Seuil de décision associé à des mesures multiples. Application à la synthèse des résultats de surveillance environnentale de l'IRSN

Threshold decision associated to multiple measurements

A. Vivier[1], G. Manificat[2], J-L. Picolo[3], S. Fleury[3] M. Mokili[4], J. Guo[5]

[1] CEA, Institut National des Sciences et Techniques nucléaires, Centre de Saclay, 91191 Gif sur Yvette Cedex. Tél 01.69.08.26.56, alain.vivier@cea
[2] IRSN, Direction de l'environnement et de l'Intervention, Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement, BP 40035 - 78116 Le Vésinet Cedex guillaume.manificat@irsn.fr
[3]IRSN, Direction de l'environnement et de l'intervention, Service de traitement des échantillons et de métrologie pour l'environnement BP 40035 - 78116 Le Vésinet Cedex, jean-louis.picolo@irsn.fr
[4] Laboratoire SUBATECH – UMR 6457: Ecole des Mines de Nantes, IN2P3/CNRS, Université de Nantes
4, rue Alfred Kastler – La Chantrerie, BP 20722, 44307 Nantes Cedex 03, France mokili@subatech.in2p3.fr
[5] ORTEC-AMETEK Inc, 801 S. Illinois Ave., Oak Ridge, TN 37830, USA.

Résumé : Lorsque l'activité d'un échantillon est, pour des raisons diverses, mesuré plusieurs fois, alors à chaque mesure peut être associé un seuil de décision et une limite de détection qui lui est propre. Chaque mesure peut être analysée individuellement au travers de ce seuil de décision propre. L'ensemble des mesures peut parfois présenter des résultats manquant de cohérence, certaines mesures étant inférieure au seuil de décision et les autres supérieures. Le problème se pose alors de construire un seuil de décision et une limite de détection prenant en compte tous les résultats individuels, et de décider si la radioactivité est finalement détectée ou non au vu de toutes les informations recueillies. Il est intéressant de constater qu'il est possible que le seuil de décision cumulé sur l'ensemble des résultats permette parfois de décider que la radioactivité est présente alors que la totalité des résultats individuels sont négatifs au sens des seuils de décisions individuels. L'objectif de cet article est de montrer comment se déterminent ces seuils et ces limites cumulés de façon cohérentes en fonction des conditions expérimentales. De façon générale, une méthode de cumul rigoureuse permet de diminuer systématiquement les seuils de décisions et limites de détection en termes d'activité. Cette approche trouve entre autres des applications intéressantes en spectrométrie gamma sur des émetteurs multiples, sur des rejets d'effluents ou sur des mesures périodique d'environnement. En partant des mesures réalisées par l'IRSN dans le cadre de la surveillance nationale de l'environnement, nous verrons l'impact potentiel de ces méthodes sur les analyses et bilans finaux.

Abstract : When the sample activity is measured for various reasons several times, then with each measurement can be associated an individual decision threshold and limit of detection. Each measurement can be analyzed through its own decision threshold. The whole measurements can sometimes present contradictory results, certain measurements being lower than the decision threshold and other higher. The problem then arises to build a decision threshold and a detection limit taking into account all the individual results, and to decide if the radioactivity is finally detected or not. It is interesting to note that it is sometimes possible that the decision threshold taking account of all the results makes it possible to decide that the radioactivity is present even if the totality of the individual results are negative in terms of individual decision threshold. The purpose of this article is to show how these collective thresholds and coherent limits can be determined in way according to the experimental conditions. In a general way, a rigorous method of cumulating makes it possible to systematically decrease the decision threshold and limit of detection in terms of activity. This approach has interesting applications in gamma spectrometry with multi-emitters, effluents rejections or periodical environmental measurements. On the basis of measurements realized by

the IRSN within the framework of the national monitoring of the environment, we will see the potential impact of these methods on the final assessments.

Key words : decision threshold , detection limits,

Introduction

Les situations expérimentales où il est possible de cumuler des mesures multiples sont diverses mais peuvent être répartis suivant trois schémas généraux possibles :

- **Schéma n°1(répétabilité)** : Itération des mesures sur un même échantillon dans des conditions de mesures identiques, sauf éventuellement la durée de comptage.
- **Schéma n°2(reproductibilité simple)** : reproduction des mesures sur un même échantillon dans des conditions de mesures différentes : rendements, systèmes de mesures ect...
- **Schéma n°3 (reproductibilité élargie)** : mesures multiples d'échantillons différents mais obtenus à partir d'un mesurande unique qu'il convient de bien définir.

Dans tous les cas de figure l'objectif est de considérer des situations où le cumul des valeurs obtenues a un sens, que ce cumul corresponde à la somme des mesures individuelles, à leur moyenne algébriques ou pondérées, ou tout autre statistique issue de l'ensemble des résultats. Considérons à titre d'exemple la situation courante d'une mesure par spectrométrie gamma d'un échantillon susceptible de contenir un radionucléide multi-émetteur gamma. La prise en compte de toutes les régions d'intérêt (*ROI*) de ce radionucléide sur le spectre expérimental s'inscrit dans le schéma n°2. En effet chaque ROI peut être assimilée à un compteur nucléaire spécifique d'une énergie de photons émis par ce radionucléide. Chacun de ces « compteurs » peut être utilisé pour estimer l'activité de ce radionucléide, mais les photons mesurés, les intensités et les rendements sont différents d'une ROI à l'autre, répondant ainsi au critère de reproductibilité. On obtient ainsi un nombre déterminé n d'estimations $\hat{A}_n$ d'une même activité vraie $\tilde{A}$ dans des conditions de reproductibilité, ces estimations ainsi mesurées ayant vocation à être du même ordre de grandeur, mais pas leurs incertitudes ni leurs seuils de décisions propres.

On peut montrer que dans une telle situation la meilleure estimation de la valeur vraie consiste à prendre la moyenne des n activités mesurées pondérées de leurs précisions[1]. Cette démarche correspond bien à la prise en compte de toutes les informations accessibles dans le spectre pour ce radionucléide, démarche appelée ici de façon générique « cumul », et non pas à la prise en compte seulement de la meilleure estimation individuelle parmi les n obtenues. La meilleure estimation individuelle correspond en général à l'estimation ayant la plus petite incertitude, où de façon quasi-équivalente au pic « le plus rempli ». On peut alors montrer que l'estimation par cumul, ici la moyenne pondérée, est toujours meilleure que la meilleure des estimations individuelles. Ce résultat se comprend intuitivement dans la mesure où chaque mesure que l'on intègre au cumul apporte une quantité d'information supplémentaire, au prorata de sa précision, ce qui ne peut qu'améliorer peu ou prou l'information finale. C'est bien évidemment tout l'intérêt de cumuler l'ensemble des informations disponibles lorsque cela est possible.

En spectrométrie gamma l'usage de la moyenne pondérée sur l'ensemble des pics d'un même radionucléide ne pose aucun problème pour autant que ces pics soient « suffisamment remplis ». Moins prosaïquement le calcul de la moyenne pondérée ne pose aucun problème aux utilisateurs lorsque toutes les estimations sont supérieures à leurs seuils de décisions respectifs, signifiant par là que chaque mesure est jugée significative d'une présence avérée du radionucléide dans l'échantillon. Les problèmes apparaissent lorsque toutes ou partie des n mesures sont inférieures à leurs seuils de décisions respectifs. En effet lorsque une mesure est inférieure au seuil de décision, on décide que l'effet n'est pas détecté et l'on déclare « < LD », i.e. que la valeur vraie est inférieure à la limite de détection associée à la ROI considérée.

