

## Results of international comparison tests on determination of $^{137}\text{Cs}$ activity concentration in soil samples

Valery P. Ramzaev<sup>1</sup>, Christian Bernhardsson<sup>2</sup>, Alexander A. Dvornik<sup>3</sup>, Zhanna V. Bakarikova<sup>4</sup>, Olof Karlberg<sup>5</sup>, Alexander V. Vodovатов<sup>1</sup>, Mattias Jönsson<sup>2</sup>, Vladislav A. Nekrasov<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

<sup>2</sup> Medical Radiation Physics, Department of Translational Medicine, Lund University, Malmö, Sweden

<sup>3</sup> Institute of Radiobiology of the National Academy of Sciences of Belarus, Gomel, Belarus

<sup>4</sup> Republican Centre for Hydrometeorology, Control of Radioactive Contamination and Environmental Monitoring of the Republic of Belarus, Minsk, Belarus

<sup>5</sup> Swedish Radiation Safety Authority, Stockholm, Sweden

*In 2016–2019, comparison tests of different methods for quantitative determination of the content of the technogenic radionuclide  $^{137}\text{Cs}$  in soil samples were performed. Soil samples were collected from areas with high and low  $^{137}\text{Cs}$  contamination in Belarus. The intercomparison was performed as a part of an ongoing Russian–Swedish–Belarusian cooperation on the assessment of radioactive contamination of the environment. Three laboratories of the regular participants in the project and three laboratories from other facilities participated in the intercomparison that was focused on the samples of cultivated soil from the Gomel region (the first stage of comparisons, 3 samples) and the Grodno region (the second stage of comparisons, 4 samples). Results on activity concentrations in the samples presented by the participants were in satisfactory agreement with each other. The maximum deviation from the average value, that had been calculated for each sample based on the individual results from all laboratories, was 14%. Stage-averaged deviations from the inter-laboratory mean did not exceed 10%. Results of the comparison tests should be taken into consideration when comparing or merging experimental data from different laboratories participating in the Russian–Swedish–Belarusian cooperation project.*

**Key words:** intercomparison, soil,  $^{137}\text{Cs}$ , Belarus, Russia, Sweden.

## Результаты международных сличительных испытаний по определению удельной активности $^{137}\text{Cs}$ в пробах почвы

В.П. Рамзаев<sup>1</sup>, К. Бернхардссон<sup>2</sup>, А.А. Дворник<sup>3</sup>, Ж.В. Бакарикова<sup>4</sup>, О. Карлберг<sup>5</sup>, А.В. Водоватов<sup>1</sup>, М. Йонссон<sup>2</sup>, В.А. Некрасов<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева, Федеральная служба по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Группа медицинской радиационной физики, кафедра трансляционной медицины, Университет Лунда, Мальмё, Швеция

<sup>3</sup> Институт радиобиологии Национальной академии наук Беларуси, Гомель, Беларусь

<sup>4</sup> Республиканский центр по гидрометеорологии, контролю радиоактивного загрязнения и мониторингу окружающей среды Республики Беларусь, Минск, Беларусь

<sup>5</sup> Шведское агентство по радиационной безопасности, Стокгольм, Швеция

*В 2016–2019 гг. были проведены сличительные испытания методов количественного определения содержания техногенного радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы. Пробы почвы были отобраны в районах с высоким и низким уровнем загрязнения  $^{137}\text{Cs}$  в Беларуси. Данные испытания были выполнены в*

**Valery P. Ramzaev**

Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev

**Address for correspondence:** Mira str., 8, Saint-Petersburg, 197101; E-mail: V.Ramzaev@mail.ru

**Рамзаев Валерий Павлович**

Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева

**Адрес для переписки:** 197101, Россия, Санкт-Петербург, ул. Мира, д. 8; E-mail: V.Ramzaev@mail.ru

*рамках продолжающегося российско-шведско-белорусского сотрудничества по оценке радиоактивного загрязнения окружающей среды. Лаборатории трех постоянных участников проекта и три лаборатории из других учреждений приняли участие в сличительном испытании, в процессе которого были проанализированы пробы культивируемой почвы из Гомельской области (первый этап сличений, 3 образца) и Гродненской области (второй этап сличений, 4 образца). Результаты определения удельной активности в образцах, представленные участниками, находились в удовлетворительном схождении друг с другом. Максимальное отклонение от среднего значения, которое было рассчитано для каждого образца на основе индивидуальных результатов всех лабораторий, участвовавших в испытаниях, составило 14%. Значения отклонений от межлабораторного среднего, усредненные по выполненным стадиям испытаний, не превышали 10%. Результаты проведенных сличительных испытаний следует учитывать при оценке или группировке экспериментальных данных, полученных в конкретных лабораториях, участвующих в российско-шведско-белорусском проекте.*

**Ключевые слова:** сличительные испытания, почва,  $^{137}\text{Cs}$ , Беларусь, Россия, Швеция.

## Introduction

For almost one decade, an international group of researchers from the Institute of Radiobiology of the Academy of Sciences of Belarus (IRB), Lund University, Sweden (LU), and St. Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Russia (IRH) have been cooperating in various projects related to environmental radiology.

