

OFSP-IRA

Intercomparaison en spectrométrie gamma 2017

canton de
vaud



Office fédéral
de la santé publique

CHUV

Introduction

La section URA de l'OFSP : responsable de la surveillance de la radioactivité dans l'environnement.

L'Institut de radiophysique (IRA) : Designated Institute (DI) de l'unité d'activité (par METAS).

Le thème de l'intercomparaison cette année est la mesure d'un échantillon solide de type TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials).



Bouteilles

Moyenne des 3 bouteilles de type :
 1W254.750 SAP11853 FM 29.07.09
 4W015.750 SAP15542 CV 27.3.10
 1W065.750 SAP28436 GR 3.1.08

Radionucléide	Act moy [Bq/kg]	écart-type [Bq/kg]
K-40	184	19
U-238 et filles	9	1
Ra-226 et filles	10	1
Pb-210, Bi-210, Po-210	< 10-40	
U-235	< 4-10	
Th-232	< 20-40	
Ra-228, Ac-228	< 5-15	
Th-228 et filles	4	1

Technologically
Enhanced
Naturally
Occurring
Radioactive
Materials



Participants

Sur les 29 laboratoires suisses concernés par ce type de mesure, 21 ont participé.

titre	prenom	nom	adresse1	adresse2	adresse3	adresse4	npa	localite	e-mail
Herr	Stephan	Reber	Kantonales Labor Zürich	Abteilung Elementanalytik	Fehrenstrasse 15	Postfach 1471	8032	Zürich	stephan.reber@kizh.ch
Herr	Andreas	Leupin	ENSI Eidgenössisches Nuklearsicherheitsinspektorat	Bereich Strahlenschutz	Industriestrasse 19		5200	Brugg	andreas.leupin@ensi.ch
Monsieur	Fabrice	Malacrida	CERN	DGS - SEE			1211	Genève 23	fabrice.malacrida@cern.ch
Monsieur	Gilles	Triscone	hepia haute ecole du paysage, d'ingénierie et d'architecture	Laboratoire de Physique Nucléaire	Rue de la Prairie 4		1202	Genève	gilles.triscone@hesge.ch
Herr	Dietmar	Baumann	Amt für Lebensmittelsicherheit und Tiergesundheit GR	Planaterrastrasse 11	Postfach		7001	Chur	dietmar.baumann@alt.gr.ch
Monsieur	Marco	Jermini	Laboratorio cantonale	Chimico	Via Mirasole 22		6500	Bellinzona	marco.jermini@ti.ch
Frau	Eva	Vogt	Zwilag	Zwischenlager Würenlingen AG	Industriestrasse Beznau 1		5303	Würenlingen	eva.vogt@zwilag.ch
Herr	Hans	Sahli	Labor Spiez	Gruppe Radioaktivität	Austrasse		3700	Spiez	hans.sahli@babs.admin.ch
Herr	Claudius	Gemperle	Kanton Aargau DGS	Amt für Verbraucherschutz	Lebensmittelkontrolle	Obere Vorstadt 14	5000	Aarau	claudius.gemperle@aag.ch
Herr	Matthias	Brennwald	EAWAG	W+T	Ueberlandstrasse 133	Postfach 611	8600	Dübendorf	matthias.brennwald@eawag.ch
Herr	Markus	Zehninger	Kantonales Laboratorium BS	Kannenfeldstrasse 2	Postfach		4012	Basel	markus.zehninger@bs.ch
Monsieur	Pascal	Froidevaux	Institut de radiophysique	GRE	Rue du Grand-Pré 1		1007	Lausanne	pascal.froidevaux@chuv.ch
Herr	Patrick	Franz	Axpo Power AG	KKW Beznau	KBU-C		5312	Döttingen	patrick.franz@axpo.com
Monsieur	Giovanni	Ferren	OFSP	Section Radioactivité de l'environnement	Schwartzenburgstr. 157		3003	Bern	giovanni.ferren@baq.admin.ch
Monsieur	Michel	Hammans	SUVA	Bereich Physik	Rösslimattstrasse 39	CP 4358	6002	Luzern	michel.hammans@suva.ch
Herr	Enich	Nyfelner	Kantonales Laboratorium BE	Muesmattstrasse 19			3012	Bern	enich.nyfelner@gef.be.ch
Herr	Enich	Schmutz	BKW Energie AG	Kernkraftwerk Mühleberg	Ressort Chemie		3203	Mühleberg	enich.schmutz@bkw.ch
Herr	Rolf	Althaus	Kernkraftwerk Leibstadt AG	Kalteslabor UCK			5325	Leibstadt	rolf.althaus@kkk.ch
Monsieur	Eric	Poitevin	Centre de Recherche Nestlé	Vers-chez-les-Blanc	Case postale 44		1000	Lausanne 26	eric.poitevin@rdls.nestle.com
Herr	Martin	Heule	Paul Scherrer Institut	Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit (ASI)	Radioanalytik		5232	Villigen - PSI	martin.heule@psi.ch
Herr	Robert	Brogioli	Dienststelle Lebensmittelkontrolle und Veterinärwesen (DILV)	Analytik/Qualitätssicherung	Vonmattstrasse 16		6003	Luzern	robert.brogioli@lu.ch

Préparation des échantillons

Les échantillons de l'intercomparaison gamma de cette année ont été obtenus à partir de résidus de filtres d'une usine de traitement du verre.

Matériau initial fortement inhomogène

- Tamisage
- Brassage
- Distribution dans 17 flacons Semadeni 500 ml (type 1742)

La composition du matériau n'est pas connue. Il semble qu'il ne contient pas, ou presque pas, de SiO_2 et qu'il contient du plomb (indications de F. Byrde du LS).

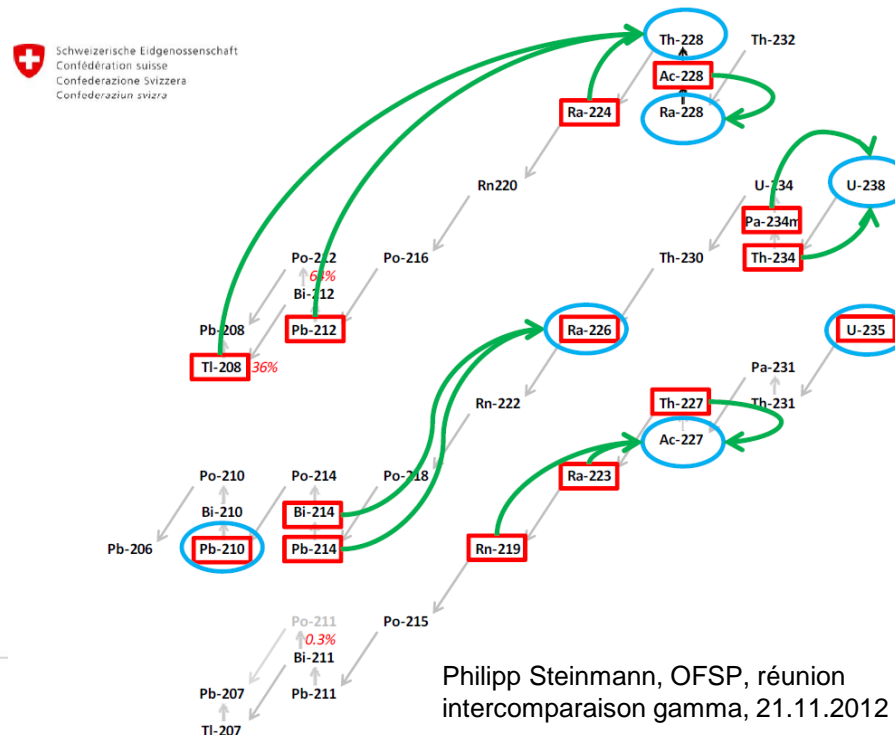
Préparation des échantillons

Contient de la radioactivité d'origine naturelle

Concentration renforcée par les processus industriels

Séries de radioactivité naturelle pas à l'équilibre radioactif.

