

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

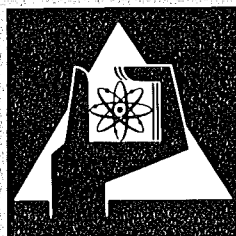
Juni 1974

KFK 1974

Institut für Radiochemie
Projekt Actiniden

Literaturstudie über die Verbreitungsmechanismen
von freigesetztem Plutonium

M. Wilhelmi



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK-1974

Institut für Radiochemie

Projekt Actiniden

Literaturstudie über die Verbreitungsmechanismen
von freigesetztem Plutonium

von

Marlies Wilhelmi

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



Vorwort

Pu-238-Batterien in Herzschrittmachern und in den in der Entwicklung befindlichen Blutpumpen machen es erforderlich das Verhalten freigesetzten Plutoniums und dessen Ausbreitung vorherzusagen.

In diesem Bericht werden bekannt gewordene Plutoniumfreisetzungen ausgewertet und die wichtigsten Ergebnisse, soweit die Folgen genauer untersucht wurden, geschildert.

Der Bericht hat zum Ziel, Daten über das Verhalten des Plutoniums auf und im Erdboden sowie im Wasser zusammenzustellen. Die Kontamination der Atmosphäre wird nur dort behandelt, wo es im Rahmen der Zielsetzung erforderlich schien.

Der Bericht kann nicht vollständig sein, da sicher nicht alle Unfälle veröffentlicht wurden und in dieser Arbeit nur ein Teil der erfaßten Literatur zitiert wird.

Die am wichtigsten scheinenden Artikel werden erwähnt und wesentliche Angaben daraus nach Möglichkeit wörtlich zitiert.

Study of Literature on the Diffusion Mechanism of Plutonium Released

The application of pacemakers driven by plutonium batteries and development work on a blood pump call for prediction of the behavior and diffusion of plutonium released, within the framework of the hazard consideration.

In this report the plutonium releases which have become known are evaluated and the essential results are described as far as the consequences were studied in more detail.

The report aims at presenting a compilation of data on the behavior of plutonium on and in the soil and in water. Atmospheric contamination is only dealt with where it seemed necessary with a view to the objective pursued.

The report cannot be complete, since, obviously, not all accidents have been published and in this work only part of the literature reviewed has been cited.

The articles considered the most important ones are mentioned and significant information is extracted and quoted word for word as far as possible.

I N H A L T S V E R Z E I C H N I S

	Seite
Vorwort	
1. Einleitung	1
2. Kontamination des Erdbodens	8
2.1. Resuspension	9
2.2. Plutoniumwanderung im Boden	10
3. Emission	13
3.1. New Mexico	13
3.2. Nagasaki	13
3.3. Nevada Testgelände	14
3.4. Palomares	16
3.5. Thule	17
3.6. Rocky Flats	19
4. Plutonium-Aufnahme von Pflanzen	25
5. Plutonium im Wasser	29
5.1. Thule	31
6. Plutonium in der Luft	33
6.1. SNAP-9A (System of Nuclear Auxiliary Power)	34
7. Zusammenfassung	35
Summary	
Resume	
8. Literaturverzeichnis	

1. Einleitung

Plutonium in größeren Mengen wurde vermutlich erstmals bei den Atombombenexplosionen über New Mexico am 16.7.45 und über Nagasaki am 9.8.45 freigesetzt. Seitdem kam es mehrfach zu Emissionen von Plutonium durch Brände, Testexplosionen, Absturz Atombomben tragender Flugzeuge, das Verglühen einer Plutonium-Batterie und ähnliche Unfälle (s. Tabelle 1). Die Schätzung über die Gesamtmenge des in der Biosphäre verbreiteten Plutoniums (global source terms) liegen weit auseinander. So geben G.P. Dix und T.J. Dobry die bis zum Zeitpunkt der Einstellung der oberirdischen Atombombentests freigesetzte Menge Pu-239 zu 300 bis 680 kCi an, für Plutonium-238 wird die Menge auf 25 kCi geschätzt (1). Diese Autoren geben gleichzeitig einen kurzen Überblick über das Verhalten von freigesetztem Plutonium unter verschiedenen Bedingungen. E.P. Hardy et al. berichten über Untersuchungen von Bodenproben, die an 65 verschiedenen Orten, verteilt über die gesamte Erdoberfläche, genommen und deren Pu-239/240 und Pu-238 Gehalte bestimmt wurden (2,3). Demnach waren auf der Erdoberfläche bis 1971 insgesamt ca. 320 kCi freigesetztes Pu-239/240 und ca. 21 kCi freigesetztes Pu-238 abgelagert.

Laborunfälle, nach denen aber das freigesetzte Plutonium sofort beseitigt werden konnte, oder die überhaupt keine Kontamination außerhalb von Gebäuden verursacht haben, werden mehrfach beschrieben (z.B. 4-13), wobei zum Teil die freigesetzte Menge und die Größe der kontaminierten Fläche angegeben sowie auf die hohen Kosten der Reinigungsarbeiten hingewiesen wird.

