

Comparación Bilateral  
CIEMAT - CENTIS-DMR  
de la Medida de Actividad  
de Radionucleidos

Pilar Oropesa Verdecia<sup>1</sup>

Eduardo García-Toraño<sup>2</sup>

(1) - Centro de Isótopos (CENTIS-DMR)

(2) - Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y  
Tecnológicas (CIEMAT)



Toda correspondencia en relación con este trabajo debe dirigirse al Servicio de Información y Documentación, Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas, Ciudad Universitaria, 28040-MADRID, ESPAÑA.

Las solicitudes de ejemplares deben dirigirse a este mismo Servicio.

Los descriptores se han seleccionado del Thesaurus del DOE para describir las materias que contiene este informe con vistas a su recuperación. La catalogación se ha hecho utilizando el documento DOE/TIC-4602 (Rev. 1) Descriptive Cataloguing On-Line, y la clasificación de acuerdo con el documento DOE/TIC.4584-R7 Subject Categories and Scope publicados por el Office of Scientific and Technical Information del Departamento de Energía de los Estados Unidos.

Se autoriza la reproducción de los resúmenes analíticos que aparecen en esta publicación.

**Depósito Legal:** M-14226-1995

**ISSN:** 1135 - 9420

**NIPO:** 402-04-005-0

CLASIFICACIÓN DOE Y DESCRIPTORES

S46

RADIONUCLIDE MIGRATION; RADIATION MONITORING; IONIZING RADIATIONS;  
MEASURING INSTRUMENTS; STANDARDIZATION; SPAIN; CUBA

## **Comparación Bilateral CIEMAT - CENTIS-DMR de la Medida de Actividad de Radionucleidos**

Oropesa Verdecia, Pilar. <sup>1</sup>; García-Toraño, Eduardo. <sup>2</sup>

(1)- Centro de Isótopos (CENTIS-DMR)

(2)- Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT)

19 pp. 0 figs. 7 refs.

### **Resumen**

Se describe una comparación bilateral de la medida de actividad de radionucleidos realizada entre el Departamento de Metrología de Radionúclidos del Centro de Isótopos (CENTIS-DMR) de Cuba, y el Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI) del Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) de España. El objeto de la comparación fue estudiar la comparabilidad de los instrumentos y métodos empleados para obtener materiales radiactivos de referencia de radionucleidos emisores gamma en CENTIS-DMR. Se concluye que no existen diferencias estadísticamente significativas entre los datos obtenidos por los dos laboratorios participantes.

### **Bilateral Comparison CIEMAT - CENTIS-DMR for radionuclide activity measurements.**

Oropesa Verdecia, Pilar. <sup>1</sup>; García-Toraño, Eduardo. <sup>2</sup>

(1)- Centro de Isótopos (CENTIS-DMR)

(2)- Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT)

19 pp. 0 figs. 7 refs.

### **Abstract**

We present the results of a bilateral comparison of radionuclide activity measurements between the Radionuclide Metrology Department of the Center of Isotopes of Cuba (CENTIS-DMR), and the Ionising Radiation Metrology Laboratory (LMRI) of the Centro de Invetigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) of Spain. The aim of the comparison was to establish the comparability of the measurement instruments and methods used to obtain radioactive reference materials of some gamma-emitting nuclides at CENTIS-DMR. The results revealed that there are no statistically sygnificant differences between the data reported by both laboratories.



## **ÍNDICE/INDEX**

<b>1. Comparación bilateral CIEMAT – CENTIS-DMR de la medida de actividad de radionucleidos.</b>	<b>2</b>
<b>1.1. Introducción</b>	<b>2</b>
<b>1.2. Descripción de las muestras utilizadas</b>	<b>2</b>
<b>1.3. Esquema empleado</b>	<b>3</b>
<b>1.4. Métodos empleados</b>	<b>3</b>
<b>1.5. Evaluación de los resultados</b>	<b>4</b>
<b>1.6. Conclusiones</b>	<b>5</b>
<b>1.7. Bibliografía</b>	<b>5</b>
<b>1.8. Tablas</b>	<b>6</b>
<b>2. Bilateral comparison CIEMAT – CENTIS-DMR for radionuclide activity measurements</b>	<b>8</b>
<b>2.1. Introduction</b>	<b>8</b>
<b>2.2. Sample description</b>	<b>8</b>
<b>2.3. Scheme</b>	<b>9</b>
<b>2.4. Calibration methods</b>	<b>9</b>
<b>2.5. Evaluation of performance</b>	<b>10</b>
<b>2.6. Conclusions</b>	<b>11</b>
<b>2.7. Bibliography</b>	<b>11</b>
<b>2.8. Tables</b>	<b>12</b>