Production il ya plus de 4 ans → équilibre entre mères et filles à vie courte



Préparation des échantillons

Homogénéité inter-échantillons

Mesure 2 h sur HPGe des 17 éch.
Ecart-type relatif pour les principaux radionucléides → **< 6 %**



Radionucléide	Dispersion des valeurs (1 écart-type)	Incertitude- type (à k=1)
K-40	5%	6%
Ra-226	3%	3%
Pb-214	1%	1.5%
Bi-214	1%	1.5%
Pb-210	6%	7%

Préparation des échantillons

Homogénéité intra-échantillons



Echantillon n°17 → 3 x 40 ml

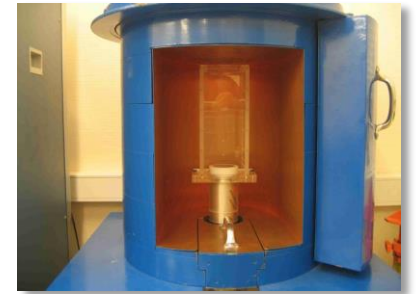
Ces mesures ont montré les points suivants :

- Les activités du Ra-226 et de ses filles sont bien concordantes (e-t 1 %).
- Les activités du K-40 un peu moins (e-t 11 %).
- L'accord entre la mesure de l'échantillon entier (Semadeni 500 ml) et la moyenne des prélèvements de 40 ml de cet échantillon est bon.
- Rapport ~0.97 K-40 et 1 Ra-226.

Préparation des échantillons

Mesures sur notre spectromètre de référence

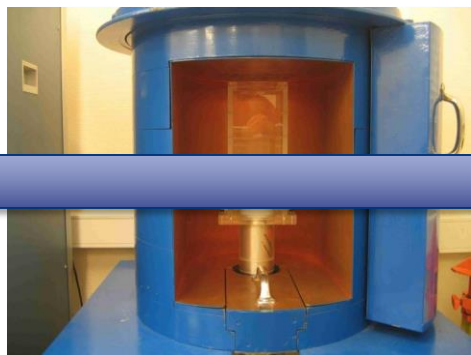
→ indice de transport.



Radionucléides	Limite d'exemption selon ADR [kBq]	Activité du colis [kBq]	Indice de transport	Les filles suivantes à l'équilibre sont prises en compte :
K-40	1000	0.288	0.0003	
Pb-210	10	0.694	0.0694	Bi-210 et Po-210
U(nat)	1			Th-234, Pa-234m, U-234, Th-230, Ra-226, Rn-222, Po-218, Pb-214, Bi-214, Po-214, Pb-210, Bi-210 et Po-210
Ra-226	10	1.238	0.1238	Rn-222, Po-218, Pb-214, Bi-214 et Po-214
U-238	10	0.060	0.0060	Th-234 et Pa-234m
U-235	10	0.006	0.0006	Th-231
U-234	100	0.060	0.0006	For medium to slow lung absorption
Th(nat)	1	0.113	0.1131	Ra-228, Ac-228, Th-228, Ra-224, Rn-220, Po-216, Pb-212, Bi-212, Tl-208 (0.36), Po-212 (0.64)
Ra-223	100	0.047	0.0005	Rn-219, Po-215, Pb-211, Bi-211, Po-211, Tl-207
Indice total			0.31	

Valeurs de référence

La mesure de spectrométrie gamma de l'IRA n'a pas été choisie comme valeur de référence.



L'évaluation des valeurs de référence a été réalisée par la moyenne des participants.

- justifié par la confiance des organisateurs en la mesure des participants, les risques d'inhomogénéité de l'échantillon et valeur de référence métrologique pas nécessaire.

Résultats

21 sur 29 concernés

19 ont donné des résultats.

Quelques corrections ont été réalisées après contact direct avec des participants ayant des résultats suspects.

Echantillon assez compliqué à analyser.

Résultats

Nous avons choisi pour chaque chaîne ou sous chaînes des valeurs considérées pour l'analyse des données (Gras dans le tableau 5 du rapport).

- Si plusieurs valeurs pour une chaîne ou sous-chaîne → moyenne pondérée
 - Ceci permet de diminuer l'influence de valeurs avec grandes incertitudes.
 - Incertitudes calculées par le participant → cohérence.
- Pondération = inverse du carré de l'incertitude élargie.

Résultats

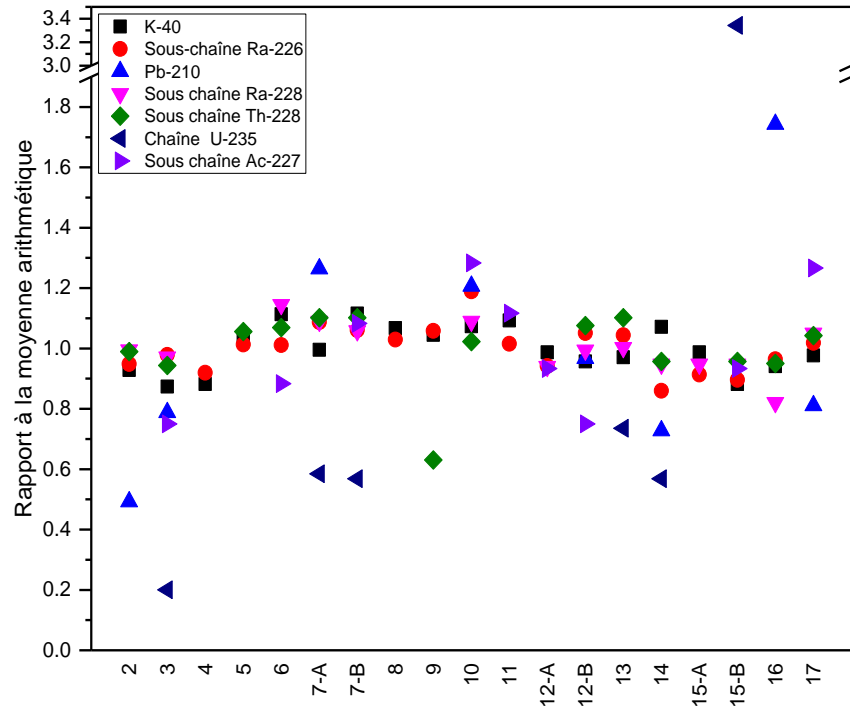
Evaluation de l'exactitude des résultats par le rapport de la valeur considérée à la moyenne arithmétique

moyenne arithmétique pour ne pas favoriser les participants sous-estimant les incertitudes.

Évaluation sommaire des rapports en raison des grandes incertitudes (est-ce assez pour QMS ?)

Résultats

Rapport à la moyenne pour tous les radionucléides et participants



Plupart des participants en accord à +/- 20% pour la majorité des radionucléides analysés.

Résultats

Evaluation de l'exactitude

Plupart des participants en accord à $\pm 20\%$ pour la majorité des radionucléides analysés.

Désaccord supérieur pour le Pb-210 et la chaîne U-235

Pour le Pb-210 !! correction de l'effet de l'autoatténuation (composition inconnue)

Pour l'U-235 !! basse activité \rightarrow grande incertitude statistique.

Conclusions

Dix-neuf laboratoires ont participé à l'intercomparaison 2017 et ont fourni des résultats.

Les participants ont démontré une **bonne maîtrise** de la mesure en spectrométrie gamma de radionucléides naturels.

L'activité des principales chaînes a pu être déterminée par tous les participants.

Ces résultats démontrent que les **laboratoires** sont **compétents** pour mesurer ce type de **TENORM**.

Remerciements

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

Epilogue

Mesure TENORM → ? ← procédure pour avoir une mesure représentative???