[1] La précision se définie comme l'inverse du carré de l'incertitude. Ainsi à une petite incertitude correspond une grande précision. C'est aussi la quantité d''information au sens de Fischer.

Ainsi lorsque k mesures sur n sont dans ce cas là, plusieurs questions apparaissent :

- Faut-il intégrer ces k mesures non significatives au cumul ?
- Si « oui » sous quelle forme prendre en compte l'information « <LD » ?
- Si « non » ne néglige t'on pas des informations au risque de biaiser le résultat final ?
- Toujours dans ce cas là que faut-il faire si toutes les mesures sont inférieures à leurs seuils de décision respectifs ?
- Dans tous les cas de figure quel est le seuil de décision et la limite de détection correspondant à la moyenne pondérée finale ?
- Peut-on d'une façon ou d'une autre utiliser les n seuils de décisions individuels pour déterminer le seuil de décision sur le cumul ?

Il existe dans la littérature différentes méthodes pour tenter d'exploiter des mesures non significatives (cf. *Helsel, 2005 et Fievet 2009*). Ces méthodes peuvent être assez lourdes à mettre en œuvre et varient suivant la proportion k/n. Nous ne les aborderons pas ici mais il ne s'agit que d'un pis-aller. En dehors de ce point, l'objectif de cet article est de répondre à ces différentes questions, et de montrer l'intérêt de cumuler correctement des mesures multiples lorsque cela est possible. Nous verrons que cet intérêt augmente lorsque le nombre de mesures disponibles augmente. Dans certaines situations expérimentales, comme le suivi périodique ou continu de la radioactivité dans l'environnement, où les mesures sont souvent proche des seuils de décisions, le nombre de mesures est effectivement très élevé et l'impact de ces méthodes sur la pertinence du résultat final peut souvent être spectaculaire, au point même de faire douter de la légitimité de ces méthodes.

L'un des éléments de réponse les plus importants que l'on justifiera ultérieurement est qu'en réalité il ne faut surtout pas se préoccuper de savoir si les mesures individuelles sont inférieures ou non à leur seuil de décision respectifs pour établir le cumul. A l'inverse s'en préoccuper avant d'effectuer le cumul est non seulement inutile mais pose des difficultés insurmontables, et certaines des questions que nous venons d'évoquer, pour légitime qu'elles puissent apparaitre, ne doivent pas être posées.

1 Détermination du seuil de décision cumulé dans le cas de répétition de comptage

1.1 DESCRIPTION DU PROCESSUS DE REPETABILITE ET ANALYSE DES RESULTATS INDIVIDUELS

En partant d'une situation simple, correspondant au schéma n°1, celui de l'itération, il est possible d'établir sans difficultés les règles principales que l'on retrouvera dans tous les cas de figure. De plus cette situation simple de cumul est déjà implicitement à l'œuvre lorsque l'on effectue une mesure unique d'activité à partir d'un comptage unique de bruit de fond et d'un comptage brut unique de l'échantillon. Ainsi une mesure unique de dix secondes correspond naturellement à rebours au cumul de dix mesures d'une seconde dans des conditions de répétabilité.

On considère une série de 10 mesures d'un même échantillon dans des conditions de répétabilité : même détecteur, même distance source-détecteur, même condition de bruit de fond, même durée de comptage.

Pour chaque mesure individuelle « i » on peut distinguer plusieurs phases dans l'opération de mesure et de son analyse :

- **Phase 1 : construction de l'outil d'aide à la décision :**
  - Comptage de bruit de fond pour une durée T_0 identique à la durée de comptage échantillon notée T_S : le résultat obtenu est noté BdF_i
  - Détermination du seuil de décision en termes de comptage net suivant la formule

$$SD_{Net\,i} = k_{1-\alpha}\sqrt{2(BdF_i + 1)} \quad (1)$$

- Détermination de la limite de détection en termes de comptage net suivant la formule $LD_{Net\,i} = k_{1-\beta}^2 + 2SD_{Net\,i}$ (2), correspondant au cas de risques alpha et bêta identiques.

➢ **Phase 2 : la mesure échantillon :**

- Comptage brut échantillon : le résultat obtenu est noté $Brut_i$
- Détermination du comptage net par correction de bruit de fond $Net_i = Brut_i - BdF_i$

➢ **Phase 3 : l'analyse du résultat :**

- Test seuil de décision $Net_i > SD_{Net\,i}$?
- Si « oui » l'effet est considéré détecté. Estimation du comptage moyen vrai et incertitude associée $\hat{\mu}_{Net} = Net_i \pm k\sqrt{Net_i + 2BdF_i}$
- Si « non» l'effet est considéré comme non détecté. Expression finale du résultat : $"< LD_{Net}" \quad \Leftrightarrow \quad 0 < \mu_{Net} < LD$

Remarque : dans la mesure où les durées de comptage T_0 et T_S sont identiques et où l'on raisonne sur les valeurs de comptages et non sur les taux de comptages, ces variables n'interviennent pas explicitement dans le calcul des seuils et limites. Dans le cas inverse, si $T_0 \neq T_s$, on aurait alors

$$SD_{Net\,i} = k_{1-\alpha}\sqrt{\left(1 + \frac{1}{n}\right).\frac{BdF_i + 1}{n}} \quad avec \quad n = \frac{T_0}{T_s} \; (cf\ Vivier;\ Aupiais\ 2007)$$

Exemple numérique :

	Phase 1			***Phase 2***		***Phase3***			
	BdF_i	$SD_{Net\,i}$	$LD_{Net\,i}$	BdF_i	Net_i	*Net> SD?*	*Résultat*	*Incertitude élargie (k=2)*	*incertitude relative*
mes. 1	100	28	59	143	43	oui	43	31	73%
mes. 2	96	27	58	148	52	oui	52	31	60%
mes. 3	113	29	63	130	17	***non***	< LD	/	/
mes. 4	117	30	64	158	41	oui	41	33	81%
mes. 5	142	33	70	134	-8	***non***	< LD	/	/
mes. 6	110	29	62	154	44	oui	44	32	74%
mes. 7	126	31	66	142	16	***non***	< LD	/	/
mes. 8	138	33	69	138	0	***non***	< LD	/	/
mes. 9	103	28	60	152	49	oui	49	32	65%
mes. 10	104	28	60	123	19	***non***	< LD	/	/

Tableau 1 : analyses individuelles de 10 comptages d'un même échantillon

1.2 CUMUL DES RESULTATS PAR SOMMATION DES COMPTAGES INDIVIDUELS

L'objectif du cumul est de synthétiser l'ensemble de ces informations en une seule ligne. A nouveau apparait le problème d'intégrer à ce cumul des informations du type « <LD ». Or dans ce cas précis le point de départ de cette synthèse est triviale. En effet, et pour des raisons purement physiques, les deux séries de comptages brutes et de bruit de fond peuvent être perçus comme des résultats intermédiaires partiels de deux comptages uniques : un comptage unique de bruit de fond durant $10 \times T_S$ et un comptage brut unique de même durée. Ce simple constat va permettre de réaliser le cumul sans se préoccuper de savoir si chaque résultat est supérieur ou inférieur à son seuil de décision.

