

Plutonium im Getreide und Boden

O. Frindik

Bundesforschungsanstalt für Ernährung,
Zentrallabor für Isotopentechnik, Engesserstrasse 20
D-75 Karlsruhe 1 (Germany)

(Eingegangen 1. November 1976; Angenommen 15. November 1976; lwt 441)

Getreideproben aus der Nähe des Kernforschungszentrums Karlsruhe und aus weiter hiervon entfernten Gebieten hatten in den Jahren 1972 bis 1975 mittlere Pu-239- und Pu-240-Gehalte von $0,011 \pm 0,002$ pCi/kg. Die Gesamt-Alpha-Aktivität, die vornehmlich aus den natürlichen Alphastrahlern (Th- und U-Reihen) besteht, betrug $8,6 \pm 1,6$ pCi/kg. Von den Ernteorten des Getreides wurden Bodenproben entnommen, deren mittlerer Pu-239- und Pu-240-Gehalt $7,7 \pm 1,7$ pCi/kg und deren mittlere Gesamt-Alpha-Aktivität $(16 \pm 5,0) \cdot 10^3$ pCi/kg betrug. Der Boden enthielt demnach eine Plutonium-Konzentration, die gegenüber dem Getreide im Mittel um den Faktor 680 ± 180 höher lag. Eine erhöhte Plutoniumkontamination war in der Nähe des Kernforschungszentrums nicht festzustellen.

Plutonium in grain and soil

Grain samples from the vicinity of the Karlsruhe Nuclear Center and from more distant areas had mean Pu-239- and Pu-240-contents of 0.011 ± 0.002 pCi/kg in the years 1972 to 1975. Total alpha-activity, consisting mostly of the natural alpha emitters ooo of the Th- and U-series, was 8.6 ± 1.6 pCi/kg. In soil samples taken from the fields where the grain had been grown the mean Pu-239- and Pu-240-content was 7.7 ± 1.7 pCi/kg and the mean total alpha activity $16 \pm 5.0 \cdot 10^3$ pCi/kg. The plutonium concentration in soil was thus higher by a factor of 680 ± 180 as compared to that in the grain. No increased plutonium contamination was observed in the vicinity of the nuclear center.

Einleitung und Problemstellung

Plutonium ist ein Bestandteil unserer Umwelt und wegen seiner Eigenschaften als Alpha-Strahler in Lebensmitteln unerwünscht. Seine Herkunft ist je nach Isotop unterschiedlich. So stammen die Isotope Pu-239 und -240 aus dem Fallout von oberirdischen Kernwaffentests, das Isotop Pu-238 zu $\frac{3}{4}$ aus den gleichen Tests und zu $\frac{1}{4}$ von einem im April 1964 in der oberen Atmosphäre verglühten Satelliten. Die Batterie dieses Satelliten SNAP-9 A enthielt eine Radioaktivitätsmenge von etwa 17 000 Curie, die etwa einem Gewicht von 1 kg Pu-238 entspricht.

Das aus der Atmosphäre ausgeschiedene Plutonium hat sich im Laufe der Jahre auf dem Festland in der obersten Erdbodenschicht angesammelt. Auf die süddeutschen Breitengrade bezogen betrug 1970/71 die Pu-239/240-Gesamtaktivität $2800 \mu\text{Ci}/\text{km}^2$, die Pu-238-Aktivität $67 \mu\text{Ci}/\text{km}^2$ aus Kernexplosionen und $21 \mu\text{Ci}/\text{km}^2$ aus der Satellitenbatterie (1, 2). Bedingt durch seine schwerlösliche Form und seine Affinität zum Bodenmaterial (3) war in einem sandigen Lehmboden über 90% des Plutoniums in den ersten 10 cm vorzufinden (4). Durch diese Eigenschaften des Plutoniums wird der Erdboden zu einem Speicher, von dem Plutonium durch Resuspension (Wind und Wetter) in die bodennahe Luftschicht gelangt. Oberflächenkontaminationen (5, 6) insbesondere von großflächigen Gemüsepflanzen, aber auch von anderen landwirtschaftlichen Produkten sind die Folge. Weil Plutonium nur sehr schwer in Lösung geht, wird es im Boden äusserst langsam weitertransportiert und steht auch den Pflanzenwurzeln nicht zur Verfügung. Selbst leichtlösliche Plutoniumverbindungen werden von Festlandpflanzen nur in Spuren aufgenommen. Der Konzentrationsfaktor von Boden zu Pflanze schwankt je

nach Boden- oder Pflanzenart und Versuchsbedingungen von 10^{-4} bis 10^{-6} . In einer kürzlich erschienenen Veröffentlichung (7) beträgt der Konzentrationsfaktor von Boden zu Weizen 4×10^{-8} bis 4×10^{-6} . Bei der Gerste wird der Konzentrationsfaktor von Boden zu Pflanzen grössenordnungsmässig mit 10^{-5} und von Pflanze zu Korn mit weiteren 1 bis 5×10^{-2} angegeben. Hieraus kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass die innere Pflanzenkontamination mit Plutonium äusserst gering und somit bedeutungslos ist.