# 1. Comparación bilateral CIEMAT – CENTIS-DMR de la medida de actividad de radionucleidos.

## 1.1. Introducción

La comparación bilateral de la medida de actividad de radionucleidos descrita en esta publicación fue organizada y coordinada por el Departamento de Metrología de Radionúclidos del Centro de Isótopos (CENTIS-DMR) de Cuba, con el Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI) del Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) de España. El LMRI es el depositario del Patrón Nacional de Actividad español, mientras que CENTIS-DMR trabaja para establecer el Sistema de Referencia Nacional cubano para esta magnitud.

Esta comparación bilateral se desarrolló para establecer la comparabilidad de los instrumentos y métodos empleados para obtener materiales radiactivos de referencia de radionucleidos emisores gamma en CENTIS-DMR. En el presente trabajo se exponen los resultados de este ejercicio, que demostraron que no existen diferencias estadísticamente significativas entre los datos obtenidos por los dos laboratorios participantes.

## 1.2. Descripción de las muestras utilizadas

Para el ejercicio se emplearon 7 disoluciones acuosas radiactivas, siendo cada disolución de uno de los siguientes nucleidos:  $^{152}\text{Eu}$  (25  $\mu\text{g}$  de Eu por g de solución en 1M HCl),  $^{241}\text{Am}$  (20  $\mu\text{g}$  de Am por g de solución en 3M  $\text{HNO}_3$ ),  $^{137}\text{Cs}$  (25  $\mu\text{g}$  de Cs por g de solución en 0.1M HCl),  $^{133}\text{Ba}$  (25  $\mu\text{g}$  de Ba por g de solución en 0.1M HCl),  $^{60}\text{Co}$  (25  $\mu\text{g}$  de Co por g de solución en 0.1M HCl),  $^{201}\text{TlCl}$  (0.9 % de NaCl, 0.9 % de alcohol bencílico, 100  $\mu\text{g/g}$  de  $\text{Tl}^+$ , 0.1 M HCl) y  $\text{Na}^{131}\text{I}$  (0.9 % NaCl; 0.25 %  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ; 0,26 % KI, 0.1 %  $\text{NaH}_2\text{PO}_4$  ; 0.44 %  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ ). A partir de estas disoluciones se prepararon 5 fuentes radiactivas en el CENTIS-DMR. Cuatro fueron fuentes mixtas puntuales sólidas (ver Tabla 1). Para obtener estas fuentes puntuales, una cierta masa de disolución radiactiva de cada uno de los nucleidos presentes se depositó sobre un círculo de acetato de polivinilo (PVA), colocado sobre un anillo de material acrílico. Antes de depositar la masa de una nueva disolución en el círculo de PVA, se esperó a que la disolución depositada previamente se hubiese secado.

La quinta fuente se preparó depositando aproximadamente 4 g de la disolución de  $^{131}\text{I}$ , en una ampolla de vidrio estándar NIST [1].

Para la determinación de las masas de disolución depositadas se empleó el método del picnómetro [2]. La pesada para la preparación de las fuentes puntuales se realizó en una balanza electrónica SARTORIUS<sup>TM</sup> MC 210 S; para la fuente de  $^{131}\text{I}$  se empleó una balanza electrónica SHUANGQUAN<sup>®</sup> modelo MP 120-1, con una resolución de  $10^{-3}$  g. La actividad aproximada del nucleido a depositar en cada fuente, fue seleccionada de mutuo acuerdo entre los dos laboratorios participantes. En la Tabla 1 aparecen los códigos asignados y las características fundamentales de cada una de las fuentes, incluyendo la masa de cada disolución radiactiva depositada y su incertidumbre. Esta incertidumbre típica se calcula como la raíz cuadrada de la suma de las varianzas de las contribuciones a la incertidumbre de la repetibilidad de la pesada (tipo A), la linealidad (tipo B) y resolución de la balanza empleada (tipo B).

Después de su preparación, las 5 fuentes fueron sometidas a una prueba de hermeticidad por frotamiento según los requerimientos de la norma ISO 9978 [3]. Como resultado de esta prueba no se detectó fuga del material radiactivo en ninguna de las 5 fuentes.