Ainsi apparait une règle fondamentale dans ce type de problème :

❖	**Règle n°1** : les informations de la phase d'analyse des mesures individuelles (phase 3)ne doivent pas être prises en compte dans l'élaboration du cumul et il faut à l'inverse conserver sans états d'âmes, dans l'objectif de réaliser un cumul toutes les informations des phases 1 et 2 de toutes les mesures individuelles, quelles qu'elles soient, y compris lorsque les valeurs nettes sont négatives:

	Phase 1			*Phase 2*	
	BdF_i	$SD_{Net\,i}$	$LD_{Net\,i}$	$Brut_i$	Net_i
mes. 1	100	28	59	143	43
.					
.					
mes. 10	104	28	60	123	19

Tableau 2 : informations à conserver avant le cumul

L'opération de cumul consiste dans ce cas particulier à considérer une mesure unique de bruit de fond suivant $BdF_\Sigma = \sum_{i=1}^{n} BdF_i$ (3) et une mesure unique brute échantillon suivant $Brut_\Sigma = \sum_{i=1}^{n} Brut_i$. Dans la mesure où la somme conserve le caractère poissonien des valeurs de comptages, ces deux valeurs de comptages permettent d'appliquer le même mode opératoire que précédemment :

- **Phase 1** : la construction de l'outil d'aide à la décision sur le résultat cumulé :
  - Comptage de bruit de fond égal à BdF_Σ .
  - Détermination du seuil de décision « cumul »: $SD_{\Sigma Net} = k_{1-\alpha}\sqrt{2BdF_\Sigma}$ (4)
  - Détermination de la limite de détection « cumul » $LD_{\Sigma Net} = k_{1-\beta}^2 + 2SD_{\Sigma Net}$ (5),

- **Phase 2** : la mesure échantillon cumulée:
  - Comptage brut échantillon : le résultat obtenu est noté $Brut_\Sigma$
  - Détermination du comptage net $Net_\Sigma = Brut_\Sigma - BdF_\Sigma$

- **Phase 3** : l'analyse du résultat cumulée:
  - Test seuil de décision $Net_\Sigma > SD_{\Sigma Net}$?
  - Si « oui » l'effet est considéré détecté. Estimation du comptage moyen vrai et incertitude associée $\mu_{Net_\Sigma} = Net_\Sigma \pm k\sqrt{Net_\Sigma + 2BdF_\Sigma}$
  - Si « non» l'effet est considéré comme non détecté. Expression finale du résultat : $"< LD"$ $\Leftrightarrow$ $0 < \mu_{Net} < LD$

On notera que le mesurande d'intérêt Net_Σ est aussi égal à $Net_\Sigma = \sum_{i=1}^{n} Net_i$.

Appliquée à l'exemple précédent on obtient le résultat cumulé suivant :

	Phase 1			*Phase 2*		*Phase3*			
	BdF_Σ	$SD_{\Sigma Net}$	$LD_{\Sigma Net}$	$Brut_\Sigma$	ΣNet	*Net> SD?*	*Résultat*	*Incertitude élargie (k=2)*	*incertitude relative*
Cumul par somme	1149	94	192	1422	273	oui	273	101	37%

Tableau 3 : cumul par sommation

Le résultat évident montrant l'intérêt général du cumul est ici l'incertitude relative finale égale à 37 %, alors que pour l'ensemble des résultats individuels, la moyenne des incertitudes relatives calculées sans tenir compte des seuils de décision est de l'ordre de 150 %. Une seconde indication moins évidente mais tout aussi significative de cet intérêt est de constater que le résultat final en termes de comptage net (*273*) est maintenant largement supérieur non pas seulement au seuil de décision mais aussi à la limite de détection (*192*). Cela confirme que la radioactivité est confirmée avec une très grande probabilité[2], alors que cinq mesures individuelles (partielles) sur les dix ne confirmaient pas cette présence. En conclure que la probabilité que l'échantillon soit non radioactif ait pu être égale à 0,5 eut été fort pessimiste (ou fort optimiste si l'on eût préféré qu'il ne le soit pas).

1.3 DÉTERMINATION DU SEUIL DE DÉCISION SUR LE CUMUL À PARTIR DES SEUILS DE DÉCISION INDIVIDUELS

La méthode de cumul utilisé ici n'a pas nécessité de connaitre au préalable les seuils de décision et limites de détection individuels (ou « partiels »), ce qui semble contredire la règle n°1 qui préconise de les garder. De fait nous allons montrer maintenant que ces valeurs peuvent être employées pour retrouver directement le seuil de décision propre à la valeur de cumul.

Si l'on considère les relations 1,2 et 4 on peut écrire :

$$\begin{cases} (1)\quad SD_{\Sigma Net} = k_{1-\alpha}\sqrt{2BdF_\Sigma} \\ (2)\quad BdF_\Sigma = \sum_{i=1}^{n} BdF_i \\ (3)\quad SD_{Net\,i} = k_{1-\alpha}\sqrt{2BdF_i} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} SD_{\Sigma Net} = k_{1-\alpha}\sqrt{2\sum_{i=1}^{n} BdF_i} \\ BdF_i = \dfrac{SD_{Net\,i}^2}{2k_{1-\alpha}^2} \end{cases} \Rightarrow SD_{\Sigma Net} = k_{1-\alpha}\sqrt{2\sum_{i=1}^{n}\frac{SD_{Net\,i}^2}{2k_{1-\alpha}^2}} = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{Net\,i}^2}$$

On obtient ainsi une relation simple entre le seuil de décision sur le cumul et les seuils de décisions partiels : $SD_{\Sigma Net} = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{Net\,i}^2}$. Il est important de noter que cette relation est analogue à la relation entre l'incertitude sur le résultat cumulé et les résultats partiels. En effet soit u_Σ l'incertitude associé à Net_Σ et u_i les incertitudes associés aux résultats partiels Net_i, on sait que la relation $Net_\Sigma = \sum_{i=1}^{n} Net_i$ permet d'exprimer l'incertitude associée suivant la relation $u_\Sigma = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} u_i^2}$. Cette analogie ne vaut pas démonstration, mais devient plus pertinente si l'on se rappelle que fondamentalement $SD = k_{1-\alpha}\sigma_{H0}$ [*eq 3.1 réf. 1*], avec σ_{H0} l'écart-type de la distribution des

[2] *Un calcul précis montre qu'avec de telles valeurs la probabilité résiduelle que l''échantillon soit non radioactif est égale à* 3.10^{-8} .

mesures dans l'hypothèse H_0 (échantillon non radioactif). Etant homogène à un écart-type[3], les seuils de décisions se « propagent » dans le modèle du résultat cumulé suivant la même algèbre que les incertitudes. Ce constat permet d'énoncer la règle suivante :

❖	**Règle n° 2** : les seuils de décisions suivent une algèbre d'écart-type et se composent dans des opérations de cumuls suivant la même formule que les incertitudes.

Cette règle puissante va nous permettre de réaliser un cumul des dix mesures non plus en effectuant une somme « naturelle » mais en considérant les moyennes des comptages bruts et de bruits de fond.

Concernant la limite de détection, la résolution rigoureuse est en général plus délicate (sauf dans cet exemple, cf rel. 5) dans la mesure où la limite n'est pas parfaitement homogène à un écart-type en raison du terme $k_{1-\beta}^2$ dans l'expression (5). Cependant en gardant la relation approximative $LD \approx 2SD$ couramment utilisée on peut estimer la limite de détection cumulée en appliquant :

- Soit la règle n°2 sur les limites de détection individuelles. A titre d'exemple suivant cette règle on obtient dans notre exemple $LD_{\Sigma Net} \approx \sqrt{\sum_{i=1}^{n} LD_{Net\,i}^2} = 200$
- Soit directement l'expression $LD \approx k_{1-\beta}^2 + 2SD_{\Sigma Net}$ donnant ici $LD_{\Sigma Net} \approx 192$

Ces approximations sont d'autant plus recevables que les seuils et limites calculés à partir des valeurs expérimentales sont, comme toutes statistiques expérimentales, entachées d'incertitude. Un calcul (réf 2) montre ici que l'incertitude-type (k=1) sur la valeur exacte de la limite de détection est égale à $u_{LD_\Sigma} \approx 5$, soit une incertitude élargie de l'ordre de 10, ce qui permet d'accepter ces approximations.

