

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE



Essais interlaboratoires de mesure de la radioactivité

Cédric AUBERT, Mélanie OSMOND, Marie-Christine ROBÉ

IRSN/DEI/STEME



Système de management
de la qualité IRSN certifié



I. Le STEME (Service de traitement des échantillons et de métrologie pour l'environnement)



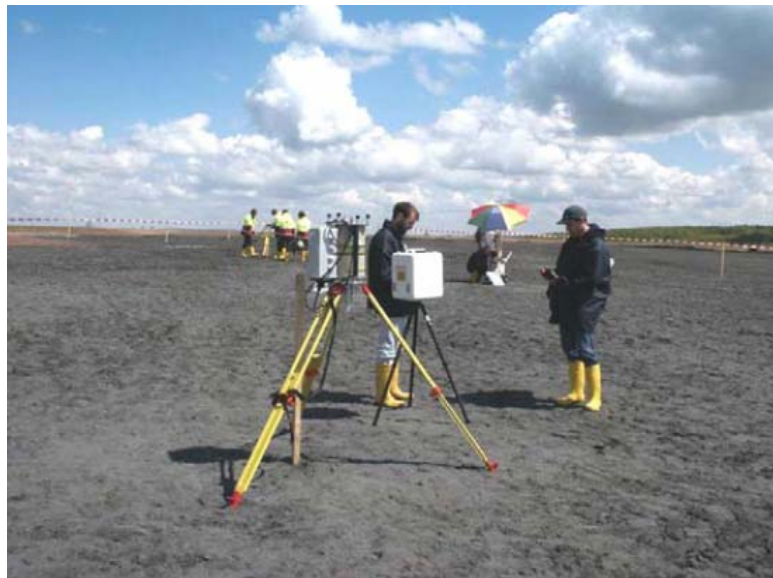
Radiochimie et métrologie sur des échantillons de l'environnement

1. *Recherches et développements sur de nouvelles techniques de traitement et de mesurage des échantillons environnementaux - Ex. : mesures à très bas niveau, spectrométrie gamma in situ*
2. *Traitement et le mesurage (à bas et très bas niveau) de la radioactivité des échantillons (surveillance de l'environnement, études radioécologiques) ;*
3. *Conception et production de sources radioactives étalons pour les laboratoires ;*
4. *Animer un réseau de laboratoires de métrologie.*



Laboratoires de référence accrédités COFRAC

1. *Laboratoires de traitement radiochimique et de mesure (Orsay et Le Vésinet) accrédités selon la norme ISO/CEI 17025 (Essais) pour différentes catégories de mesures de radionucléides*
2. *Organisation d'exercices de comparaison inter-laboratoires sous accréditation COFRAC dans le cadre du processus d'agrément ministériel des laboratoires de mesure de la radioactivité de l'environnement ;*



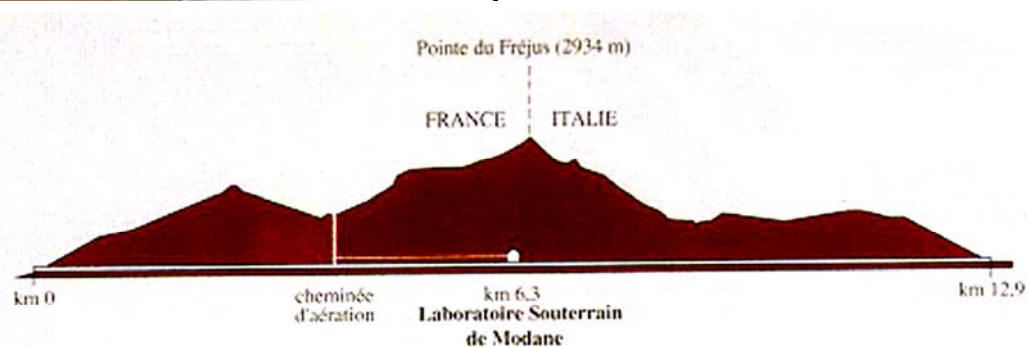
Les laboratoires de traitement radiochimique

