenne	72.1		22.4		10.4		10.7	
Éc.-t. relatif	5%		9%		8%		4%	
Maximum	80.0		28.1		12.0		11.6	
Minimum	63.5		18.8		8.7		9.7	

Tableau 6. Résultats communiqués par les participants pour Eu-152 et Am-241

Echant. No	Eu-152		Am-241		Correction de sommation
	Activité (Bq/kg)	U (k=2) (%)	Activité (Bq/kg)	U (k=2) (%)	
1	32.18	3.4%	10.42	22.5%	non
2	40.0	10.6%	11.2	14.8%	non
3	35.5	4%	9.7	20%	non
4	32.6	9.2%	9.1	31.2%	oui EFFTRAN
5	34	17%	10	35%	oui
6	33	10%	9.9	10%	non
7	31.0	1.47%	9.93	3.29%	non
8	30.8	3.84%	10.5	18.19%	oui InterWinner
9	35.6	3.7%	-	-	oui Geant4 et Nucleonica
10	33.8	3.3%	9.5	13%	oui Monte-Carlo
11	34	10%	11	50%	non
12	35	10%	9.4	21%	oui Co-60 1.05 Cs-134 1.08 et Eu-152 1.07
13	33.2	10%	-	-	oui Labsocs/Genie2k
14	31.9	2%	13.3	4%	oui GeSpecor 4.2
15	35.3	7.4%	-	-	non
16	34.3	7.8%	10.7	20.4%	non
17	30.9	4.7%	9.4	42.5%	non
18	32.4	10.3%	10.8	11.9%	oui Co-60 Cs-134 Ba-133 et Eu-152
19	34.7	10%	11	20%	oui et non
20	29.29	2.1%	10.69	9.7%	non
21	31.53	11.3%	10.14	16.5%	non
Moyenne	33.4		10.4		
Éc.-t.relatif	7%		9%		
Maximum	40.0		13.3		
Minimum	29.3		9.1		

Deux laboratoires ont utilisé plusieurs détecteurs et ont donné la moyenne des activités.

Certains laboratoires ont indiqué encore d'autres radionucléides, généralement avec de grandes incertitudes (K-40, Xe-133, Pb-210, Ra-226, Am-243, Cm-243). Aucun d'eux n'avait été introduit dans l'échantillon.

3.2. Méthode d'analyse des résultats

Le rapport R de la valeur mesurée à la valeur de référence a été calculé pour chaque résultat :

$$R = \frac{\text{valeur mesurée}}{\text{valeur de référence}}$$

Les valeurs de ce rapport sont données dans le Tableau 7.

Afin de juger des résultats, on a utilisé l'outil statistique du score ζ (zêta). Celui-ci tient compte non seulement de l'écart par rapport à la valeur de référence dans le jugement de la performance,

mais incorpore aussi l'évaluation de l'incertitude donnée par le participant. Ce score est défini par la relation :

$$\zeta = \frac{A_{mes} - A_{ref}}{\sqrt{u_{mes}^2 + u_{ref}^2}}$$

où A_{mes} est la concentration radioactive mesurée par le participant, A_{ref} est la concentration radioactive de référence, la valeur de u_{mes} est l'incertitude-type communiquée par le participant (c'est-à-dire l'incertitude U à $k=2$ du Tableau 7 divisée par 2) et u_{ref} est l'incertitude-type de la valeur de référence de l'intercomparaison (incertitude U du Tableau 3 divisée par 2).

La valeur du score ζ s'interprète de la manière suivante :

- Quand le score ζ est situé entre -2.0 et +2.0, cela indique une performance adéquate et aucun signal particulier n'est donné.
- Quand le score ζ est situé entre -3.0 et -2.0 ou entre 2.0 et 3.0, cela indique une performance discutable et un avertissement est signalé (WARNING).
- Quand le score ζ est au-dessus de 3.0 ou en dessous de -3.0, cela signale qu'il faut procéder à une amélioration ou action corrective (ACTION).

Le Tableau 7 présente les valeurs du rapport *mesuré/référence* et du score ζ calculées pour chaque résultat.

Tableau 7. Rapport mesuré/référence, valeurs des incertitudes absolues et valeurs du score zêta. On indique aussi si le laboratoire a appliqué une correction pour les effets des sommations