Ausser Pu-238, -239 und -240, die alle längerlebige Alphastrahler sind, ist nur noch das Isotop Pu-241 als Betastrahler zu erwähnen, das ebenfalls im Fallout vorkommt. Alle anderen Plutoniumisotope sind entweder relativ kurzlebig, oder sie wurden bisher nur in verschwindend kleinen Mengen (8) in die Umwelt freigesetzt. Pu-241 ist analytisch nur schwer zu bestimmen, und es zerfällt mit einer Halbwertszeit von 13,2 Jahren in Americium-241. Nach einem Nukleartest wurde in der Atmosphäre das Aktivitätsverhältnis Pu-241/Pu-239 zu etwa 67 ermittelt (9). Im Meereswasser betrug das Verhältnis Pu-241/(Pu-239 + Pu-240) 34, bei Algen etwa 28 und bei Sedimentproben 5 bis 40 (10).

Um den Umfang der derzeitigen Umweltkontamination durch künstlich erzeugte Alphastrahler zu bewerten, kann ihre Menge mit den auf der Erdoberfläche natürlich vorkommenden Alphastrahlern verglichen werden. Berechnungen haben ergeben, dass der kontinentale Boden der USA 16 kCi Plutonium, 4 kCi ebenfalls alphastrahlendes Americium-241 und 1600 kCi der natürlichen Actiniden (Uran, Thorium usw.) enthält (11). Die künstliche Alphaaktivität beträgt also nur etwa 1% der natürlichen Radioaktivität. Diese Zahlenangaben können auch auf die europäischen Verhältnisse übertragen werden.

Obwohl heute mit Kontaminationen durch den Fallout von Kernexplosionen kaum mehr gerechnet werden muss, hat das Plutonium erneut Bedeutung erlangt, weil beim Betrieb von Kernkraftwerken die Freisetzung von Alphastrahlern und auch von Plutonium nicht ausgeschlossen werden kann. Wenn die Wahrscheinlichkeit einer Abgabe an die Umwelt auch nur gering ist, so wird doch die Umgebungsüberwachung allgemein für erforderlich gehalten. Wir haben in den letzten Jahren die Plutoniumgehalte in ausgewählten Lebensmitteln und biologischen Proben untersucht (12). Diese Untersuchungen wurden auf weitere pflanzliche landwirtschaftliche Produkte, insbesondere Getreide, ausgedehnt. In einer Reihe von Arbeiten zur Plutonium-Ökologie, besonders von BENNETT (13), war darauf hingewiesen worden, dass in Getreide etwas höhere Plutoniumwerte zu finden sind als in sonstigen Agrarprodukten. Es war deshalb zu ermitteln, ob dies auch für die Verhältnisse in der Bundesrepublik zutrifft und ob im Nahbereich von Kernenergieanlagen die gleichen Plutoniumwerte anzutreffen sind. Bodenproben wurden in die Untersuchungen einbezogen, und zum Vergleich wurde die Gesamtalphaaktivität von Getreide und Böden bestimmt.

Probenahme und Methode

Proben wurden seit 1972 zur Stichprobenartigen Umweltüberwachung in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe (KFK) von Getreidefeldern entnommen. Anfangs wurde nur Weizen, später auch Roggen und Gerste untersucht. Die Proben wurden in einem Sieb aus rostfreiem Stahl einige Sekunden unter fließendem Leitungswasser gewaschen, mit destilliertem Wasser gespült, an der Luft getrocknet und schliesslich in zunderfreien Molybdänstahl-Schalen bei 550–600 °C verascht. Die Getreideschicht in den Schalen betrug 10 bis höchstens 15 mm.

Die Hauptveraschung dauerte etwa 20 Minuten. Um möglichst kohlenstofffreie Asche zu erhalten, wurde jedoch die Gesamtverweildauer der Proben im Ofen bei etwa fünf Stunden gehalten. Es gibt keinen Hinweis darauf, dass unter diesen Versuchsbedingungen grössere Plutoniumverluste entstehen.

