

LOS EJERCICIOS DE INTERCOMPARACIÓN EN LOS LABORATORIOS DE DATACIÓN POR RADIOCARBONO

por

G. Rauret y J. S. Mestres*

Resumen: La calidad de un laboratorio de datación se fundamenta en tres pilares: diseño, control y evaluación. Este último se basa en la participación en ejercicios interlaboratorio. Para realizarlos deben cumplirse una serie de condiciones tanto por la organización como por el laboratorio participante las cuales hacen referencia al diseño del ejercicio, la preparación de los materiales a analizar y la presentación de los resultados obtenidos. En la ponencia se discuten no solo estos aspectos sino también los resultados obtenidos en distintos ejercicios interlaboratorio y las ventajas que se derivan de la participación en este tipo de ejercicios.

Palabras-clave: Garantías de calidad. Ejercicios interlaboratorio. Radiocarbono.

La datación por radiocarbono exige la determinación de cantidades extremadamente pequeñas, a nivel de ultratraza, de este radionucleido. A medida que el contenido relativo de un elemento, o en este caso de un radionucleido, se hace menor, la dificultad de su determinación aumenta y por lo tanto también aumenta la probabilidad de obtener un error relativo y coeficiente de variación de menor calidad. Además, en el caso de la datación por radiocarbono, variaciones muy pequeñas en las medidas pueden conducir a valores inaceptables en las fechas obtenidas a partir de éstas. Se impone pues que un laboratorio de datación asegure la calidad de sus fechas mediante la aplicación de un programa de garantías de calidad (LONG 1990).

Un programa de garantías o aseguramiento de la calidad en un laboratorio de radiocarbono tiene como misión proporcionar al usuario la seguridad de que las fechas obtenidas tienen un nivel de calidad que se ha establecido previamente según la antigüedad del objeto a datar. En general, un programa de aseguramiento de la calidad proporciona al laboratorio un aval fundamentado sobre la credibilidad y la confianza en la información generada (TAYLOR 1987).

* Laboratori de Radiocarboni. Universitat de Barcelona - Institut d'Estudis Catalans.

Un sistema de aseguramiento de la calidad se fundamenta en tres pilares: el primero lo constituye el diseño y planificación de sus actividades que debe estar recogido en el manual de calidad, el cual contiene una amplia documentación sobre todos los pasos a seguir para implementar la calidad (diseño del laboratorio, cualificación del personal, instrumentación, elección y validación de las metodologías de preparación de la muestra y de contaje, etc.). El segundo pilar es el control de aquello que se ha diseñado y planificado con el fin de asegurar que se cumple adecuadamente (uso de patrones para el control de la instrumentación, uso de muestras patrón para validar el método, etc). Esta parte del programa de garantías de calidad recibe el nombre de "control de calidad". Finalmente, el tercer pilar lo constituye la comprobación de que tanto el diseño, la planificación como el control han sido correctos; este aspecto recibe el nombre de "evaluación de la calidad".

Los ejercicios de interlaboratorios son uno de los mejores medios de que dispone un laboratorio para evaluar su calidad o sea para comprobar la bondad de su diseño, de su planificación y de su control. En el esquema representado en la figura 1, se sitúa a los ejercicios interlaboratorio o de intercomparación en el apartado correspondiente a evaluación del laboratorio dentro del programa de garantías de calidad. En este esquema se ha considerado que existen dos vías para llevar a cabo la evaluación de un laboratorio: la primera es la que efectúa el propio laboratorio, la cual se denomina evaluación interna, y la segunda es la que necesita de agentes externos al mismo para efectuarla y se denomina evaluación externa.

Para llevar a cabo una evaluación interna se pueden usar distintos procedimientos entre los que destacan el uso de muestras patrón internas, o sea una muestra cuya edad se conoce suficientemente, el uso de cartas de control en donde de manera gráfica se representa la variación con el tiempo del valor que se obtiene al medir repetidamente una misma muestra, por ejemplo, el valor del contaje de una muestra de benceno o de CO_2 de actividad conocida.

Para llevar a cabo la evaluación externa los procedimientos más adecuados son: los ejercicios de intercomparación, el intercambio de muestras entre laboratorios, el uso de materiales de referencia certificados y las auditorías externas.

Un ejercicio de intercomparación se basa en la aceptación por parte de varios laboratorios de llevar a cabo un mismo trabajo analítico, o en el caso del carbono 14, en fechar uno o distintos materiales, bajo la coordinación de una organización con objeto de evaluar la calidad de su trabajo, de evaluar un método o bien de determinar el contenido de radiocarbono en un material que se utilizará como material de referencia.