### 1.3. Esquema empleado

Se empleó un esquema de comparación de las mediciones de acuerdo con la Guía ISO/IEC 43-1 [4]. De acuerdo con este esquema, las fuentes radiactivas que se comparan fueron circuladas sucesivamente de un laboratorio participante al otro. Las fuentes fueron primeramente medidas en el CENTIS-DMR durante los meses de agosto-septiembre de 2001 y luego enviadas al CIEMAT, el cual fue considerado como el Laboratorio de Referencia. La estabilidad de las fuentes fue controlada hasta su envío al CIEMAT en octubre de 2001. Para las mediciones de control de las cuatro fuentes puntuales se utilizó un espectrómetro gamma, mientras que para la ampolla de  $^{131}\text{I}$  estas mediciones fueron hechas en un activímetro. Los resultados de estos controles evidenciaron que las muestras eran suficientemente estables para los propósitos de la comparación. Las fuentes fueron calibradas en el CIEMAT en octubre-noviembre de 2001.

### 1.4. Métodos empleados

Los procedimientos de calibración empleados en el CIEMAT fueron:

- Norma ANSI N42.14 –1999, para calibración y uso de detectores de germanio para medidas de emisión gamma de radionucleidos. Este método se usó para la calibración de las fuentes puntuales. Las fuentes fueron medidas en un espectrómetro gamma con detector de Ge de rango extendido calibrado (distancia fuente-detector 10 cm)
- Medida de la corriente de una cámara de ionización de pozo CENTRONIC IG11, previamente calibrada según normas técnicas internas del CIEMAT. Este método se usó para la calibración de  $^{131}\text{I}$ .

Los procedimientos de calibración empleados en el CENTIS-DMR fueron:

- Método de espectrometría gamma descrito en la norma interna DMR.PNO.004 [5], para la calibración de disoluciones de referencia de emisores gamma. Este procedimiento se basa en la determinación de la actividad por unidad de masa de la disolución radiactiva de un radionucleido dado, mediante la medición de la actividad de  $n$  fuentes puntuales preparadas gravimétricamente, en un espectrómetro gamma SILENA<sup>TM</sup> con detector de germanio hiperpuro calibrado [6]. Para este ejercicio se empleó  $n = 7$ . La actividad del nucleido en las fuentes de referencia (fuentes empleadas para la comparación) se establece como el producto de la actividad específica de la disolución por la masa de la misma depositada en la fuente.
- Método de medición de la actividad en una cámara de ionización de pozo (activímetro), descrito en la norma interna DMR.PNO.005 [7]. Este procedimiento se basa en la calibración de la actividad por unidad de masa de la disolución radiactiva. Para ello, dos muestras preparadas depositando por el método del picnómetro una masa de la disolución en frascos o ampollas de vidrio, se miden en la cámara de ionización de pozo previamente calibrada [6]. La actividad del nucleido en las fuentes de referencia (fuentes empleadas para la

comparación) se establece como el producto de la actividad específica de la disolución por la masa de la misma depositada en la fuente.

## 1.5. Evaluación de los resultados

Para la evaluación de los resultados obtenidos se calcula el estadístico  $E_n$  [4], de acuerdo a la fórmula:

$$E_n = \frac{(x_1 - x_2)}{\sqrt{U_1^2 + U_2^2}}$$

Donde:

$x_1, U_1$  son la actividad y su incertidumbre expandida ( $k=2$ ), respectivamente, obtenidos por el CENTIS-DMR para el radionucleido en una fuente dada, empleando el método correspondiente.

$x_2, U_2$  son la actividad y su incertidumbre expandida ( $k=2$ ), respectivamente, obtenidos por el CIEMAT para el radionucleido en una fuente dada.

Los resultados  $x_1$  y  $x_2$  se consideran equivalentes si el módulo de  $E_n$  no es mayor que 1.

En la Tabla 2 aparecen los valores de actividad de los nucleidos y su incertidumbre asociada, determinados en cada fuente por los dos laboratorios. Los valores certificados por el LMRI del CIEMAT son directamente trazables al Patrón Nacional de Actividad, mantenido por el LMRI, según Orden del 11 de Abril de 1996 del Ministerio de Obras Públicas, Transporte y Medio Ambiente (B.O.E. nº 99 de 24 de abril). Los valores reportados por el CENTIS-DMR, son trazables a seis fuentes sólidas gamma puntuales, certificadas por la Oficina Nacional de Mediciones de Hungría (OMH). Como puede apreciarse no se detectaron diferencias estadísticamente significativas entre los resultados obtenidos por los dos laboratorios.