In 2016–2018, the group carried out assessments of the radiation environment in the Chernobyl contaminated Vetka district in the Gomel region of Belarus [1]. An important part of that project was to evaluate the inventory and depth distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in soil, and to determine the corresponding gamma dose rate in air at various locations. Apart from IRB, LU and IRH, two additional laboratories were participating in the laboratory comparison tests carried out in parallel: one in Belarus [Research Institute of Radiology, Gomel (RIR)] and one in Sweden [Swedish Radiation Safety Authority, Stockholm (SSM)].

Recently, in 2019, the group carried out a zero point assessment of the radiation environment in the area of the construction of the Belarusian NPP (the Astrovets district of the Grodno region) [2]. Representatives of the Republican Centre for Hydrometeorology, Control of Radioactive Contamination and Environmental Monitoring of the Republic of Belarus (Belhydromet) participated in the work in Astrovets as well. One of the main objectives of that project was to study the content of technogenic radionuclides in environmental media. In particular, the purpose of the collection and subsequent laboratory analysis of the environmental samples was to obtain data on activity concentration of  $^{137}\text{Cs}$ , the only technogenic gamma-emitting radionuclide which is distributed all over the world.

An important part of both Russian–Swedish–Belarusian projects was to carry out comparative interlaboratory tests to determine the activity concentration of  $^{137}\text{Cs}$  in soil samples.

The **aim** of this work is to analyze the measurement results presented by the laboratories participating in the comparison tests.

## Materials and methods

The comparison tests were carried out in two stages. Main participants (LU, IRB, IRH) took part in each stage. At the first stage (in 2016), samples for comparison were additionally sent to SSM and RIR. In 2018, RIR was unified with IRB. At the second stage (in 2019), in addition to the three main participants, Belhydromet participated in the comparison tests.

## Введение

В течение последних десяти лет международная группа исследователей из Института радиобиологии Академии наук Беларуси (IRB), Лундского университета, Швеция (LU) и Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаев, Россия (IRH) сотрудничают в различных проектах, связанных с исследованиями радиоактивного загрязнения окружающей среды.

В 2016–2018 гг. данная группа провела оценку радиационной обстановки в Ветковском районе Гомельской области Беларуси [1]. Важной частью этого проекта было изучение запаса и распределения по глубине  $^{137}\text{Cs}$  в почве, а также определение мощности дозы гамма-излучения в воздухе в различных локациях. Помимо IRB, LU и IRH, еще две приглашенные лаборатории участвовали в лабораторных сличительных испытаниях, проводимых параллельно: одна в Беларуси [Научно-исследовательский институт радиологии, Гомель (RIR)] и одна в Швеции [Шведское управление радиационной безопасности, Стокгольм (SSM)].

В 2019 г., данная группа провела оценку радиационной обстановки в районе строительства Белорусской АЭС (Островецкий район Гродненской области) [2]. В полевых работах в Островце также приняли участие представители Республиканского центра по гидрометеорологии, контролю радиоактивного загрязнения и мониторингу окружающей среды Республики Беларусь (Белгидромет). Одной из основных задач этого проекта было определение удельной активности техногенных радионуклидов в пробах окружающей среды. В частности, целью отбора и последующего лабораторного анализа проб окружающей среды было получение данных об удельной активности  $^{137}\text{Cs}$ , единственного техногенного гамма-излучателя, который можно обнаружить по всему миру. При этом важной частью исследований являлось проведение сличительных межлабораторных испытаний по определению удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы.

**Цель исследования** – анализ результатов, представленных участниками сличительных испытаний.

## Материалы и методы

Сличения были проведены в два этапа. В каждом из этапов принимали участие LU, IRB, IRH (основные участники). На первом этапе (2016 г.) образцы для сличения были дополнительно направлены в SSM и RIR. В 2018 г.

At the first stage, three samples of soil heavily contaminated with  $^{137}\text{Cs}$  due to the Chernobyl accident were used as a subject for comparison. Samples were taken in June 2016 in one of the abandoned gardens (52.649° N, 31.326° E) located in the resettlement zone on the territory of the former settlement of Bartolomeevka in the Vetka district of the Gomel region of Belarus. In 1986, the  $^{137}\text{Cs}$  contamination density of the Bartolomeevka territory exceeded 555 kBq/m<sup>2</sup> [3]. After the Chernobyl accident, this area had been cultivated for some time, which led to mechanical mixing of the upper 0–20 cm soil layer and to a relatively uniform distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in this layer [1]. These conditions were decisive in the selection of cultivated soil for comparisons. Three flat plots (each area is ~1 m<sup>2</sup>) were selected on the site. The distance between these plots was approximately 5 m. Three cores of soil were taken at each plot. The authors used a cylindrical sampler with a length of 25 cm and an internal cross-sectional area of 20 cm<sup>2</sup> for soil sampling. The grass roots and other large organic fragments were removed from the cores whereas stones and gravel were absent in the soil. The mechanical composition of the soil corresponded to loamy-sand type. The material of the three cores was combined into one sample, and the soil was thoroughly mixed. Each of the main participants received 600–650 g (wet weight) of soil material from each of the three plots. Samples were not encrypted, as representatives of all main laboratories took part in the field work.