La misión principal de la organización responsable de un ejercicio de intercomparación es la de establecer los objetivos del mismo, las condiciones de

participación de los laboratorios, asegurar la calidad y estabilidad de las muestras que se van a datar así como el realizar un tratamiento estadístico de los resultados. El laboratorio participante en un ejercicio interlaboratorio debe a su vez comprometerse a seguir la normativa y condiciones establecidas por la organización y a investigar la causa de los posibles fallos que pudieran ponerse de manifiesto a través de sus resultados.

Recientemente, a nivel internacional, los laboratorios de radiocarbono han llevado a cabo dos ejercicios de intercomparación organizados el primero por miembros del Department of Statistics de la Universidad de Glasgow junto con miembros de Scottish Universities Research and Reactor Centre de East Kilbride y del NERC ^{14}C Laboratory East Kilbride de Glasgow (Cross Check ^{14}C) (COOK et al., AITCHISON et al., PAZDUR et al., SCOTT et al. 1990, SCOTT et al. 1992) y el segundo, por la International Atomic Energy Agency (IAEA) (ROZANSKI et al. 1992).

Para un laboratorio experimentado, los ejercicios de intercomparación tienen como objetivo principal el demostrar la exactitud de su laboratorio, sin embargo en una primera etapa del proceso de establecimiento de las garantías de calidad, la participación en este tipo de ejercicios permite además detectar posibles errores sistemáticos y mejorar la calidad de un laboratorio mediante un proceso de aprendizaje mutuo con los otros laboratorios participantes. Con este objetivo, los laboratorios peninsulares organizaron un ejercicio interlaboratorio que permitió el intercambio de experiencias y de metodología (GONZALEZ et al., MESTRES et al. 1991). Un estudio de intercomparación requiere un esfuerzo considerable y sólo se debe participar en él utilizando métodos sobre los cuales se disponga de suficiente información previa. Para obtener información válida de la calidad de sus dataciones es necesario que el laboratorio trabaje en las condiciones de rutina, ya que de este modo conocerá cual es el nivel de calidad de su trabajo diario.

En los ejercicios de intercomparación no se fija un método analítico determinado para llevar a cabo las determinaciones sino que cada laboratorio debe usar el procedimiento habitual tanto para el tratamiento de la muestra como para la medida final. Así, en el caso de la datación por carbono 14, pueden participar tanto laboratorios que realizan una medida de las partículas beta emitidas ya sea por centelleo líquido (LS) o mediante un contador proporcional (GPC), como los laboratorios que determinan el contenido en ^{14}C por espectrometría de masas con aceleradores (AMS). No hay que olvidar que lo que se evalúa es la capacidad de un laboratorio para poder obtener resultados fiables. Sin embargo, el laboratorio debe consignar en el informe final que remite al organizador todos los detalles referentes a la metodología utilizada, de este modo podrá también obtenerse información sobre el método utilizado.

Dada la envergadura de los dos ejercicios interlaboratorio antes menciona-

dos, Cross Check y IAEA, se presenta a continuación su diseño, objetivos y logros alcanzados.

DISEÑO Y REALIZACIÓN DE LOS EJERCICIOS DE INTERCOMPARACIÓN

En la figura 2 se da un esquema de las etapas a seguir en el diseño y realización de un ejercicio de intercomparación.

En primer lugar debe definirse de forma clara cual es el objetivo del ejercicio de intercomparación y en función de éste se diseñará de forma que permita detectar distintos tipos de errores que pueden aparecer a lo largo del proceso de datación. En el caso del ejercicio Cross Check, los objetivos del mismo eran los siguientes:

a) Proporcionar información cuantitativa sobre la validez de los errores que rutinariamente se dan en un resultado.

b) Comparar y verificar de forma objetiva las distintas técnicas utilizadas en los laboratorios: contaje de un gas, centelleo líquido y espectrometría de masas con aceleradores.

c) Verificar la contribución de cada proceso en el error total (pretratamiento de la muestra, transformación de la muestra en una forma medible y contaje).

d) Dar información a los usuarios de la datación por radiocarbono sobre la calidad de los laboratorios.

El ejercicio diseñado por la IAEA tenía como único objetivo la evaluación de los laboratorios dentro de un programa de aseguramiento de la calidad.

Según los objetivos del ejercicio se establece el tipo de material o de materiales a estudiar y su número. Un aspecto de suma importancia en los ejercicios de intercomparación lo constituye la selección del material que se utiliza para realizar el ejercicio. No todos los materiales son aptos para llevar a cabo un estudio de este tipo. Es absolutamente imprescindible que el material utilizado sea homogéneo y estable. La organización responsable del ejercicio debe garantizar que el material suministrado a los participantes cumple con los requisitos de homogeneidad y estabilidad. La preparación de una muestra para un ejercicio de intercomparación debe hacerse de forma muy rigurosa y el laboratorio encargado de prepararla debe llevar a cabo estudios de homogeneidad y de estabilidad del lote preparado.

