

TRAÇABILITÉ DES MESURES ENVIRONNEMENTALES DE RADIOACTIVITÉ : RÉALISATION ET MESURE D'UNE MATRICE VÉGÉTALE MARQUÉE

V. Lourenço, L. Ferreux, D. Lacour, I. Le Garrères et S. Morelli

CEA, LIST, Laboratoire National Henri Becquerel (LNE-LNHB),
91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

20 Novembre 2013

- Traçabilité des mesures environnementales

Préparation d'une matrice végétale par marquage

- Préparation de la matrice
- Marquage
- Etablissement des valeurs de référence / Rendement de marquage

Etude d'homogénéité

- Analyse de variance
- Exemple du ^{109}Cd

Test interlaboratoire

- Conclusions & perspectives

- Suivi assuré par ~ 60 laboratoires accrédités (EDF, Areva, CEA; etc.)
- 2002 : Centralisation & harmonisation des mesures : RNM



- agréments à obtenir pour prouver l'aptitude du laboratoire
 - critères qualité + techniques
- Depuis janvier 2009 :  www.mesure-radioactivite.fr/public/
- Traçabilité des mesures
 - Depuis ~ 40 ans : Programme annuel de Tests Interlaboratoires du LNE-LNHB (PTI)
 - Tests réglementaires de l'IRSN
 - Peu d'étalons à base de matrice réelle
 - Utilisation des objets d'essai (IRSN, LNHB) comme matériaux de référence
- Domaines à couvrir :
 - 17 types de mesures (^3H , α_{tot} , β_{tot} , etc.)
 - 6 familles de matrices (eaux, sols, matrices biologiques, etc.)
- Etude LNE-LNHB sur la production de matrices marquées

1. Prélèvement

- Matrice choisie : herbe
- ~60 kg ramassés (décembre)
- 90 % d'eau

2. Séchage

- À l'air libre (fermentation)
- Étuve à convection forcée (60°C)
- 6 kg

3. Broyage/ Tamisage

- Broyeur à couteaux (pré-tamisage)
- + système d'aspiration cyclonique
- Tamiseuses de laboratoire (< 250 µm)
- 5 kg de matrice à marquer



4. Homogénéisation

- Quartages successifs
- Caractérisation granulométrie (5 tamis)
- Uniformité du broyage/tamisage ($\pm 3\%$)

5. Marquage

- Mesure du "blanc" avant marquage :
 $A_{(^{137}\text{Cs})} = (2,5 \pm 0,2) \text{ Bq.kg}^{-1}$ ($k=1$)
- Marquage humide (évaporateur rotatif)
- Mélange de marquage (^{22}Na , ^{60}Co , ^{109}Cd , ^{134}Cs & ^{137}Cs) à partir de solutions traçables
- Production de 10 L, mélange en BAG