J. Mishima und L.C. Schwendiman untersuchten 46 Zwischenfälle, die sich in der Industrie zwischen 1952-1967 ereignet hatten und bei denen Plutonium freigesetzt worden war (14,15). Ursachen waren in 36 % Explosionen, in 15 % Feuer und in 11 % Überdruck; 70 % der Unfälle ereigneten sich bei chemischen Prozessen, 28 % bei der Handhabung und Lagerung und nur 2 % beim Transport.

aufgrund seiner Eigenschaften, wie z.B. geringe Löslichkeit, Reaktionsträgheit, hoher Schmelzpunkt etc, besonders geeignet. L.J. Mullins et al. geben Eigenschaften sowie einen Vergleich einiger Eigenschaften, wie Schmelzpunkte, Leistungsdichten, Strahlenbelastungen durch γ - und Neutronen verschiedener Pu-238-Verbindungen an (19). In Tabelle 3 sind einige Eigenschaften von $^{238}\text{PuO}_2$ aufgeführt (20). Bei Inkorporationen sowohl durch den Magen-Darm-Trakt wie auch durch Inhalation kann die Gefährdung für Mensch und Tier durch die Anwendung von Mikrokügelchen oder gepreßtem und gesintertem PuO_2 an Stelle des Pulvers vermindert werden. In Tabelle 4 sind einige Eigenschaften von PuO_2 -Mikrokügelchen angegeben.

In der vorliegenden Arbeit werden die in Tabelle 2 aufgeführten Ereignisse näher diskutiert. Das bei Atombombentests, Unfällen etc. freigesetzte Plutonium läßt sich in der ganzen Welt nachweisen. So wurden bei Bodenuntersuchungen an verschiedenen Stellen in der Nähe von New York von E.P. Hardy und P.W. Krey zwischen 2,0 und 2,6 mCi Pu-239/km² gefunden (21). Ähnliche Messungen an verschiedenen Stellen in der Nähe der Euratom-Anlage Ispra, die von M.C. de Bortoli und P. Gaglione durchgeführt wurden, zeigten 1,2-2,3 mCi Pu-239/km² (22). Messungen des monatlichen Fallout in der Nähe des Kernforschungszentrums Karlsruhe zeigen 1-10 pCi/m² Pu-239/40 im Niederschlag (120).

Sicherheitsprogramme für Unfälle, an denen Plutonium beteiligt ist, wurden mehrfach ausgearbeitet; sie sind jedoch auf spezielle Gegebenheiten zugeschnitten, z.B. auf Unfälle im Labor (23), bei Feuer (24), beim Absturz eines soeben gestarteten Raumschiffes (25), mit $^{238}\text{PuO}_2$ -Batterien in Raketen (26,27) o.ä. Für den Fall eines Unglücks beim Tragen von Herzschrittmachern sind diese Programme nicht anwendbar. Hier müssen alle Eventualitäten berücksichtigt werden. Man muß z.B. damit rechnen, daß sich Unfälle sowohl auf dem Erdboden wie auch auf oder im Wasser und in der Luft ereignen können. Deshalb sind alle Möglichkeiten zu untersuchen, bzw. die Erfahrungen hierüber zu sammeln.

Zusammenstellungen wichtiger Daten und Schutzmaßnahmen beim Umgang mit Plutonium wurden von I.P. Vaane (23), S. Lenkeit (28) veröffentlicht.

Tabelle 1: Auswahl einiger Unfälle, bei denen Plutonium freigesetzt wurde

Datum	Art des Unfalls	Menge Plutonium		Ort	kontaminierte Fläche		Lit.
		beteiligt	freigesetzt		innen	außen	
4.12.51	Feuer		1-4 g	Hanford	Gesamtgebäude	nach außen gedrungenes Plutonium durch Löschwasser an den Boden gespült	(4)
16.11.51	Überdruck			Richland		keine Kontamination der Umgebung bemerkt	(4)
1.55	Feuer	900 g		Richland		nicht nachweisbar	
9.55	Feuer	800 g	2,3 µg	Rocky Flats		nicht nachweisbar	(4)
9.57	Feuer	22 kg		Rocky Flats	(s. Beschreibung 2.6)		(4)
15. 7.59	Feuer	Filtersystem		Los Alamos		20.000 dis/min in direkter Nachbarschaft des Gebäudes	(4)
31. 3.59	Explosion			Richland		keine erwähnenswerte Kontamination außerhalb	(4)
11.59	Explosion		0,6 g	Oak Ridge		Gebäude und Straßen in der Nachbarschaft waren kontaminiert	(4)

1
5
1

Tabelle 1: Fortsetzung

Datum	Art des Unfalls	Menge Plutonium		Ort	kontaminierte Fläche		Lit.
		beteiligt	freigesetzt		innen	außen	
11. 5.61	Überdruck	Pu-238		Miamisburg		keine Kontamination gefunden	(4)
1951-63	Bombentests			Nevada Testgelände			
27.10.64	Explosion	17 g Pu-238	0,5 g	Miamisburg		keine Kontamination außerhalb des Gebäudes beobachtet	(4)
21. 4.64	Verglühen einer Pu-238-Batterie in der Atmosphäre	-ca. 1 kg Pu-238-		über dem Indischen Ozean			(102-106)
15.10.65	Feuer	20 - 30 g		Rocky Flats		keine α -Aktivität nachgewiesen	(4)
20. 1.65	kontaminiertes Gas im Abzug			Livermore		keine Kontamination außerhalb des Gebäudes angezeigt	(4)
16. 1.66	Flugzeugabsturz			Palomares			
21. 1.68	Flugzeugabsturz			Thule			
11. 5.69	Feuer	?		Rocky Flats	(s. Beschreibung 2.6)		(4)
24. 8.69	Abwasser ausgelaufen	2 Ci α -Aktivität 90 % Am-241 10 % Pu-239		GfK			(11a,12)
April - Juni 73	Leckage in Abfalltank	115 000 Gallonen (435 m ³) mit u.a. ca. 4 Ci Plutonium		Hanford Reservation		Waste aus durchgerosteten Tanks im Erdboden versickert	(119)

!
o
!