In the second stage, four samples of soil that were less contaminated with  $^{137}\text{Cs}$  (mainly as a result of global fallout from nuclear weapons tests in the atmosphere) were used for intercomparison. Samples were obtained in September 2019 from a cultivated meadow (54.770° N, 26.000° E) located in the village of Berezovka, the Astrovet district, the Grodno region of Belarus. According to [4], the expected contamination density of  $^{137}\text{Cs}$  from global and Chernobyl fallout in this site should be less than 2 kBq/m<sup>2</sup>. Sampling was carried out on a flat area with a size of approximately 0.5 × 0.5 m<sup>2</sup>. The upper turf layer (0–5 cm) was removed with a shovel and excluded from analysis due to the presence of a large mass of plant roots. Samples for comparison were taken using a shovel sampler from depths of 5–10, 10–15, 15–20 and 20–25 cm. The soil was sandy-loam type. Each sample was thoroughly mixed and divided into four, approximately equal parts. Each of the four participants received 220–250 g of the material from each sample (depth layer) for the analysis.

All laboratories dried their samples prior to measurements. To measure the  $^{137}\text{Cs}$  activity in the samples, the laboratories participating in the comparison tests used lead-shielded stationary semiconductor (HPGe) or scintillation [NaI(Tl)] gamma spectrometers. The final goal of each laboratory was to present the activity concentration (AC) of  $^{137}\text{Cs}$  in each sample (on dry weight basis) and to indicate the total uncertainty of the presented value of AC with a confidence level of 95%. At the will of the participants, it was possible to provide a value of the statistical uncertainty in estimating the 662 keV photopeak area, as well as the data on the preparation of samples for measurements and on the calibration of spectrometers.

Since not one of the participants of the comparison tests could claim the role as a reference laboratory, it was decided to apply a reference value corresponding to the average value of  $^{137}\text{Cs}$  AC calculated from the results presented for each sample by all participating laboratories. As a criterion of compliance, a 10 percent deviation from the average was selected.

RIR был объединен с IRB. На втором этапе (2019 г.), помимо трех основных участников, в сличениях участвовал Белгидромет.

На первом этапе в качестве объекта для сличения использовали три пробы почвы, существенно загрязненной  $^{137}\text{Cs}$  в результате Чернобыльской аварии. Пробы были отобраны в зоне отселения на территории бывшего населенного пункта Бартоломеевка в Ветковском районе Гомельской области Беларуси в июне 2016 г. В 1986 г. плотность загрязнения  $^{137}\text{Cs}$  территории Бартоломеевки превышала 555 кБк/м<sup>2</sup> [3]. Отбор проб был осуществлен на одном из заброшенных огородов (52,649° с.ш., 31,326° в.д.). После Чернобыльской аварии этот участок на протяжении некоторого времени подвергался культивации, что привело к механическому перемешиванию верхнего 0–20 см слоя почвы и, соответственно, к весьма равномерному распределению  $^{137}\text{Cs}$  в данном слое [1]. Это обстоятельство было определяющим в выборе именно культивированной почвы для проведения сличений. На участке были найдены три ровные площадки (площадь каждой ~1 м<sup>2</sup>). Расстояние между площадками было равно примерно 5 м. На каждой площадке было отобрано по три керна земли. Для отбора мы использовали цилиндрический пробоотборник длиной 25 см и площадью внутреннего сечения 20 см<sup>2</sup>. Из кернов были удалены корни травы и прочие крупные органические фрагменты. Камни и гравий в почве отсутствовали. По механическому составу почва соответствовала легкому суглинку. Материал трех кернов был объединен в одну пробу, и почва была тщательно перемешана. Каждый из основных участников получил по 600–650 г (сырой вес) почвенного материала с каждой из трех площадок. Пробы не подвергались шифровке, так как в полевых работах принимали участие представители всех основных лабораторий.

На втором этапе для сличений использовали четыре пробы почвы, слабо загрязненной  $^{137}\text{Cs}$ , в основном в результате глобальных выпадений от испытаний ядерного оружия в атмосфере. Пробы были получены в сентябре 2019 г. с культивированного луга (54,770° с.ш., 26,000° в.д.), расположенного в населенном пункте Берёзовка Островецкого района Гродненской области Беларуси. По данным [4], ожидаемая плотность загрязнения территории в этом регионе  $^{137}\text{Cs}$  (от глобальных и чернобыльских выпадений) должна быть менее 2 кБк/м<sup>2</sup>. Отбор проб был выполнен на ровной площадке размером приблизительно 0,5 × 0,5 м<sup>2</sup>. Верхний дерновой слой (0–5 см) был удален с помощью лопаты и исключен из анализа в связи с наличием большого количества корней растений. Пробы для сличения были отобраны с помощью совкового пробоотборника с глубины 5–10, 10–15, 15–20 и 20–25 см. Почва была среднесуглинистой. Каждая проба была тщательно перемешана и разделена на 4 примерно равные части. Каждый из 4 участников получил для анализа по 220–250 г материала из каждой пробы.