Epilogue

Bouteilles

Moyenne des 3 bouteilles de type :
 1W254.750 SAP11853 FM 29.07.09
 4W015.750 SAP15542 CV 27.3.10
 1W065.750 SAP28436 GR 3.1.08



Radionucléide	Act moy [Bq/kg]	écart-type [Bq/kg]
K-40	184	19
U-238 et filles	9	1
Ra-226 et filles	10	1
Pb-210, Bi-210, Po-210	< 10-40	
U-235	< 4-10	
Th-232	< 20-40	
Ra-228, Ac-228	< 5-15	
Th-228 et filles	4	1

Technologically
Enhanced
Naturally
Occurring
Radioactive
Materials



Epilogue

Sampling \leftrightarrow révision de la B04 libération

Concept d'échantillonnage



Mesurage de libération de matériaux et de secteurs de zones contrôlées

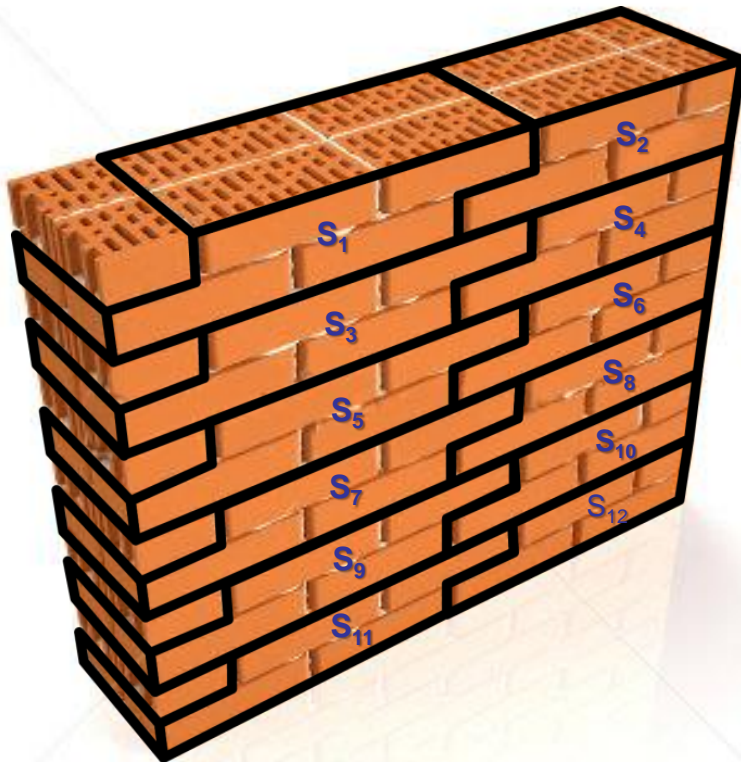
Directive

IFSN-B04/f

En collaboration avec l'Office fédéral de la santé publique (OFSP)
et la Caisse nationale suisse d'assurance en cas d'accidents (Suva)

Version août 2009

Epilogue



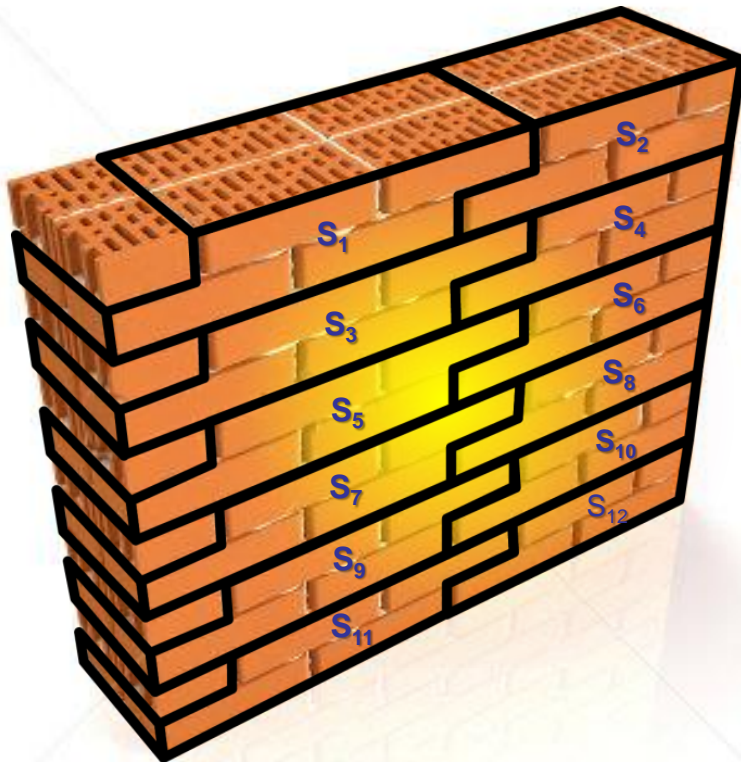
Aktivitätsverteilung **homogen**



S_i variiert entsprechend der
Messunsicherheit

$$\text{var}(S_i) \approx u_{\text{Messung}}^2$$

Epilogue



Aktivitätsverteilung **inhomogen**



S_i variiert entsprechend der
Messunsicherheit + Varianz
durch **Inhomogenität**

$$\text{var}(S_i) \approx u_{\text{Messung}}^2 + \sigma_A^2$$

Beispiel - Freimessungen am PSI

- Diorit: 1157 Messungen



Füllkies SAPHIR (links) und Colemanit-Beton DIORIT (rechts)

- Füllkies: 1620 Messungen

STRALENSCHUTZPRAXIS 3/2009



Freimessungen beim Rückbau der Forschungsreaktoren „SAPHIR“ und „DIORIT“

Auswertung des Messguts unter Bezug auf die Kriterien der Aufsichtsbehörde

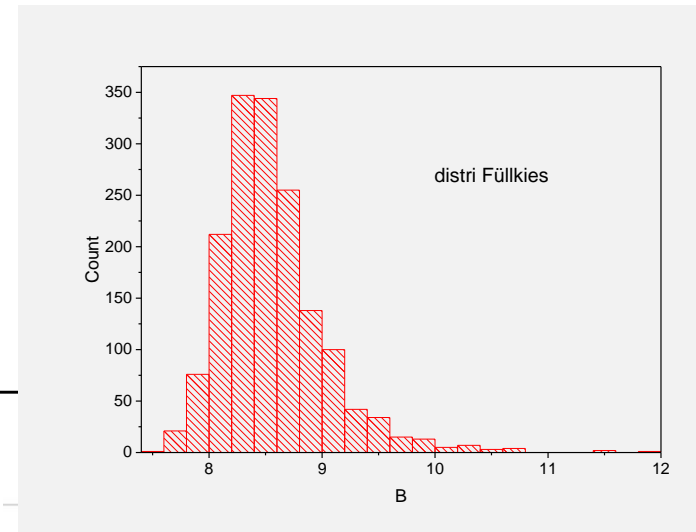
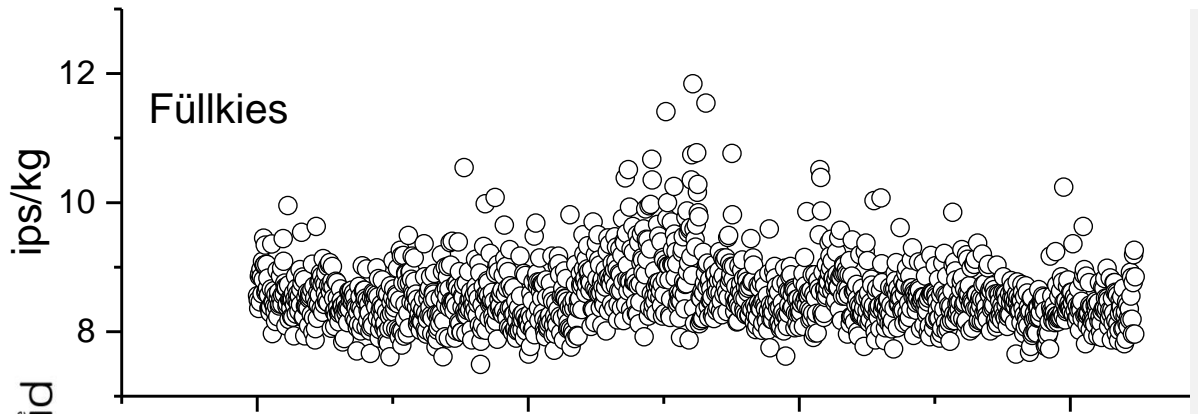
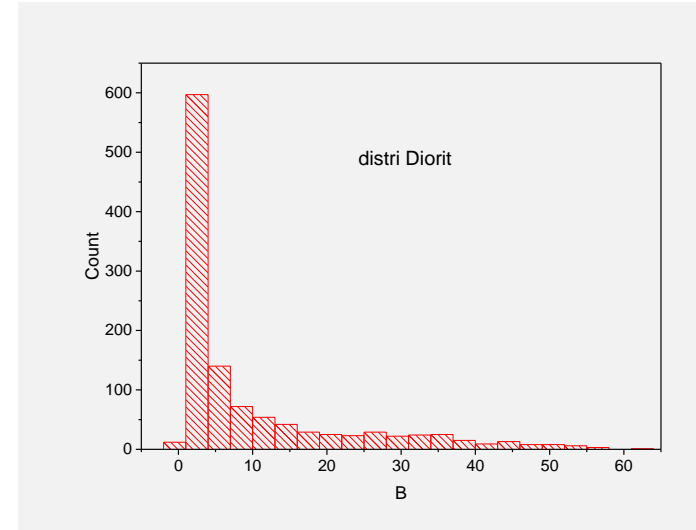
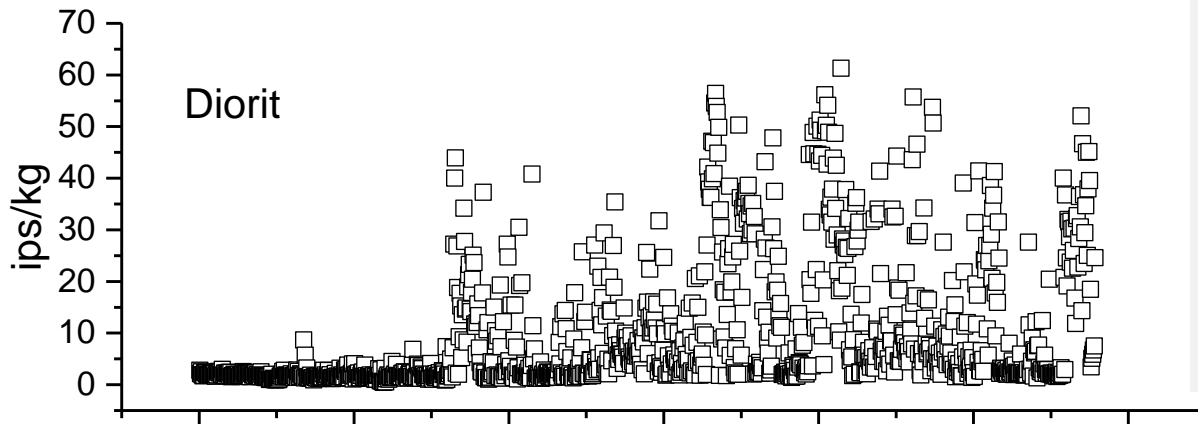
Für zwei Freimesskampagnen beim Rückbau von Forschungsreaktoren am Paul Scherrer Institut wurden größere Mengen Materials vollständig in einer Freimessanlage RADD5 RTM.644Inc freigemessen. Das Erstellen von Häufigkeitsverteilungen mit anschließender Annäherung durch eine Summe von Normalverteilungen ermöglicht die Auswahl von realistischen Teilmengen zur Überprüfung des in der Schweiz verwendeten Homogenitätskriteriums für die Freimessung über die Entnahme von Stichproben.