- Dizaine de laboratoires équipés de sorbonnes, traitement de l'air
- Avec du matériel spécifique
- Appareils de mesures d'éléments stables
- De l'ordre de 30 000 échantillons par an générant près de 16 000 traitements



Les laboratoires de mesure de l'activité

- Une dizaine de salles de comptage
- Environ 300 appareils de mesure (spectrométrie gamma, spectrométrie alpha, comptage alpha et bêta, scintillation liquide,...)
- Plus de 100 000 analyses radiologiques à bas niveau
- 50 % sont accréditées



Une grande complexité des demandes

➤ Diversité des matrices

Eaux

Sols

Bio-indicateurs terrestres et marins

Laits

Effluents

Produits alimentaires

Aérosols, filtres, frottis, cartouches

Produits industriels (bétons...)

➤ Diversité des radionucléides

Origine naturelle: chaînes ^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U

Origine artificielle: PF, PA...

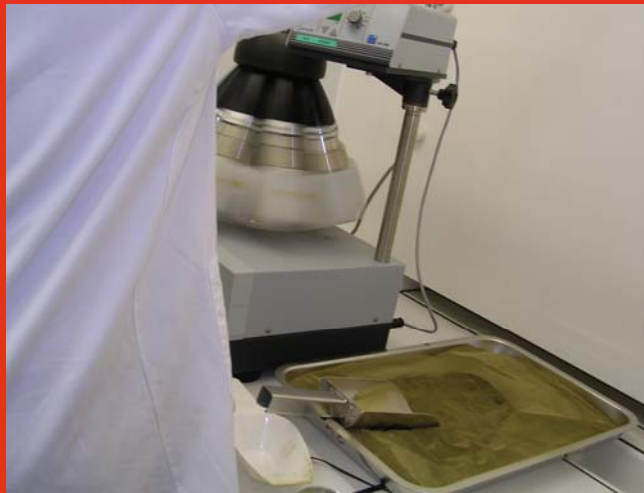
Emetteurs alpha, bêta, gamma



*Traitements radiochimiques,
géométries de comptage et
techniques de mesure spécifiques*



II. Organisation des essais interlaboratoires



Organisation d'essais interlaboratoires de mesures d'échantillons de l'environnement



Près de 40 années d'expérience au plan **national** et **international** (*Centre International de Référence de l'Organisation Mondiale de la Santé*)