Ech. No	Rapport R mesuré / référence			Incertitude élargie absolue $U (k=2)$			Score zêta ζ			Corr. somm.
	Mn-54 (-)	Co-57 (-)	Co-60 (-)	Mn-54 (Bq/kg)	Co-57 (Bq/kg)	Co-60 (Bq/kg)	Mn-54 (-)	Co-57 (-)	Co-60 (-)	
1	1.02	0.96	1.00	1.40	0.78	0.70	1.0	-0.7	-0.1	non
2	1.07	0.95	1.04	4.59	1.43	2.32	1.3	-0.5	0.7	non
3	0.98	1.14	0.98	2.53	1.02	0.86	-0.6	1.7	-0.8	non
4	0.98	0.68	0.97	3.73	2.23	1.86	-0.5	-1.8	-0.8	oui
5	1.03	1.09	1.05	5.28	3.57	2.30	0.4	0.3	1.0	oui
6	1.03	1.09	1.05	6.60	1.40	3.45	0.3	0.8	0.7	non
7	1.01	0.87	0.98	0.97	0.26	0.39	1.1	-6.2	-1.8	non
8	0.98	0.91	0.96	4.26	1.20	1.69	-0.4	-0.9	-1.0	oui
9	1.02	-	1.01	1.70	-	0.70	0.8	-	0.4	oui
10	1.00	0.76	0.98	1.59	3.58	0.77	0.2	-0.9	-1.2	oui
11	0.98	0.93	0.96	4.20	0.60	2.10	-0.4	-1.4	-0.8	non
12	0.99	0.70	0.99	4.24	0.45	2.16	-0.2	-8.5	-0.2	oui
13	1.00	1.74	0.97	4.29	2.24	2.13	0.0	4.3	-0.5	oui
14	0.97	0.96	0.86	1.25	0.31	0.57	-1.8	-1.5	-10.3	oui
15	1.07	0.78	0.96	3.36	3.75	1.59	1.8	-0.8	-1.2	non
16	1.01	1.01	1.02	4.84	1.35	1.29	0.1	0.1	0.7	non
17	0.96	1.01	0.98	1.66	0.85	0.86	-1.8	0.2	-0.8	non
18	0.97	1.07	0.97	4.27	0.81	2.19	-0.7	1.1	-0.7	oui
19	1.10	0.90	1.03	4.70	1.16	2.25	1.7	-1.1	0.6	oui
20	0.97	0.97	0.97	1.54	0.62	0.76	-1.5	-0.7	-1.9	non
21	1.02	1.03	0.99	4.69	1.35	2.30	0.4	0.3	-0.1	non
Moy.	1.007	0.978	0.987							
Ec-t.	0.04	0.22	0.04							
Min	0.96	0.68	0.86							
Max	1.10	1.74	1.05							

Tableau 8. Rapport mesuré/référence, valeurs des incertitudes absolues et valeurs du score zêta. On indique aussi si le laboratoire a appliqué une correction pour les effets des sommations

Ech. No	Rapport R mesuré / référence			Incertitude élargie absolue U ($k=2$)			Score zêta ζ			Corr. somm.
	Cd-109 (-)	I-131 (-)	Ba-133 (-)	Cd-109 (Bq/kg)	I-131 (Bq/kg)	Ba-133 (Bq/kg)	Cd-109 (-)	I-131 (-)	Ba-133 (-)	
1	0.44	1.02	0.97	5.39	2.75	0.89	-4.4	1.1	-1.4	non
2	1.08	1.04	1.01	5.59	8.05	2.38	0.6	0.8	0.1	non
3	0.97	0.99	1.13	4.32	3.61	1.24	-0.3	-0.3	4.7	non
4	0.81	1.02	1.03	8.71	7.39	2.00	-1.0	0.3	0.6	oui
5	0.45	1.00	1.05	7.80	11.68	3.68	-3.1	0.1	0.6	oui
6	1.25	0.95	0.91	4.20	13.80	3.00	2.5	-0.5	-1.2	non
7	-	0.93	0.86	-	1.38	0.37	-	-4.6	-14.2	non
8	0.68	0.98	0.97	5.57	6.10	1.19	-2.4	-0.4	-0.9	oui
9	-	1.04	1.10	-	3.26	1.10	-	1.8	3.8	oui
10	0.77	1.00	1.02	9.98	1.59	0.71	-1.0	-0.3	0.9	oui
11	0.80	0.99	1.01	5.40	7.20	2.20	-1.5	-0.2	0.1	non
12	0.85	0.97	0.95	7.79	7.02	2.08	-0.8	-0.7	-1.0	oui
13	-	1.02	1.03	-	7.40	2.26	-	0.4	0.6	oui
14	-	0.96	0.99	-	1.39	0.65	-	-2.9	-0.8	oui
15	-	0.97	1.29	-	5.15	2.30	-	-0.8	5.4	non
16	1.00	0.87	1.11	5.20	6.35	2.33	0.0	-2.8	2.1	non
17	0.88	1.10	1.00	7.41	4.32	2.43	-0.7	3.2	0.0	non
18	-	1.02	1.05	0.00	7.56	2.50	-	0.4	0.8	oui
19	0.94	1.03	1.05	12.60	7.50	2.30	-0.2	0.6	1.0	oui
20	-	1.00	0.98	-	1.96	0.56	-	0.1	-1.2	non
21	0.63	0.92	0.97	6.79	4.80	1.29	-2.3	-2.4	-1.1	non
Moy.	0.824	0.992	1.023							
Ec-t.	0.23	0.05	0.09							
Min	0.44	0.87	0.86							
Min	1.25	1.10	1.29							

Tableau 9. Rapport mesuré/référence, valeurs des incertitudes absolues et valeurs du score zêta. On indique aussi si le laboratoire a appliqué une correction pour les effets des sommations