Cuando para un nucleido dado se obtuvieron dos resultados por el mismo método en el CENTIS-DMR (la actividad del nucleido dado fue determinada en dos fuentes empleando el mismo método en el CENTIS-DMR), para la evaluación del resultado del CENTIS-DMR se determinó un estadístico combinado,  $T$ , igual a la suma reducida de cuadrados:

$$T = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 z_i^2$$

donde  $z_i = 2E_{ni}$  son los residuos normalizados (“z-scores”).

El resultado del laboratorio fue considerado satisfactorio para las mediciones de un nucleido por un método dado, si el estadístico  $T$  calculado, el cual debe seguir la distribución de  $\chi^2$ , no es mayor que 3.00 ( $\alpha=0.05$ , 2 grados de libertad). Los valores de  $T$  obtenidos para los diferentes nucleidos aparecen en la Tabla 2.

Adicionalmente se calculó un estadístico combinado,  $W$ , para todos los nucleidos determinados por un mismo método en el CENTIS-DMR. Este valor calculado como

$$W = \frac{1}{13} \sum_{i=1}^{13} z_i^2$$

es un estadístico que debe seguir la distribución de  $\chi^2$ .

Para el método gamma espectrométrico se obtuvo un valor de  $W=1.29$  correspondiente a  $P(\chi^2 \geq W)$  igual a 0.21, mientras que para las mediciones en la cámara de ionización el valor obtenido fue  $W=1.16$  correspondiente a  $P(\chi^2 \geq W)$  igual a 0.30, ambos valores para 13 grados de libertad.

## 1.6. Conclusiones

Los resultados de la comparación bilateral CENTIS-DMR – CIEMAT, permitieron establecer la equivalencia de los resultados de las mediciones de los nucleidos  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$  y  $^{201}\text{Tl}$ , realizadas en el CENTIS-DMR con los principales métodos e instalaciones empleados en el laboratorio para la calibración de soluciones y fuentes radiactivas, con los resultados obtenidos por la Unidad de Metrología de Radiaciones Ionizantes del CIEMAT, que mantiene el Patrón Nacional de esa magnitud en España. El desempeño del CENTIS-DMR puede evaluarse de satisfactorio, no detectándose diferencias estadísticamente significativas entre los resultados obtenidos por los dos laboratorios.

## Agradecimientos

Los autores desean expresar su agradecimiento al Dr. Jose María los Arcos del CIEMAT, por su valiosa contribución durante la organización de esta comparación y la revisión del manuscrito, al Dr. Aerulio T. Hernández, por su gran ayuda durante la revisión del manuscrito, al MSc. Rolando Serra, a D. Ernesto Martínez y D. Stéfan Gutiérrez por su inestimable contribución a la realización de este ejercicio, especialmente durante la preparación y medición de las muestras en el CENTIS-DMR.

## 1.7. Bibliografía

- [1] Calhoun J. M. (1987). "Radioactivity Calibrations with the "4 $\pi$ " Gamma Ionization Chamber and Other Radioactivity Calibration Capabilities", NBS Special Publication 250-10.
- [2] Van der Eijk W. and Vaninbrouckx R. (1972), " Sampling and Dilution Problems in Radioactivity Measurements ", Nucl. Instr. and Meth. 102, 581.
- [3] ISO 9978: 1992(E). 'Radiation protection – Sealed radioactive sources – Leakage test methods'.
- [4] ISO/IEC Guide 43-1: (1997). 'Proficiency testing by interlaboratory comparisons - Part 1: Development and operation of proficiency testing schemes'.
- [5] DMR.PNO.004: 2001. 'Obtención de muestras de referencia para la calibración de instrumentos de medición de actividad. Nivel 1'. Revisión 02. CENTIS.
- [6] Oropesa P. et al. (2002). 'A Procedure for the Standardization of Gamma Reference Sources for Quality Assurance in Activity Measurements of Radiopharmaceuticals', Appl. Rad. Isot. Vol.56/6, pp 787-795.
- [7] DMR.PNO.005: 2001. 'Obtención de muestras de referencia para la calibración de instrumentos de medición de actividad. Nivel 2'. Revisión 01. CENTIS.