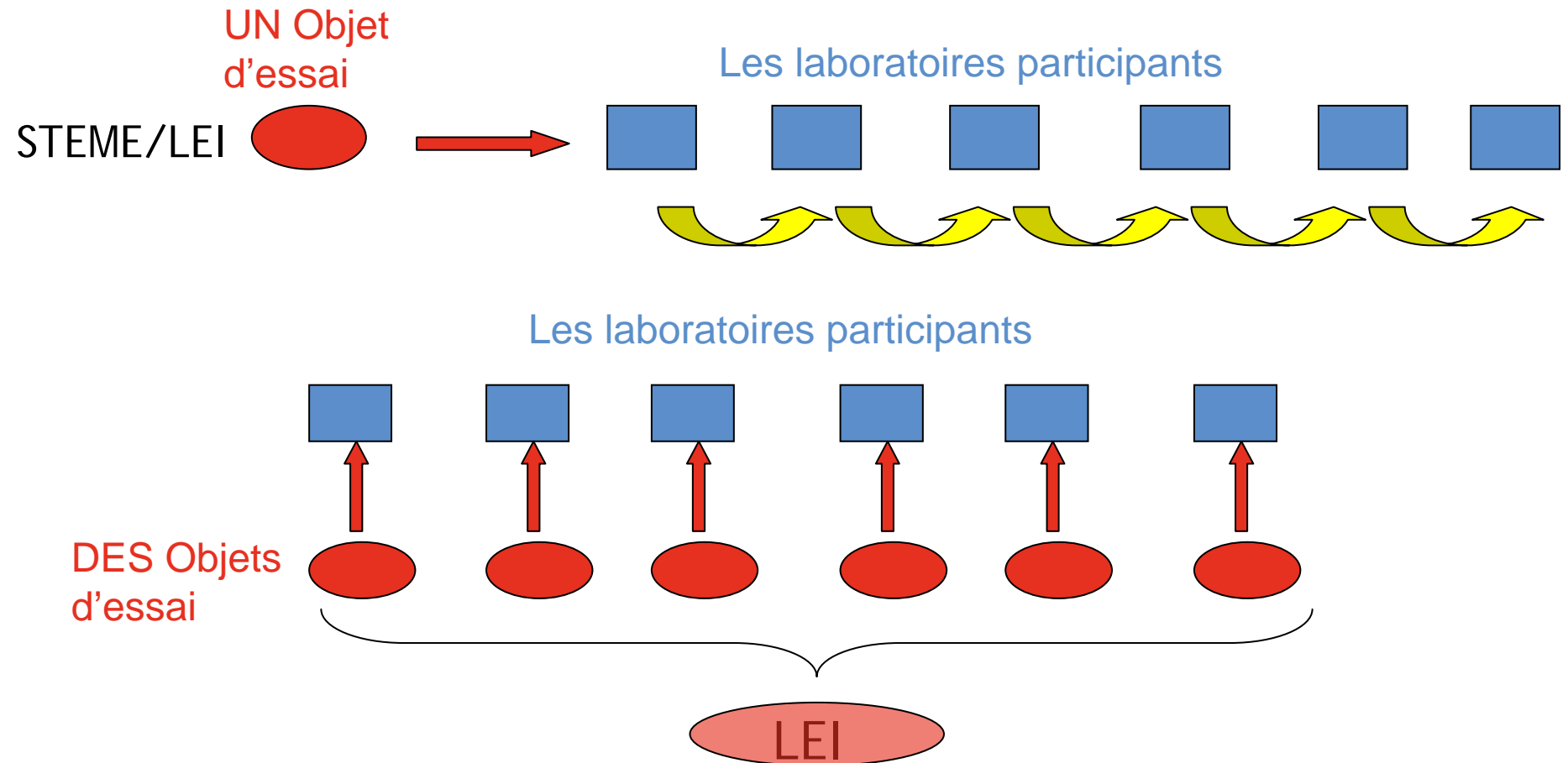
Près de **100** essais interlaboratoires organisés par le laboratoire