Eine Freimessung jeder dieser Teilmengen als Stichprobe wäre nach den vom Eidgenössischen Nuklearsicherheitsinspektorat (ENSI) vorgegebenen Kriterien möglich gewesen. Material, welches spezifische Aktivitäten in der Nähe des Summengrenzwertes aufweist, erfüllt auch das vom ENSI definierte Homogenitätskriterium nur knapp. Damit erweisen sich die Kriterien der Aufsichtsbehörde für Freimessungen über Probenahme auch im Praxistest als zweckdienlich.

AUTOREN
Hans-Frieder Beer
Gernot Butterweck
Christoph Schuler

ZUSAMMENFASSUNG
Die beim Rückbau der biologischen Schutzschilde von zwei ehemaligen Kernreaktoren am Paul Scherrer Institut in Würenlingen (CH) notwendigen und durchgeführten Freimessungen werden beschrieben. Dabei wird besonders auf die Beachtung der rechtlichen Vorgaben eingegangen. Insbesondere haben sich die Kriterien der Aufsichtsbehörde für Freimessungen über Probenahme auch im Praxistest als zweckdienlich erwiesen.

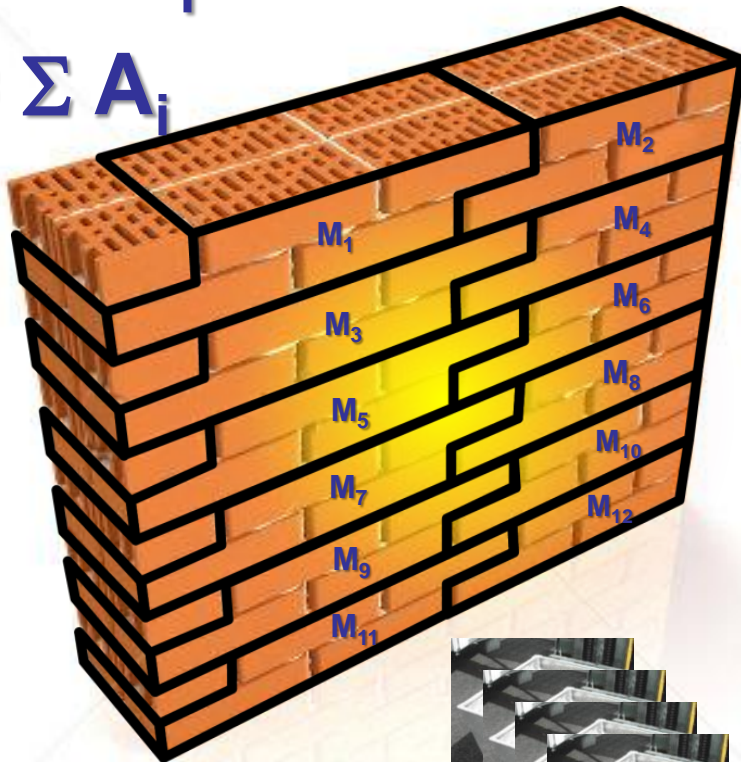
Beispiel - Freimessungen am PSI



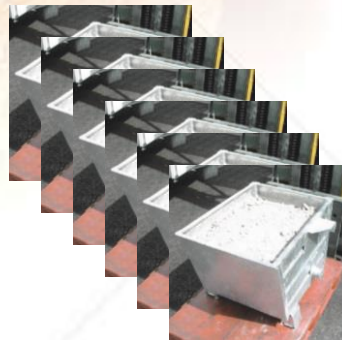
Beispiel - Freimessungen am PSI