## 1.8. Tablas

Tabla 1. Características fundamentales de las fuentes radiactivas empleadas para la comparación

Código de fuente	Tipo de fuente	Actividad a depositar <sup>(1)</sup>	Nucleido	Masa de disolución depositada [mg]
FM00101	Sólida Puntual	3 kBq de cada nucleido	<sup>152</sup> Eu	11.86 (0.05)
			<sup>241</sup> Am	13.76 (0.03)
			<sup>137</sup> Cs	6.46 (0.02)
			<sup>133</sup> Ba	8.77 (0.08)
FM00201	Sólida Puntual	3 kBq de cada nucleido	<sup>152</sup> Eu	18.03 (0.05)
			<sup>241</sup> Am	13.99 (0.17)
			<sup>137</sup> Cs	10.21 (0.02)
			<sup>133</sup> Ba	16.23 (0.08)
FM00301	Sólida Puntual	3 kBq de <sup>60</sup> Co, 40 kBq de <sup>201</sup> Tl	<sup>60</sup> Co	19.06 (0.03)
			<sup>201</sup> Tl	20.78 (0.05)
FM00401	Sólida Puntual	3 kBq de <sup>60</sup> Co, 40 kBq de <sup>201</sup> Tl	<sup>60</sup> Co	16.67 (0.03)
			<sup>201</sup> Tl	7.81 (0.05)
SI03A1L	Ampolla NIST con 4 g de disolución	4 MBq	<sup>131</sup> I	3994 (2)

(1) La actividad a depositar se calcula para la fecha de embarque prevista, 9 de octubre de 2001.

Tabla 2. Resultados de la comparación de actividad CENTIS-DMR – CIEMAT.

Nucleido	Código de muestra	CIEMAT		CENTIS-DMR Espectrometría gamma				CENTIS-DMR Cámara de ionización			
		Actividad $x_2$	$U_2$	Actividad $x_1$	$U_1$	$E_n$	$T$	Actividad $x_1$	$U_1$	$E_n$	$T$
$^{133}\text{Ba}^{(a)}$	FM00101	1280	30	1279	32	-0.02	0.57	1272	48	-0.13	0.49
	FM00201	2403	50	2365	48	-0.53		2353	89	-0.48	
$^{137}\text{Cs}^{(a)}$	FM00101	1832	36	1871	36	0.77	1.58	1883	72	0.64	0.85
	FM00201	2996	60	2959	56	-0.45		2978	113	-0.14	
$^{152}\text{Eu}^{(a)}$	FM00101	2948	60	3005	74	0.60	2.47	3004	114	0.44	1.31
	FM00201	4434	88	4566	110	0.94		4567	174	0.68	
$^{241}\text{Am}^{(a)}$	FM00101	3887	78	3841	60	-0.47	2.30	3826	153	-0.36	1.69
	FM00201	4039	80	3906	112	-0.97		3891	156	-0.85	
$^{60}\text{Co}^{(a)}$	FM00301	3212	40	3229	40	0.30	0.19	3270	124	0.45	0.21
	FM00401	2827	40	2824	36	-0.06		2860	109	0.29	
$^{201}\text{Tl}^{(b)}$	FM00301	919	36	940	28	0.47	0.63	964	37	0.88	2.64
	FM00401	348	14	354	11	0.30		362	14	0.74	
$^{131}\text{I}^{(c)}$	SI03A1L	17.7	0.3	17.43	0.37	-0.57	---	17.85	0.68	0.20	---

(a) Los valores de actividad y sus respectivas incertidumbres para  $k=2$  se reportan en Bq, referidos a las 16:00 del 16/10/2001 (UTC).

(b) Los valores de actividad y sus respectivas incertidumbres para  $k=2$  se reportan en kBq, referidos a las 16:00 del 16/10/2001 (UTC).

(c) Los valores de actividad y sus respectivas incertidumbres para  $k=2$  se reportan en MBq, referidos a las 16:00 del 15/09/2001 (UTC).

## 2. Bilateral comparison CIEMAT – CENTIS-DMR for radionuclide activity measurements

### 2.1. Introduction

A bilateral comparison of radionuclide activity measurements was organized by the Radionuclide Metrology Department of the Center of Isotopes of Cuba (CENTIS-DMR), with the Ionising Radiation Metrology Laboratory (LMRI) of the Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) of Spain. The LMRI holds the National Standards of Activity in Spain, while the Cuban Reference System of this metrological magnitude is held by CENTIS-DMR.

The aim of the comparison was to establish the comparability of the measurement instruments and methods, used to obtain radioactive reference materials of some gamma-emitting nuclides at CENTIS-DMR. The results of this bilateral comparison, which revealed that there are no statistically significant differences between the data reported by the two laboratories, are presented in this communication.