Le cadre actuel

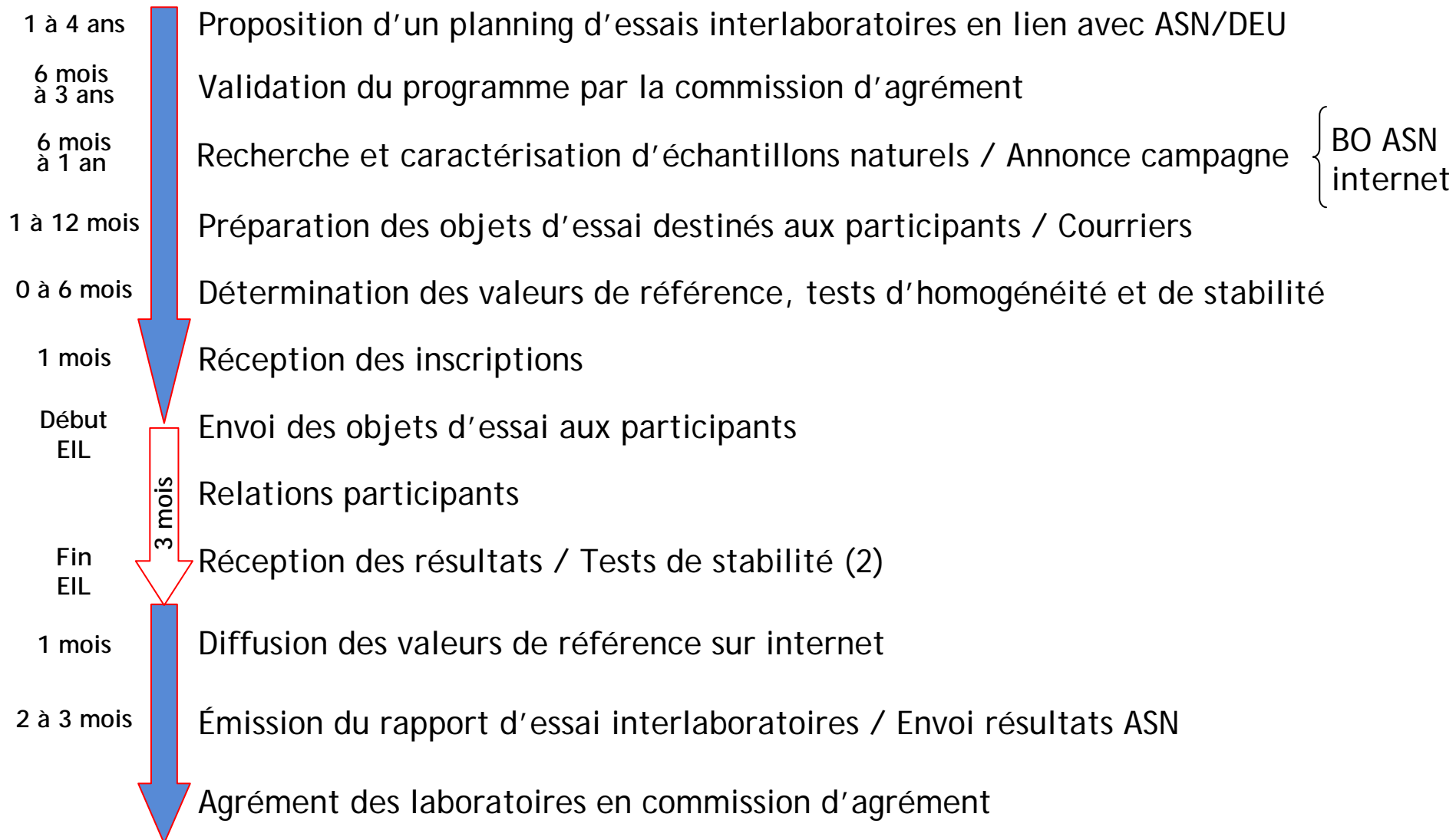
En appui de L'Autorité de Sûreté Nucléaire pour l'agrément des laboratoires du réseau national de mesures de la radioactivité de l'environnement

Essais interlaboratoires IRSN

Exercice d'aptitude basé sur la comparaison de **valeurs de référence** fournies par le **laboratoire organisateur** avec les résultats de mesure obtenus par un ou plusieurs laboratoires participants



Déroulement d'un essai interlaboratoires ASN



Prélèvement de matrices naturelles



Préparation des objets d'essai interlaboratoires (1)



Préparation des objets d'essai interlaboratoires (2)



Exemple EIL 83 FA 300

- Pêche
- Congélation des poissons
- Découpe en cubes
- Lyophilisation
- Broyage
- Tamisage
- Homogénéisation
- Répartition

Préparation des objets d'essai interlaboratoires (3)

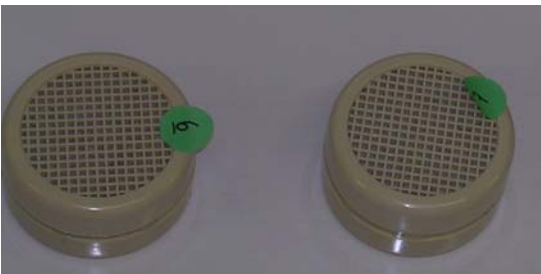
Exemple ^3H EIL 79 L 300

- Prélèvement dans une ferme
- Stabilisation
- Homogénéisation
- Répartition en ampoule
- Scellement des ampoules