1.4 CUMUL DES RESULTATS PAR MOYENNE DES RESULTATS INDIVIDUELS

Bien que moins naturel sur un plan physique, il est tout aussi intuitif de synthétiser l'ensemble des 10 mesures en effectuant la moyenne des valeurs de comptages sur une durée T_S . Notons que cette moyenne à un sens dans la mesure où les comptages sont effectués dans des conditions de répétabilité pour des durées identiques. Là encore en suivant la règle n° 1, c'est à dire sans se préoccuper de savoir si les résultats individuels sont supérieurs ou non aux seuils de décisions individuels, on peut écrire le résultat cumulé final sur la statistique d'intérêt : $\overline{Net}_n = \dfrac{\sum_{i=1}^{n} Net_i}{n} = 27,3$. On peut alors se poser la question de savoir si cette valeur moyenne est significative ou non, ce qui impose de déterminer un seuil de décision $SD_{\overline{Net}}$ cohérent avec cette statistique. En notant que l'incertitude $u_{\overline{Net}_n}$ sur associée à $\overline{Net}_n$ est égale à $u_{\overline{Net}_n} = \dfrac{1}{n}\sqrt{\sum_{i=1}^{n} u_i^2}$ on en déduit en appliquant la règle n° 2 que le seuil de décision « cumulé » est égal à $SD_{\overline{Net}_n} = \dfrac{1}{n}\sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{Net\,i}^2}$ (6), soit ici $SD_{\overline{Net}_{10}} = 9,4$. Le cumul par moyenne permet d'obtenir les informations suivantes :

---

[3] *Dans l'approche de la norme ISO 11929 on retrouve cette propriété, dans la mesure où le seuil de décision s'écrit* $SD = k_{1-\alpha}\tilde{u}(0)$. *Bien que conceptuellement discutable,* $\tilde{u}(0)$ *est lui aussi un écart-type.*

	Phase 1			Phase 2		Phase3			
	$\overline{BdF}_n$	$SD_{\overline{Net_n}}$	$LD_{\overline{Net_n}}$	$\overline{Brut}_n$	$\overline{Net}_n$	*Net> SD?*	*Résultat*	*Incertitude élargie (k=2)*	*incertitude relative*
Cumul par moyenne	114,9	9,4	20,0	142,2	27,3	oui	27,3	10	37%

Tableau 4 : cumul par moyenne

Dans ce cas particulier de répétabilité, les seuils de décision individuels sont tous du même ordre de grandeur (voir tableau 1). On a alors la relation approchée $\sum_{i=1}^{n} SD_{Net\,i}^2 \approx n.\overline{SD}_{Net}^2$ et la relation (6) peut s'approximer suivant la relation : $SD_{\overline{Net_n}} \approx \frac{1}{n}\sqrt{n.\overline{SD}_{net}^2} = .\frac{\overline{SD_{Net}}}{\sqrt{n}}$ (7) .

Cette dernière relation montre que le seuil de décision sur la valeur moyenne diminue comme l'inverse de la racine carrée du nombre de mesures individuelles et montre là encore l'intérêt d'un tel cumul. On notera que l'incertitude associé à la moyenne diminue dans les mêmes proportions.

Remarque : une erreur que l'on peut commettre est de déterminer ici un seuil de décision suivant une même algèbre que le cumul, soit ici $SD_{\overline{Net_n}} = \overline{SD_{Net}}$.

Si l'on avait éliminé du bilan final les cinq valeurs correspondant à la déclaration »<LD », on aurait obtenu une valeur moyenne nette $\overline{Net}'_5 = 46$ au lieu de $\overline{Net}_{10} = 27$. Les valeurs présentées ici proviennent d'une simulation informatique et la moyenne nette vraie est égale à $\mu_{Net} = 23$. Ce simple exemple montre que la prise en compte des informations du type « <LD » dans le cumul sont susceptibles de fortement biaiser positivement le résultat final.

A ce titre, il est important de ne pas faire disparaitre les résultats expérimentaux d'activité calculée ainsi que celle des seuils de décision dans les tableaux de résultats individuels, si ces résultats sont susceptibles d'être un jour cumulés d'une façon ou d'une autre (règle n°1). Ceci est particulièrement vrai dans les mesures environnementales ou de rejets d'effluents, lorsque l'ensemble des mesures sont réalisées sur de grandes périodes. Il arrive alors trop souvent que les résultats archivés fassent disparaitre les données expérimentales brutes pour ne conserver que des informations du type « <LD », informations non utilisables dans le cumul.

Pour illustrer enfin un résultat totalement contre-intuitif, il est possible que tous les résultats partiels (*tableau 5*) soient trouvés non significatifs (mesures <SD), alors que le cumul (*tableau 6*) permet de mettre en évidence une radioactivité avérée (*avec toujours un risque d'erreur inférieur au risque de seconde espèce* β)

	Phase 1			Phase 2		Phase3			
	BdF_i	$SD_{Net\,i}$	$LD_{Net\,i}$	BdF_i	Net_i	*Net> SD?*	*Résultat*	*Incertitude élargie (k=2)*	*incertitude relative*
mes. 1	119	30	64	122	3	***non***	< LD	/	/
mes. 2	119	30	64	136	17	***non***	< LD	/	/
mes. 3	126	31	66	137	11	***non***	< LD	/	/
mes. 4	144	33	70	139	-5	***non***	< LD	/	/
mes. 5	131	32	67	151	20	***non***	< LD	/	/
mes. 6	119	30	64	145	26	***non***	< LD	/	/
mes. 7	127	31	66	130	3	***non***	< LD	/	/

mes. 8	113	29	63	125	12	***non***	< LD	/	/
mes. 9	127	31	66	145	18	***non***	< LD	/	/
mes. 10	111	29	62	140	29	***non***	< LD	/	/

Tableau5 : Exemple avec 10 résultats individuels négatifs (<SD)

	Phase 1			*Phase 2*		*Phase3*			
	$\overline{BdF}_n$	$SD_{\overline{Net_n}}$	$LD_{\overline{Net_n}}$	$\overline{Brut}_n$	$\overline{Net}_n$	*Net> SD?*	*Résultat*	*Incertitude élargie (k=2)*	*incertitude relative*
Cumul par moyenne	123,6	9,7	20,7	137	13,4	oui	13,4	10	76%

Tableau 6 : cumul par moyenne. Résultat final positif (> SD)

Ces résultats ont été obtenus par simulation avec ici une valeur vraie $\mu_{Net} = 18$. Cet exemple montre que 10 résultats négatifs ne sont pas une preuve définitive d'une absence de radioactivité. La « moyenne » de 10 « non » n'est pas un « non ».

Remarque 1 : une erreur que l'on peut commettre dans un cas pareil serait de déclarer que 10 mesures non significatives ne peuvent déboucher que sur un cumul non significatif, amenant à déclarer « inférieur à la limite de détection cumulée». Pour peu que cette limite de détection cumulée soit à tort calculée comme la moyenne des limites individuelles, les résultats du tableau 4 aboutiraient à un bilan final "$\mu_{Net} < 65$" au lieu de $\hat{\mu}_{Net} = 13 \pm 10$, soit encore en termes de bornes supérieures "$\mu_{Net} < 28$"

Remarque 2 : une indication montrant sans calcul savant que les résultats du tableau 5 incitent à penser qu'il y a « quelque chose » est le constat suivant : lorsque l'on répète des mesures d'un échantillon non radioactif, alors les valeurs nettes sont en moyenne négatives une fois sur deux. Or ici 9 résultats sur 10 sont positifs, ce qui autorise à penser que la probabilité qu'il n'y ait rien est faible.