Otro aspecto de interés a tener en cuenta al elegir el tipo de material a estudiar en un ejercicio de intercomparación lo constituye la edad de la muestra. Las edades de las muestras deben elegirse de modo que cubran todo el intervalo de aplicación de la técnica. Se recomienda que se incluya la datación de una muestra de antigüedad suficiente para que su contenido en radiocarbono esté por

debajo del límite de detección de la técnica.

En lo que se refiere al número de materiales a determinar en cada ejercicio de intercomparación se recomienda que se utilicen cinco materiales distintos. También se recomienda que se utilicen como materiales varios replicados de una misma muestra sin que el laboratorio participante tenga conocimiento de ello, muestras ciegas, ó mejor que se utilicen muestras con dos edades muy parecidas. El uso de muestras con dos edades muy próximas permite conocer la capacidad de un laboratorio para distinguir entre dos muestras con edades muy parecidas y permite conocer la repetibilidad del método utilizado. El uso de duplicados permite evaluar la capacidad de un laboratorio para calificar o no como iguales dos muestras idénticas.

El ejercicio Cross Check tuvo un diseño jerárquico en tres etapas en la primera se comprobó el proceso de contaje y utilizó benceno y carbonato cálcico como materiales, en la segunda el proceso de tratamiento y contaje en ella se utilizaron celulosa, algas y ácidos húmicos y en la tercera etapa el proceso de pretratamiento, preparación de la muestra y contaje, las muestras datadas fueron madera, conchas y turba. El ejercicio organizado por la IAEA, dado que su objetivo era la valoración global, sólo se distribuyeron muestras reales para llevar a cabo las tres etapas del proceso de datación: pretratamiento, preparación de la muestra y contaje. Los materiales utilizados fueron carbonatos (mármol y travertino), celulosa, madera subfósil y sucrosa.

Además del material a utilizar, el diseño de un ejercicio de intercomparación requiere definir el número de laboratorios que deben participar en él. Se considera que el número de participantes debe ser suficiente para que se pueda aplicar un tratamiento estadístico a los resultados. De acuerdo con este criterio, el número mínimo de laboratorios que deben participar en un ejercicio de intercomparación es de ocho. En ambos ejercicios se superaron con creces el límite mínimo de participantes.

La preparación de un material para ser utilizado en un ejercicio de intercomparación se realiza en las etapas que se indican en el esquema que aparece en la figura 3 y que se describen a continuación:

1ª etapa. Se elige el material óptimo y se localiza la fuente que puede suministrar el material.

2ª etapa. En el caso de un material que no se prepare en el laboratorio, que es el caso más frecuente, una vez elegido el material óptimo se lleva a cabo la toma de la muestra total y se procede a su acondicionamiento que será muy variado en función del tipo de material de que se trate.

3ª etapa. Una vez seleccionada y procedido a la primera reducción de la gran muestra, ésta se traslada a un laboratorio especialmente equipado para tratar grandes volúmenes de muestra en condiciones que eviten su posible contaminación.

4ª etapa. Una vez se ha preparado el lote, el cual consiste en un número relativamente elevado de envases que contienen la muestra tal como se entregará a los laboratorios que participen en el ejercicio de intercomparación, se lleva a cabo una toma de muestra consistente en elegir al azar una serie de muestras envasadas las cuales se dataran o se medirá su actividad con el fin de comprobar la homogeneidad de la muestra preparada. Un aspecto importante en los estudios de homogeneidad es el tamaño de la muestra que se utiliza para el análisis. Así por ejemplo, una muestra puede ser homogénea para datarla mediante los métodos convencionales y en cambio presentar heterogeneidad si la datación se efectúa mediante aceleradores.

TRATAMIENTO DE LOS RESULTADOS

Una vez la organización recibe los resultados obtenidos por los distintos laboratorios, debe proceder al tratamiento de los mismos. Un aspecto de interés lo constituye los criterios de evaluación que se van a aplicar en este tratamiento. En general, la representación gráfica de los resultados permite obtener un visión global de los mismos. Existen distintos tipos de representación gráfica de los resultados, cada tipo permite detectar distintas clases de errores y eliminar aquellos resultados que de manera evidente resulten aberrantes o anómalos.

Diagrama de Youden

Si en un mismo ejercicio de intercomparación se han determinado muestras ciegas o materiales con edades muy cercanas, deberán representarse los resultados obtenidos para éste tipo de muestras mediante el diagrama de Youden (1987) que consiste en representar la edad obtenida por un mismo laboratorio para las dos muestras idénticas una en cada uno de los ejes de coordenadas. En la figura 4 se representan los valores hallados en el ejercicio Cross Check en el que se analizaron dos muestras idénticas, que en la gráfica aparecen como muestras 1 y 2. Los resultados obtenidos muestran que la mayoría de valores están situados sobre la línea lo que demuestra una buena reproducibilidad intralaboratorio, sin embargo, algunos de ellos se alejan bastante de la bisectriz mostrando una mala precisión en el propio laboratorio. Si ninguno de los laboratorios cometiera errores en sus determinaciones, todos los puntos estarían situados en un área muy restringida; éste no es el caso del ejemplo pues algunos de los participantes se alejan bastante del valor medio, indicando la existencia de errores en las determinaciones efectuadas.