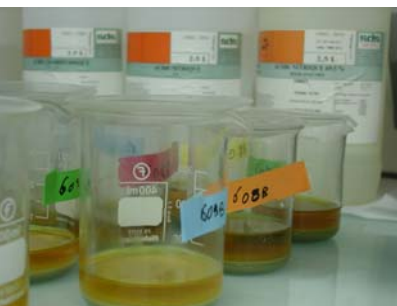


Préparation des objets d'essai interlaboratoires (4)

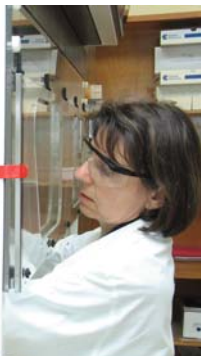
Exemple EIL 86 AGC 300



Mesures réalisées par l'IRSN



Au minimum **5** objets d'essai sont analysés



Entre 20 et 50 analyses par détermination



Lors d'analyses non destructives, tous les objets d'essai sont mesurés



Salle d'emballage et d'expédition



Essais interlaboratoires du 1^{er} semestre 2008

Matrice	Catégorie de mesure radioactive	Code d'agrément
Eau	alpha global	1_03
	bêta global (hors potassium)	1_04
	tritium	1_05
Biologique	émetteurs gamma artificiels d'énergie > 100 keV	3_01
	émetteurs gamma artificiels d'énergie < 100 keV	3_02
	isotopes du plutonium et de l'américium	3_13
Eau	isotopes de l'uranium (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U)	1_09
	^{226}Ra et ses descendants (^{210}Pb , ^{210}Po)	1_11
	^{228}Ra	1_11
	uranium pondéral	1_17

3 essais interlaboratoires

6 objets d'essais interlaboratoires

21 valeurs assignées soit plus de 500 mesures IRSN

146 laboratoires participants au total

Accréditation COFRAC CIL



Audit initial d'accréditation
réalisé en mai 2006 par 3
auditeurs :

- qualité
- technique
- statistiques

Prononcée le 1^{er}
novembre 2006

Audit de suivi
d'accréditation réalisé en
décembre 2007

Démarche d'accréditation COFRAC CIL

- Intégration d'un nouveau référentiel au système existant
- Rédaction de documents et/ou mise en conformité avec les référentiels liés à l'accréditation Cofrac
- Aménagement des locaux

Laboratoire
spécifiquement
dédié au CIL



Achat de matériels
spécifiquement
dédié au CIL



Salle d'emballage et
d'expédition



Le référentiel documentaire

Référentiels d'accréditation Cofrac

Document COFRAC LAB CIL Réf. 02 (2005) : Organismes de comparaisons interlaboratoires. Exigences pour l'accréditation

Guide ISO/CEI 43-1 (1997) : Essais d'aptitude des laboratoires par intercomparaison - Partie 1 Développement et mise en œuvre des systèmes d'essais d'aptitude

NF EN ISO/CEI 17025 : Prescriptions générales concernant la compétence des laboratoires d'étalonnage et d'essais

Référentiels statistiques

ISO 5725 : Exactitude (justesse et fidélité des résultats des méthodes de mesure)

NF X 06-050 : Application de la statistique - Etude de la normalité d'une distribution

NF ISO 13528 (décembre 2005) : Méthodes statistiques utilisées dans les essais d'aptitude par comparaisons interlaboratoires

Exigences LAB CIL REF 02

Exigences organisationnelles

Essentiellement satisfaites à travers l'organisation mise en place dans le cadre de nos accréditations essai (NF EN ISO/CEI 17025)

Exigences techniques

Planification et organisation et réalisation des étapes clés de la réalisation d'une campagne

- Etude préliminaire
- Préparation des objets soumis à l'essai
- Plan d'expérience, choix de la méthode d'essai ou du mode opératoire
- Homogénéité, stabilité (Plan statistique)
- Instructions aux participants
- Préparation, validation et diffusion des rapports
- Politique en matière de confidentialité
- Systèmes de calcul et de traitement de l'information
- Utilisation des résultats des campagnes ...