Ech. No	Rapport R mesuré / référence			Incertitude élargie absolue U ($k=2$)			Score zêta ζ			Corr. somm.
	Cs-134 (-)	Cs-137 (-)	Eu-152 (-)	Cs-134 (Bq/kg)	Cs-137 (Bq/kg)	Eu-152 (Bq/kg)	Cs-134 (-)	Cs-137 (-)	Eu-152 (-)	
1	0.95	0.99	0.95	0.42	0.56	1.09	-2.4	-0.3	-3.2	non
2	0.99	1.06	1.18	1.09	1.19	4.24	-0.2	1.1	2.9	non
3	1.01	0.98	1.05	0.54	0.83	1.42	0.2	-0.4	2.2	non
4	1.00	1.00	0.96	0.98	0.99	3.00	-0.1	0.1	-0.9	oui
5	1.03	1.04	1.00	1.32	1.43	5.78	0.5	0.6	0.0	oui
6	0.93	1.04	0.97	1.49	1.65	3.30	-1.0	0.5	-0.6	non
7	0.90	1.00	0.91	0.17	0.26	0.46	-8.1	0.2	-11.8	non
8	0.95	1.00	0.91	0.64	1.14	1.18	-1.6	0.1	-5.2	oui
9	1.03	1.03	1.05	0.61	0.61	1.32	1.1	1.0	2.5	oui
10	1.01	0.99	1.00	0.58	0.49	1.12	0.2	-0.2	-0.3	oui
11	0.94	0.95	1.00	1.00	1.00	3.40	-1.2	-1.1	0.0	non
12	0.99	1.01	1.03	1.05	1.07	3.50	-0.3	0.2	0.6	oui
13	1.04	1.02	0.98	1.11	1.08	3.32	0.8	0.4	-0.4	oui
14	0.82	1.00	0.94	0.26	0.32	0.64	-11.5	0.2	-6.1	oui
15	1.13	1.05	1.04	1.00	1.12	2.61	2.7	0.9	1.0	non
16	1.02	0.99	1.01	0.95	1.30	2.68	0.3	-0.1	0.3	non
17	0.97	0.92	0.91	0.85	0.36	1.45	-0.8	-4.3	-4.2	non
18	1.04	0.99	0.95	1.21	1.22	3.34	0.8	-0.1	-0.9	oui
19	1.03	1.10	1.02	1.10	1.16	3.47	0.6	1.8	0.4	oui
20	0.87	0.98	0.86	0.29	0.48	0.62	-7.6	-0.8	-14.4	non
21	0.85	1.00	0.93	0.65	1.24	3.56	-4.6	0.0	-1.4	non
Moy.	0.976	1.009	0.983							
Ec-t.	0.07	0.04	0.07							
Min	0.82	0.92	0.86							
Max	1.13	1.10	1.18							

Tableau 10. Rapport mesuré/référence, valeurs des incertitudes absolues et valeurs du score zêta. On indique aussi si le laboratoire a appliqué une correction pour les effets des sommations

Ech. No	Rapport R mesuré / référence	Incertitude élargie absolue U ($k=2$)	Score zêta ζ	Corr. somm.
	Am-241 (-)	Am-241 (Bq/kg)	Am-241 (-)	
1	0.97	2.34	-0.3	non
2	1.04	1.66	0.6	non
3	0.90	1.94	-1.0	non
4	0.85	2.84	-1.1	oui
5	0.93	3.50	-0.4	oui
6	0.92	0.99	-1.6	non
7	0.93	0.33	-4.4	non
8	0.98	1.91	-0.2	oui
9	-	0.00	-	oui
10	0.89	1.24	-1.9	oui
11	1.03	5.50	0.1	non
12	0.88	1.97	-1.3	oui
13	-	0.00	-	oui
14	1.24	0.53	8.3	oui
15	-	0.00	-	non
16	1.00	2.18	0.0	non
17	0.88	4.00	-0.7	non
18	1.01	1.29	0.1	oui
19	1.03	2.20	0.3	non
20	1.00	1.04	-0.1	non
21	0.95	1.67	-0.7	oui
Moy.	0.968			
Ec-t.	0.09			
Max	1.24			
Min	0.85			