Во всех лабораториях пробы были высушены перед измерениями. Для измерения активности  $^{137}\text{Cs}$  в образцах лаборатории-участники сличений использовали стационарные полупроводниковые (HP-Ge) или сцинтилляционные [NaI(Tl)] гамма-спектрометры. Конечной задачей каждой лаборатории было представление значения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в каждом образце (на сухой вес) с указанием полной неопределенности представленного

## Results and discussion

Results of determination of the  $^{137}\text{Cs}$  AC in soil samples from Bartolomeevka (first stage in 2016) are presented in Table 1. The reported values were in the range from 1660 to 2700 Bq/kg for the three plots within the same area. The observed scatter was, to a certain extent, related to differences between the sampled plots. For the plot "B", all participants indicated the highest values (on average 2540 Bq/kg), and for the plot "C", all participants reported the lowest values of the  $^{137}\text{Cs}$  AC (on average 1880 Bq/kg). The difference between the average values for these plots was 1.35 times. The values of the total uncertainty in the estimation of AC in individual samples ranged from 6.2% to 15%.

Deviations of the obtained individual values of AC from the average values for individual plots, for individual participants, ranged from -11.7% to +11.7% (Table 2). The deviations averaged over all three plots ranged from -8.6% to +8.2%. These values do not exceed the 10 percent criterion of compliance. Therefore, we can state satisfactory agreement between the methods and standards used in the laboratories participating in the comparison tests for the quantitative determination of  $^{137}\text{Cs}$  in soil with high levels of contamination. At the same time, it should be noted that the LU, SSM and IRH laboratories provided values that were higher than the average values. On the contrary and correspondingly, for the IRB and RIR laboratories, all values were lower than the average values.

The experimentally determined values of the  $^{137}\text{Cs}$  AC in soil samples from Berezovka (second stage in 2019) ranged from 3.2 to 6.4 Bq/kg (Table 3) for the 4 × 4 samples and layers. The observed twofold scatter was associated primarily with the uneven vertical distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in the soil. All participants reported the lowest values of the AC (range 3.2–4.1 Bq/kg; average = 3.7 Bq/kg) in the deepest soil layer (20–25 cm). In the three upper layers, the distribution of the radionuclide was more uniform: a range for the averages was 5.2–5.8 Bq/kg. Such a distribution of  $^{137}\text{Cs}$  is a characteristic for the fields that have been cultivated for many years after a radioactive fallout (e.g., [5, 6]).

The total uncertainty of measuring the relatively low AC of  $^{137}\text{Cs}$ , shown in Table 3, ranged from 11 to 20%. These values were expected to be larger than the uncertainty values for the  $^{137}\text{Cs}$  AC in the highly contaminated samples from Bartolomeevka.

значения при доверительной вероятности 95%. Однако по желанию участников можно было представить оценку статистической неопределенности оценки площади фотопика с энергией 662 кэВ, а также данные о подготовке образцов к измерениям и о калибровке спектрометров.

Так как ни один из участников сличений не мог претендовать на роль референтной лаборатории, было решено использовать в качестве референтного значения удельной активности среднее значение, вычисленное по результатам, представленным для каждой пробы всеми лабораториями-участниками. В качестве критерия соответствия было выбрано 10% значение отклонения от среднего.

## Результаты и обсуждение

Результаты определения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы из Бартоломеевки (первая фаза, 2016 г.) представлены в таблице 1. Полученные значения находились в диапазоне от 1660 до 2700 Бк/кг. Наблюдаемый разброс в оценках удельной активности в определенной мере был связан с различиями между площадками по удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в почве. Для площадки В все участники указали наибольшие значения (в среднем 2540 Бк/кг), а для площадки С все участники получили наименьшие значения (в среднем 1880 Бк/кг) удельных активностей  $^{137}\text{Cs}$ . Эти средние величины различались в 1,35 раза. Значения общей неопределенности оценки удельной активности в индивидуальных образцах находились в диапазоне от 6,2% до 15%.

Отклонения полученных индивидуальных значений удельной активности от средних значений по отдельным площадкам для отдельных участников варьировали от -11,7% до +11,7% (табл. 2). Усредненные по всем трем площадкам отклонения лежали в диапазоне от -8,6% до +8,2%. Эти величины не превышают 10% критерия соответствия. Поэтому можно констатировать удовлетворительную сходимость между методами и стандартами, применяемыми в лабораториях-участниках сличений для количественного определения  $^{137}\text{Cs}$  в почве при высоких уровнях загрязнения. Вместе с тем, следует отметить, что для лабораторий LU, SSM и IRH имелось превышение средних значений, и напротив, для лабораторий IRB и RIR все значения были ниже, чем средние величины.

Activity concentration (on dry weight basis) of  $^{137}\text{Cs}$  in soil samples from Bartolomeevka

Table 1

Удельная активность (на сухую массу)  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы из Бартоломеевки

[Таблица 1]

| Laboratory [Лаборатория]                    | Activity concentration (Bq/kg) in the sample: [Удельная активность (Бк/кг) в пробе:] |            |            |
|---------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|------------|------------|
|                                             | A                                                                                    | B          | C          |
| LU                                          | 2120 (6.2)                                                                           | 2660 (7.0) | 1970 (7.0) |
| IRH                                         | 2200 (15)                                                                            | 2570 (15)  | 1930 (15)  |
| IRB                                         | 1970 (11)                                                                            | 2350 (11)  | 1660 (11)  |
| SSM                                         | 2250 (11)                                                                            | 2700 (11)  | 2100 (11)  |
| RIR                                         | 2030 (12)                                                                            | 2440 (12)  | 1740 (12)  |
| Mean [Средняя]                              | 2110                                                                                 | 2540       | 1880       |
| Standard deviation [Стандартное отклонение] | 120                                                                                  | 150        | 180        |

Uncertainty of measurement is given in brackets (percent, the 95% probability). [Неопределенность измерения приведена в скобках (процент, с вероятностью 95%).]