Exigences LAB CIL REF 02

Exigences statistique

1- Vérification de l'homogénéité du lot d'objet préparé

 Test statistique : Analyse de variance à un seul facteur

Le facteur à mettre en évidence : HOMOGENEITE de l'ensemble des échantillons



Fixer tous les autres facteurs (d'où facteur opérateur fixe, appareils fixe, etc ...)

2- Vérification de la stabilité du lot d'objet préparé pendant la durée de l'essai

 Test statistique : Test de comparaison de moyennes

Le facteur à mettre en évidence : TEMPS



Fixer tous les autres facteurs

Choix du nombre d'échantillons à tester et du nombre de mesures à réaliser

C'est en fonction de la répétabilité de la méthode de mesure utilisée et du retour d'expérience sur l'homogénéité de la matrice que l'on détermine le nombre d'objets d'essais à tester et le nombre d'analyses par objet à réaliser

Cette étape doit avoir lieu avant la préparation des échantillons

Construction du plan expérimental

HOMOGENEITE

STABILITE

Plan expérimental de base

-5 objets testés sur l'ensemble du lot préparé

-3 analyses réalisées par objet

Plan expérimental de base

-5 analyses sur un même objet au début de l'essai

-5 analyses sur un même objet en fin d'essai

Etude analytique des résultats

Détermination de la valeur assignée



Utilisation des résultats d'analyse du test d'homogénéité

Valeur assignée : moyenne des 15 résultats de mesure (à minima)

Incertitude associée à la valeur assignée : principe

- Bilan des paramètres d'influence
- Estimation des incertitudes-type de chacun de ces paramètres
- Application de la loi de propagation des incertitudes
- Expression du résultat final

Exemples de paramètres influents:

Prise d'essai

Rendement de comptage

Nombre de coups bruts

MP

} Détermination des incertitudes-type par la méthode des 5M

Eventuelle inhomogénéité

Eventuelles erreurs aléatoires

} Détermination des incertitudes-type via le résultat de l'analyse de variance

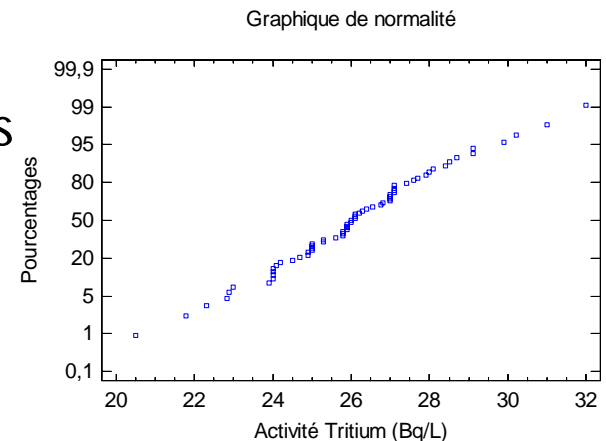
Eventuelle instabilité

} Détermination des incertitudes-type via la comparaison de moyenne

Exploitation des résultats des laboratoires participants

■ Traitement des données

- Recherche d'erreurs grossières
- Test de normalité sur l'ensemble des résultats
- Recherche des valeurs extrêmes
 - Test de Dixon
 - Test de Grubbs
- Test de normalité sur l'ensemble des résultats hors valeurs extrêmes
- Caractéristiques de tendance centrale
- Caractéristiques de dispersion
- Exploitation des méthodes d'analyse