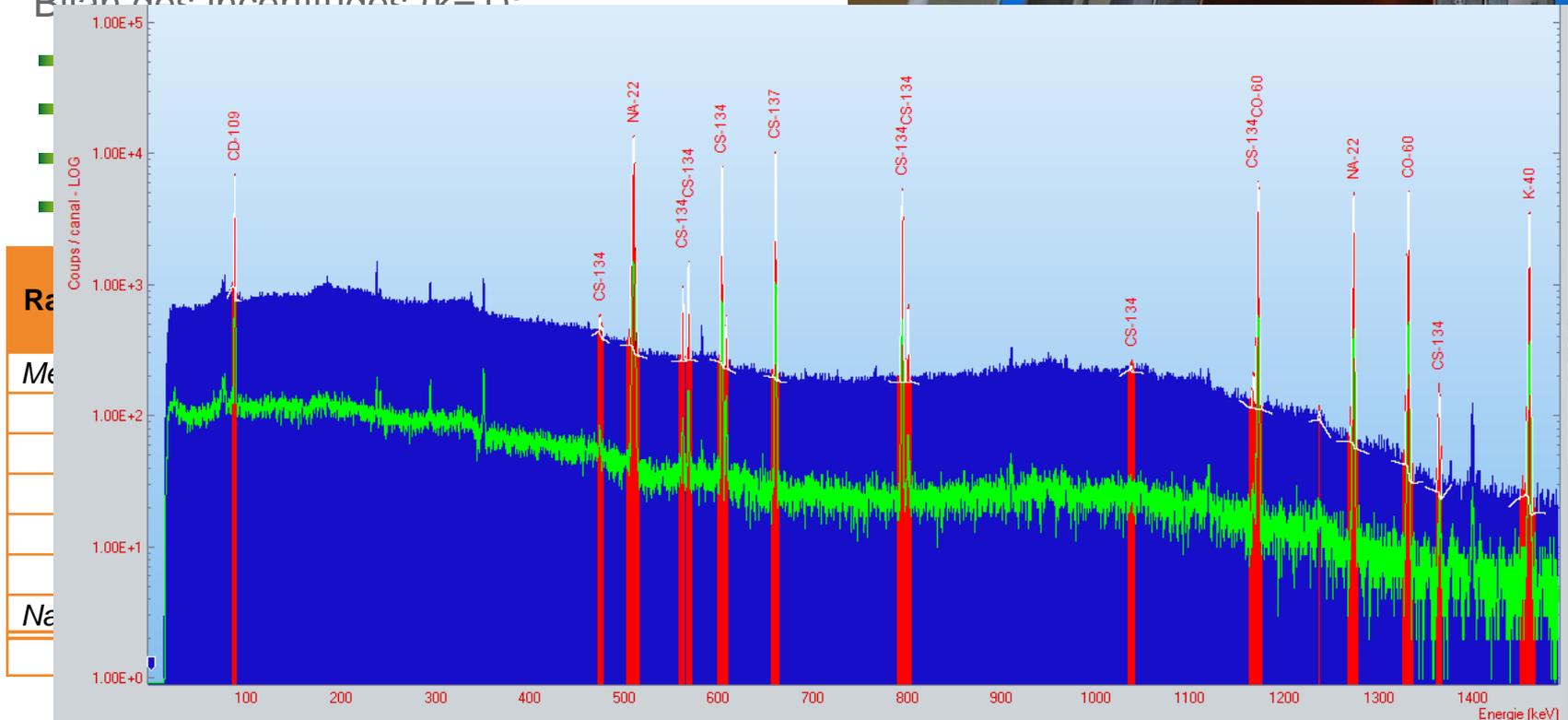
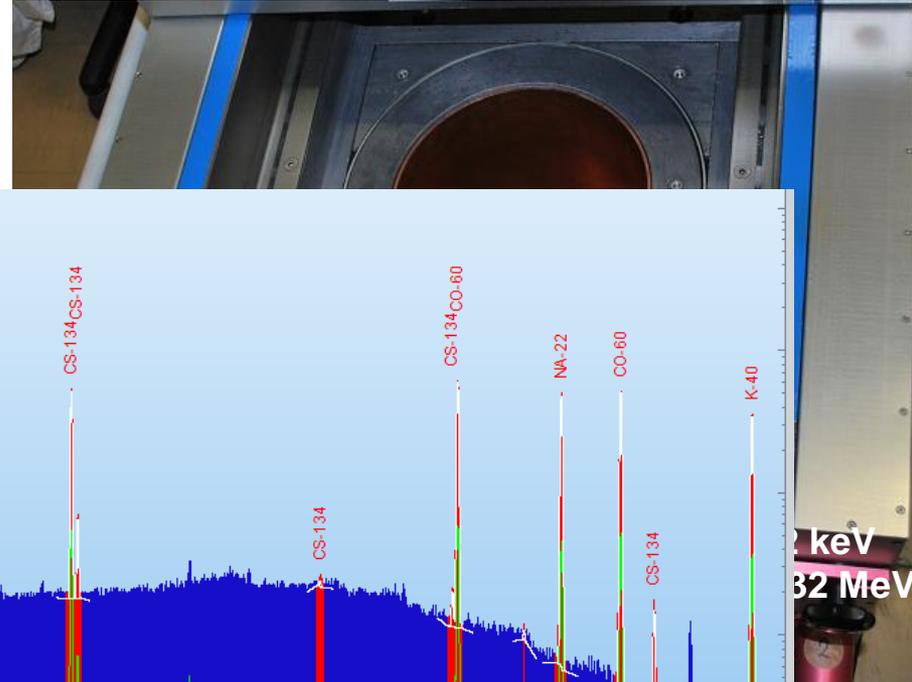
6. Caractérisation

- Valeurs de référence (spectrométrie γ)
- Homogénéité (ANOVA, sous-échantillons)
- Masse volumique : $(0,37 \pm 0,02) \text{ g.cm}^{-3}$ ($k=1$)
- Taux d'humidité : $(2,96 \pm 0,02) \%$ ($k=1$)



Valeurs de référence

- Mesurées par spectrométrie γ sur 7 échantillons de 0,5 L (72 h comptage/écht.)
- Correction d'auto-atténuation ($d_{herbe} = 0,37$ vs $d_{étalo} \sim 1 \text{ g.cm}^{-3}$, dépend de l'E, sources ponctuelles de ^{152}Eu & ^{133}Ba)
- Bilan des incertitudes ($k=1$):



Valeurs de référence

- Mesurées par spectrométrie γ sur 7 échantillons de 0,5 L (72 h comptage/écht.)
- Correction d'auto-atténuation ($d_{herbe} = 0,37$ vs $d_{étalo} \sim 1 \text{ g.cm}^{-3}$, dépend de l'E, sources ponctuelles de ^{152}Eu & ^{133}Ba)
- Bilan des incertitudes (k=1):
 - comptage (^{109}Cd : 0,8 % ; < 0,5 %)
 - rendement (^{109}Cd : 2,7 % ; < 1,5 %)
 - auto-atténuation (~ 1,7 %)
 - homogénéité (< 1,3 % ; 1,1 % ^{40}K)

Valeurs cibles

- Activités massiques du mélange de marquage (mesure par spectrométrie γ)
- Masse de solution utilisée (20 marquages)
- Bilan des incertitudes (k=1):
 - A_m mélange marquage (entre 0,6 % pour ^{60}Co et 1,2 % pour ^{109}Cd)
 - Ecart-type de la pipette utilisée (0,2 %, mesuré par pesée)