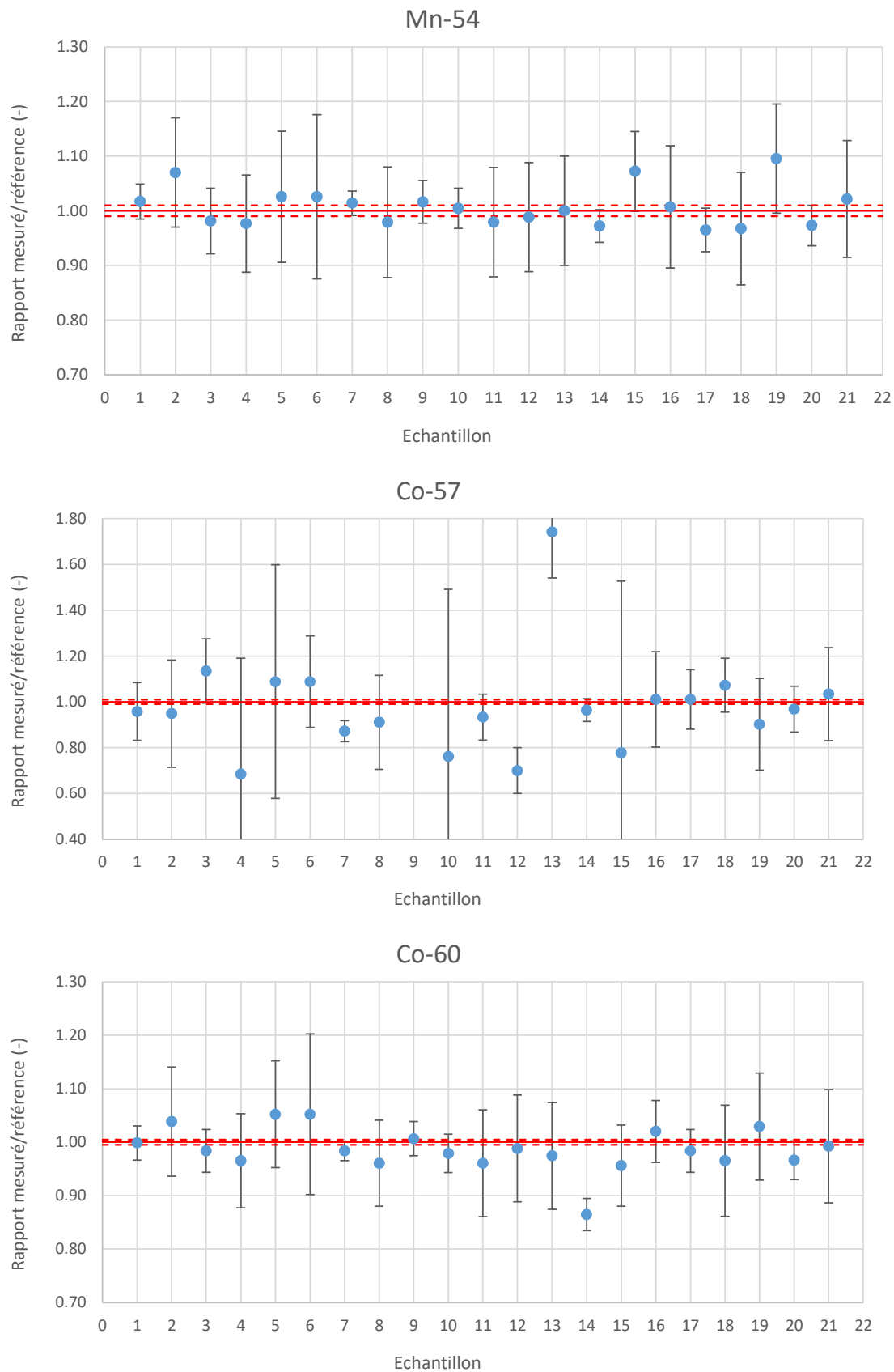


Figure 2. Rapport mesuré/référence selon les résultats communiqués par les participants et incertitudes élargies à $k=2$. Les lignes horizontales représentent les valeurs de référence et leurs incertitudes élargies à $k=2$.

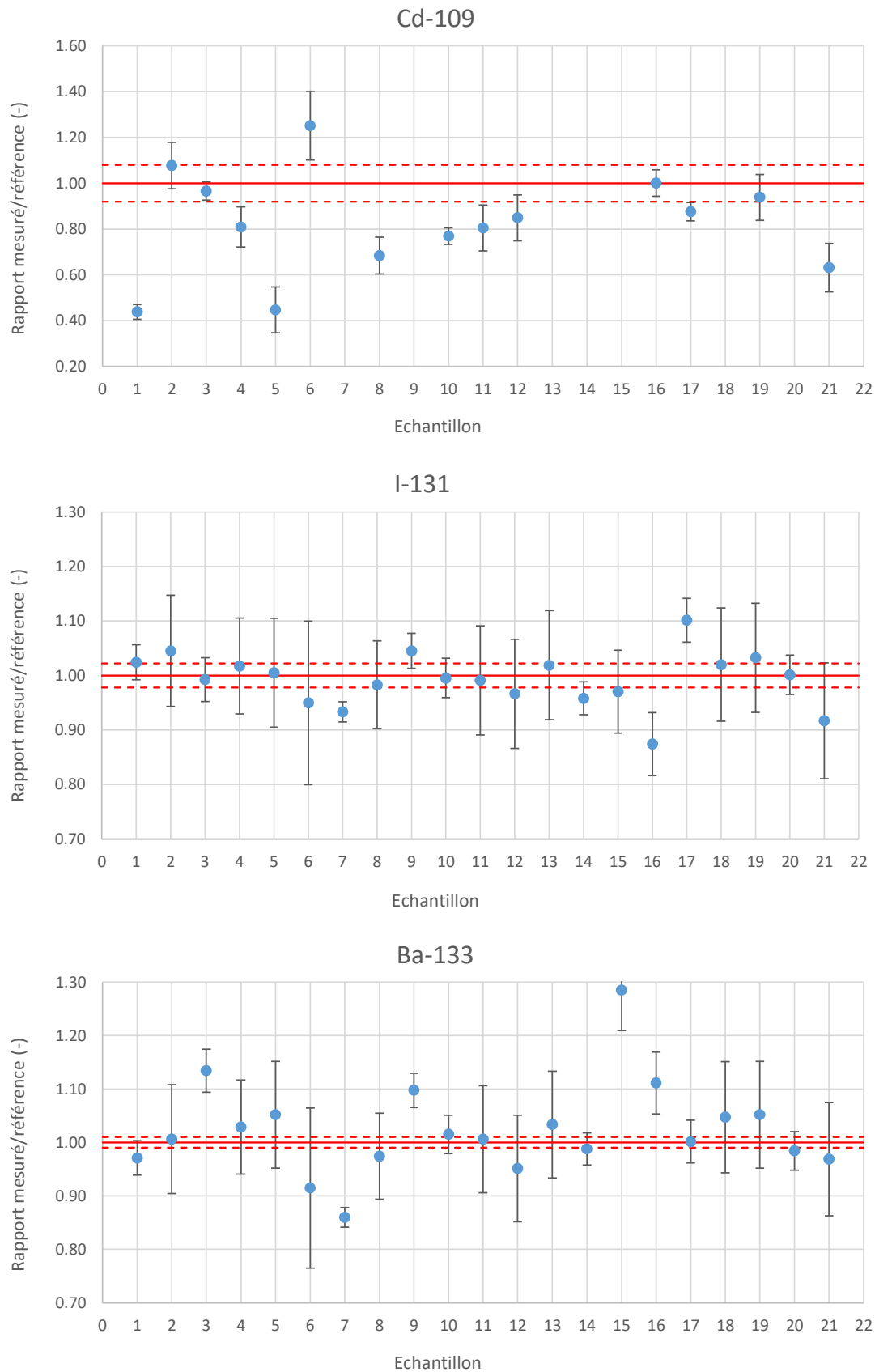


Figure 3. Rapport mesuré/référence selon les résultats communiqués par les participants et incertitudes élargies à $k=2$. Les lignes horizontales représentent les valeurs de référence et leurs incertitudes élargies à $k=2$.