Table 2

**Deviation of the individual values of  $^{137}\text{Cs}$  activity concentration in the Bartolomeevka soil samples from the interlaboratory mean value (%)**

[Таблица 2]

**Отклонение индивидуальных значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в образцах почвы из Бартоломеевки от межлабораторного среднего значения (%)**

| Laboratory [Лаборатория] | Deviation (%) for the sample: [Отклонение (%) для пробы:] |      |       |                   |
|--------------------------|-----------------------------------------------------------|------|-------|-------------------|
|                          | A                                                         | B    | C     | Average [Средняя] |
| LU                       | 0.5                                                       | 4.7  | 4.8   | 3.3               |
| IRH                      | 4.3                                                       | 1.2  | 2.7   | 2.7               |
| IRB                      | -6.6                                                      | -7.5 | -11.7 | -8.6              |
| SSM                      | 6.6                                                       | 6.3  | 11.7  | 8.2               |
| RIR                      | -3.8                                                      | -3.9 | -7.4  | -5.1              |

Table 3

**Activity concentration (on dry weight basis) of  $^{137}\text{Cs}$  in soil samples from Berezovka**

[Таблица 3]

**Удельная активность (на сухую массу)  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы из Берёзовки**

| Laboratory [Лаборатория] | Activity concentration (Bq/kg) in the sample: [Удельная активность (Бк/кг) в пробе:] |           |           |           |
|--------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|-----------|-----------|-----------|
|                          | 5–10 cm                                                                              | 10–15 cm  | 15–20 cm  | 20–25 cm  |
| LU                       | 5.91 (14)                                                                            | 5.56 (16) | 5.89 (20) | 3.65 (11) |
| IRH                      | 6.36 (17)                                                                            | 6.18 (17) | 5.66 (17) | 3.76 (17) |
| IRB                      | 5.60 (12)                                                                            | 5.62 (12) | 5.12 (12) | 4.08 (12) |
| Belhydromet              | 5.4 (15)                                                                             | 5.6 (14)  | 4.6 (15)  | 3.2 (16)  |
| Mean [Средняя]           | 5.82                                                                                 | 5.74      | 5.32      | 3.67      |

Uncertainty of measurement is given in brackets (percent, the 95% probability).

[Неопределенность измерения приведена в скобках (процент, с вероятностью 95%).]

The deviation of the individual values of the  $^{137}\text{Cs}$  AC from the average value for a layer varied from -14% to +11% (Table 4). The layer-averaged deviations for individual laboratories ranged from -9.0% to +6.4%. These values do not exceed the declared values for assessing the total uncertainty of the measurement of the  $^{137}\text{Cs}$  AC and the 10 percent criterion of compliance. In general, the agreement between results reported by the different laboratories for the relatively low activity concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  should be considered satisfactory.

The differences in the values of the  $^{137}\text{Cs}$  AC presented for individual samples by laboratories in the first and second stages could be explained by both random factors and systematic factors. The random factors include a possible uneven distribution of the radionuclide in the original soil samples. The mixing of soil material after sampling was carried out in the field and, of course, it was not ideal. To check the degree of this mixing unevenness, pairs of aliquots taken from samples A, B, C were measured at LU. The discrepancy between the values of the  $^{137}\text{Cs}$  AC in each pair ranged from 2% to 4%. In part, this discrepancy can be explained by the statistical uncertainty in estimating the 662 keV photopeak area (up to 1.5%). This uncertainty also belongs to the group of random errors. According to IRH and IRB reports, the uncertainty in estimating the area of the 662 keV photopeak was within  $\pm 3.3\%$  for the highly contaminated samples from Bartolomeevka. For the less contaminated samples from Berezovka, the error in determination of the area of the 662 keV photopeak could reach  $\pm 5\%$ .

Экспериментально определенные значения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы из Берёзовки находились в диапазоне от 3,2 до 6,4 Бк/кг (табл. 3). Наблюдаемый двукратный разброс был связан, прежде всего, с неравномерным вертикальным распределением цезия в почве. Все участники сообщили о наименьших значениях удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  (диапазон 3,2–4,1 Бк/кг; средняя = 3,7 Бк/кг) в самом нижнем слое на глубине 20–25 см. В трех верхних слоях распределение радионуклида было более равномерным (диапазон средних значений: 5,2–5,8 Бк/кг). Такое распределение  $^{137}\text{Cs}$  весьма характерно для полей, подвергавшихся культивации на протяжении многих лет после выпадений радиоактивного цезия из атмосферы (например, [5, 6]).

Общая неопределенность измерения сравнительно низких удельных активностей  $^{137}\text{Cs}$ , указанных в таблице 3, находилась в диапазоне от 11 до 20%. Эти значения были ожидаемо несколько выше, чем значения неопределенности оценки удельных активностей  $^{137}\text{Cs}$  для высокоактивных проб из Бартоломеевки.