Etwa 0,5 kg Bodenproben wurden jeweils von einer Stelle mit einem Polyäthylenspaten bis zu einer Tiefe von 10 cm entnommen, in Stahlschalen mit einer Schichtdicke von 5–10 mm ausgebreitet und bei 600 °C «verascht» bzw. von organischen Bestandteilen befreit. Nach der Veraschung wurde das Probematerial durch ein 0,315 mm-Sieb gesiebt und nur die feine Fraktion für die weiteren Untersuchungen verwendet.

Die Veraschungsschalen wurden für alle Probenarten mit einer Lage möglichst aschefreiem Transparentpapier ausgelegt, um ein Festbacken von Probenmaterial zu verhindern.

Die gewonnenen Aschen wurden einem chemischen Trennungsgang zur Isolierung des Plutoniums unterworfen, der mehrere Arbeitsgänge umfasste: Aufschluss der Asche, Beseitigung des Kohlenstoffs und des Siliziums, Fluoridfällung und Thenoyltrifluoracetone-Extraktion. Der Rückextrakt wurde an einer kleinen Dowex 1×4-Anionenaustauschersäule gereinigt und Plutonium auf einer Edeltahlscheibe elektrolytisch abgeschieden (14).

Die auf Scheiben abgeschiedenen Radionuklide wurden im Vakuum alphaspektrometriert. Um die Auswertung der Spektren zu erleichtern, wurde den Aschen Pu-236 als innerer Standard zugegeben. Weitere Einzelheiten der Methode sind einer früheren Veröffentlichung (12) zu entnehmen.

Untersuchungsergebnisse

In den Tabellen sind alle Messwerte mit den dazugehörigen 1σ-Gesamtmessfehlern dargestellt; die letzteren bestehen

nicht nur aus dem Zählfehler nach Poisson, sondern auch aus allen zufälligen Fehlern der Analyse. Die Berechnung des Gesamtmessfehlers, d.h. die Integrierung aller analytischer Einzelfehler wurde mit Hilfe der Fehlerfortpflanzung durchgeführt.

Die Nuklide Pu-239 und Pu-240 sind alphaspektrometrisch mit dem verwendeten Halbleiterdetektor (Oberflächensperrschichtzähler Ortec CA-026-450-100) wegen ihrer kleinen Unterschiede in der Alphateilchenenergie nicht zu unterscheiden und werden deshalb in dieser Arbeit nur summiert dargestellt.

Das Nuklid Pu-238 wird im süddeutschen Raum nach HARDY (1) etwa $\frac{1}{30}$ der Summenaktivität von Pu-239 und Pu-240 haben. Da wir mit etwa 300 g Getreide/Probe gerade noch (mit 2σ entspr. 95%ige statistische Sicherheit) die beiden Nuklide Pu-239 und Pu-240 erfassen können, müssten wir $30 \times 0,3 = 9$ kg Getreide pro Probe aufarbeiten, um Pu-238 mit der gleichen Sicherheit bestimmen zu können. Dieser Aufwand stünde in keinem ausgewogenen Verhältnis zu der gewonnenen Erkenntnis. Da es bisher keinen Hinweis darauf gibt, dass sich das zuvor genannte Verhältnis der Plutoniumisotope ändert, begnügten wir uns vorerst mit der alleinigen Bestimmung der Summenaktivität von Pu-239 und Pu-240. In der Getreideasche wurde vor Beginn der Aufarbeitung die Gesamt-Alpha-Aktivität bestimmt (15). Diese verhältnismässig einfache Messung hat sich immer als gute Orientierungshilfe erwiesen, da gewisse Parallelitäten zwischen den Gesamt-Alpha- und den Pu-239-Aktivitäten erkennbar sind (Tab. 1). Dieser Zusammenhang ist auch bei den Böden (Tab. 3) offensichtlich.

Beim Vergleich der Mittelwerte in Tab. 1 ist festzustellen, dass, auf das Frischgewicht von 1 kg bezogen, die Summe der Pu-239- und Pu-240-Aktivität kaum $\frac{1}{1000}$ der Gesamt-Alpha-Aktivität beträgt (10^3 fCi = 10^{-12} Ci).