Tabelle 2: Die in dieser Arbeit behandelten Unfälle

Datum	Ort	Art des Ereignisses	Untersuchungen
16. 7.45	New Mexico	Atombombentest	Bodenuntersuchungen
9. 8.45	Nagasaki	Atombombenexplosion 500 m über dem Erdboden	Bodenuntersuchungen
1951-63	Nevada-Testgelände	Testexplosionen a) versehentliche Freisetzungen aus unterirdischen Explosionen b) Bombenversuche, atmosphärische Detonationen c) "One point oder Safety Explosions", die zur Erforschung zufälliger Explosionen dienen	Bodenuntersuchungen
16. 1.66	Palomares	Flugzeugunglück, bei dem 4 Atombomben abstürzten, wovon 2 auf dem Festland detonierten	Bodenuntersuchungen
21. 1.68	Thule	Absturz eines mit 4 Atombomben beladenen Flugzeugs, bei dem alle Bomben explodierten, Absturzstelle auf dem Eis	a) Untersuchungen im Meerwasser b) Untersuchung von Flechten, die auf dem Festland wachsen
1955-69	Rocky Flats	Mehrere Unfälle in der Plutonium-Produktionsanlage für Waffen	Bodenuntersuchungen
21. 4.64		SNAP - 9A (System for Nuclear Auxiliary Power) verglüht nach mißglücktem Start ca. 46 km über dem Indischen Ozean	Luftuntersuchungen

Tabelle 3: Eigenschaften von $^{238}\text{PuO}_2$ (20)

Zusammensetzung	PuO_2	
Schmelzpunkt	$\sim 2230^\circ\text{C}$	(2400 aus (19))
Spezifische Leistung	0,40 W/g; 12,13 Ci/g	
Leistungsdichte	4,58 W/cm ³	(4,2 aus (19))
Dichte	11,46 g/cm ³	
Löslichkeit	unter Schwierigkeit in HNO_3 -HF-Lösungen	

Tabelle 4: Eigenschaften von $^{238}\text{PuO}_2$ -Mikrokügelchen (20)

Dichte	9,8-10,4 g/cm ³	(aus techn. Herstellg.)
Schüttdichte	6,7 g/cm ³	
Leistungsdichte	2,7 W/cm ³	
Härte	1163 kg/mm ²	
Löslichkeit	Auflösung in HNO_3 -HF-Lösung schwierig	
Verunreinigungen	0,58 %	
Actinidenverunreinigungen	0,10 %	
^{236}Pu	1,0 ppm	
Druckfestigkeit	259 g	
Schmelzpunkt	2165 °C	
Stöchiometrie	2,00	
Pu-238-Gehalt	80,9 %	
Löslichkeit in H_2O	$1,26 \times 10^{-3}$ µg/Tag	mm ²

2. Kontamination des Erdbodens

Auf dem Erdboden freigesetztes Plutonium kann in situ verbleiben, durch Resuspension auf der Oberfläche und in der Atmosphäre weiter verteilt werden oder in den Erdboden eindringen. Als Folge kann Plutonium von Pflanzen aufgenommen werden und so in die Nahrungsmittelkette gelangen (29).

J.W. Healy gibt einen Überblick über die Gefahren im Zusammenhang mit kontaminierten Oberflächen (30). W.H. Langham et al. nehmen an, daß die Gefährdung für den Menschen verhältnismäßig gering ist, solange die Pu-Teilchen auf dem Erdboden abgelagert bleiben (31). Gefährlich ist die Inhalation von Plutonium wegen der sehr hohen Absorption in der Lunge, während nach L.H. Hempelmann et al. angenommen werden kann, daß der Magen-Darm-Trakt eine bemerkenswerte Fähigkeit hat, Plutonium davon abzuhalten in den Körper einzudringen (118).

2.1. Resuspension

In einem kurz gefaßten Artikel beschreibt K. Stewart die Resuspension (32). Die Weiterverbreitung radioaktiven Materials von kontaminierten Oberflächen wird mit Hilfe des Resuspensionsfaktors $K[m^{-1}]$ ausgedrückt. Er gibt das Verhältnis der in der Luft befindlichen Aktivität ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$) zur Oberflächenaktivität ($\mu\text{Ci}/\text{m}^2$) an.

Die Aufwirbelung abgesetzter Stäube unter Berücksichtigung der Teilchengrößenverteilung, der Windbedingungen, der Oberflächenbeschaffenheit u.a. beschreibt R.A. Bagnold (33).

I.S. Jones und S.F. Pond untersuchten den Resuspensionsfaktor von Plutoniumoxid und -Nitrat für verschiedene Oberflächen unter Berücksichtigung der Teilchengröße und den Einfluß von Bewegungen auf die Resuspension (34).

J. Mishima hat in Form einer Tabelle Resuspensionsfaktoren aus der Literatur zusammengestellt (35). Die Faktoren reichen von $10^{-2} m^{-1}$ (Resuspension fein verteilten Materials von einem frisch gestrichenen Betonboden in Abhängigkeit von Luft- und mechanischer Bewegung) bis $10^{-13} m^{-1}$ (Resuspension gealterten Plutoniums von Wüstenboden durch natürliche Bewegung). "Die resuspendierte Menge hängt ab von der Oberflächenbeschaffenheit, vom Einfluß von Bewegungen, von der Teilchengrößenverteilung und der Betriebsamkeit auf dem Gelände. Der Resuspensionsanteil wird mit der Zeit durch Verwitterung und Verringerung des feinen Materials abnehmen".