En el ejercicio CC las fechas obtenidas por los laboratorios que usan GPC parecen que forman un bloque más homogéneo. En general se confirma que los laboratorios presentan una elevada consistencia interna.

Representación de diferencias entre duplicados

Las diferencias entre duplicados también pueden ponerse de manifiesto mediante la representación en cada uno de los ejes de coordenadas de las diferencias encontradas entre dos muestras iguales. En la figura 5 se representa la diferencia de edades encontrada por los distintos laboratorios para dos pares de muestras, un par más joven y otro par más vieja. Si todos los laboratorios hubieran identificado la muestras como iguales todas la diferencias serían casi nulas por lo que todos los puntos se situarían en el primer círculo. La existencia de puntos situados lejos del origen de coordenadas indica una mala apreciación sobre la igualdad de las muestras por parte de los laboratorios. Si esta diferencia es mayor en un eje que el el otro, pone de manifiesto que la capacidad de identificación de muestras iguales no es la misma para las distintas edades determinadas.

En los estudios realizados con distintas técnicas, LS y GPC, los resultados obtenidos utilizando LS aparecen ligeramente más dispersos.

Representación de disparidades

La disparidad se define como la diferencia entre pares de duplicados, sin tener en cuenta el signo, dividido por por la raíz cuadrada de la suma de los errores. Si los valores de la disparidad son mayores que 2 indican que el laboratorio no es capaz de detectar la presencia de duplicados dentro de los límites de la precisión que dice tener.

En la figura 6 se representan valores obtenidos en la primera etapa del ejercicio CC en el que se observa que los laboratorios que utilizan LS tienen una mayor dispersión que los demás. El hecho que exista una buena correlación entre los valores medios de los duplicados pone de manifiesto la existencia de errores sistemáticos. En la segunda etapa de este mismo ejercicio también se observó una muy buena consistencia entre laboratorios y algún indicio de que los laboratorios que usan LS presentan mayor variabilidad.

Diagrama de distribución de frecuencias

La distribución de los resultados obtenidos por los distintos laboratorios

puede representarse también mediante un histograma de distribución de frecuencias. En la figura 7 se representa un diagrama de este tipo para una de las muestras del ejercicio de la IAEA.

Diagrama de Box and Whisker

En este tipo de representación (figura 8), la caja central contiene el 50% de los resultados válidos entre los cuartiles superior e inferior. Los extremos se extienden hasta los valores máximo y mínimo, la raya en la caja representa la mediana. Los valores dispares se representan como puntos separados.

CRITERIOS DE EVALUACION DE LOS RESULTADOS

Los criterios aplicados para la evaluación de los resultados en el ejercicio de la IAEA són los siguientes:

Criterio 3 sigma: El valor medio de los valores se obtiene después de eliminar los resultados dispares que se alejaban ± 3 SD (desviación estándar).

Criterio del 1% del error relativo dado: Para calcular la media, sólo se toman los resultados que dan un error relativo menor o igual al 1%.

Criterio de laboratorios preseleccionados: Se calcula el valor medio a partir de los datos suministrados por los laboratorios previamente considerados como excelentes.

Criterio de la precisión y la exactitud: Se intentó definir un grupo de laboratorios cuyos resultados para un determinado ejercicio de intercomparación eran homogéneos dentro de los errores dados. Los valores individuales de cada laboratorio se relacionaban con el valor central "robusto" obtenido después de eliminar los resultados aberrantes de forma evidente.

Aplicando el criterio de precisión y exactitud, la IAEA realizó un proceso de selección cuyos resultados se dan en la tabla 1 (ROZANSKI et al. 1992). Los valores seleccionados permiten calcular un valor de consenso tanto en lo que se refiere a la exactitud, valor medio, como a la precisión, desviación estándar.

DISCUSION DE LOS RESULTADOS

En una gran mayoría de ejercicios de intercomparación es el propio laboratorio el que evalúa sus resultados al recibir el informe final por parte de la organización responsable. Si un laboratorio obtiene fechas muy alejadas del valor

medio, ello indica la existencia de un error que debe ser buscado, encontrado y corregido. En algunos casos puede existir la duda por parte del laboratorio que da el valor discordante de que el fallo no se deba a un error propio sino a fallos de la organización responsable ya sea por defecto en la muestra suministrada o bien por haber realizado un tratamiento incorrecto de los resultados. El uso de la metodología de diseño, preparación de la muestra y tratamiento de los resultados expuesta en este capítulo y que corresponde a las normas recomendadas por la mayor parte de organismos internacionales que trabajan en el tema, da garantías suficientes sobre la bondad tanto de los materiales suministrados como del tratamiento al que se han sometido los resultados.