Alle Getreideuntersuchungen wurden im Hinblick auf den Ernteort des Getreides in zwei Gruppen aufgeteilt:

1. Messwerte aus der Umgebung (1–5 km Entfernung) des Kernforschungszentrums Karlsruhe (Tab. 1) und
2. Messwerte aus Gebieten, die 20–40 km vom KFK entfernt sind (Tab. 2).

Der Mittelwert von Pu-239 und Pu-240 für Getreide aus Rastatt und Baden-Baden (Tab. 2) war geringfügig höher als der für Getreide aus der Umgebung des Kernforschungszentrums (Tab. 1). Bei der Darstellung der Pu-239 und -240-Gehalte in Getreide wurden diese sowohl auf ein Aschegewicht von 1 g als auch auf ein Frischgewicht von 1 kg bezogen. Vergleicht man die Pu-239- und Pu-240-Aktivität des veraschten Bodens von 1 kg mit der Aktivität des Getreides von 1 kg Frischgewicht (Tab. 1), so erhält man den Abreicherungsfaktor von 770 im Vergleich mit dem in der Literatur (16) angegebenen Wert 1000. Dieser Vergleich von Asche einerseits und Frischgewicht andererseits ist jedoch etwas irreführend. Sinnvoller erscheint uns der Vergleich von 7,7 fCi/g veraschtem Bodenmaterial mit 0,7 fCi/g Getreideasche (Tab. 3 bzw. 1). Auf dieser Basis errechnet sich somit ein Abreicherungsfaktor von 11.

Die mit Hilfe der Alpha-Spektroskopie gemessenen Werte für Pu-238 liegen in den Getreiden (Tab. 1 und 2) meistens unter der jeweiligen 2σ-Nachweisgrenze und sind deshalb nur mit Vorbehalt zu interpretieren. Die Werte sind statistisch, also quantitativ, nicht gesichert, die Anwesenheit von Pu-238 ist jedoch als qualitativ bestätigt anzusehen. Grundsätzlich ganz anders ist die Situation bei den Böden (Tab. 3). Da hier die Plutoniummenge etwa um den Faktor 11 höher liegt als in der Getreideasche, ist die Aussage über Pu-238 sicherer.

Die Mittelwerte der Gesamt-Alpha-Aktivität in den Böden liegen im Vergleich zu den entsprechenden Mittelwerten der Plutoniumaktivität nach Tab. 3 um den Faktor 2100 höher.

Tab. 1 Gesamtalpha- und Plutonium-Aktivitäten von Getreide aus der unmittelbaren Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Mittelwerte pro Probe aus mindestens zwei Pu-Bestimmungen enthalten den 1 σ Gesamtmessfehler (GMF). Die Nettoaktivität ist ≤ 0 , wenn nur der GMF angegeben ist. Der zweifache GMF wird als Nachweisgrenze betrachtet

Proben-Nr.	Getreideart	Probenahmeort mit Postleitzahl	Ernte-jahr	Gesamt-Alpha-Aktivität in pCi/kg Frischgewicht	Plutonium-Aktivitäten in		
					fCi/g Asche $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	fCi/kg Frischgewicht $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	^{238}Pu
1.	Weizen	7514 Eggenstein	1972	15 \pm 4,4	0,9 \pm 0,4	12 \pm 5,7	
2.	Weizen	7514 Eggenstein	1973	0,9 \pm 11	0,4 \pm 0,4	8,4 \pm 7,4	11 \pm 19
3.	Weizen	7514 Eggenstein	1974	5,4 \pm 3,5	(GMF: \pm 0,5)	(GMF: \pm 8,1)	1,6 \pm 27
4.	Weizen (Winter-)	7514 Eggenstein	1975	5,0 \pm 2,9	0,8 \pm 0,5	11 \pm 8,0	5,2 \pm 20
5.	Weizen (Sommer-)	7514 Eggenstein	1975	4,6 \pm 2,2	v 0,6 \pm 0,5	7,9 \pm 7,1	14 \pm 18
6.	Roggen	7514 Eggenstein	1973	16 \pm 5,2	0,9 \pm 0,7	14 \pm 10	17 \pm 26
7.	Roggen	7514 Eggenstein	1974	5,4 \pm 5,4	0,3 \pm 0,6	4,2 \pm 9,6	7,0 \pm 25
8.	Roggen	7514 Leooldshafen	1975	7,1 \pm 3,0	0,8 \pm 0,3	11 \pm 4,7	8,5 \pm 10
9.	Gerste	7514 Leopoldshafen	1975	15 \pm 6,0	1,4 \pm 0,6	28 \pm 12	(GMF: \pm 18)
Gewichtete Mittelwerte mit mittleren Fehlern				8,7 \pm 1,6	0,7 \pm 0,1	10 \pm 2,2	6,8 \pm 1,9
Mittlerer Messfehler (1 σ) pro Probe (aus mindestens 2 Analysen)					\pm 85%	\pm 85%	\pm 530%
Mittlere Nachweisgrenze					1,0	16	39