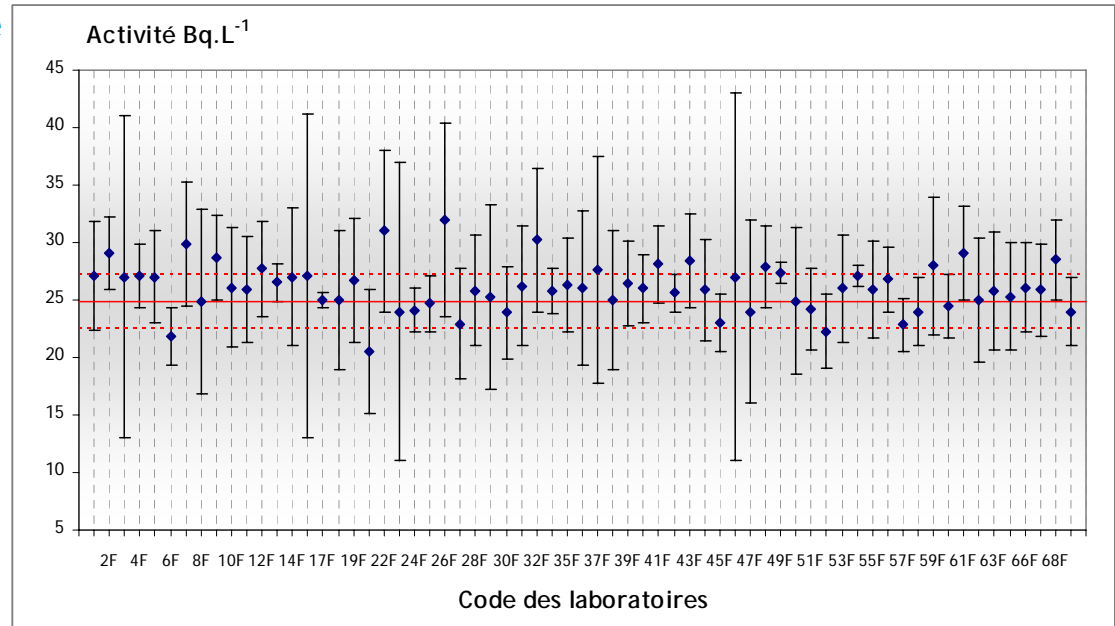


Exploitation des résultats des laboratoires participants

Evaluation de la performance

- Ecart relatif : écart entre la valeur du laboratoire et la valeur de référence

$$E_i = \frac{x_i - x_{réf}}{x_{réf}}$$



- Test du nombre E_n : compatibilité entre la résultat du laboratoire et la valeur de référence

$$E_n = \frac{x_i - x_{réf}}{\sqrt{(U_{réf})^2 + (U_i)^2}}$$

- Score z : tolérance sur l'écart entre la valeur assignée et celle du laboratoire par rapport à l'écart type interlaboratoires

$$z = \frac{x_i - x_{réf}}{s}$$

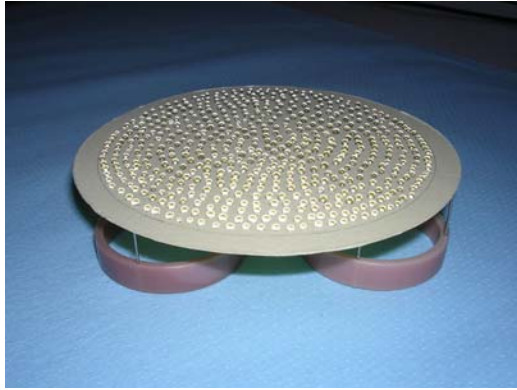
III. Programme



Prochains essais interlaboratoires

2^{ème} semestre 2008

90 V 300 : Mesure de carbone 14 et de carbone élémentaire dans un échantillon végétal



94 AS 300 : Mesure de l'uranium pondéral et de l'uranium isotopique dans un filtre aérosols

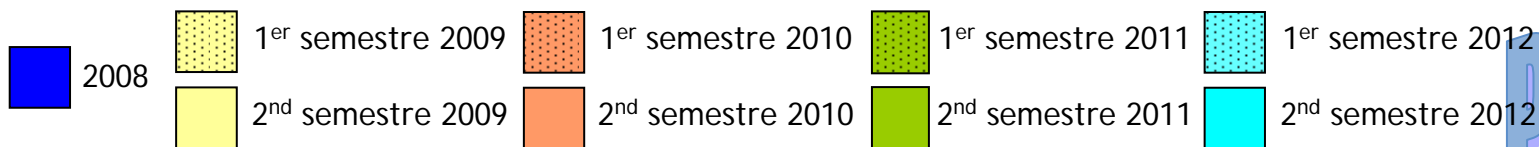
1^{er} semestre 2009

95 EE 300 : Mesure d'émetteurs γ >100 keV et d'émetteurs γ < 100 keV dans un échantillon d'eau



96 SL 300 : Mesure de l'uranium pondéral, de l'uranium isotopique, du thorium isotopique, de ^{226}Ra , de ^{228}Ra et des descendants dans un sédiment