I. Mishima und L.C. Schwendimann untersuchten außerdem in einem umfassenden experimentellen Programm die Freisetzung von Plutonium bzw. Uran als Plutonium-Simulant in der Luft bei angenommenen Unfällen (109,110). Menge und Korngrößenverteilung des Plutoniums in der Luft wurden unter verschiedenen Bedingungen, Windgeschwindigkeiten, Temperaturen mit und ohne Feuereinwirkung etc. gemessen.

2.2. Plutoniumwanderung im Boden

Messungen über die Adsorption von Plutonium an Bodenproben wurden bereits 1957 von D.W. Rhodes durchgeführt (36). "In pH-Bereichen >2 bildet Plutonium Polymere mit positiver Ladung und wird rasch vom Boden aufgenommen. Die Desorption des Plutoniums vom Boden ist mit wäßrigen Lösungen anorganischer Salze schwer durchführbar. An den Erdteilchen bildet sich eine hohe Plutonium-Konzentration mit geringer Neigung des Plutoniums, durch das Bodenprofil zu wandern". Das zunächst auf der Oberfläche abgelagerte Plutonium wird vom Erdboden aufgenommen. "Der tatsächliche Umfang des Eindringens hängt in erster Linie von der Art des Erdbodens ab, aber viele andere Faktoren, wie Niederschlagsmenge, chemische Form etc. spielen eine Rolle..." (21). So deutet nach E.M. Romney et al. auf dem Nevada Testgelände "das schnelle Abnehmen der ursprünglich auf der Bodenoberfläche gemessenen α -Aktivität auf die Abwärtswanderung der Fallout-Teilchen" hin, da "Resuspension praktisch Null war, außer bei heftigen Böen..." (37). Im Gegensatz dazu stehen Beobachtungen auf dem Trinity Fallout-Gelände in New Mexico, wo die Oberflächen- α -Aktivität während eines Jahrzehnts nach Ablagerung nahezu unverändert blieb (38). Von E.P. Hardy und P.W. Krey wurde 1970 in Brookhaven die vertikale Verteilung des Pu-239 aus dem Fallout bis zu einer Tiefe von 30 cm gemessen. Zwischen 25-30 cm wurden noch 1 % der Gesamtmenge gefunden (2,21) (Tab. 5).

Tabelle 5: Tiefenverteilung von Pu-239 im Erdboden (aus (2))

Tiefe (cm)	mCi Pu-239 pro km ²	Anteil am Gesamt-Pu %
0 - 7	1,18 ± 3 %	57
7 - 11	0,57 ± 4 %	27
11 - 15	0,23 ± 6 %	11
15 - 21	0,07 ± 20 %	3
21 - 25	0,02 ± 40 %	1
25 - 30	0,01 ± 50 %	1

An vier anderen Orten in den USA wurden Proben aus Schichten unterhalb 30 cm analysiert und weniger als 5 % des Gesamt-Plutoniums gefunden (2) (Tab. 6).

Tabelle 6: Pu-239 in Erdschichten unterhalb 30 cm (aus (2))

Ort	Tiefe (cm)	mCi Pu-239 pro km ²	Anteil des Gesamt-Pu unter 30 cm %
Brookhaven, N.Y.	0 - 30	2,1 ± 2 %	0,5
	30 - 60	0,01 ± 100 %	
Denver, Colorado	0 - 30	1,8 ± 2 %	2,8
	30 - 46	0,050 ± 13 %	
Raleigh, N.C.	0 - 30	2,4 ± 3 %	4,8
	30 - 41	0,12 ± 15 %	
Vermillion, S.D.	0 - 30	2,3 ± 7 %	2,7
	30 - 41	0,063 ± 18 %	
Weslaco, Texas	0 - 30	0,85 ± 2 %	4,4
	30 - 41	0,039 ± 38 %	

Die Autoren betonen, daß die Proben nur an Stellen entnommen wurden, die wenigstens 15 Jahre ungestört waren. Die selben Autoren untersuchten auch die Plutonium-Eindringtiefe im Erdboden nahe Rocky Flats (s. 2.6). Auch P.H. Gudiksen et al. analysierten die Eindringtiefe des Pu-239 in den Boden bis zu 30 cm in der Nähe vom Lawrence Livermore Laboratory (39). Da sie aber sogar zwischen 20-25 cm Tiefe noch bis zu 10 % des über das Gesamtprofil verteilten Pu nachgewiesen haben, ist anzunehmen, daß die oberste Bodenschicht vor der Probenahme vermischt worden war. M.C. de Bortoli und P. Gaglione untersuchten 1966 ebenfalls den Erdboden bis zu einer Tiefe von 20 cm an verschiedenen Stellen in der Nähe der Euratom-Anlage in Ispra und fanden in den oberen 5 cm ca. 60 % und zwischen 15 und 20 cm Tiefe noch knapp 10 % des Gesamt-Plutoniums (22).

B.F. Hajek untersuchte im Zusammenhang mit der Ablagerung von Plutonium-Müll aus einer Recuplex-Anlage Diffusion, Auslaugen durch Grundwasser und Gleichgewichtsverteilung mit dem Grundwasser von Plutonium und Americium im Erdboden (40). Er kommt zu dem Ergebnis, daß das Plutonium in sehr geringem Maße wandert, in $2,4 \times 10^5$ Jahren ca. 8,5 cm, so daß "mehrere Halbwertszeiten erforderlich wären, damit Oberflächen-Plutonium bis zur gegenwärtigen Grundwasserhöhe wandert". Über ähnliche Ergebnisse berichtet B.L. Schmalz (111). Demgegenüber fanden C.W. Christensen und R.G. Thomas Pu noch in über 8 m (28 ft) Tiefe in einer Tuffsteinschicht (41). Offensichtlich war es durch Ritzen und Spalte so tief durchgesickert.