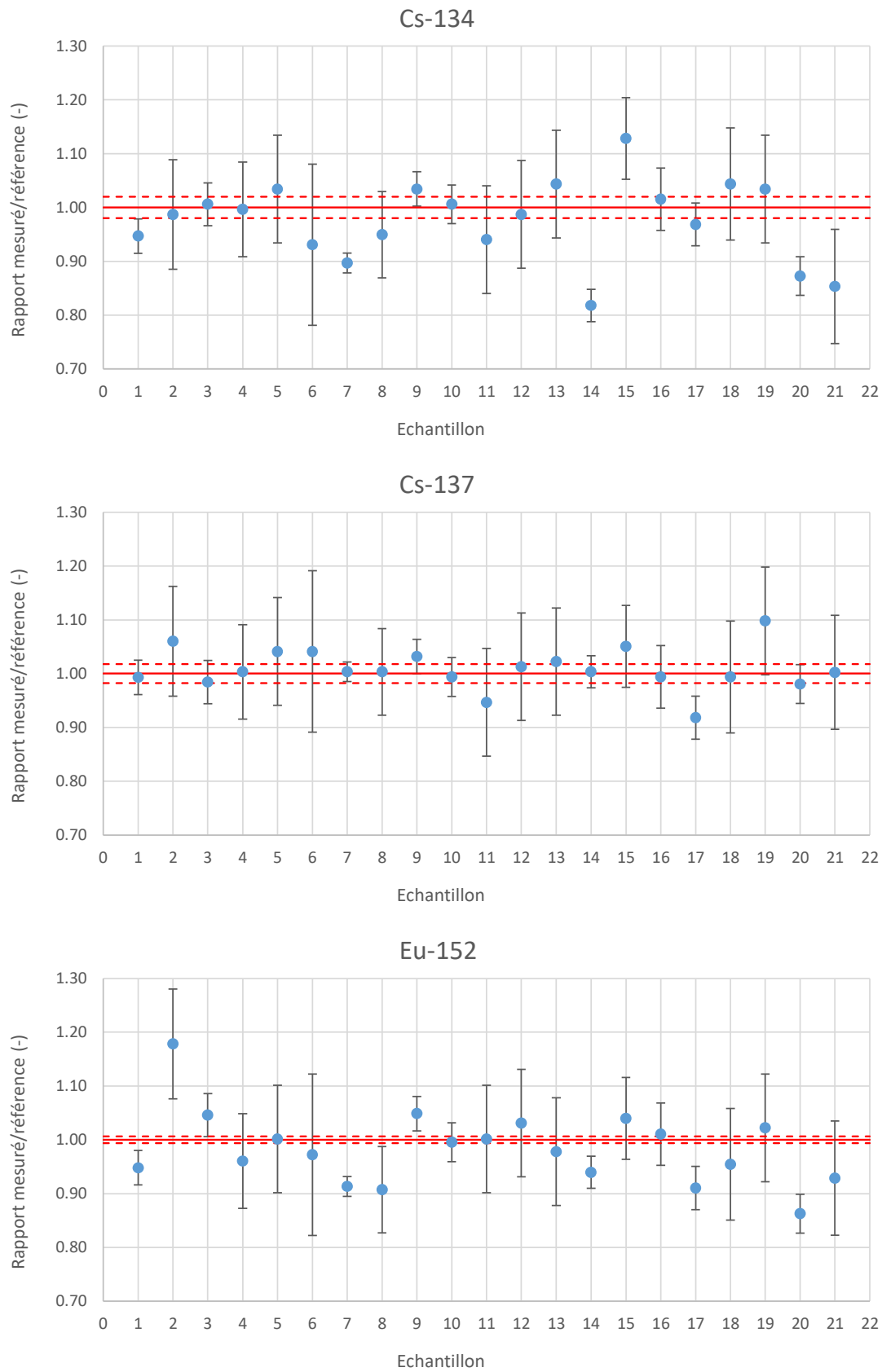


Figure 4. Rapport mesuré/référence selon les résultats communiqués par les participants et incertitudes élargies à k=2. Les lignes horizontales représentent les valeurs de référence et leurs incertitudes élargies à k=2.

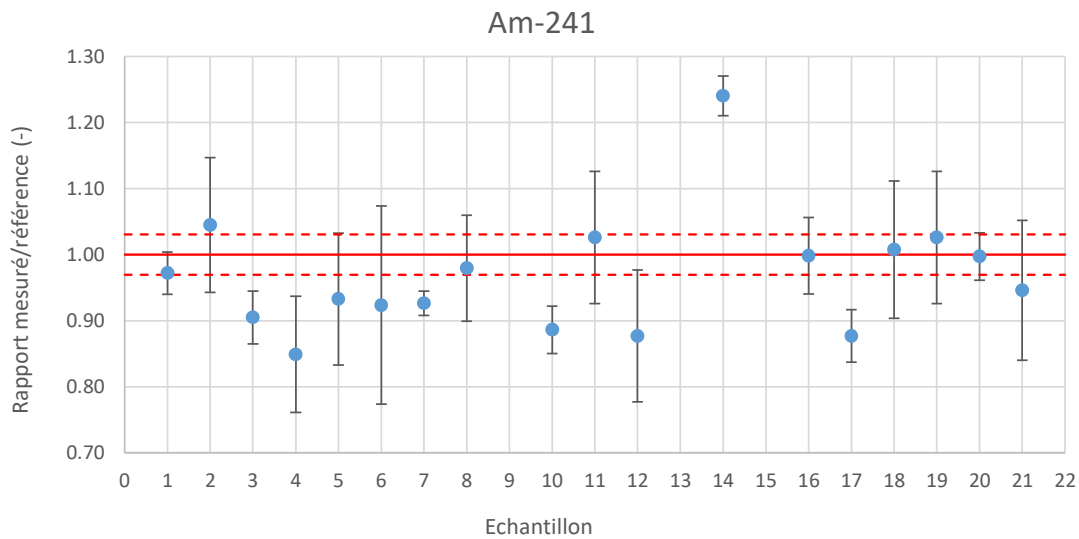


Figure 5. Rapport mesuré/référence selon les résultats communiqués par les participants et incertitudes élargies à $k=2$. Les lignes horizontales représentent les valeurs de référence et leurs incertitudes élargies à $k=2$.