La limite de détection associée à $SD_{\overline{Net_n}}$ se calcule suivant une formule analogue :

$$LD_{\overline{Net_n}} = \frac{1}{n}\sqrt{\sum_{i=1}^{n} LD_{Net\,i}^2}$$

2 Cumul en spectrométrie gamma (schéma n°2)

2.1 Calcul du seuil de décision sur un cumul par moyenne pondérée des activités mesurées

La mesure d'un émetteur multi-gamma par spectrométrie est un autre cas où le cumul de résultats est couramment employé. La situation expérimentale correspond ici au schéma n° 2, dit de reproduction des mesures. En effet d'un pic à l'autre les valeurs de rendements d'absorption totales ε_i et d'intensités γ_i d'émission sont différentes. Cette situation est analogue à des mesures multiples dans des situations de reproductibilité. La conséquence immédiate est qu'il n'est plus possible ici de cumuler les résultats sur les valeurs de comptages (surfaces), cumul qui n'aurait aucun sens ni physique ni statistique. Par contre chaque pic « i » permet d'estimer la valeur de l'activité moyenne vraie $\tilde{\mathcal{A}}$, valeur bien évidemment commune à tous les pics, par l'activité mesurée, soit $\hat{\mathcal{A}}_i = \mathcal{A}_{mesuréei} = \frac{S_{Net\,i}}{\varepsilon_i.\gamma_i.t}$, *avec* $S_{Net\,i}$ la surface nette du pic et γ_i l'intensité d'émission. Là encore les conditions de reproductibilité ont comme conséquences que les incertitudes $u_i = \sqrt{S_{Net\,i} + 2S_{BdF\,i}}$ associées à chaque pic n'ont pas vocation à être du même ordre de grandeur, ni

d'ailleurs les seuils de décisions $SD_{\mathcal{A}i} = \frac{SD_{Net\,i}}{\varepsilon_i.\gamma_i.t}$ en termes d'activités propres à chaque pics. $S_{BdF\,i}$ est le bruit de fond sous pic estimé par trapèze.

On sait que dans cette situation le meilleur estimateur de la valeur vraie est alors la moyenne pondérée de toutes les mesures :

$$\hat{\mathcal{A}}_{pond.} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2} \mathcal{A}_i}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2}} \quad (3.1)$$

A cet estimateur correspond l'incertitude $u_{pond.} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2}}}$.

En appliquant la règle n° 1 on peut alors calculer le seuil de décision pour teste le caractère significatif ou non de l'activité moyenne pondérée à partir des seuils de chaque pic « i » :

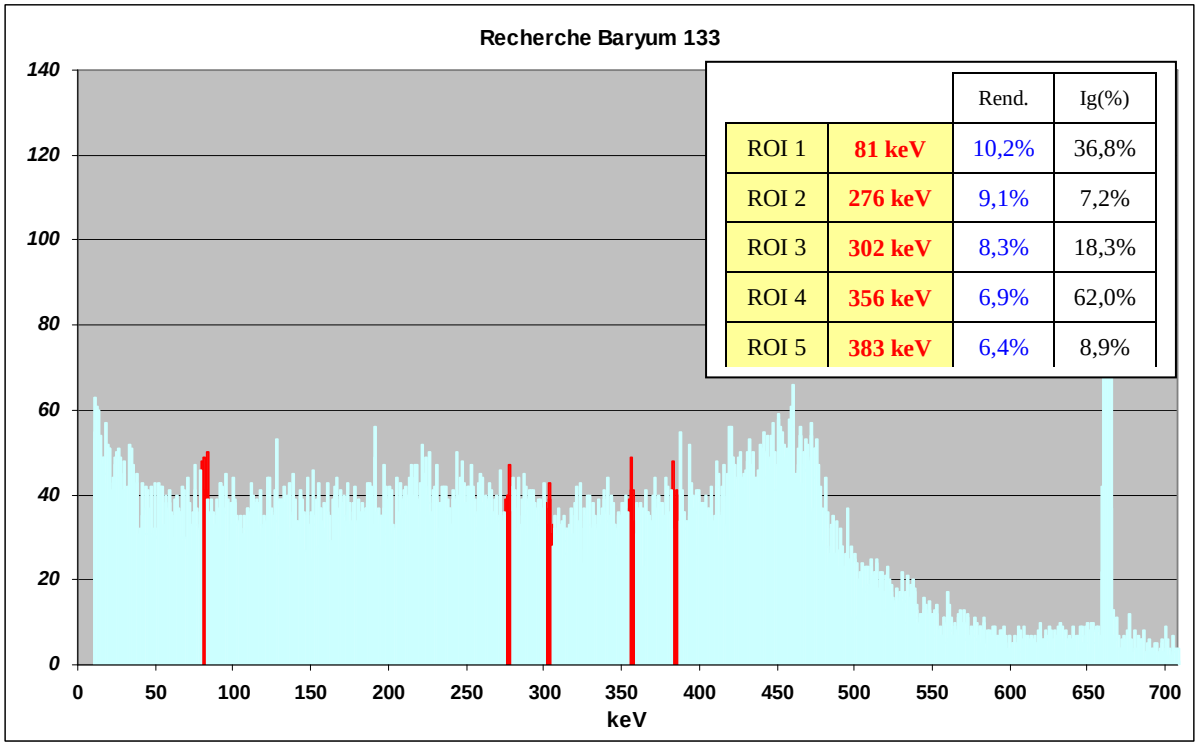
$$SD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{SD_{\mathcal{A}i}^2}}} \quad (3.2)$$

L'intérêt de ce cumul est ici encore immédiat puisque la relation précédente permet d'écrire $SD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) \leq Min\left(SD_i\right)$. Le seuil de décision « cumulé » est plus petit que le meilleur des seuils de décisions partiels.

La limite de détection se calcule comme le seuil de décision par $LD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) \approx \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{LD_{\mathcal{A}i}^2}}}$ (3.3)

2.2 Application à la recherche de baryum 133 dans un spectre gamma :

Le spectre ci-dessous est un spectre acquis durant 600 s avec un bruit de fond important généré dans le domaine d'émission du baryum 133 par une source de Césium 137. Le marquage des 5 ROI du baryum 133 a été effectué dans des conditions optimales (Vivier *et al*, 2010). L'analyse du spectre sur chacune des ROI du Baryum 133 ne permet pas de détecter le Baryum effectivement présent.



graphique 1 : spectre gamma avec marquage a priori pour le baryum 133

Par contre le cumul de ces 5 informations permet de mettre en évidence du baryum 133 : l'activité moyenne pondérée est égale à 1,8 Bq (colonne 3 suivant formule 3.1) pour un seuil de décision cumulé de 1,3 Bq (colonne 1 suivant formule 3.2).