### 2.2. Sample description

Seven single radionuclide aqueous solutions of one of the following nuclides were used:  $^{152}\text{Eu}$  (25  $\mu\text{g}$  of Eu per g of solution in 1M HCl),  $^{241}\text{Am}$  (20  $\mu\text{g}$  of Am per g of solution in 3M  $\text{HNO}_3$ ),  $^{137}\text{Cs}$  (25  $\mu\text{g}$  of Cs per g of solution in 0.1M HCl),  $^{133}\text{Ba}$  (25  $\mu\text{g}$  of Ba per g of solution in 0.1M HCl),  $^{60}\text{Co}$  (25  $\mu\text{g}$  of Co per g of solution in 0.1M HCl),  $^{201}\text{TlCl}$  (0.9 % NaCl, 0.9 % of benzoic alcohol, 100  $\mu\text{g/g}$  of  $\text{Tl}^+$  in 0.1 M HCl) and  $\text{Na}^{131}\text{I}$  (0.9 % NaCl, 0.25 %  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \times 5\text{H}_2\text{O}$ , 0.26 % KI, 0.1 %  $\text{NaH}_2\text{PO}_4$ , 0.44 %  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ ). Five sources were prepared from these solutions at CENTIS-DMR. Four of them were mixed solid point sources (see Table 1), which were obtained depositing consecutively aliquots of the radioactive solutions of each nuclide in the center of a circle of polyvinyl acetate (PVA). Before depositing a mass of a new one solution in the source, the previously deposited solution was dried.

The fifth source was prepared depositing approximately 4 g of the  $^{131}\text{I}\text{Na}$  solution in a standard NIST ampoule [1]. The pycnometer method [2] was used to determine the mass of solutions in all sources. A SARTORIUS<sup>TM</sup> MC 210 S balance was employed for point sources preparation, while an electronic balance SHUANGQUAN<sup>®</sup> model MP 120-1, with a resolution of  $10^{-3}$  g, was utilized for the  $^{131}\text{I}$  source preparation. The nuclide activity to be deposited in the sources was in advance agreed by the participants. The assigned codes and the main characteristics of the sources, including the deposited mass of each radioactive solution with its combined standard uncertainty, appear in Table 1. The combined standard uncertainty was calculated as the squared root of the variance sum of the following uncertainty contributions: repeatability (type A), linearity (type B) and balance resolution (type B).

After preparation, a wipe test was applied to the five sources in compliance with ISO 9978 [3]. As a result of the test no leakage of the radioactive material was detected for all prepared sources.

### 2.3. Scheme

A measurement comparison scheme in compliance with the ISO/IEC Guide 43-1 [4] was used. The calibrated radioactive sources were circulated successively from one participating laboratory to the other. The sources were measured at CENTIS-DMR during August- September 2001 and then they were sent to the CIEMAT, which was considered the Reference Laboratory. The stability of the sources was monitored until they were sent to the CIEMAT on October 2001. A gamma spectrometer was employed for the check measurements of the four point sources and an activimeter was used for the  $^{131}\text{I}$  ampoule. The results of this check evidenced that the sources were stable enough for the comparison purpose. The samples were calibrated at CIEMAT on October – November of 2001.

### 2.4. Calibration methods

The calibration procedures used at CIEMAT were:

- The standard ANSI N42.14 –1999, for calibration and use of germanium spectrometers for the measurement of gamma-ray emission rates. This method was employed for point sources calibration. Specifically, the sources were measured in a calibrated CANBERRA gamma spectrometer with an extended range germanium detector (source to detector distance 10 cm)
- Current measurements of a CENTRONICS IG11 well-type ionisation chamber previously calibrated by the CIEMAT. This method was employed for the calibration of the  $^{131}\text{I}$  source.

The calibration procedures used at CENTIS-DMR were:

- Gamma-spectrometric method for calibration of gamma-emitting nuclides solutions, described in the internal procedure DMR.PNO.004 [5] This procedure is based in the determination of the activity per unit mass of a single nuclide solution, measuring in a calibrated SILENA<sup>TM</sup> gamma spectrometer  $n$  point sources, prepared from that solution by weighing [6]. For the present comparison  $n$  was equal 7. The spectrometer has 8K channels and a p-type Ge detector (FWHM of 1.97 keV for 1.33 MeV line). The activity of the reference sources (sources employed for comparison purpose) is established as the product of the determined activity per unit mass value and the mass of that solution deposited in the source.
- Measurements in the CAPINTEC<sup>TM</sup> CRC-35R model well-type ionisation chamber, calibrated in terms of activity of the nuclides (activimeter), described in the internal procedure DMR.PNO.005 [7]. This procedure is based in the calibration of the activity per unit mass of a radioactive solution, measuring in the calibrated activimeter two samples, prepared from that solution by weighing [6]. In the following, the activity of the reference sources (sources employed for comparison purpose) is established as the product of the determined activity per unit mass value and the mass of that solution deposited in the source.