Programme prévisionnel des intercomparaisons : 2009-2012



PROJET

Code :	Catégorie de mesures radioactives	Type 1		Type 2		Type 3		Type 4		Type 5		Type 6	
		- Eaux -		- Matrices sols-		- Matrices biologiques -		- Aérosols sur filtre -		- Gaz air-		-Milieu ambiant (sol/air) -	
.. -01	Radionucléides émetteurs $\gamma > 100$ keV		1_01		2_01		3_01		4_01		5_01		-
.. -02	Radionucléides émetteurs $\gamma < 100$ keV		1_02		2_02		3_02		4_02		5_02		-
.. -03	Alpha global		1_03		-		-		4_03		-		-
.. -04	Bêta global		1_04		-		-		4_04		-		-
.. -05	H-3		1_05		2_05		3_05		-		Cf eau		-
.. -06	C-14		1_06		2_06		3_06		-		Cf eau/Na OH		-
.. -07	Sr-90/Y-90		1_07		2_07		3_07		4_07		-		-
.. -08	Autres émetteurs bêta purs (Ni-63, ...)		⁹⁹ Tc 1_08		⁹⁹ Tc 2_08		3_08		-		-		-
.. -09	isotopes U		1_09		2_09		3_09		4_09		-		-
.. -10	isotopes Th		1_10		2_10		3_10		4_10		-		-
.. -11	Ra-226 + desc.		1_11		2_11		3_11		-		Rn 222 : 5_11		-
.. -12	Ra-228 + desc.		1_12		2_12		3_12		-		Rn 220 : 5_12		-
.. -13	Isotopes Pu, Am, (Cm, Np)		1_13		2_13		3_13		4_13				-
.. -14	Gaz halogénés		-		-		-		-		5_14		-
.. -15	Gaz rares		-		-		-		-		⁸⁵ Kr?	5_15	-
.. -16	Dosimétrie gamma		-		-		-		-		-		6_16
.. -17	uranium pondéral		1_17		2_17		3_17		4_17		-		-

Conclusions

- Importance de la structure mise en place dans le cadre de nos accréditations « essai »
- Meilleure exploitation du retour d'expérience d'organisation d'essais interlaboratoires
- Amélioration des méthodes de mesure et d'étalonnage pour plusieurs laboratoires de métrologie nucléaire français
- En l'absence d'étalons adaptés, certains laboratoires utilisent les objets d'essai interlaboratoires IRSN comme matériau de référence
- 9 laboratoires accrédités CIL (analyses des polluants, agro alimentaire, caoutchouc, pétrole) + STEME (Analyses de radionucléides dans l'environnement - N° 1-1795 - portée disponible sur www.cofrac.fr)

Laboratoire de préparation des objets d'essai



Matériel



Portée d'accréditation COFRAC CIL du STEME

	Eau	Lait	Solides (Sols, sédiments, sables, boues, faune, flore)	Aérosols
^3H	NF M 60-802-1	NF M 60-802-1 adaptée	méthode interne	
^{238}Pu , $^{239 + 240}\text{Pu}$, ^{241}Am	NF M 60-804-2	NF M 60-790-8 adaptée	NF M 60-790-8	
^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	NF M60-805-5			
^{90}Sr	NF M60-806-1	Analytical Chemistry, 33:1306-8 (1961)	NF M 60-790-7	méthode interne
Radionucléides émetteurs γ	ISO 10703	ISO 10703 adaptée	NF M 60-790-6	GT 21 surveillance de l'environnement
^{14}C			Health Physics 61, 4, 481-492 (1991)	
Indice bêta global				GT 21 surveillance de l'environnement
Indice alpha global				
^{226}Ra				
^{210}Po				

Quelques chiffres