3.3. Discussion des résultats

Mn-54

La détermination de l'activité du Mn-54 n'était pas difficile, il n'y a pas de sommations à corriger. Tous les participants ont obtenu de bons résultats.

Co-57

La détermination de l'activité du Co-57 était compliquée par la présence d'Eu-152 à une énergie très proche : 122.06 keV pour Co-57 et 121.78 keV pour Eu-152. Ces 2 pics ne sont pas résolus par les détecteurs.

Les autres lignes de ces 2 radionucléides permettaient de résoudre cette interférence.

Les valeurs des participants 7, 12 et 13 reçoivent une mention ACTION. Pour le 7, l'incertitude est vraisemblablement trop faible. Pour le 13, l'écart à la référence est grand ; il faudrait peut-être vérifier la courbe d'efficacité à cette énergie-là.

Le participant 9 n'a pas relevé la présence du Co-57.

Co-60

La mesure précise du Co-60 nécessite des corrections de sommations, mais sinon la détermination de l'activité du Co-60 était relativement simple. Tous les participants ont obtenu de bons résultats, sauf le 14. La valeur est sous-estimée de 14%, bien que des corrections de sommations soient appliquées.

La moyenne des participants s'écarte de -1.3% de la référence, probablement à cause de l'absence de correction de sommation par 11 participants sur 21.

Cd-109

L'activité du Cd-109 était la plus difficile à déterminer car elle était basse et l'intensité de la seule ligne γ à 88.0 keV est faible. De plus, l'énergie est proche de celles des RX de fluorescence émis dans le plomb du blindage.

14 participants sur 21 ont identifié le Cd-109 dans l'échantillon et 9 d'entre eux ont donné un résultat irréprochable. Les autres résultats sont plutôt sous-estimés, en particulier les no 1 et 5 qui devraient contrôler leur étalonnage et leur détermination de l'incertitude.

Le niveau d'activité exigeait une mesure suffisamment longue (> 24 heures). C'est peut-être pour cette raison que 7 participants n'ont pas observé sa présence.

I-131

L'activité de l'I-131 était la plus élevée dans l'échantillon (au moment de la réception). Sa détermination ne posait pas de difficulté particulière. Les résultats sont irréprochables pour 16 participants sur 21. Trois résultats (14, 16 et 21) ne sont pas tout à fait cohérents avec la référence. Et deux d'entre eux (7 et 17) incitent à revoir l'étalonnage et la détermination de l'incertitude.

Ba-133

La mesure précise du Ba-133 nécessite des corrections de sommations. Quatre résultats s'écartent nettement de la référence (3, 7, 9 et 15) et un plus légèrement. L'absence de corrections de sommations provoque une sous-estimation d'activité. C'est peut-être le cas pour le no 7, au moins pour une partie de l'écart.

Notons que pour une raison inconnue, la moyenne des participants s'écarte de +2.3% de la référence alors qu'on attend plutôt une sous-estimation.

Cs-134

La mesure précise du Cs-134 nécessite des corrections de sommations. On relève 4 résultats nettement différents de la référence (7, 14, 20 et 21) et deux légèrement différents (1 et 15). Pour les laboratoires 7, 20 et 21, c'est peut-être dû à l'absence de corrections de sommations.

La moyenne des participants est à -2.4% de la référence. Là aussi, on peut dire que ce biais est probablement lié au fait que la moitié des participants n'ont pas appliqué de corrections pour les effets des sommations, ce qui entraîne une sous-estimation de l'activité mesurée.

Cs-137

Pour le Cs-137, les performances sont bonnes. Seul un résultat (17) devrait être réexaminé. La moyenne des participants se trouve à 0.9% seulement de la référence.

Eu-152

La mesure précise de l'activité de l'Eu-152 nécessite des corrections de sommations, ce qui n'est effectué que par la moitié des participants. Ceci se reflète dans la moyenne des participants qui s'écarte de -1.7% de la référence.

Six résultats demandent un réexamen de la méthode d'analyse (1, 7, 8, 14, 17 et 20). Trois demandent une vérification (2, 3 et 9). Pourtant, pour les laboratoires 8, 9 et 14, les sommations ont apparemment été prises en compte.

Am-241

La majorité des résultats sont corrects. Trois participants n'ont pas rapporté de valeurs pour ce radionucléide (9, 13 et 15). Ils n'ont peut-être pas étalonné leur détecteur jusqu'à l'énergie de l'Am-241 (60 keV). Deux résultats s'écartent nettement de la référence (7 et 14). Pour le 14, l'écart à la référence est élevé et pour le 7, c'est probablement l'incertitude qui est sous-estimée.

La moyenne des participants est à -3.2% de la référence. Cela montre la plus grande difficulté de mesurer ce radionucléide.