	Phase1			Phase 2			Phase 3			
	BdF sous pic	(1) SD (Bq) par pic	(2) LD(Bq)	Surface Brute	Surface nette	(3) Activité mesurée par pic	(4) >SD ?	(5) Activité déclarée	(6) Incert. abs. (k=2)	(7) Incert. Rel.
81 keV	423	2,2 Bq	5 Bq	472	49	2,2 Bq	non	< LD	/	/
276 keV	410	12,4 Bq	26 Bq	416	6	1,5 Bq	non	< LD	/	/
302 keV	383	5,2 Bq	11 Bq	403	20	2,2 Bq	non	< LD	/	/
356 keV	384	1,8 Bq	4 Bq	418	34	1,3 Bq	non	< LD	/	/
383 keV	412	14,3 Bq	30 Bq	440	28	8,2 Bq	non	< LD	/	/
	CUMUL	**1,3 Bq**	**2,8 Bq**			**1,8 Bq**	**oui**	**1,8 bq**	**1,6 Bq**	**92%**

Tableau 7 : cumul des résultats individuels des pics du baryum 13)

A nouveau le cumul permet de descendre de façon significative les capacités de détection. La limite de détection calculée par (3.3) est égale ici à 2,8 Bq au lieu de 4 Bq si l'on se contente de la ROI à 384 keV ayant la meilleure limite de détection partielle.

3 Cumul sur des prélèvements environnement (schéma n°3) IRSN

Si l'on considère n échantillons d'eau de pluie collectés périodiquement en un même lieu géographique, il est possible de cumuler ces informations dans le sens d'obtenir « la teneur moyenne

d'un radionucléide donnée dans une zone géographique et sur une période précisée ». Ainsi chaque prélèvement peut être considéré comme une partie d'un ensemble constitué de la somme de tous les prélèvements. Le mesurande d'intérêt est alors soit la somme des activités de chaque prélèvement, soit la moyenne des activités de ces prélèvements. La première grandeur est pertinente lorsque l'on s'intéresse à des bilans de rejets, la seconde est plus pertinente si l'on s'intéresse à la radioactivité de l'environnement

Dans tous les cas de figure il est important de noter dès maintenant une différence importante avec les cas précédents. Ici chaque prélèvement est susceptible de contenir une activité vraie partielle $\tilde{A}_i$ significativement différente d'un prélèvement à l'autre, alors que dans les deux cas précédent cette valeur vraie était la même pour toutes les mesures. Nous verrons que cette particularité impacte le calcul de la limite de détection par rapport aux cas précédent, le seuil de décision cumulé étant insensible à cette dispersion potentielle des valeurs vraies.

Application numérique (*tableau 8*) sur 16 prélèvements périodiques pour mesure de tritium dans l'eau de pluie. Les temps de mesures sont de 200 mn.

	Détermination seuils de décision et limites de détection					**Mesures échantillons**			**Test et expressions des résultats individuels**			
	BdF	**SD Net**	**ε (%)**	**SD (Bq/l)**	**LD (Bq/L)**	**N Brut**	**N net**	**Activité mesurée (Bq/L)**	**Net > SD ?**	**Déclaration (Bq/L)**	**Incertitude (Bq/L)**	**Incert. relative**
prél. 1	1020	89	21%	3,45	7,04	1024	4	0,16	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 2	857	81	30%	2,23	4,56	890	33	0,90	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 3	823	80	31%	2,15	4,41	985	162	4,38	***OUI***	**4,4 Bq/L**	***+/- 2,3 Bq/L***	51%
prél. 4	812	79	26%	2,49	5,10	793	-19	-0,60	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 5	903	83	31%	2,26	4,62	967	64	1,73	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 6	722	75	26%	2,38	4,88	775	53	1,69	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 7	784	78	26%	2,46	5,04	952	168	5,32	***OUI***	**5,3 Bq/L**	***+/- 2,6 Bq/L***	49%
prél. 8	1058	90	30%	2,48	5,06	1117	59	1,62	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 9	735	75	26%	2,39	4,89	881	146	4,63	***OUI***	**4,6 Bq/L**	***+/- 2,5 Bq/L***	54%
prél. 10	1004	88	31%	2,39	4,88	1002	-2	-0,05	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 11	899	83	30%	2,31	4,72	989	90	2,50	***OUI***	**2,5 Bq/L**	***+/- 2,4 Bq/L***	95%
prél. 12	806	79	26%	2,49	5,10	858	52	1,65	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 13	772	77	26%	2,51	5,14	797	25	0,81	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 14	937	85	28%	2,57	5,25	1000	63	1,90	***NON***	***< LD***	/	/
prél. 15	820	79	30%	2,23	4,56	924	104	2,92	***OUI***	**2,9 Bq/L**	***+/- 2,3 Bq/L***	79%
prél. 16	818	79	27%	2,45	5,01	906	88	2,72	***OUI***	**2,7 Bq/L**	***+/- 2,5 Bq/L***	92%
Cumul par moyenne pondérée				**0,60**	**1,22**			**2,07**	***OUI***	**2,07 Bq/L**	**+/-0,6 Bq/L**	**30%**

Tableau 8 : mesures périodiques de tritium dans l'eau de pluie

Le cumul se fait ici par moyenne pondérée. On note une dispersion relative $\sigma_{rel.\varepsilon}$ des rendements de l'ordre de 10 % autour d'un rendement moyen égal à 28%. Le calcul de l'activité moyenne pondérée tient compte (règle n°1) des 16 résultats, y compris des « activités négatives ». Ces dernières ne doivent pas être rejetées malgré qu'une activité vraie ne puisse être que positive. Effectivement une mesure unique négative ne peut être considérée comme un estimateur de la valeur vraie, mais possède malgré tout un contenu informationnel réel. Une telle valeur doit être conservée telle quelle, en tant qu'intermédiaire de calcul en vue d'un bilan. Sur un plan pratique il est important d'archiver l'intégralité des valeurs de mesures, positives ou négatives, et de ne pas les faire disparaitre en les remplaçant purement et simplement par l'indication « < LD » lorsque c'est le cas. Ceci est une recommendation faites par plusieurs instances scientifiques comme la Royal Society of Chemistry (Cf. *AMC 2001*) ou l'Agence Fédérale de Protection de l'Environnement des Etats Unis (Cf. *MARLAP*) Nous pouvons ici citer le MARLAP : "***The laboratory should report each measurement result and its uncertainty as obtained (as recommended in Chapter 19) even if the result is less than zero"*** . Ceci ne veut pas dire qu'il est nécessaire de disposer de l'ensemble des résultats de mesures (valeurs de comptage brut, bruit de fond, comptage net, etc.). en fait seule les valeurs de l'activité mesurée et éventuellement la dispersion des rendements (voir l'appendice 4) sont nécessaires. Il est parfaitement concevable de restituer ce résultat en précisant qu'il est inférieur à la limite de détection mais en donnant également la valeur mesurée ainsi que son incertitude.

A titre de comparaison, le fait d'omettre les résultats non significatives conduit à une moyenne d'environ 3,73. Ainsi par rapport au résultat calculée en tenant compte de l'ensemble des valeurs on introduit ici un biais de près de 100%. Ceci n'est pas une simple abstraction calculatoire mais correspond au cas physique où un opérateur mélangerait ces 16 échantillons récoltés tout au long de l'année et souhaiterait comparer le résultat de mesure du mélange avec celles des mesures de chaque échantillons.

Il est ainsi possible de déterminer rigoureusement la valeur moyenne annuelle de l'activité mesurée dans ces échantillons. Si l'on admet la validité de chaque mesure individuelle, cette opération de cumul garde toute validité pour autant qu'elle ait un sens. Il va de soi qu'un cumul de mesures d'échantillons prélevés en différents points à différents moments

Seuil de décision sur la moyenne pondérée :
Comme dans le cas de la spectrométrie gamma le seuil de décision associé à l'activité moyenne pondérée est calculé comme $SD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right)=\sqrt{\dfrac{1}{\sum_{i=1}^{n}\dfrac{1}{SD_i^2}}}$. On obtient un seuil de décision sur l'activité moyenne égal à $0{,}60\ Bq.l^{-1}$, alors que les seuils de décisions individuels sont de l'ordre de $2{,}45\ Bq.l^{-1}$. Le gain là encore est de l'ordre de $\sqrt{16}$.