Tab. 2 Gesamtalpha- und Plutonium-Aktivitäten von Weizen und Roggen aus der Umgebung von Rastatt und Baden-Baden (20 bis 40 km vom Kernforschungszentrum Karlsruhe). Mittelwerte pro Probe aus zwei Pu-Bestimmungen enthalten den 1 σ -Gesamtmessfehler (GMF). Die Aktivität ist ≤ 0 , wenn nur der GMF angegeben ist. Der zweifache GMF wird als Nachweisgrenze betrachtet

Proben-Nr.	Getreideart	Probenahmeort mit Postleitzahl	Ernte-jahr	Gesamt-Alpha-Aktivität in pCi/kg Frischgewicht	Plutonium-Aktivitäten in		
					fCi/g Asche $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	fCi/kg Frischgewicht $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	^{238}Pu
1.	Weizen	7570 Baden-Oos	1975	10 \pm 3,9	0,7 \pm 0,5	9,8 \pm 7,4	9,7 \pm 15
2.	Weizen	7551 Au (Rhein)/ Rastatt	1974	18 \pm 5,9	1,1 \pm 0,6	20 \pm 10	(GMF: \pm 19)
3.	Roggen	7551 Au (Rhein)/ Rastatt	1974	2,2 \pm 2,8	1,2 \pm 0,5	16 \pm 6,8	0,8 \pm 14
Gewichtete Mittelwerte mit mittleren Fehlern				8,2 \pm 4,4	1,0 \pm 0,2	15 \pm 2,8	3,7 \pm 3,1
Mittlerer Messfehler (1 σ) pro Probe (aus mindestens 2 Analysen)					\pm 55%	\pm 55%	\pm 950%
Mittlere Nachweisgrenze					1,1	16	32

Die auf jeweils 1 g bezogene Gesamt-Alpha-Aktivität des Bodenmaterials ist im Mittel (ohne Menzenschwand) etwa 26fach höher als der Mittelwert der Getreideaschen. Die Pu-239- und Pu-240-Aktivität der Böden von 7,7 fCi/g entspricht etwa den Angaben von 9 fCi/g für Böden in den USA (13). Unter der Annahme einer Bodendichte von 1,5 g/cm³ und einer gleichmässigen Verteilung von Plutonium bis zu einer Tiefe von 20 cm, womit 99% (4) der Gesamtaktivität erfasst werden, erhält man eine Flächenkonzentration von 2300 $\mu\text{Ci}/\text{km}^2$. Diese Konzentration entspricht den von HARDY (1) genannten Werten für unsere Breitengrade.

In Mahlprodukten aus Weizen wurde weniger Plutonium gefunden (Tab. 4), als nach dem Gehalt der entsprechenden Weizenkörner zu erwarten war. Um diese Diskrepanz zu klären, wären Untersuchungen an einer grösseren Zahl von Proben und an allen Mahlfractionen erforderlich. Nach Auskunft der Müllerei (Eggenstein) wurde das Mehl 1975 zu 20% und die Kleie zu 16% aus dem gleichen Weizen gewonnen, dessen Werte in Tab. 1 enthalten sind.

Eine Zunahme der Radioaktivität von Getreideproben aus der Nähe des Kernforschungszentrums Karlsruhe ist für den Zeitraum 1972 bis 1975 nach den hier vorgelegten Ergebnissen

Tab. 3 Gesamtalpha- und Plutonium-Aktivitäten von diversen Böden. «Verascht» bei 600 °C und gesiebt (0,315 mm). Einzelmesswerte mit 1 σ -Gesamtmessfehler, 2 σ -Gesamtmessfehler wird als Nachweisgrenze betrachtet