Systematische Untersuchungen, die die Bodenbeschaffenheit, Niederschlagsmenge u.ä. Faktoren berücksichtigen, waren nicht zu finden. Im Zusammenhang mit der Beschreibung einer geplanten Umbettung von ca. 100 kg Plutonium-Abfällen im Erdboden in der Nähe von Hanford werden zwar meteorologische, hydrologische, geophysikalische u.a. Daten vorgelegt; doch fehlen die Angaben über den Zeitpunkt der Deponierung, und über die Plutonium-Verteilung im Boden (112,113). Anhand der ausgewerteten Literatur kann angenommen werden, daß Plutonium vom Erdboden aufgenommen wird, aber nur langsam in tiefere Schichten eindringt. E.M. Romney et al. nehmen an, daß es wegen der außerordentlich hohen Absorbierbarkeit von Plutonium an die im Boden vorkommenden Huminstoffe unwahrscheinlich erscheint, daß Plutonium in gelöster Form im Boden wandert, sondern nur in Form fester Teilchen transportiert wird (37). Nach C.W. Francis et al. "existiert Plutonium im Erdboden hauptsächlich in einer positiv geladenen polymeren Form und ist fest an Kolloide adsorbiert. Mit wäßrigen Lösungen anorganischer Salze kann nur wenig bereits angelagertes Plutonium entfernt werden (< 4 %), jedoch verhindern Azetatsalze die Plutonium-Adsorption im Erdboden und man kann damit große Mengen adsorbierten Plutoniums extrahieren. Ebenso wurde Plutonium in Gegenwart verschiedener organischer Lösungsmittel nicht an Erdteilchen gebunden" (42). J.F. Cline konnte zeigen, daß Americium, wahrscheinlich als Nitrat, in basischem Boden (Ephrate Soil) schneller wanderte als in einem sauren Boden (Cinebar Soil) (43).

Das Löslichkeitsverhalten von Plutonium, welches für dessen Verteilung und Wanderung sowohl im Erdboden, wie auch im Wasser

wesentlich ist, wurde in einer theoretischen Studie von W.L. Polzer untersucht (44). Er gibt an, unter welchen Bedingungen bestimmte Plutonium-Ionen besonders gut löslich sind, z.B. für Pu^{3+} , PuOH^{2+} , PuO_2^+ , $\text{PuO}_2(\text{OH})_3^-$ und daß CO_3^{2-} -Ionen wie auch organische Anionen die Löslichkeit des Plutoniums stark erhöhen.

K.C. Knoll fand, daß Pu mit 0,4M Di-(2-Äthylhexyl)-Phosphorsäure oder mit Essigsäure verschiedener Konzentrationen aus Bodenproben ausgelaugt werden kann (45). Mit weniger als 10 Säulenvolumen 0,25M Essigsäure konnten über 50 % des Plutoniums entfernt werden.

3. Emissionen

3.1. New Mexico

Bodenproben und Pflanzen im Gebiet von Zentral- und Nordost-New Mexico, das durch Fallout des ersten Atombombentests am 16.7.45 kontaminiert ist, wurden zu verschiedenen Zeitpunkten auf Pu untersucht (46,47). Mengen bis zu $0,7 \text{ mg/m}^2$ ($0,07 \text{ mg/Quadratfuß}$) wurden 88 Meilen nordöstlich der Detonationsstelle gefunden. Die größte Flächenbelegung mit $15,38 \text{ mg/m}^2$ ($1,47 \text{ mg/Quadratfuß}$) wurde 28 Meilen nordöstlich der Detonationsstelle gefunden. In 3 Meilen südlich der Detonationsstelle gesammelten Proben wurde kein Plutonium gefunden. Die Proben waren bis zu einer Tiefe von $1/2$ Zoll entnommen worden.

In der Zeit von 1948 bis 1956 gibt es offenbar keine Anzeichen für eine Abnahme des Plutonium-Gehaltes des Bodens als Folge von Erosion (47). Auch Bodenprofile wurden untersucht, "Abwärtsbewegungen von Pu wurde nur in den zwei Fällen festgestellt, wo die Oberflächenkontamination relativ hoch war".

Eine geringe Anzahl Analysen von pflanzlichem Material zeigte keinen schlüssigen Beweis für die Pu-Aufnahme durch Pflanzen.

3.2. Nagasaki

24 Jahre nach der Atombombenexplosion am 9. August 1945 etwa 500 m über dem Stadtgebiet von Nagasaki wurden im Juli 1969

Bodenproben an verschiedenen Stellen im Umkreis bis zu 4,4 km vom Zentrum der Explosion untersucht (48,49). Jede Probe wurde bis zu 10 cm Tiefe ausgehoben. Über die Bodenbeschaffenheit und Niederschlagsmenge wird auch in diesen Berichten nichts ausgesagt.