Tous les radionucléides

Le résumé des performances en termes de score zêta, est donné dans le Tableau 11 pour chaque radionucléide. On constate que 77% des résultats rapportés par les participants sont irréprochables. Dans 6% des cas, la performance pourrait être améliorée. Dans 12% des cas, une action correctrice serait souhaitable, comme le contrôle de l'étalonnage en efficacité, des données de la bibliothèque de radionucléides, du calcul des incertitudes, de l'introduction de corrections de sommation, de la préparation de l'échantillon et du respect de la géométrie de mesure, etc.

Tableau 11. Nombres de cas observés dans chaque catégorie de score zêta (et des radionucléides non mesurés)

Performance	Mn-54	Co-57	Co-60	Cd-109	I-131	Ba-133	Cs-134	Cs-137	Eu-152	Am-241	Relatif
OK	21	17	20	9	16	16	15	20	12	16	77%
WARNING	0	0	0	3	3	1	2	0	3	0	6%
ACTION	0	3	1	2	2	4	4	1	6	2	12%
Pas mesuré	0	1	0	7	0	0	0	0	0	3	5%

Performance globale de chaque participant

Dans le but d'offrir aux participants la possibilité de détecter les problèmes dans leur méthode (et non pas pour stigmatiser certains d'entre eux !), nous avons cherché un indicateur de la performance globale de chaque laboratoire lors de cet exercice.

Pour ceci, nous avons calculé la somme des valeurs absolues des scores zêta obtenus pour les 10 radionucléides. Le *score zêta moyen* est ensuite calculé en divisant la somme par le nombre de radionucléides mesurés (la non-observation d'un radionucléide n'est pas pénalisante). Le résultat de chaque laboratoire est illustré dans la Figure 6.

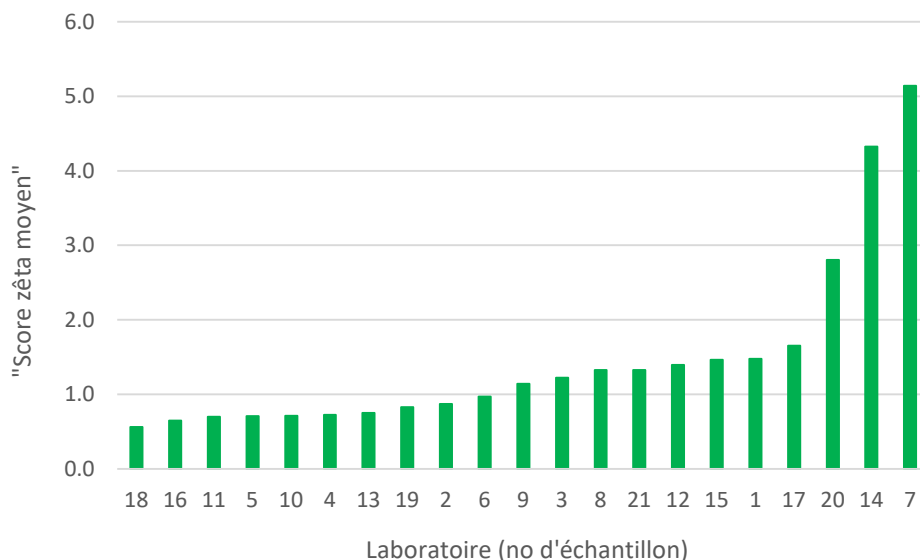


Figure 6. Score zêta moyen obtenu par les participants

Toujours avec les mêmes critères de ± 2 et ± 3 pour zêta, on observe que 18 participants ont un score moyen inférieur à 2 (en ordre), un participant est entre 2 et 3 (Warning), et 2 participants sont au-dessus de 3 (Action).

Autrement dit, les performances moyennes, ou globales, de 18 participants sur 21 sont bonnes. Dans les 3 autres cas, une analyse devrait être faite pour améliorer ou corriger la méthode de travail.

Pour le no 7, on voit clairement sur les graphiques que le problème se trouve dans l'estimation des incertitudes. Elles sont sous-estimées et ceci pénalise la performance. Les écarts par rapport à la référence sont, eux, tout à fait dans la norme.

La raison est la même pour le no 14. Ce sont les résultats pour Am-241 et Cs-134, dont les incertitudes sont trop basses, qui abaissent nettement la performance globale.

Pour le no 20 aussi, il faudrait réévaluer les incertitudes. Il semble en particulier que pour Cs-134 et Eu-152, où les corrections de sommation n'ont pas été effectuées alors qu'elles sont souhaitables, les incertitudes devraient être augmentées. L'idée étant qu'on peut renoncer à appliquer telle ou telle correction à un résultat de mesure mais qu'il faut en tenir compte dans le budget d'incertitudes.

4. Conclusions

Vingt et un laboratoires ont pris part à l'intercomparaison 2020 et ont fourni des résultats. Les participants ont analysé soigneusement le spectre à la recherche de tous les radionucléides présents et, dans la majorité des cas, ont fourni une valeur d'activité correcte.

Ainsi dans 77% des cas, le résultat rapporté est conforme aux performances qu'on attend de la spectrométrie γ avec détecteur HPGe et aux procédures d'analyses standard selon les critères du score zêta adoptés.

Dans 7% des cas, la valeur indiquée est discutable et mérite un réexamen parce que l'écart à la référence dépasse les simples fluctuations statistiques compte tenu des incertitudes indiquées.

Dans 12% des cas, le résultat est critiquable et une action correctrice est nécessaire. Il semble que les incertitudes sont trop faibles dans plusieurs cas. Lorsqu'on renonce à appliquer les corrections de sommations, par exemple, il faut augmenter l'incertitude du résultat. Les logiciels récents permettent d'introduire une composante supplémentaire d'incertitude dans les paramètres de l'analyse.