$$M = \sum M_i$$

$$A = \sum A_i$$



Wir haben die PSI Daten, als Messungen von Unterelementen (M_i) genommen



M_i

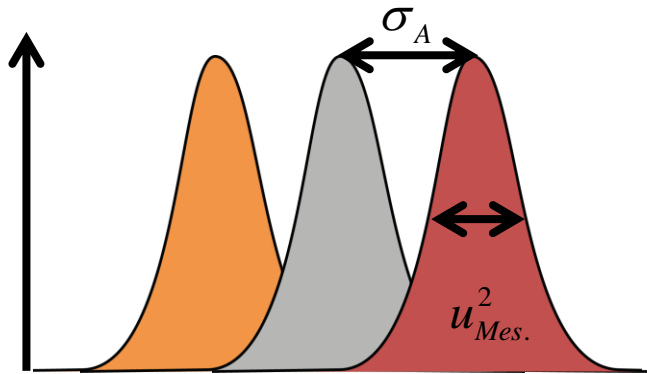
A_i



2 méthodes statistiques

Analyse de variance

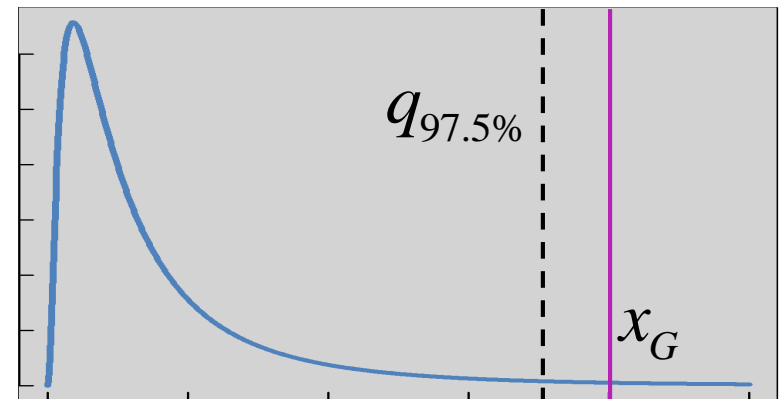
anova



$$\text{var}(A_i) \approx u_{Mes.}^2 + \sigma_A^2$$

$$\sigma_A < \sigma_{allowed}$$

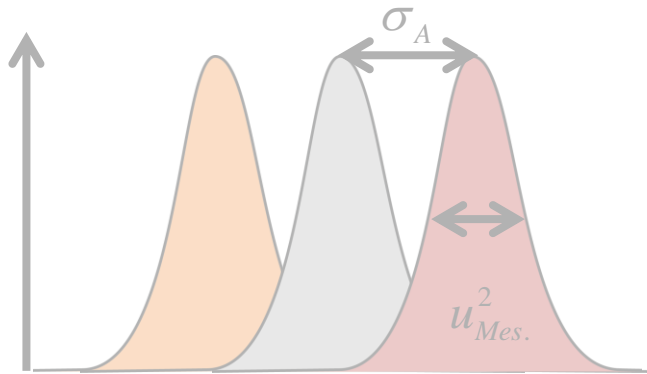
Considérer la distribution statistique



97.5% de la distribution des valeurs d'activité sont **en-dessous** de la **valeur limite**

B04 méthode statistique

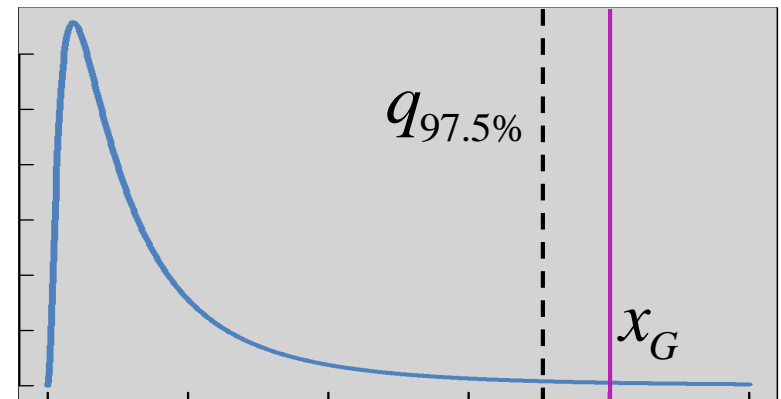
analyse de variance



$$\text{var}(A_i) \approx u_{Mes.}^2 + \sigma_A^2$$

$$\sigma_A < \sigma_{allowed}$$

Considérer la distribution statistique



97.5% de la distribution des valeurs d'activité sont **en-dessous** de la **valeur limite**

Détermination du quantile

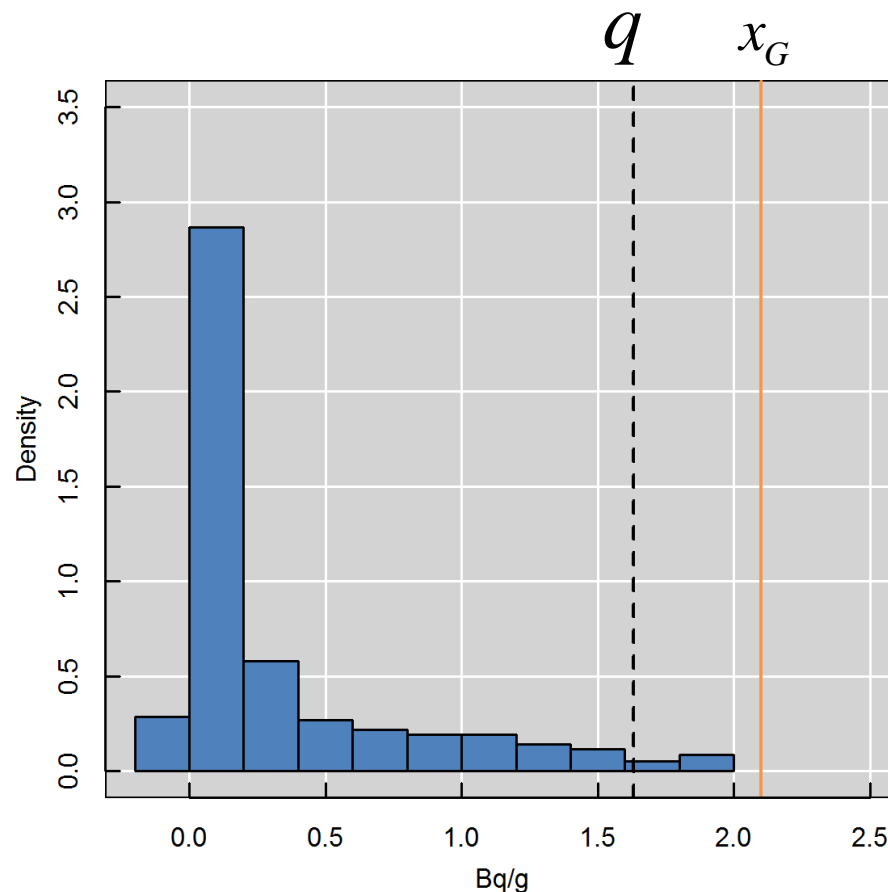
Ordonner les mesures de manière croissante

$$x_1 < x_2 < \dots < x_n$$



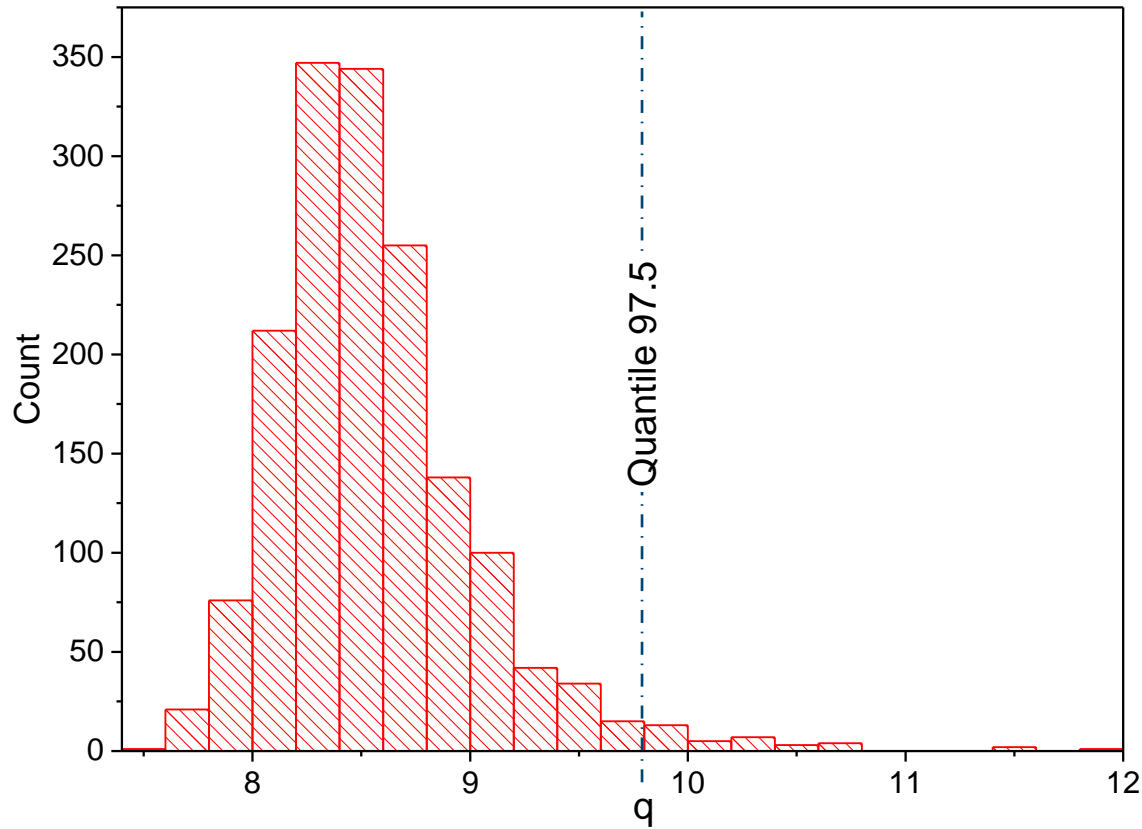
Trouver la mesure $x_i = q$
Pour laquelle **97.5%** des mesures sont **plus petites**.