Diese Proben enthielten noch immer zwischen 1 bis 38 mCi Pu-239/km². Die höchste Konzentration wurde in Nishiyama ca. 2,8 km östlich des Explosionszentrums gefunden. Der am Tage der Explosion aus Westen wehende Wind ist für die hohe Flächenkontamination in diesem Gebiet verantwortlich. Auch nach dieser langen Zeit ist der Pu-239-Gehalt in diesen Bodenproben noch ca. 10 mal so hoch wie in Bodenproben, die lediglich "Fallout" enthalten (~ 1-3 mCi/km²). "Die Ergebnisse.... zeigen, daß die Kontamination des Bodens durch Plutonium auf natürliche Weise nicht leicht entfernt wird". Dagegen liegt der Strontium-90-Gehalt nicht über dem, der in Proben, die nur "Fallout" enthalten, gefunden wird. "Das kann durch das unterschiedliche Rückhaltevermögen des Bodens für Strontium und Plutonium bedingt sein und stimmt mit den mittels Radioindikator erzielten experimentellen Werten überein".

3.3. Nevada Testgelände

Bereits 1970 wurde von der "Nevada Applied Ecology Group" ein Programm begonnen, welches das Schicksal des bei den Tests freigesetzten Plutoniums verfolgen soll (50). Dieses Programm wird wörtlich übersetzt wie folgt beschrieben:

- 1.) Zusammenstellung und Auswertung von Informationen über Quellen, Merkmale, Verteilung und Verhalten des durch nukleare Tests an die Umgebung freigesetzten Plutoniums.
- 2.) Erfassung und Dokumentation der Verbreitung, Mengen, Merkmale und Verhalten des auf dem Nevada Testgelände freigesetzten meßbaren Plutoniums.

- 3.) Beschreibung des Umverteilungsgrades für Plutonium auf dem Nevada Testgelände und in dessen Umgebung und der zugrundeliegenden Bedingungen, unter Berücksichtigung der Wege und Geschwindigkeit der Bewegungen unter besonderer Beachtung seiner Einwirkung auf Menschen.
- 4.) Ermittlung und Dokumentation der Auswirkungen, die Plutoniumablagerungen auf dem Nevada Testgelände und in dessen Umgebung auf den Menschen haben können.
- 5.) Bestimmung eventueller Auswirkungen einer Plutonium-Kontamination der Umgebung auf die Pflanzen, Tiere und Ökologie des Landes.
- 6.) Beurteilung von Methoden zur Stabilisierung und Beseitigung des Plutoniums aus der Umgebung und deren Auswirkung auf die Ökologie dieses Gebietes.
- 7.) Feststellung der Notwendigkeit zur Entfernung des Plutoniums aus der Umgebung.

Dieses "Plutonium Environmental Studies Program" arbeitet spezifisch mit dem Zweck, Umgebungs- und Strahlen-Gesundheitsprobleme im Zusammenhang mit der Plutonium-Kontamination auf dem Nevada-Testgelände und dessen Umgebung zu identifizieren und zu bestimmen. Zunächst liegt die Betonung auf der Normung analytischer Methoden, der Abgrenzung kontaminierter Flächen, Fragen der Aufwirbelung und Umverteilung, Nahrungsmittelketten-Transport und ökologischen Auswirkungen.

Um die Plutonium-Verteilung in der Umgebung des Nevada-Testgeländes zu bestimmen und festzustellen, ob Plutonium durch natürliche Vorgänge wandert, ob Menschen diesem Plutonium ausgesetzt sind oder werden können, werden Untersuchungen durchgeführt (80,81). Der Plutonium-Gehalt von 46 Bodenproben wird angegeben und außerdem 2 Profil-Proben bis zu einer Tiefe von 23 cm untersucht. Plutonium wurde in den meisten Fällen nur in der obersten Schicht bis zu

3 cm Tiefe gefunden. Die gefundenen Werte reichen von 130 mCi/km^2 bis Untergrund.

Der Erdboden in der Nähe des Nevada Testgeländes ist vulkanischen Ursprungs, trocken und steinig. Über die Niederschlagsmenge wird nichts ausgesagt.

3.4. Palomares

Nach dem Aufprall auf den Erdboden von zwei Atombomben aus einem verunglückten Flugzeug wurden am 16.1.1966 Plutonium-Mengen von $\sim 500 \mu\text{g/m}^2$ im Umkreis bis 80 m an einer Stelle bzw. bis 65 m an anderer Stelle gefunden (53). Die Windgeschwindigkeit zur Zeit des Unfalls betrug ca. 56 km/h (30 Knoten). Über den Einfluß des Windes auf die Plutonium-Verteilung wird an dieser Stelle nichts ausgesagt.

Zur Beseitigung des Plutoniums wurde die oberste Erdschicht in diesen Gebieten abgenommen und in die USA transportiert. Alles Land, das mit $> 5 \mu\text{g/m}^2$ kontaminiert war, wurde bis zu einer Tiefe von 10 inch (= 25 cm) umgepflügt. Danach wurden Luftproben gemessen. Diese zeigte keine höhere als durch den üblichen Fallout verursachte Kontamination. Alle Analysen, die der Feststellung einer eventuellen Plutonium-Aufnahme der Einwohner von Palomares dienten, verliefen negativ (53). Über das Schicksal des verbliebenen Plutoniums ist nichts bekannt.