Отклонение индивидуальных значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  от среднего значения для каждого слоя варьировало от -14% до +11% (табл. 4). Усредненные по слоям отклонения для отдельных лабораторий находились в диапазоне от -9,0% до +6,4%. Эти величины не превышают заявленных значений оценки общей неопределенности измерения удельной активности и 10% критерия соответствия. В целом, соответствие между сообщенными лабораториями результатами для срав-

Systematic differences between laboratories could be associated primarily with the use of different standards for calibrating spectrometers. For example, the uncertainty of the content of gamma-emitting radionuclides in standard volumetric measures (reference radiation sources) in the IRH laboratory is 6–7% (with a confidence level of 95%). The systematic uncertainty can increase by several percent when constructing a gamma-quantum registration efficiency curve for a spectrometer.

To reliably estimate the magnitude of systematic discrepancies between laboratories, it is necessary to have such a number of observation pairs that allows the use of an appropriate statistical test. In particular, for the main participants of the comparisons, it was possible to make an assessment using the nonparametric Wilcoxon match pair test after merging results of the first and second stages of the comparisons (Table 5). The differences in the LU/IRH (median = 3%) and LU/IRB (median = 8%) pairs were statistically nonsignificant ( $P > 0.05$ ;  $n = 7$ ). At the same time, for the IRH/IRB pair, the calculated difference (median = 11%) was statistically significant ( $P < 0.05$ ;  $n = 7$ ).

### Conclusion

In the framework of the ongoing Russian–Swedish–Belarusian cooperation on the assessment of radioactive

нительно малых удельных активностей следует признать удовлетворительными.

Различия в значениях удельной активности  $^{137}\text{Cs}$ , представленных для индивидуальных проб лабораториями на первом и втором этапе, могли быть связаны как со случайными, так и с систематическими факторами. К случайным факторам следует отнести возможную неравномерность распределения радионуклида в исходных пробах почвы. Перемешивание почвенного материала после отбора проводилось в полевых условиях и, конечно, не являлось идеальным. Для проверки степени этой неравномерности перемешивания в LU было проведено измерение пар аликвот, отобранных из проб площадок А, В и С. Расхождение между значениями удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в каждой паре колебалось от 2% до 4%. Частично это расхождение можно объяснить статистической неопределенностью оценки площади фотопика 662 кэВ (до 1,5%). Эта неопределенность также относится к группе случайных ошибок. По данным IRH и IRB, неопределенность оценки площади фотопика  $^{137}\text{Cs}$  находилась в пределах 3,3% для высокоактивных проб из Бартоломеевки. Для малоактивных проб из Берёзовки величина неопределенности вычисления площади фотопика 662 кэВ могла достигать 5%.

Table 4

#### Deviations of the individual values of $^{137}\text{Cs}$ activity concentration in the Berezovka soil samples from the interlaboratory mean value (%)

[Таблица 4]

#### Отклонение индивидуальных значений удельной активности $^{137}\text{Cs}$ в образцах почвы из Берёзовки от межлабораторного среднего значения (%)

| Laboratory [Лаборатория] | Deviation (%) for the sample: [Отклонение (%) для пробы:] |          |          |          |                   |
|--------------------------|-----------------------------------------------------------|----------|----------|----------|-------------------|
|                          | 5–10 cm                                                   | 10–15 cm | 15–20 cm | 20–25 cm | Average [Средняя] |
| LU                       | 1.5                                                       | –3.1     | 10.7     | –0.5     | 2.1               |
| IRH                      | 9.3                                                       | 7.7      | 6.4      | 2.5      | 6.4               |
| IRB                      | –3.8                                                      | –2.1     | –3.8     | 11.2     | 0.4               |
| Belhydromet              | –7.2                                                      | –2.4     | –13.5    | –12.8    | –9.0              |

Table 5

#### Activity concentrations (on dry weight basis) of $^{137}\text{Cs}$ in soil samples from Bartolomeevka and Berezovka determined by the LU, IRH and IRB laboratories, and the activity concentrations ratio

[Таблица 5]

#### Значения удельной активности (на сухую массу) $^{137}\text{Cs}$ в пробах почвы из Бартоломеевки и Берёзовки по данным лабораторий LU, IRH и IRB и соотношение удельных активностей

| Site [Место]                  | Sample code [Код пробы] | Activity concentration (Bq/kg) [Удельная активность (Бк/кг)] |      |      | Activity concentrations ratio [Отношение удельных активностей] |        |         |
|-------------------------------|-------------------------|--------------------------------------------------------------|------|------|----------------------------------------------------------------|--------|---------|
|                               |                         | LU                                                           | IRH  | IRB  | LU/IRH                                                         | LU/IRB | IRH/IRB |
| Bartolomeevka [Бартоломеевка] | A                       | 2120                                                         | 2200 | 1970 | 0.96                                                           | 1.08   | 1.12    |
| Bartolomeevka [Бартоломеевка] | B                       | 2660                                                         | 2570 | 2350 | 1.04                                                           | 1.13   | 1.09    |
| Bartolomeevka [Бартоломеевка] | C                       | 1970                                                         | 1930 | 1660 | 1.02                                                           | 1.19   | 1.16    |
| Berezovka [Берёзовка]         | 5–10 cm                 | 5.91                                                         | 6.36 | 5.60 | 0.93                                                           | 1.06   | 1.14    |
| Berezovka [Берёзовка]         | 10–15 cm                | 5.56                                                         | 6.18 | 5.62 | 0.90                                                           | 0.99   | 1.10    |
| Berezovka [Берёзовка]         | 15–20 cm                | 5.89                                                         | 5.66 | 5.12 | 1.04                                                           | 1.15   | 1.11    |