## 2.5. Evaluation of performance

For the evaluation of the CENTIS-DMR performance the statistic  $E_n$  [4] is calculated for each radionuclide activity result obtained in the different sources according the formula:

$$E_n = \frac{(x_1 - x_2)}{\sqrt{U_1^2 + U_2^2}}$$

Where:

$x_1$ ,  $U_1$  are the activity and its expanded uncertainty ( $k=2$ ), respectively, obtained for the given nuclide in the given source at CENTIS-DMR, using a given method.

$x_2$ ,  $U_2$  are the activity and its expanded uncertainty ( $k=2$ ), respectively, obtained for a given nuclide in the given source at CIEMAT.

The results  $x_1$  and  $x_2$  are considered as equivalent if the absolute  $E_n$  value is not larger than 1.

The activity values and its associated uncertainty for the different nuclides, determined in the five sources by the two laboratories, are shown in Table 2. The CIEMAT values are traceable to the Spanish Radioactivity Standard, hold by that laboratory. The values reported by the CENTIS-DMR, are traced to six calibrated gamma solid point sources, certified by the National Office of Measures of Hungary (OMH). As can be seen from that Table, no statistical significant differences were detected between any results obtained by the two laboratories in the measured sources.

When for a given CENTIS-DMR method two results are available for the same nuclide (the activity of the given nuclide was determined in two different sources by the given method at CENTIS-DMR), then a composite score equal to the reduced sums of squares,  $T$ , was used for evaluating the CENTIS-DMR performance.

$$T = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^2 z_i^2$$

where  $z_i = 2E_{ni}$  are the  $z$ -scores, which are expected to be normally distributed with a zero mean and a unity standard deviation.

The performance was considered satisfactory for the measurements of a given nuclide using a given method, if the calculated  $T$ , which should follow the  $\chi^2$  distribution, is not larger than 3.00 ( $\alpha=0.05$ , 2 degrees of freedom). The obtained  $T$  values for the different nuclides are also presented in Table 2.

Additionally, a composite score  $W$  for the different nuclides but for the same method was determined for evaluating the CENTIS-DMR performance. This value, calculated as

$$W = \frac{1}{13} \sum_{i=1}^{13} z_i^2$$

is a  $\chi^2$  distributed statistic.

Values  $W=1.29$  corresponding to  $P(\chi^2 \geq W) = 0.21$  for the gamma spectrometry, and  $W=1.16$  corresponding to  $P(\chi^2 \geq W) = 0.30$  for the measurements with the activimeter, at 13 degrees of freedom, were obtained.

## 2.6. Conclusions

The CENTIS-DMR performance could be evaluated as satisfactory from the results of the bilateral comparison CENTIS-DMR – CIEMAT organized in 2001. The equivalence of the CENTIS-DMR measurements results for  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$  y  $^{201}\text{Tl}$ , with the results obtained in the comparison samples by the Ionizing Radiation Metrology Laboratory of CIEMAT, keeper of the Spanish National Radioactivity Standard, was established.

## Acknowledgments

The authors would like to thank Dr. Jose María los Arcos of CIEMAT for his support organizing this comparison and Dr. Aerulio T. Hernández for his kind revision of this paper. The authors are grateful to MSc. Rolando Serra, Ernesto Martínez and Stefan Gutierrez for their invaluable contribution to this exercise preparing and measuring the comparison samples at CENTIS-DMR.