Algunas organizaciones tienen como norma el realizar una reunión final de todos los laboratorios que han participado en el ejercicio de intercomparación para discutir abiertamente los resultados obtenidos, sobre las posibles causas de los fallos detectados y para intercambiar experiencias sobre el trabajo en el laboratorio. Este tipo de reunión en la que se pierde el anonimato del laboratorio, lo cual es necesario para poder discutir sin reservas sobre el ejercicio, es a veces vista con recelo por parte de algunos laboratorios, especialmente aquellos que desconocen como ésta se desarrolla; sin embargo, los que han participado en alguna de ellas reconocen que en general constituyen un medio eficaz para avanzar más rápidamente en el proceso de mejora de la calidad del trabajo de los laboratorios participantes.

CONCLUSIONES

A partir de lo anteriormente expuesto puede llegarse a dos tipos de conclusiones: las que hacen referencia a los resultados obtenidos en los ejercicios de intercomparación organizados por Glasgow y la IAEA y las que hacen referencia a los propios ejercicios de intercomparación.

En lo que se refiere al primer tipo, el ejercicio organizado por Glasgow Cross Check, las conclusiones son las siguientes:

— En el ejercicio CC se aprecia que en general existe un gran número de laboratorios trabajando en cualquier de las tres técnicas que obtienen resultados fiables. Existe, sin embargo, un pequeño grupo que deben mejorar sus condiciones de trabajo para no producir una erosión en la confianza que deben tener los usuarios de los laboratorios de datación.

— Se demostró la necesidad de disponer de un programa de garantía de calidad y de participar en ejercicios de intercomparación.

— En un nivel de mayor concreción, se observó que los laboratorios participantes tienen consistencia interna, pero existe una importante variación entre

laboratorios. Parece que la consistencia externa es mayor para laboratorios que usan contadores proporcionales o aceleradores. A los laboratorios que presentaban errores importantes se les ofreció ayuda para mejorar sus procedimientos.

— La mayor fuente de variabilidad la constituye el proceso de contaje especialmente para los laboratorios que utilizan el centelleo líquido y que los laboratorios que emplean aceleradores tienen algunos problemas con muestras modernas.

En el ejercicio organizado por la IAEA, los materiales datados estarán disponibles para su distribución y constituirán materiales de referencia. Se espera que en un periodo de tres años se tendrá una visión global sobre la idoneidad de los materiales elegidos para preparar materiales de referencia. Se concluyó la necesidad de organizar nuevos ejercicios de este tipo.

En lo que se refiere a las conclusiones de carácter general, se constata que la participación en ejercicios de intercomparación es un medio muy útil para mejorar la calidad de los resultados analíticos, reducir los errores en el laboratorio, motivar al personal del laboratorio para trabajar mejor y demostrar ante quien concierna la calidad de sus resultados.

La experiencia de distintos responsables de organizar ejercicios de intercomparación muestra que a medida que un laboratorio participa en este tipo de evaluaciones externas aumenta la calidad de sus resultados tanto en lo que se refiere a la exactitud como a la reproducibilidad que se consigue.

BIBLIOGRAFIA

- AITCHISON, T. C.; SCOTT, E. M.; HARKNESS, D. D.; BAXTER, M. S.; y COOK, G. T. 1990: Report on Stage 3 of the International Collaborative program: *Radiocarbon* 32(3), p. 271-278.
- COOK, G. T.; HARKNESS, D. D.; MILLER, B. F.; SCOTT, E. M.; BAXTER, M. S. y AITCHISON, T. C. 1990: International Collaborative Study: Structuring and Sample Preparation. *Radiocarbon* 32(3), p. 267-270.
- GONZALEZ, C.; SANCHEZ, P. 1991: University of Granada Radiocarbon Dates V. *Radiocarbon* 33(3), p. 367-373.
- LONG, A. 1990a: Summary of The International Workshop on Intercomparison of ¹⁴C Laboratories. *Radiocarbon* 32(1), p. iii.
- LONG, A. 1990b: A Quality Assurance Protocol for Radiocarbon Laboratories. *Radiocarbon* 33(3), p. 367-373.
- MESTRES, J. S., GARCIA, J. F. y RAURET G. 1991: The Radiocarbon Laboratory at the University of Barcelona. *Radiocarbon* 33(1), p. 23-34.
- PAZDUR, M. F.; AWSIUK, R.; GOSLAR, T. y PAZDUR, A. 1990: Systematic Biases and Results of The International Collaborative Study and Their Probable Causes: *Radiocarbon* 32(3), p. 289-294.
- ROZANSKI, K.; STICHLER, W.; GONFIANTINI, R.; SCOTT, E. M.; BEUKENS, R. P.;