$$x_1 < x_2 < \dots < x_i < \dots < x_n$$



Quantile/percentile Analysis

Quantile determination q (97.5%)

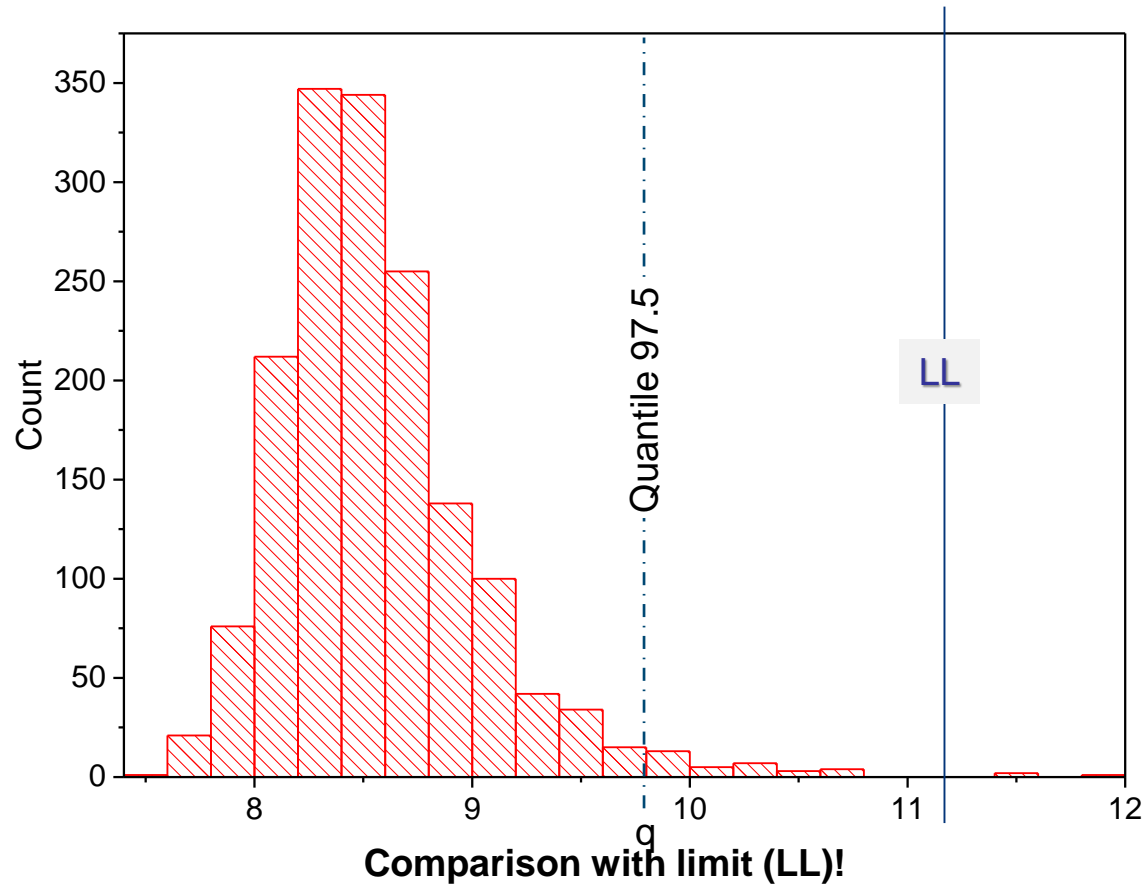


1157

Diorit-Messungen

Quantile/percentile Analysis

Quantile determination q (97.5%)