Die an den Dekontaminationsarbeiten beteiligten Personen wurden untersucht (54); "Weniger als 20 % von etwa 1600 Personen weisen eine durch Urinuntersuchungen nachweisbare Plutonium-Gesamtkörperbelastung auf und davon wiederum nur 25 einen Wert zwischen 6 und 67 % der zulässigen Körperbelastung. Andererseits wurde in einer Lungengewebsprobe 500 pCi Plutonium gefunden; die Urinprobe, die noch zu Lebzeiten dieses Mannes genommen wurde war jedoch negativ gewesen. Dieser Befund bestätigt Ergebnisse anderer Arbeiten, die über die Unzuverlässigkeit des Urintests berichten, besonders bei Inhalation von unlöslichem Plutonium (114,115). Zum Nachweis inkorporierten Plutoniums wird deshalb der Urintest in Verbindung mit Fäkaluntersuchungen und in-vivo-Messungen vorgeschlagen.

3.5. Thule

Beim Absturz eines mit vier Atombomben beladenen Flugzeugs am 21.1.1968 wurden alle vier Bomben beim Aufprall zerstört und einige Kilogramm Plutonium freigesetzt (53,55). Das Flugzeug stürzte auf das zugefrorene Meer. Der größte Teil des Plutoniums konnte auf einer Fläche von ca. 150 m x 700 m, auf der auch die Bombenreste und Flugzeugteile lagen, wiedergefunden werden. Diese Teile sowie der stark kontaminierte Schnee wurden eingesammelt und in die USA transportiert.

Außerhalb dieser Fläche wurden an zwei weiteren Stellen Kontaminationen maximal $40 \text{ pCi/cm}^2 = 0,4 \text{ Ci/km}^2$ gefunden. Im geometrischen Mittel wurde ein Wert von $0,4 \text{ pCi/cm}^2 = 4 \text{ mCi/km}^2$ berechnet (s. Abbildung 2 und Tabelle 7).

Nach der "Sehr effektiven Reinigung des Unfallplatzes" wurde angenommen, daß ca. $25 \pm 50 \% \text{ Ci}$ auf dem Eis verblieben waren. Im Sommer wurde das Eis nordwärts getrieben.

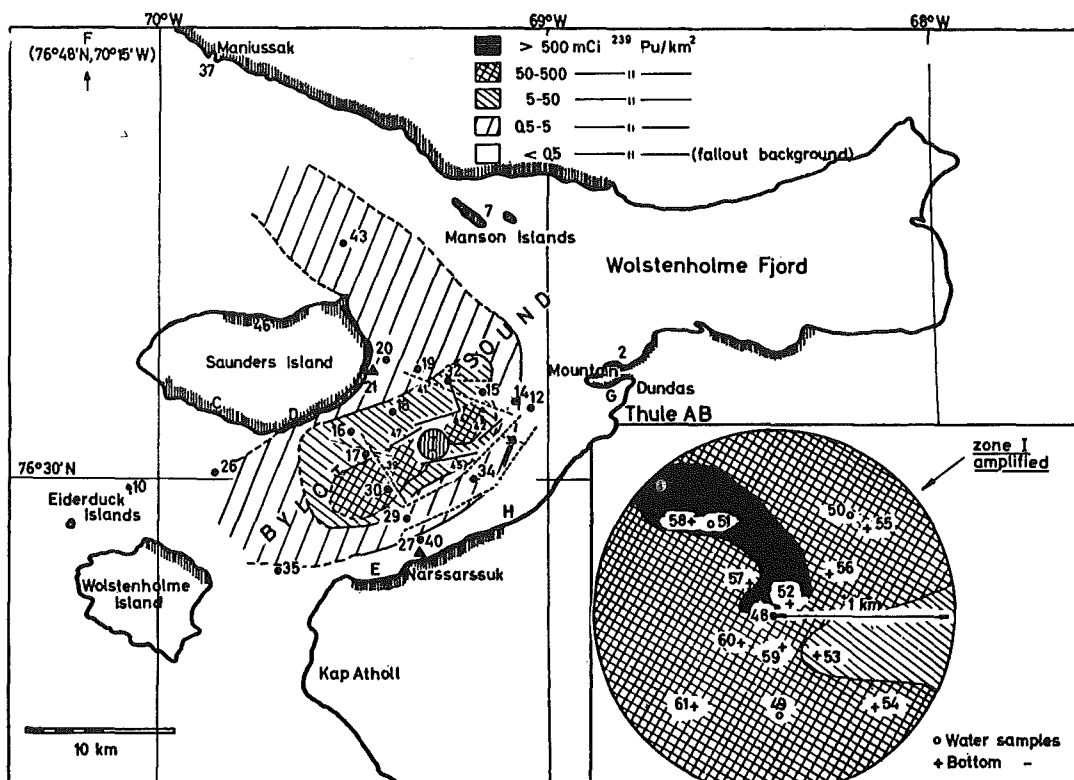


Abbildung 2: (aus 55) Die Pu-239-Niveaus auf dem Meeresgrund von Thule im August 1968

Tabelle 7: (aus 55) Pu-239 Ablagerungen auf dem Meeresgrund, Aug. 1968 in Thule, Grönland

	Ort (vergl. Abb. 2)	nCi/m ² oder mCi/km ²		²³⁸ Pu/ ²³⁹ Pu
		pCi/g Asche		
Zone II	12	0,10	0,19	
	14	1,3	3,9	
	17	2,0 ± 0,3	9,7 ± 1,4	
	19	1,1	0,84	
	30	16 ± 5	71 ± 20	0,020
	32	1,3 ± 0,2	5,5 ± 0,9	0,014
	43	0,13 ± 0,01	0,92 ± 0,04	
Zone I	55	7,0	67	
	60	13	120	
	57	29	112	
	58	130	1300	0,020
	56	11	135	
	59	16	125	
	53	8,4	40	
	52	72	830	
61	52	340		