Dans 5% des cas, le radionucléide n'a pas été rapporté par le participant (Cd-109, Am-241 ou Co-57). Soit parce qu'il n'a pas été détecté, soit parce que le participant ne dispose pas de l'étalonnage en efficacité jusqu'à l'énergie de l'Am-241 (60 keV). Pour le Cd-109, il est possible que le niveau d'activité de l'échantillon était proche de la limite de détection de certains équipements ou procédures de mesure.

On peut dire que le niveau de performance général est semblable à celui des années précédentes. A nouveau il apparaît que la majorité des laboratoires disposent d'installation relativement récentes, bien étalonnées et régulièrement suivies. Les logiciels utilisés et les versions sont assez variés. De plus, une petite moitié des laboratoires ont la possibilité de déterminer et d'appliquer des corrections fines pour les effets des sommations.

5. Remerciements

Les organisateurs tiennent à remercier chaleureusement les participants pour le soin qu'ils ont apporté au bon déroulement de cette campagne de mesure.

Ils remercient leurs collègues de IRA-METAS, F. Juget et Y. Nedjadi, pour la mise à disposition de solutions radioactives certifiées, ainsi que C. Moratal pour la préparation des échantillons.

6. Annexe : liste des participants

Herr Rolf Althaus
Labor Spiez
Gruppe Radioaktivität
Austrasse
3700 Spiez
058 481 87 57 / rolf.althaus@babs.admin.ch

Herr Robert Brogioli
Dienststelle Lebensmittelkontrolle und
Verbraucherschutz (DILV)
Chemie 1
Vonmattstrasse 16
6003 Luzern
041 248 84 05 / robert.brogioli@lu.ch

Monsieur Giovanni Ferreri
OFSP
Division Radioprotection
Radioactivité de l'environnement
Schwarzenburgstr. 157
3003 Bern
058 465 19 12 / giovanni.ferreri@bag.admin.ch

Herr Claudius Gemperle
Kanton Aargau DGS
Amt für Verbraucherschutz
Lebensmittelkontrolle
Obere Vorstadt 14
5000 Aarau
062 835 30 55 / claudius.gemperle@ag.ch

Herr Martin Heule
Paul Scherrer Institut
Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit
(ASI)
Radioanalytik
5232 Villigen - PSI
056 310 31 52 / martin.heule@psi.ch

Monsieur Fabrice Malacrida
CERN
HSE-RP-CS
24/E-003
1211 Genève 23
075 411 01 08 / fabrice.malacrida@cern.ch

Madame Stavroula Pallada
hepia haute école du paysage, d'ingénierie et
d'architecture
Laboratoire de Physique Nucléaire
Rue de la Prairie 4
1202 Genève
022 546 25 26 / stavroula.pallada@cern.ch

Frau Anja Pregler
Kantonales Laboratorium BS
Kannenfeldstrasse 2
4056 Basel
061 385 25 63 / anja.pregler@bs.ch

Herr Dietmar Baumann
Amt für Lebensmittelsicherheit und
Tiergesundheit GR
Ringstrasse 10
Postfach
7001 Chur
081 257 26 24 / dietmar.baumann@alt.gr.ch

Monsieur Marco De Rossa
Laboratorio cantonale
Via Mirasole 22
6500 Bellinzona
091 814 61 65 / marco.derossa@ti.ch

Herr Patrick Franz
Axpo Power AG
KKW Beznau
KBU-C
5312 Döttingen
056 266 73 18 / patrick.franz@axpo.com

Herr Michel Hammans
SUVA
Bereich Physik
Rösslimattstrasse 39
CP 4358
6002 Luzern
041 419 53 42 / michel.hammans@suva.ch

Herr Andreas Leupin
ENSI Eidgenössisches
Nuklearsicherheitsinspektorat
Bereich Strahlenschutz
Industriestrasse 19
5201 Brugg
056 460 86 32 / andreas.leupin@ensi.ch

Frau Susanne Nussbaumer
Kantonales Laboratorium BE
Muesmattstrasse 19
3012 Bern
031 633 11 11 / susanne.nussbaumer@be.ch

Monsieur Eric Poitevin
Centre de Recherche Nestlé
Vers-chez-les-Blanc
Case postale 44
1000 Lausanne 26
021 785 95 45 / eric.poitevin@rdls.nestle.com

Herr Stephan Reber
Kantonales Labor Zürich
Abteilung Elementanalytik
Fehrenstrasse 15
Postfach 1471
8032 Zürich
043 244 71 93 / stephan.reber@klzh.ch

Herr Pascal Rünzi
EAWAG
SURF
Ueberlandstrasse 133
8600 Dübendorf
058 765 55 10 / pascal.ruenzi@eawag.ch

Herr Alexander Schönmann
Kernkraftwerk Gösgen-Däniken AG
Kraftwerkstrasse
4658 Däniken
062 288 31 67 / aschoenmann@kkg.ch

Frau Eva Vogt
Zwilag
Zwischenlager Würenlingen AG
Industriestrasse Beznau 1
5303 Würenlingen
056 297 47 56 / eva.vogt@zwilag.ch

Herr Erich Schmutz
BKW Energie AG
Kernkraftwerk Mühleberg
Ressort Chemie
3203 Mühleberg
058 477 78 95 / erich.schmutz@bkw.ch

Madame Marietta Straub
Institut de radiophysique - CHUV
GCR
Rue du Grand-Pré 1
1007 Lausanne
021 314 81 73 / marietta.straub@chuv.ch