## 2.7. Bibliography

- [1] Calhoun J. M. (1987). "Radioactivity Calibrations with the "4 $\pi$ " Gamma Ionization Chamber and Other Radioactivity Calibration Capabilities", NBS Special Publication 250-10.
- [2] Van der Eijk W. and Vaninbrouckx R. (1972). "Sampling and Dilution Problems in Radioactivity Measurements ", Nucl. Instr. and Meth. 102, 581.
- [3] ISO 9978: 1992(E). 'Radiation protection – Sealed radioactive sources – Leakage test methods'.
- [4] ISO/IEC Guide 43-1: (1997). 'Proficiency testing by interlaboratory comparisons - Part 1: Development and operation of proficiency testing schemes'.
- [5] DMR.PNO.004:2001. 'Obtention of reference materials for calibration of the activity measurement instruments. Level 1'. Revision 02. CENTIS.
- [6] Oropesa P., Serra R., Gutierrez S. and Hernández T. (2002). 'A Procedure for the Standardization of Gamma Reference Sources for Quality Assurance in Activity Measurements of Radiopharmaceuticals', Appl. Rad. Isot. Vol.56/6, pp 787-795.
- [7] DMR.PNO.005:2001. 'Obtention of reference materials for calibration of the activity measurement instruments. Level 2'. Revision 01. CENTIS.

## 2.8. Tables

Table 1.

Main characteristics of the radioactive sources used for comparison.

Source code	Source type	Nuclide activity to be deposited <sup>(1)</sup>	Nuclide	Deposited mass of solution [mg]
FM00101	Solid point source	3 kBq of each nuclide	<sup>152</sup> Eu	11.86 (0.05)
			<sup>241</sup> Am	13.76 (0.03)
			<sup>137</sup> Cs	6.46 (0.02)
			<sup>133</sup> Ba	8.77 (0.08)
FM00201	Solid point source	3 kBq of each nuclide	<sup>152</sup> Eu	18.03 (0.05)
			<sup>241</sup> Am	13.99 (0.17)
			<sup>137</sup> Cs	10.21 (0.02)
			<sup>133</sup> Ba	16.23 (0.08)
FM00301	Solid point source	3 kBq of <sup>60</sup> Co, 40 kBq of <sup>201</sup> Tl	<sup>60</sup> Co	19.06 (0.03)
			<sup>201</sup> Tl	20.78 (0.05)
FM00401	Solid point source	3 kBq of <sup>60</sup> Co, 40 kBq of <sup>201</sup> Tl	<sup>60</sup> Co	16.67 (0.03)
			<sup>201</sup> Tl	7.81 (0.05)
SI03A1L	NIST ampoule with 4 g of radioactive solution	4 MBq	<sup>131</sup> I	3994 (2)

(1) The activity of the nuclide to be deposited was calculated for the October 9-th, 2001.

**Table 2. Results of the bilateral comparison for activity measurements CENTIS-DMR – CIEMAT.**

Nuclide	Sample code	CIEMAT		CENTIS-DMR Gamma spectrometry				CENTIS-DMR Ionisation chamber measurements			
		Activity $x_2$	$U_2$	Activity $x_1$	$U_1$	$E_n$	$T$	Activity $X_1$	$U_1$	$E_n$	$T$
$^{133}\text{Ba}^{(a)}$	FM00101	1280	30	1279	32	-0.02	0.57	1272	48	-0.13	0.49
	FM00201	2403	50	2365	48	-0.53		2353	89	-0.48	
$^{137}\text{Cs}^{(a)}$	FM00101	1832	36	1871	36	0.77	1.58	1883	72	0.64	0.85
	FM00201	2996	60	2959	56	-0.45		2978	113	-0.14	
$^{152}\text{Eu}^{(a)}$	FM00101	2948	60	3005	74	0.60	2.47	3004	114	0.44	1.31
	FM00201	4434	88	4566	110	0.94		4567	174	0.68	
$^{241}\text{Am}^{(a)}$	FM00101	3887	78	3841	60	-0.47	2.30	3826	153	-0.36	1.69
	FM00201	4039	80	3906	112	-0.97		3891	156	-0.85	
$^{60}\text{Co}^{(a)}$	FM00301	3212	40	3229	40	0.30	0.19	3270	124	0.45	0.21
	FM00401	2827	40	2824	36	-0.06		2860	109	0.29	
$^{201}\text{Tl}^{(b)}$	FM00301	919	36	940	28	0.47	0.63	964	37	0.88	2.64
	FM00401	348	14	354	11	0.30		362	14	0.74	
$^{131}\text{I}^{(c)}$	SI03A1L	17.7	0.3	17.43	0.37	-0.57	---	17.85	0.68	0.20	---

(a) Activity values and uncertainties( $k=2$ ) are reported in Bq, referred to the date 16/10/2001 16:00 (UTC).

(b) Activity values and uncertainties( $k=2$ ) are reported in kBq, referred to the date 16/10/2001 16:00 (UTC).

(c) Activity values and uncertainties( $k=2$ ) are reported in MBq, referred to the date 15/09/2001 16:00 (UTC).