Tabla 1
Valores de consenso del ejercicio de intercomparación organizado por la IAEA

Material	No. of analyses ¹⁾	CARBON-14		Number of analyses ¹⁾	CARBON-13	
		Consensus value ²⁾ [pMC]	Estimated standard error ³⁾ [pMC]		Consensus value ⁴⁾ [%] PDB	Standard deviation ⁴⁾ [%] PDB
C-1	36 (73)	0.00(0.02) ⁵⁾	0.02	59 (63)	2.42	0.33
C-2	64 (92)	41.14	0.03	73 (79)	-8.25	0.31
C-3	49 (84)	129.41	0.06	70 (75)	-24.91	0.49
C-4	36 (79)	0.20-0.44 ⁶⁾	-	67 (68)	-23.96	0.62
C-5	49 (75)	23.05	0.02	66 (68)	-25.49	0.72
C-6	22 (39)	150.61	0.11	35 (36)	-10.80	0.47

1) Number of accepted analyses is reported. In brackets the total number of analyses submitted to IAEA is indicated.

2) Calculated as weighted average: $x_w = (\sum x_i / w_i^2) / (\sum 1.0 / w_i^2)$

3) Estimated standard error, calculated according to the following formula:

$$ese(x_w) = \sigma_w / \sqrt{\left(\sum 1.0 / w_i^2 \right)} \quad \text{where } \sigma_w^2 = \frac{\sum ((x_i - x_w)^2 / w_i^2)}{n}$$

4) Calculated according to the 3-sigma criterion (see text for details)

5) This material is considered as a background sample, having no measurable ¹⁴C activity. In brackets calculated weighted mean is indicated.

6) 95% confidence interval for the median.