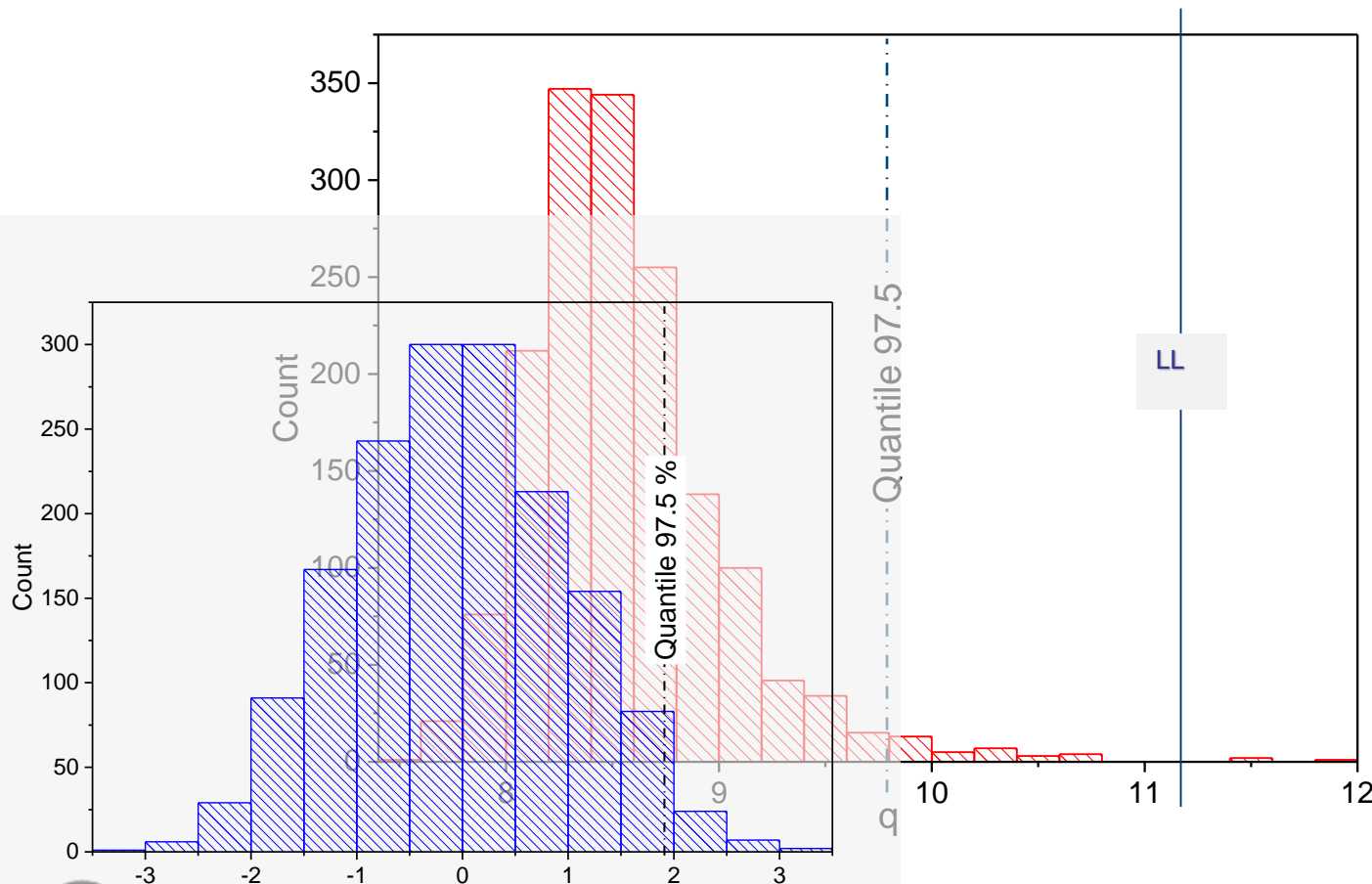


1157

Diorit-Messungen

Quantile/percentile Analysis

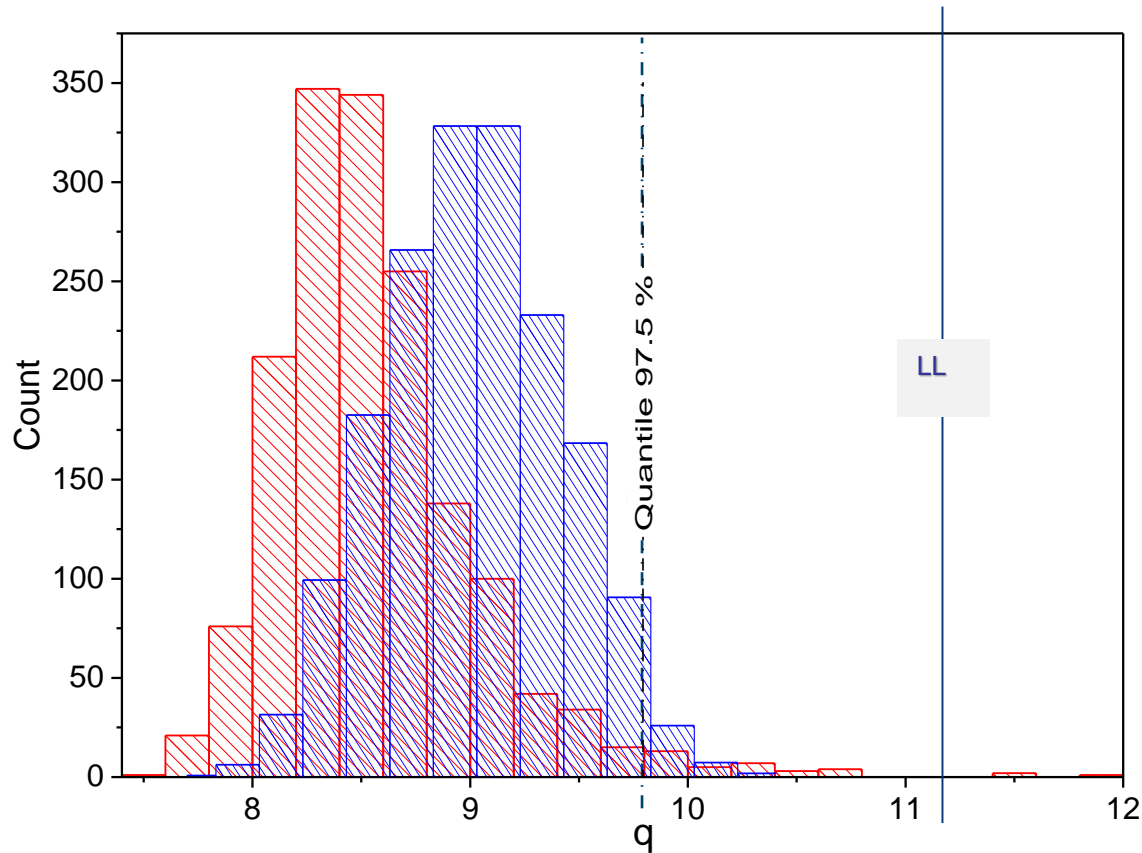
Quantile determination q (97.5%) \leftrightarrow Gauss/Normal



$$\bar{x} + 2s_k \leq x_G$$

Quantile/percentile Analysis

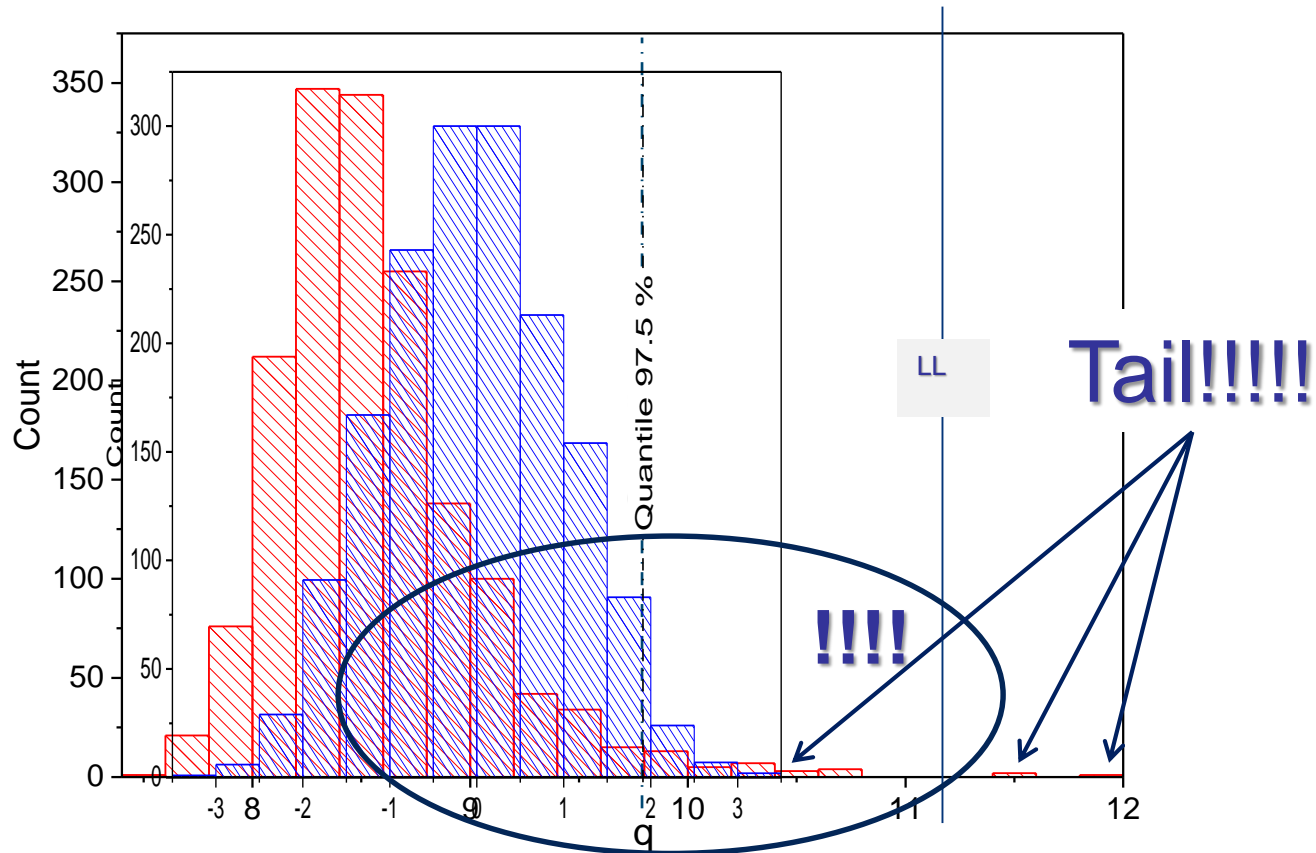
Quantile determination q (97.5%) \leftrightarrow Gauss/Normal



$$\bar{x} + 2s_k \leq x_G$$

Quantile/percentile Analysis

Quantile determination q (97.5%) \leftrightarrow Gauss/Normal



How to **calculate** optimal **sample size**?

How do **quantiles vary**?