Limite de détection associé à l'estimation par la moyenne pondérée :
La dispersion des rendements caractérisée par l'écart-type relatif $\sigma_{rel.\varepsilon}$ introduit un terme correctif tendant à augmenter la limite de détection. Cette dernière se calcule suivant la formule :

$$LD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right)=\frac{1}{1-k_{1-\beta}^2.\sigma_{rel.\varepsilon}^2}.\sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n}\dfrac{1}{LD_i^2}}}.$$

Cette expression est analogue à l'expression de la limite de détection dans la norme ISO 11929 (cf rel

28 ISO 11929). Le terme correctif $\frac{1}{1-k_{1-\beta}^2.\sigma_{rel.\varepsilon}^2}$ est aisément négligeable lorsque les rendements ne sont guères dispersés. Pour un risque de seconde espèce de 2,5% il reste inférieur à 1,1 lorsque la dispersion relative sur les rendements reste inférieure à 15 %. Il faut avoir une dispersion relative de 36% pour que ce terme de correction soit égal à 2.

Remarque : si le mesurande d'intérêt est la somme des activités $\hat{\mathcal{A}}_{\Sigma} = \sum_{i=1}^{n} \hat{\mathcal{A}}_{i.}$, lors par exemple du bilan annuel de rejet calculé à partir des rejets mensuels, alors l'application de la règle n° 2 est ici triviale et permet d'écrire :

- Seuil de décision associé: $SD\left(\sum_{i=1}^{n} \hat{\mathcal{A}}_{i.}\right) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{\mathcal{A}i}^2}$.
- Limite de détection associée $LD\left(\sum_{i=1}^{n} \hat{\mathcal{A}}_{i.}\right) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} LD_{\mathcal{A}i}^2}$

4 Perspectives et conclusions

La mise en œuvre de ces méthodes, au travers des règles n°1 et n°2, peut permettre de baisser considérablement les seuils de décision et les limites de détections dans de nombreuses situations : bilan de rejets, mesures environnementales, déchets etc.... . De façon globale on peut s'attendre à diminuer les seuils de décision et les limites de détection d'un facteur $\sqrt{n}$, lorsque le nombre de mesures cumulables est égal à n. Ces méthodes permettent également de s'affranchir de traitements statistiques lourds ou fortement biaisés en prenant en compte rigoureusement l'ensemble des résultats de mesure. Cette rigueur de traitement donne également la possibilité de déterminer si l'ensemble des résultats donnent une information significative ou non sur la présence globale d'un élément.

L'application de ces nouvelles méthodes par le Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement de l'IRSN, qui gère une vingtaine de milliers de prélèvements sur le territoire national, ayant donné lieu à environ une trentaine de milliers d'analyses, devrait apporter

Cette mise en place devrait se faire de façon mesurée dans l'année 2011, car elle nécessite en amont une modification des protocoles de transfert d'informations, et en aval une méthodologie d'analyse prudente des résultats afin qu'à chaque étape les résultats annoncés gardent un sens physique.

Annexe 1 : seuil de décision sur une somme d'activité

Pour un cumul s'effectuant par exemple en sommant deux activité, $\mathcal{A}_\Sigma = \mathcal{A}_1 + \mathcal{A}_2$, on peut écrire :

$$\begin{cases} \mathcal{A}_1 = \dfrac{Brut_1 - BdF_1}{R_1 \times T_1} \quad avec \quad SD_{1[Bq]} = \dfrac{k_{1-\alpha}\sqrt{2\left(BdF_1 + 1\right)}}{R_1 \times T_1} = k_{1-\alpha}\dfrac{\sqrt{2} \times \sigma_{[BdF_1]}}{R_1 \times T_1} & (1) \\ \mathcal{A}_2 = \dfrac{Brut_2 - BdF_2}{R_2 \times T_2} \quad avec \quad SD_{2[Bq]} = \dfrac{k_{1-\alpha}\sqrt{2\left(BdF_2 + 1\right)}}{R_2 \times T_2} = k_{1-\alpha}\dfrac{\sqrt{2} \times \sigma_{[BdF_2]}}{R_2 \times T_2} & (2) \end{cases}$$

Si l'on se rappelle que le seuil de décision se construit sur la distribution de la valeur mesurée de l'activité dans l'hypothèse H0, à savoir un échantillon non radioactif, on obtient la variable aléatoire « activité totale » :

$$\left[\mathcal{A}_{tot}\right]_{H0} = \left[\mathcal{A}_1\right]_{H0} + \left[\mathcal{A}_2\right]_{H0} = \frac{\left[BdF_1\right] - \left[BdF_1^{'}\right]}{R_1 \times T_1} + \frac{\left[BdF_2\right] - \left[BdF_2^{'}\right]}{R_2 \times T_2}$$ de moyenne nulle et d'écart-type :

$$\sigma^2_{[A_{tot}]_{H0}} = \sigma^2_{[A_1]_{H0}} + \sigma^2_{[A_2]_{H0}} = \frac{\sigma^2_{[BdF_1]} + \sigma^2_{\left[BdF_1^{'}\right]}}{\left(R_1 \times T_1\right)^2} + \frac{\sigma^2_{[BdF_2]} + \sigma^2_{\left[BdF_2^{'}\right]}}{\left(R_2 \times T_2\right)^2} = \frac{2\sigma^2_{[BdF_1]}}{\left(R_1 \times T_1\right)^2} + \frac{2\sigma^2_{[BdF_2]}}{\left(R_2 \times T_2\right)^2}$$

Le seuil de décision pour un risque α donnée est $SD_{total} = k_{1-\alpha} \times \sigma_{[A_{tot}]_{H0}}$

En utilisant les relations (1) et (2) on obtient naturellement :

$$SD_{total} = k_{1-\alpha} \times \sigma_{[A_{tot}]_{H0}} = \sqrt{SD^2_{1\,[Bq]} + SD^2_{2\,[Bq]}}\,.$$

Annexe 2 : prise en compte de la dispersion des rendements.

Le problème consiste à déterminer $LD_{[Bq]}$ en tenant compte de la dispersion sur les rendements (l'incertitude sur chacun des rendements est supposé négligeable, de l'ordre de quelques %)). Cette variabilité du rendement est sans influence sur la valeur du seuil de décision sur le comptage net. $LD_{[Bq]}$,dans ce cas de figure, peut être déterminé en reprenant le problème à partir de la distribution des comptages nets possibles pour un ensemble de sources associés à chaque rendements tels que la moyenne $\overline{\mathcal{A}}$ des activités des sources et la moyenne $\overline{R}$ des rendements permettent d'écrire $\overline{Net} = \overline{R} \times \overline{\mathcal{A}} \times T$.

La valeur en limite de détection correspond à l'activité moyenne vraie telle que $LD_{[Bq]} = \overline{A} \quad \Rightarrow LD_{[Net]} = \overline{R} \times LD_{[Bq]} \times T$.

En assimilant la valeur de $LD_{[Net]}$ à une valeur de comptage net moyenne vrai μ_{LD} , alors la variabilité du rendement peut être introduite en considérant la distribution du comptage net possible comme étant généré par une loi de Poisson de moyenne vraie variable :

$$\mu_R = \frac{R}{\overline{R}} \times LD_{[Net]}.$$

La loi de distribution de cette variable s'écrit alors $P(N) = \int_R \frac{e^{\mu_R} \times \mu_R^N}{N!} \times f(R) \times dR$.