| Site [Место]          | Sample code<br>[Код пробы]                  | Activity concentration (Bq/kg) [Удельная<br>активность (Бк/кг)] |      |      | Activity concentrations ratio [Отношение<br>удельных активностей] |        |         |
|-----------------------|---------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------|------|------|-------------------------------------------------------------------|--------|---------|
|                       |                                             | LU                                                              | IRH  | IRB  | LU/IRH                                                            | LU/IRB | IRH/IRB |
| Berezovka [Берёзовка] | 20–25 cm                                    | 3.65                                                            | 3.76 | 4.08 | 0.97                                                              | 0.89   | 0.92    |
|                       | Median [Медиана]                            |                                                                 |      |      | 0.97                                                              | 1.08   | 1.11    |
|                       | Mean [Средняя]                              |                                                                 |      |      | 0.98                                                              | 1.07   | 1.09    |
|                       | Standard deviation [Стандартное отклонение] |                                                                 |      |      | 0.05                                                              | 0.10   | 0.08    |

contamination of the environment, comparison tests of methods for quantitative determination of the content of the technogenic radionuclide  $^{137}\text{Cs}$  in soil samples were performed. Three laboratories of regular participants of the cooperation and three laboratories from other organizations participated in the study. Samples of cultivated soil from the Gomel region (first stage of comparisons, 3 samples) and the Grodno region (second stage of comparisons, 4 samples) of Belarus were taken as the subjects for the tests. Results presented by the participants were in satisfactory agreement with each other. The maximum deviation from the average value calculated for each sample according to individual results from the laboratories was 14%. Stage-averaged deviations from the mean did not exceed 10%. For the three laboratories (LU, IRH and IRB), that participated in both stages (total number of samples = 7), statistical significance of the differences between presented results was evaluated. The differences in the LU/IRH (median = 3%) and LU/IRB (median = 8%) pairs were statistically nonsignificant ( $P > 0.05$ ). For the IRH/IRB pair, the observed difference (median = 11%) was statistically significant ( $P < 0.05$ ). These differences and their statistical significance should be considered when combining and interpreting the results of measurements obtained in the laboratories-participants of the intercomparison.

Систематические различия между лабораториями могли быть связаны, прежде всего, с использованием разных стандартов для калибровки спектрометров. Например, по данным IRH, неопределенность содержания гамма-излучающих радионуклидов в стандартных объемных мерах (референтных источниках излучения) составляет 6–7% (при доверительной вероятности 95%). При построении кривой эффективности регистрации гамма-квантов спектрометром и при переходе от стандартной плотности референтного образца к реальной плотности экспериментального образца систематическая неопределенность может увеличиваться на несколько процентов.

Для надежной оценки величины систематических расхождений между лабораториями необходимо иметь такое количество пар наблюдений, которое позволяет применить соответствующий статистический тест. В частности, для основных участников сличений такую оценку оказалось возможным сделать с использованием непараметрического критерия Вилкоксона после объединения результатов первого и второго этапов сличений (табл. 5). Различия в парах LU/IRH (медиана = 3%) и LU/IRB (медиана = 8%) были статистически незначимыми ( $P > 0,05$ ;  $n = 7$ ). Вместе с тем, для пары IRH/IRB обнаруженные различия (медиана = 11%) оказались уже статистически значимыми ( $P < 0,05$ ;  $n = 7$ ).

### Заключение

В рамках продолжающегося российско-шведско-белорусского сотрудничества по оценке радиоактивного загрязнения окружающей среды в 2016–2019 гг. было выполнено сличение методов количественного определения содержания техногенного радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  в пробах почвы. В сличении приняли участие три лаборатории постоянных участников проекта и три присоединившиеся лаборатории из других организаций. В качестве объектов для сличения были взяты образцы культивированной почвы из Гомельской области (первый этап сличений, 3 пробы) и Гродненской области (второй этап сличений, 4 пробы) Республики Беларусь. Представленные участниками результаты измерений находились в удовлетворительном схождении друг с другом. Максимальное отклонение от среднего значения, вычисленного для каждой пробы по индивидуальным результатам от лабораторий, равнялось 14%. Усредненные по этапам отклонения от среднего не превышали 10%. Для трех лабораторий (LU, IRH и IRB), которые участвовали в обоих этапах сличительных испытаний (общее число проб = 7), была изучена статис-

тическая значимость обнаруженных различий в представленных результатах. Различия в парах LU/IRH (медиана = 3%) и LU/IRB (медиана = 8%) были статистически незначимыми ( $P > 0,05$ ). Для пары IRH/IRB обнаруженные различия (медиана = 11%) оказались статистически значимыми ( $P < 0,05$ ). Данные различия и их статистическую значимость следует учитывать при объединении и интерпретации результатов измерений, полученных (и получаемых) в лабораториях-участниках сличений.