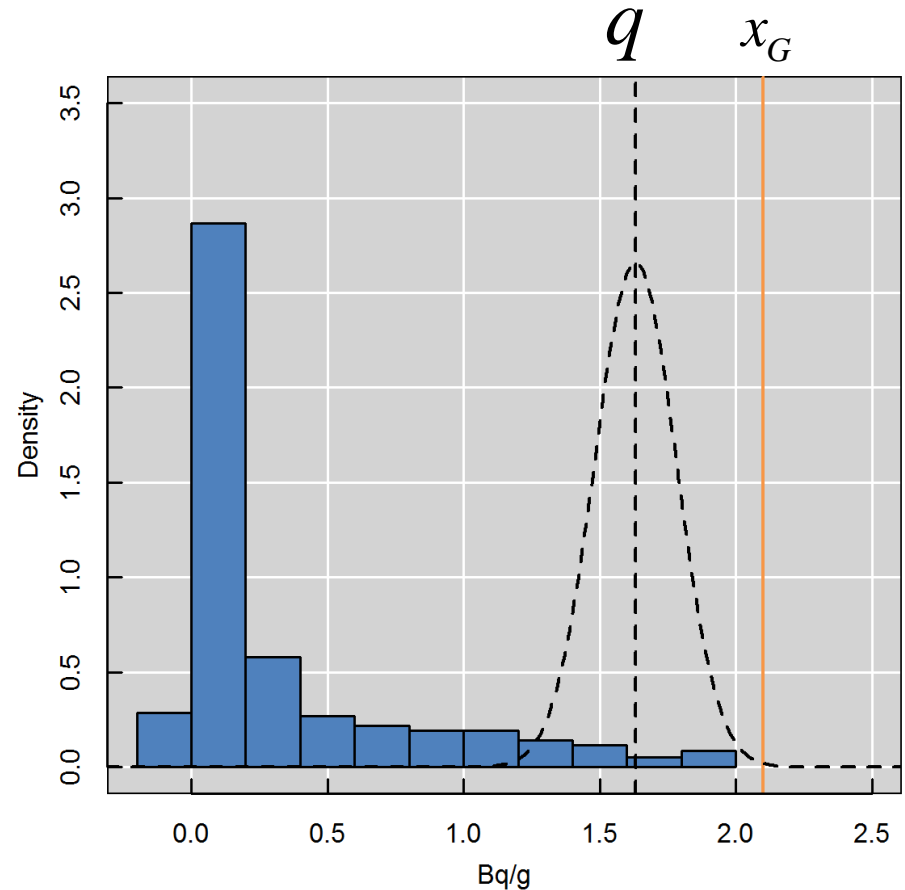
Quantiles follow normal distribution for large sample sizes

Ruppert, D., 2011. Statistics and Data Analysis for Financial Engineering, Springer Texts in Statistics. Springer New York, New York, NY. doi:10.1007/978-1-4419-7787-8



$$q \approx N(F^{-1}(p), \sigma_q^2)$$

$$\sigma_q^2 = \frac{p(1-p)}{nf(q)^2}$$



How to **calculate** optimal **sample size**?

$$\sigma_q^2 = \frac{p(1-p)}{nf(q)^2} \quad \text{quantile variance}$$

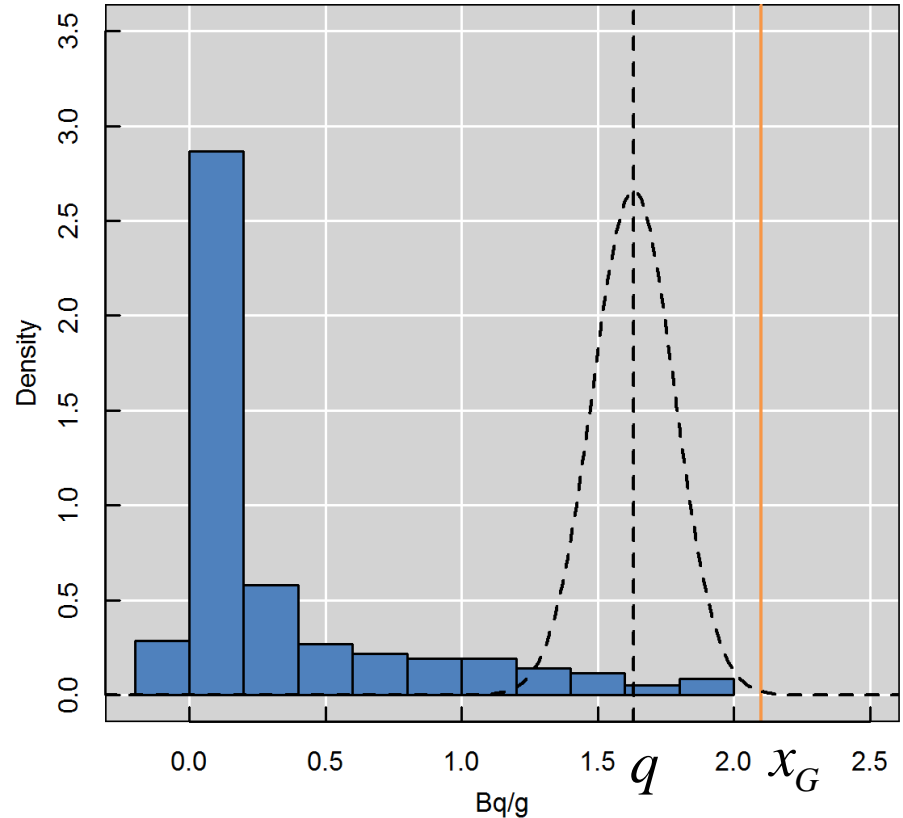
$$x_G - q = k_\alpha \sigma_q = k_\alpha \sqrt{\frac{p(1-p)}{nf(q)^2}}$$

$$p = 0.975$$

k_α 1- α th quantile of standard normal distribution

.....

$$n \geq p(1-p) \left(\frac{k_\alpha}{f(q)(x_G - q)} \right)^2$$



How to **calculate** optimal **sample size**?

40 échantillons \rightarrow 97.5 = avant-dernier dans l'ordre

$\sigma_q = \frac{\sqrt{p(1-p)}}{\sqrt{n}}$ quantile variance

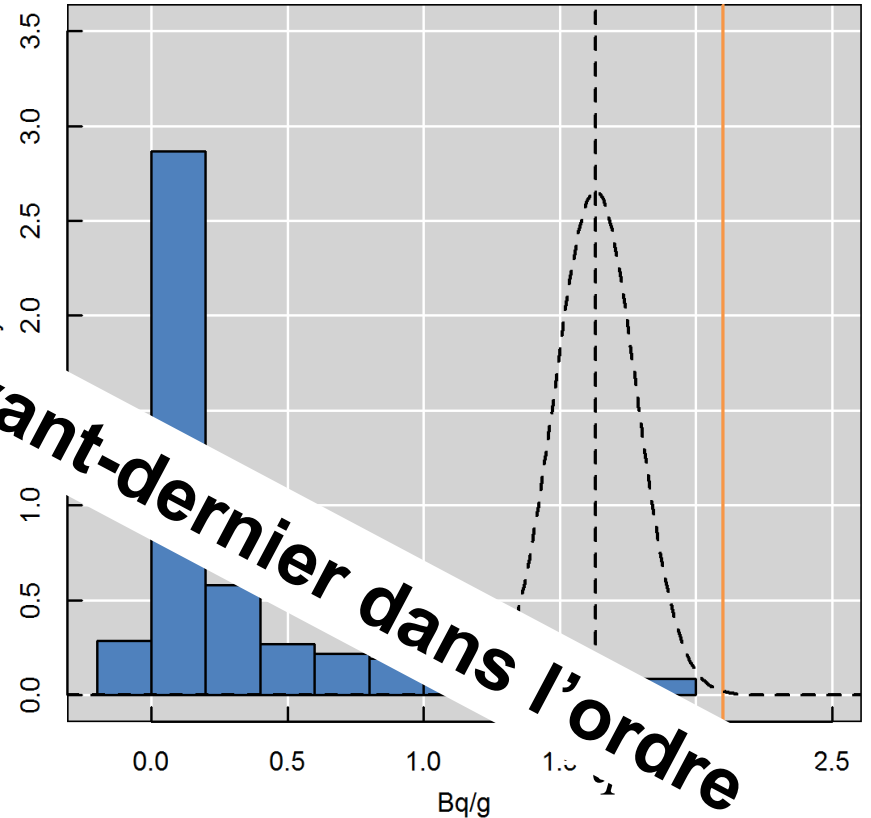
$x_G - q = k_\alpha \sigma_q = k_\alpha \frac{\sqrt{p(1-p)}}{\sqrt{n}}$

$p = 0.975$

k_α 1- α th quantile of standard normal distribution



$$n \geq p(1-p) \left(\frac{k_\alpha}{f(q)(x_G - q)} \right)^2$$



1157
Diorit-Messungen



26
Stichproben

Merci de votre attention

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



Office fédéral
de la santé publique



Institut de
radiophysique