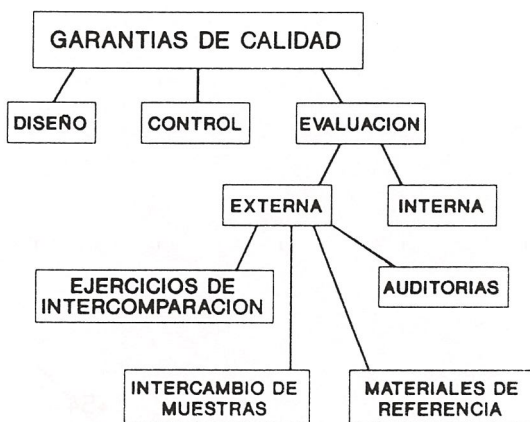


Fig. 1

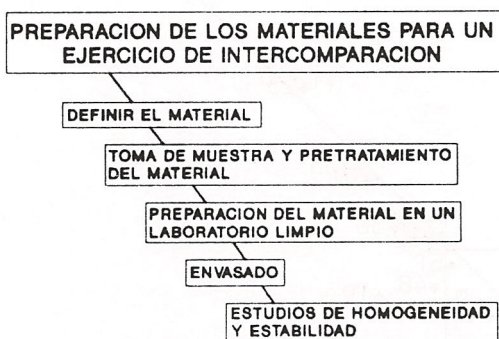


Fig. 2

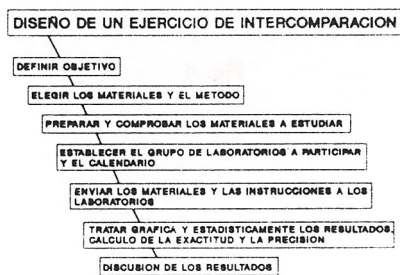


Fig. 3

Est. II

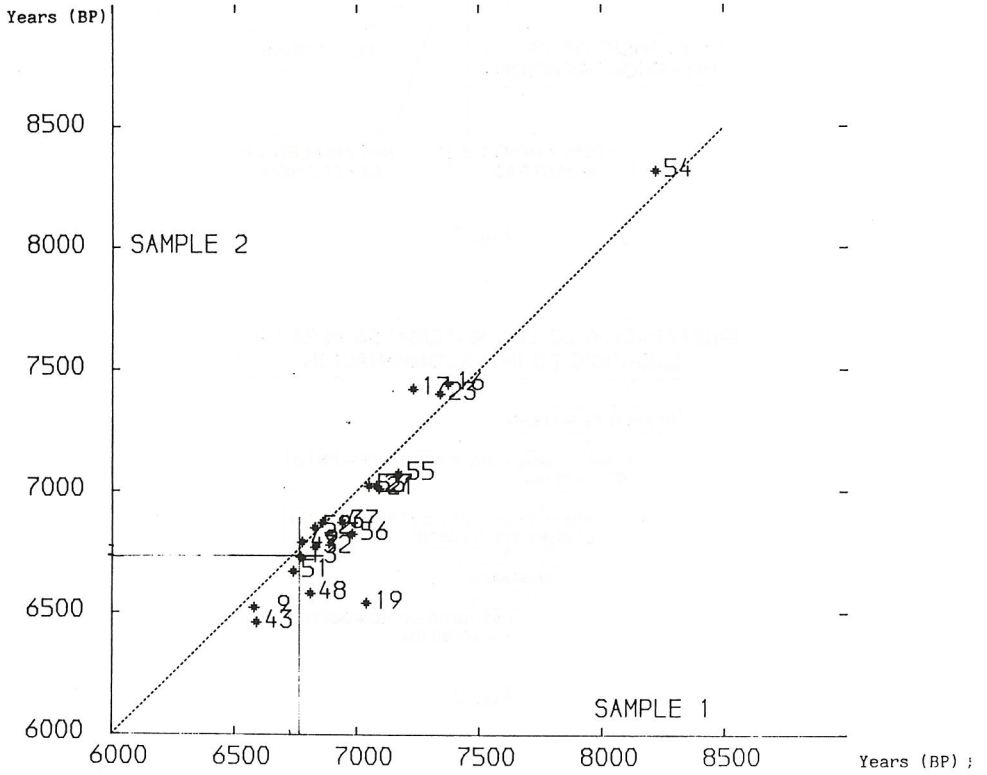