Radionucléide	$A_{r \text{ mes.}}$ Bq.kg ⁻¹	$u_{r \text{ mes.}}$ Bq.kg ⁻¹	Rende- ment	u_{rdt} %	Radionucléide	$A_{r \text{ calc.}}$ Bq.kg ⁻¹	$u_{r \text{ calc.}}$ Bq.kg ⁻¹
<i>Mélange de marquage</i>					<i>Mélange de marquage</i>		
^{22}Na	165,0	3,9	97,2%	2,5%	^{22}Na	169,8	1,2
^{60}Co	176,6	4,4	100,7%	2,6%	^{60}Co	175,3	1,1
^{109}Cd	894	29	98,6%	3,4%	^{109}Cd	906	11
^{134}Cs	113,3	3,0	98,4%	2,8%	^{134}Cs	115,2	1,3
^{137}Cs	171,9	4,3	98,6%	2,6%	^{137}Cs	174,3	1,3
<i>Naturellement présent</i>					<i>Naturellement présent</i>		
^{40}K	1213	33			^{40}K	/	/

- Vérification de l'homogénéité de la matrice produite à une sous-échelle (1/10^{ème})
- Mesures sur 10 sous-échantillons, 48 h par échantillon, 3 mesures
- Analyse de variance à un facteur (ANalysis Of VAriance) (ISO-Guide 35, 2006)
 - Les sous-échantillons proviennent de populations dont la moyenne et la variance sont les mêmes?
 - Comparaison de variances : variance liée au facteur testé et la variance résiduelle
 - Estimateur de la variance : SCE
 - SCE_{facteur} significativement différente de $SCE_{\text{résiduelle}}$?
 - Distribution du test de Fisher (*F-test*)
 - $F = MC_{\text{facteur}} / MC_{\text{résiduelle}} < F_{(4,10)} @ 5 \% = 3,48$?

Source de variation	Somme des carrés	Degrés de liberté	Moyenne des carrés	F
Facteur testé	3,5E-08	4	8,8E-09	1,36
Résidu	6,4E-08	10	6,4E-09	
Total	9,9E-08	14	7,1E-09	

RN	F
²² Na	1,84
⁶⁰ Co	1,46 ; 0,77
¹⁰⁹ Cd	1,36
¹³⁴ Cs	1,82 ; 0,83
¹³⁷ Cs	3,25
⁴⁰ K	1,50

- Si "oui" : le ¹⁰⁹Cd est réparti de façon homogène dans les échantillons de 50 mL @ un niveau de risque de 5 %

- Traitement des résultats selon les critères des tests de l'IRSN :

- Ecart relatif entre A_p et A_r : $|e_p| = \frac{|A_p - A_r|}{A_r}$

- Ecart normalisé E_n (incertitudes de mesure élargies (k=2)) : $E_n = \frac{|A_p - A_r|}{\sqrt{U_p^2 + U_r^2}}$

- Classification des résultats :

Classification	Résultat satisfaisant	Résultat discutable	Résultat non satisfaisant
$ e_p $	< 15%	15%-20%	> 20%
E_n	≤ 1	1-1,3	$\geq 1,3$

- Valeur moyenne de tous les écarts relatifs : 0,8 %
 - Résultats des participants également répartis au autour des valeurs de référence
- Valeurs moyennes des écarts relatifs par RN : entre -0,6 % pour ^{22}Na et +2,7 % pour ^{137}Cs
- Dispersion des écarts par RN : entre 3,1 % pour ^{40}K et 8,5 % pour ^{109}Cd (faibles E et I_γ)
- Tous les e_p et E_n satisfaisants

Conclusions

- Procédure de marquage satisfaisante : rendements voisins de 100 % quel que soit le RN considéré (solvant recondensé, solution de nettoyage du ballon)
- Valeurs de référence (mesurées) dont les incertitudes sont comprises entre 2,4 % pour ^{22}Na et 3,2 % pour ^{109}Cd @ $k=1$
- Homogénéité vérifiée sur des sous-échantillons (15 g)
- Bons résultats des participants au test (100 % résultats satisfaisants)

Perspectives

- Utilisation de la matrice pour l'étalonnage du spectromètre (éviter les corrections d'auto-atténuation pour des masses volumiques similaires)
- Poursuite de l'étude sur matrice de type sol & des niveaux de marquage plus faibles
- Mesure de rendements de marquage (incertitude max. ici : 3,4 %) et vérification de l'homogénéité : calcul des valeurs de référence, confirmées par moins de mesures par spectrométrie gamma



Laboratoire National
Henri Becquerel

MERCI POUR VOTRE ATTENTION

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
Centre de Saclay | 91191 Gif-sur-Yvette Cedex
T. +33 (0)1 69 08 39 51 | F. +33 (0)1 69 08 26 19

Etablissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019

DRT/LIST
DM2I

Laboratoire National Henri Becquerel
Laboratoire de Métrologie de l'Activité

FROM RESEARCH TO INDUSTRY

cea tech

list