Probenahmeort mit Postleitzahl	Jahr	Bodenart	Gesamt-Alpha-Aktivität in pCi/g	Plutoniumaktivitäten in fCi/g	
				$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	^{238}Pu
7551 Au (Rhein)/Rastatt	1975	Acker	12 ± 3,1	8,4 ± 1,6	1,2 ± 1,7
7514 Leopoldshafen	1975	Garten	12 ± 3,1	6,6 ± 1,1	0,1 ± 1,8
7514 Leopoldshafen	1974	Acker	11 ± 2,9	4,6 ± 0,9	0,3 ± 1,8
7570 Baden-Oos	1974	Garten	18 ± 4,8	4,9 ± 0,9	0,6 ± 1,5
7521 Karlsdorf	1972	Wald	21 ± 5,8	11 ± 1,3	0,7 ± 1,6
7821 Menzenschwand	1972	Wald	67 ± 17	17 ± 2,1	0,4 ± 1,6
Gewichtete Mittelwerte mit mittleren Fehlern			16 ± 5,0	7,7 ± 1,7	0,6 ± 0,2
Mittlere Messfehler der Einzelwerte (entspr. 1 σ)				± 16%	± 570%
Mittlere Nachweisgrenze				2,6	3,4

Tab. 4 Gesamtalpha- und Plutonium-Alpha-Aktivitäten von Weizenmahlprodukten. Mittelwerte aus 3 (Mehl), bzw. 4 (Kleie) Pu-Bestimmungen enthalten den 1 σ -Gesamtmessfehler (GMF). Die Nettoaktivität ist ≤ 0 , wenn nur der GMF angegeben ist. Der zweifache GMF wird als Nachweisgrenze betrachtet

Mahlprodukt	Gesamt-Alpha-Aktivität in pCi/kg Frischgewicht	Plutonium-Aktivitäten in		
		fCi/g Asche $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	fCi/kg Frischgewicht $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$	^{238}Pu
Weizenmehl Typ 405	2,9 ± 0,9	0,4 ± 0,3	1,4 ± 1,3	0,2 ± 3,9
Weizenkleie	45 ± 14	0,04 ± 0,2	2,4 ± 13	(GMF: 43)

nicht erkennbar. Unterschiede im Alphanradioaktivitätsgehalt von Weizen und Böden in Abhängigkeit vom Probenahmeort waren ebenfalls nicht festzustellen. Eine Ausnahme bildet lediglich der Boden von Menzenschwand, der bekanntlich uranhaltig ist. Sieht man die Getreideproben (Tab. 1 und 2) als repräsentativ an, so nimmt die Bevölkerung höchstens 11 fCi Pu-239 und -240 pro kg Vollkorn zu sich. Nach den Nomogrammen von ADRIANO *et al.* (16) würde diese Plutoniumaktivität bei einem kontinuierlichen Verbrauch von z.B. 100 kg Getreide (in Form von Vollkorn) in einem Zeitraum von 70 Jahren eine Gesamtknochenstrahlendosis von 1,0 mrem verursachen.

Literaturverzeichnis

- HARDY, E. P., KREY, P. W., and VOLCHOK, H. L., *Nature*, 241, 444 (1973)
- HARDY, E. P. Jr., WASH-1359, 115 (1974)
- ROMNEY, E. M., MORK, H. M., and LARSON, K. H., *Health Physics*, 19, 487 (1970)
- HARDY, E., HASL-286, I-2 (1974)
- FOWLER, B., HENDERSON, R. W., and MILLIGAN, M. F., *Proceedings of Environmental Plutonium Symposium, LA-4756, UC-41 (1971), CONF-710 817*
- HELPS, P. L., and ANSPAUGH, L. R., NVO-142, UC-2, 221 (1974)
- SCHULZ, R. K., TOMPKINS, G. A., and BABCOCK, K. L., UCB-34 P 211-2 (1975)
- BAUMGÄRTNER, F., und THEIS, W., *Radiochimica Acta*, 19, 188 (1973)
- THOMAS, C. W., and PERKINS, R. W., BNWL-1950, Pt. 3, 17 (1975)
- LIVINGSTON, H. D., SCHNEIDER, D. L., and BOWEN, V. T., *Earth and Planetary Science Letters*, 25, 361 (1975)
- WRENN, E., WASH-1359, 89 (1974)
- FRINDIK, O., und DIEHL, J. F., *Deutsche Lebensmittel-Rundschau*, 71, (3) 100 (1975)
- BENNETT, B. G., HASL-286, I-36 (1974)
- FRINDIK, O., *Z. Anal. Chem.*, 276, 67 (1975)
- FRINDIK, O., *Deutsche Lebensmittel-Rundschau*, 69, (10) 364 (1973)
- ADRIANO, D. C., McLEOD, K. W., and PINDER, J. E., DP-MS-75-40, Conf.-750847-1