## References

### [Литература]

1. Ramzaev V, Bernhardsson C, Dvornik A, Barkovsky A, Vodovatov A, Jönsson M, et al. Calculation of the effective external dose rate to a person staying in the resettlement zone of the Vetka district of the Gomel region of Belarus based on *in situ* and *ex situ* assessments in 2016–2018. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2020;214–215: 106168.
2. Bernhardsson C, Stenström KE, Mattsson S, Jönsson M, Pedehontaa-Hiaa G, Rääf C, et al. Zero point assessment of the radiation environment – examples of a program applied in Sweden (ESS) and in Belarus (BelNPP). Proceedings of International Conference “Medical Physics 2019” 7–9 November 2019, Kaunas University of Technology, Kaunas, Lithuania. 2019. P. 85–88.
3. Izrael YuA, Bogdevich IM. The Atlas of Recent and Predictable Aspects of Consequences of Chernobyl Accident on Polluted Territories of Russia and Belarus (ARPA Russia–Belarus). «Infosphere» Foundation–NIA–Nature, Moscow–Minsk. 2009. (In Russian with English summary). Available on: <http://rb.mchs.gov.ru/Atlas>. (accessed 19.11.2019)
4. De Cort M, Dubois G, Fridman ShD, Germenchuk MG, Izrael YuA, Janssens A, et al. Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident. European Commission Report EUR 16733, Luxembourg. 1998.
5. Poreba G, Bluszcz A, Snieszko Z. Concentration and vertical distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in agricultural and undisturbed soils from Czechlo and Czarnocin areas. *Geochronometria*. 2003;22: 67–72.
6. Ramzaev V, Yonehara H, Hille R, Barkovsky A, Mishine A, Sahoo SK, et al. Gamma-dose rates from terrestrial and Chernobyl radionuclides inside and outside settlements in the Bryansk Region, Russia in 1996–2003. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2006;85: 205–227.

Received: 28 July, 2020

Поступила: 28.07.2020 г.

**Valery P. Ramzaev** – Candidate of Medical Sciences, Leading Researcher, Laboratory of External Exposure, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being. **Address for correspondence:** Mira Str., 8, Saint-Petersburg, 197101, Russia; E-mail: V.Ramzaev@mail.ru

**Christian Bernhardsson** – PhD of Clinical Sciences, Associate Professor in Medical Radiation Physics, Medical Radiation Physics, Department of Translational Medicine, Lund University, Malmö, Sweden

**Alexander A. Dvornik** – Candidate of Biological Sciences, Head of the Laboratory of Modeling and Anthropogenic Risks Minimization, Institute of Radiobiology of the National Academy of Sciences of Belarus, Gomel, Belarus

**Zhanna V. Bakarikova** – Deputy Chief of Radiation Monitoring Service, Republican Centre for Hydrometeorology, Control of Radioactive Contamination and Environmental Monitoring of the Republic of Belarus (Belhydromet), Minsk, Belarus

**Olof Karlberg** – Consultant in Radiation Protection and Monitoring, Swedish Radiation Safety Authority, Stockholm, Sweden

**Alexander V. Vodovatov** – Candidate of Biological Sciences, Head of the Laboratory of Radiation Hygiene of Medical Facilities, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

**Mattias Jönsson** – Laboratory Engineer, Medical Radiation Physics, Department of Translational Medicine, Lund University, Malmö, Sweden



**Vladislav A. Nekrasov** – Junior Researcher, Laboratory of External Exposure, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia.

---

**Рамзаев Валерий Павлович** – кандидат медицинских наук, ведущий научный сотрудник лаборатории внешнего облучения Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека. **Адрес для переписки:** 197101, Россия, Санкт-Петербург, ул. Мира, д. 8; E-mail: V.Ramzaev@mail.ru

**Бернхардссон Кристиан** – PhD по медицине, доцент, группа медицинской физики, кафедра трансляционной медицины, Университет Лунда, Мальмё, Швеция

**Дворник Александр Александрович** – кандидат биологических наук, руководитель лаборатории моделирования и минимизации антропогенных рисков, Институт радиобиологии Национальной академии наук Беларуси, Гомель, Беларусь

**Бакарикова Жанна Владимировна** – заместитель начальника службы радиационного мониторинга, Республиканский центр по гидрометеорологии, контролю радиоактивного загрязнения и мониторингу окружающей среды Республики Беларусь, Минск, Беларусь

**Карлберг Олоф** – консультант по радиационной защите и мониторингу, Шведское агентство по радиационной безопасности, Стокгольм, Швеция

**Водоватов Александр Валерьевич** – кандидат биологических наук, заведующий лабораторией радиационной гигиены медицинских организаций Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

**Йонссон Маттиас** – инженер-исследователь, группа медицинской физики, кафедра трансляционной медицины, Университет Лунда, Мальмё, Швеция

**Некрасов Владислав Аркадьевич** – младший научный сотрудник лаборатории внешнего облучения Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

**For citation (Для цитирования):** Ramzaev V.P., Bernhardtsson C., Dvornik A.A., Bakarikova Zh.V., Karlberg O., Vodovатов A.V., Jönsson M., Nekrasov V.A. Results of international comparison tests on determination of <sup>137</sup>Cs activity concentration in soil samples. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2020. Vol. 13, No. 4. P. 101-109. DOI: 10.21514/1998-426X-2020-13-4-101-109