Le calcul de l'écart-type peut se faire en considérant cette variable comme le produit de 2 variable : $[Net] = \left[\frac{R}{\overline{R}}\right] \times \left[LD_{[Net]}\right]$ avec :

- $\left[\frac{R}{R_{moy}}\right]$ la variable réduite sur les rendements de moyenne 1 et d'écart-type égal à l'écart-type relatif $\sigma_{\frac{R}{\overline{R}}} = \sigma\%_R$
- $\left[\mathbf{LD_{[Net]}}\right]$ une variable poissonnienne de moyenne et de variance LD

La loi de composition des incertitudes permet d'écrire pour un produit de deux variables indépendantes et en négligeant la dérivée croisée de second ordre:

$$[Y] = [X_1] \times [X_2]$$

$$\sigma_Y^2(\overline{X}_1, \overline{X}_2) \approx \left(\overline{X}_1\right)^2 \times \sigma_{X_2}^2 + \left(\overline{X}_2\right)^2 \times \sigma_{X_1}^2$$

Pour les variables définis comme précédemment on obtient :

$$\sigma_{Net} \approx \sqrt{\left(LD_{[Net]} \times \sigma\%_R\right)^2 + LD_{[Net]}}$$

En réintroduisant l'incertitude ramenée par le bruit de fond net on obtient:

$$S_{NeT} = \sqrt{LD_{[N\varepsilon T]} + \left(LD_{[N\varepsilon T]}.\sigma\%_R\right)^2 + \left(1+\frac{1}{n}\right)\left(\frac{BDF_0+1}{n}\right)}$$
$$= \sqrt{LD_{[N\varepsilon T]} + \left(LD_{[N\varepsilon T]}.\sigma\%_R\right)^2 + \frac{SD^2_{[N\varepsilon T]}}{k^2_{1-A}}}$$

En reprenant le raisonnement pour la détermination de la limite de détection et en considérant une loi de distribution des rendements gaussienne

$$LD_{[Net]} = SD_{[Net]} + k_{1-\beta} \times \sqrt{LD_{[Net]} + LD_{[Net]}{}^2 \times \sigma\%_R{}^2 + \frac{SD_{[Net]}{}^2}{k^2_{1-\alpha}}}$$

$$\left(LD_{[Net]} - SD_{[Net]}\right)^2 = k^2_{1-\beta} \times \left(LD_{[Net]} + LD_{[Net]}{}^2 \times \sigma\%_R{}^2 + \frac{SD_{[Net]}{}^2}{k^2_{1-\alpha}}\right)$$

La résolution de cette équation du second degré nous donne :

$$LD_{[Net]} = \frac{\left(2\times SD_{[Net]} + k^2_{1-\beta} + \sqrt{\left[2\times SD_{[Net]} + k^2_{1-\beta}\right]^2 - 4\times\left(1 - k^2_{1-\beta}\times\left(\sigma\%_R\right)^2\right)\times\left[1-\frac{k^2_{1-\beta}}{k^2_{1-\alpha}}\right]\times SD_{[Net]}{}^2}\right)}{2\times\left(1-k^2_{1-\beta}\times\left(\sigma\%_R\right)^2\right)}$$

En prenant des risques α et β assez symétriques on peut écrire (le second terme sous la racine reste en général négligeable)

$$LD_{[Net]} \approx \frac{1}{\left(1-k^2_{1-\beta}\times\left(\sigma\%_R\right)^2\right)} \times \left(k^2_{1-\alpha} + 2\times SD_{[Net]}\right)$$

Cette expression est analogue à l'expression de la limite de détection dans la norme ISO 11929

Annexe 3 : formulaire

Contexte expérimental	Mesurande d'intérêt	Seuil de décision associé	Limite de détection associée
comptage unique	$Net = Brut - \frac{BdF}{n}$	$SD_{Net} = k_{1-\alpha}\sqrt{\left(1+\frac{1}{n}\right).\frac{BdF+1}{n}}$	$LD_{Net} = k_{1-\beta}^2 + 2SD_{Net}$
Mesure d'activité unique	$\mathcal{A}=\frac{Net}{\varepsilon_i.\gamma_i.t}$	$SD_{\mathcal{A}i} = \frac{SD_{Net\,i}}{\varepsilon_i.\gamma_i.t}$	$LD_{\mathcal{A}i} = \frac{k_{1-\beta}^2 + 2SD_{Net}}{\varepsilon_i.\gamma_i.t}$
Cumul par sommation des valeurs de comptage	$Net_{\Sigma} = \sum_{i=1}^{n} Net_i$	$SD_{\Sigma Net} = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{Net\,i}^2}$	$LD_{\overline{Net}} \approx \sqrt{\sum_{i=1}^{n} LD_{Net\,i}^2}$
Cumul par moyenne des valeurs de comptage	$\overline{Net}_n = \frac{\sum_{i=1}^{n} Net_i}{n}$	$SD_{\overline{Net_n}} = \frac{1}{n}\sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{Net\,i}^2}$	$LD_{\Sigma Net} \approx \frac{1}{n}\sqrt{\sum_{i=1}^{n} LD_{Net}^2}$
Cumul par sommation des activités mesurées	$\hat{\mathcal{A}}_{\Sigma} = \sum_{i=1}^{n} \hat{\mathcal{A}}_{i.}$	$SD\left(\sum_{i=1}^{n} \hat{\mathcal{A}}_{i.}\right) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} SD_{\mathcal{A}i}^2}$	$LD\left(\sum_{i=1}^{n} \hat{\mathcal{A}}_{i.}\right) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} LD_{\mathcal{A}i}^2}$
Cumul par moyenne pondérée des activités mesurées (schéma n°2)	$\hat{\mathcal{A}}_{pond.} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2}\mathcal{A}_i}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2}}$	$SD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{SD_{\mathcal{A}i}^2}}}$	$LD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) \approx \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{LD_{\mathcal{A}i}^2}}}$
Cumul par moyenne pondérée des activités mesurées (schéma n°3)	$\hat{\mathcal{A}}_{pond.} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2}\mathcal{A}_i}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{u_i^2}}$	$SD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{SD_{\mathcal{A}i}^2}}}$	$LD\left(\hat{\mathcal{A}}_{pond.}\right) \approx C.\sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{LD_{\mathcal{A}i}^2}}}$ $C = \frac{1}{1-k_{1-\beta}^2.\sigma_{rel.\varepsilon}^2}$

REFERENCES

Vivier A, Aupiais J(2007), *J Radiochim.Acta* **95**, 477-492

Vivier A., Fottorino R.,Rousse B., (2010) Seuil de décision et limite dedétection : estimation interprétation et optimisation 1ere partie : mes principes de bases, *Radioprotection* **45**, 321-343

ISO 11929 (2009) Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limit of the confidence interval) for measurements of ionizing radiations

Multi-Agency radiological laboratory Analytical protocols manual (MARLAP) vol III EPA 402-B-04-001C) chapter 20 US Environmental Protection Agency

Fiévet B, Della Vedova C. (2010) Dealing with non-detect values in time-series measurements of radionuclide concentration in the marine environment, *J Environ Radioact.* **101(1):**1-7.

Helsel, D.R., 2005. Nondetects and Data Analysis: Statistics for Censored Environmental Data. John Wiley and Sons, New York, p. 250.

AMC. What should be done with results below the detection limit? Mentioning the unmentionable. Analyticalmethods committee technical brief no. 5, April 2001. Royal Society of Chemistry, London, 2001, Two unnumbered pages.