Fig. 4

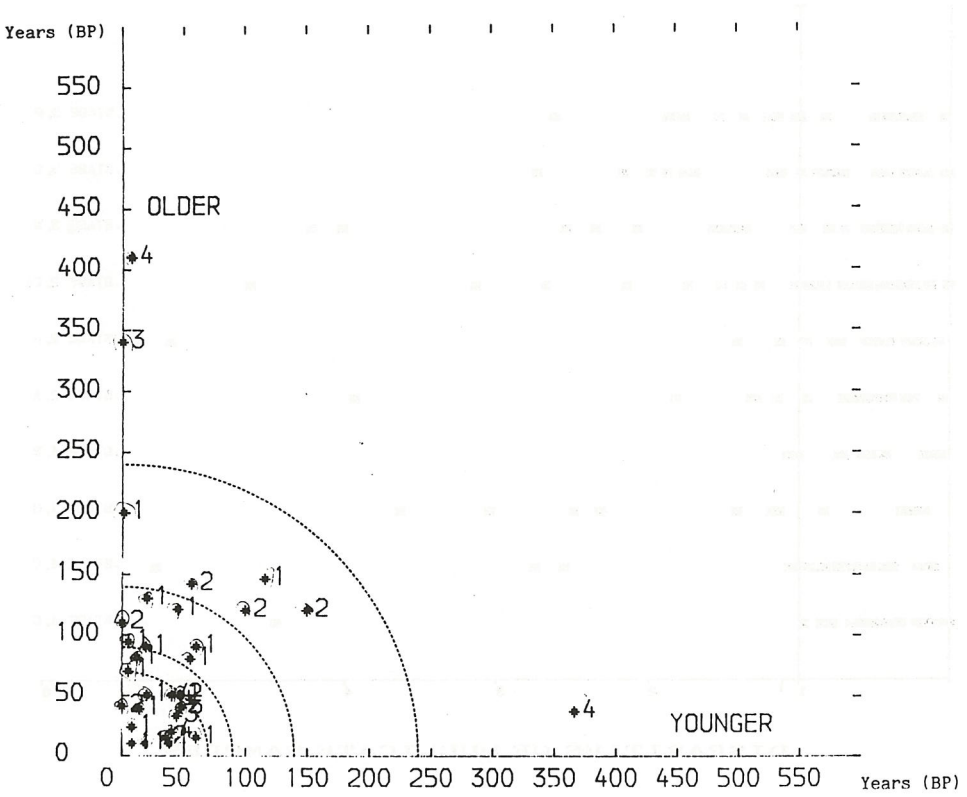


Fig. 5

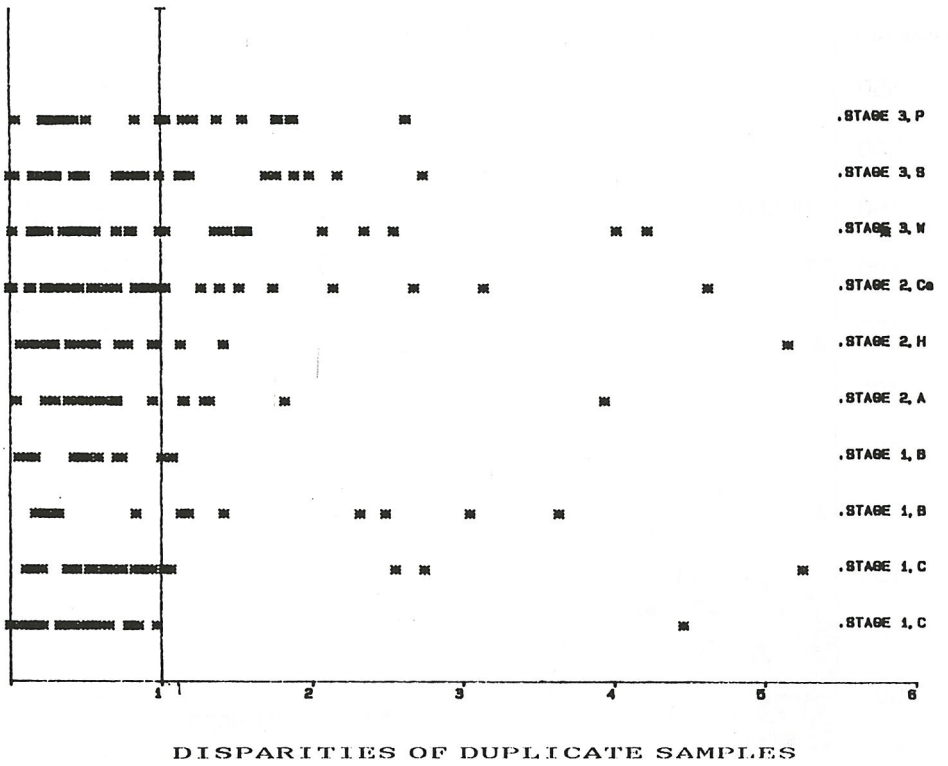


Fig. 6

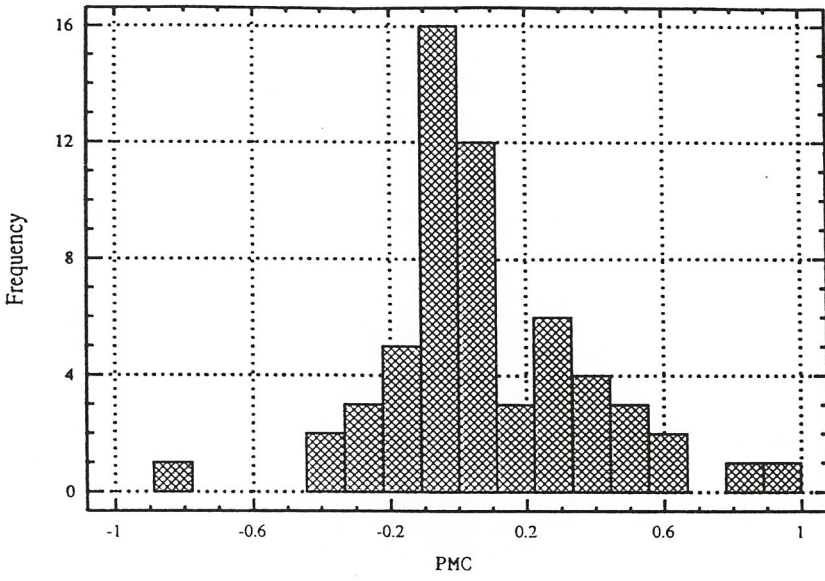


Fig. 7

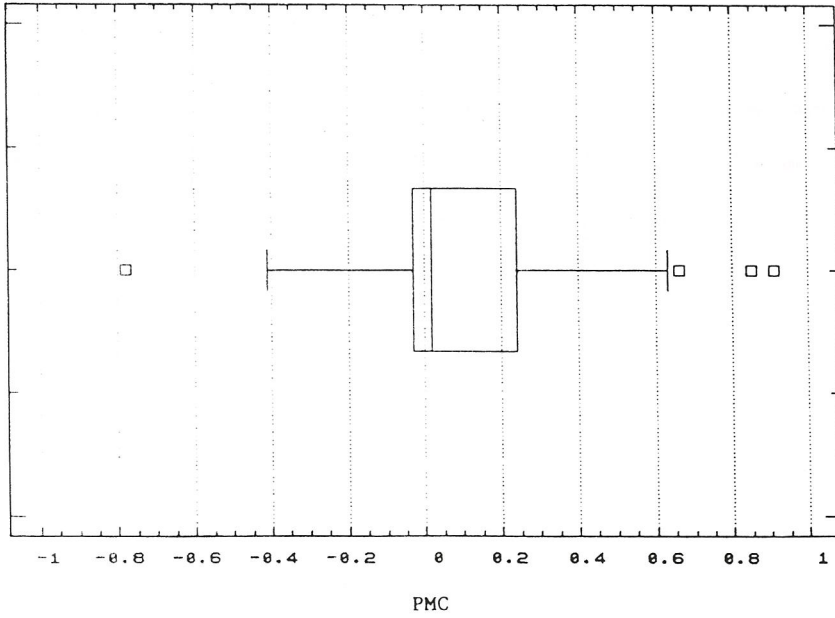


Fig. 8