Sein Schicksal und damit auch der Verbleib des Plutoniums ist unbekannt. Das Wasser, der Seegrund, Muscheln, Krebse, Zooplankton und Schneefüchse wurden auf ihren Plutoniumgehalt untersucht (55). Zur Ermittlung des auf dem Festland abgelagerten Plutoniums wurden im Sommer 1968 verschiedene Arten von Flechten und Pflanzenreste des nahegelegenen Festlandes auf ihren Plutoniumgehalt untersucht (56). Gefunden wurden zwischen 0,08 und 42,6 pCi/g getrockneter Substanz. Von insgesamt 23 enthielten 7 Proben, die nahe oder in Windrichtung von der Absturzstelle entnommen worden waren, Mengen >1,0 pCi/g. Verglichen wurde mit Untersuchungen,

die in Alaska durchgeführt wurden und bei denen zwischen 0,15 und 0,53 pCi/g Pu-239/240 in Flechten gefunden wurde.

Die jährliche Niederschlagsmenge in Thule betrug während der Zeit 1960-1967 durchschnittlich 13 cm, die in Alaska 32 cm.

Um die geographische Verteilung und die Wanderung des Plutoniums zu verfolgen, führte A. Aarkrog 1970 erneute Untersuchungen durch (57). Dabei zeigte sich ein verringerter Plutonium-Gehalt in allen Proben, doch lag der Gehalt noch merklich über dem Falloutniveau. Das Plutonium war ca. 10 cm tief in den Meeresboden eingedrungen und bis zu einem Abstand von 30 km von der Aufprallstelle noch nachweisbar. Die noch vorhandene Gesamtplutoniummenge in der Umgebung von Thule wird auf 20 Ci = 320 g geschätzt.

3.6. Rocky Flats

Die Berichte über die Plutonium-Kontamination in der Nähe des Rocky Flats Geländes geben stark unterschiedliche Meinungen wieder (58-73).

Nach einem Feuer am 11.5.1969 in der Anlage konnten 99 % des Plutoniums wiedergefunden werden (58). Über die absolute Menge Plutonium, die in den Brand verwickelt war, wird nichts gesagt. An anderer Stelle wird ausgeführt, daß ca. 200 mCi Plutonium ausgetreten sind, wovon der größte Anteil auf den Dächern der Anlage wiedergefunden wurde (59). Man vermutete, daß das Plutonium durch ein Leck im Dach ausgetreten ist. Nachgewiesen wurde, daß die Feuerwehrmänner etwas Plutonium nach außen geschleppt haben. Bemerkenswert ist, daß schon eine Metalltür ausreichte, die weitere Ausdehnung des Brandes zu verhindern. Nach diesem Unfall wurden in der Umgebung der Anlage Erd- und Luftproben auf ihren Plutoniumgehalt untersucht (60,61,62). Die im Umkreis bis zu 40 Meilen von der Anlage an 33 Stellen entnommenen Erdproben enthielten Plutonium-Ablagerungen bis zu 2000 mCi/km²;

doch nahm diese hohe Konzentration mit zunehmender Entfernung von der Anlage stark ab (s. Abbildung 3 und Tabelle 8).

Die Verteilung im Gelände entspricht der in dieser Gegend während der Jahre 1953 bis 1970 gemessenen durchschnittlichen Windrichtung aus Nord- bis Südwest. Am 11.5.1969 wehte der Wind jedoch aus Nordost bis Ost. Es mußte deshalb angenommen werden, daß die Plutonium-Verseuchung nicht auf diesen Brand zurückzuführen ist, sondern entweder auf einen Brand, bei dem am 11.9.1967 22 kg Plutonium in einem Handschuhkasten verbrannten (4) und "Geringe Kontamination der Vegetation festgestellt wurde" (59), oder auf leckende Fässer, die mit Plutonium verunreinigtes Öl enthielten. Diese Fässer lagerten von 1958 bis 1968 in der Südostecke der Anlage. Das erste Leck wurde 1964 entdeckt (60,61,71). Außerdem ist auch die Möglichkeit nicht auszuschließen, daß ständig geringe Mengen Plutonium mit den Abgasen ausgetreten sind, doch dürfte diese Ursache nicht für die so hohe Plutonium-Kontamination verantwortlich sein. In einem Schreiben an G.T. Seaborg macht E.A. Martell auf die Gefahren aufmerksam, die mit der Plutonium-Kontamination des Geländes verbunden sind und gibt eine Empfehlung für ein ausführliches Untersuchungsprogramm (70). Neben anderen Autoren weist auch er darauf hin, daß als Ergebnis von Inhalationsuntersuchungen die Werte für die zulässige Plutoniumkonzentration in Luft um mindestens eine Größenordnung herabgesetzt werden sollten. H.L. Volchok et al. untersuchten das "respirable" Plutonium in dem verseuchten Gelände und fanden 1 1/2 Meilen östlich 19 fCi/m^3 , mehr als 30 % der m.p.c. (= maximum permissible concentration) für lösliches Plutonium, bezogen auf Knochen als kritisches Organ" (71).

Der Boden nahe Rocky Flats ist steinig. Bis zu einer Tiefe von 20 cm (s. Abbildung 4-6 und Tabelle 8 und 9) wurden Erdproben entnommen und der Plutoniumgehalt bestimmt. Plutonium wurde bis zu einer Tiefe von 13 cm nachgewiesen, wobei die Eindringtiefe, offensichtlich in Abhängigkeit von der Chemie des Bodens sehr variiert (61). An einigen Stellen befinden sich 50 bzw. 60 % des gesamten Plutoniums tiefer als

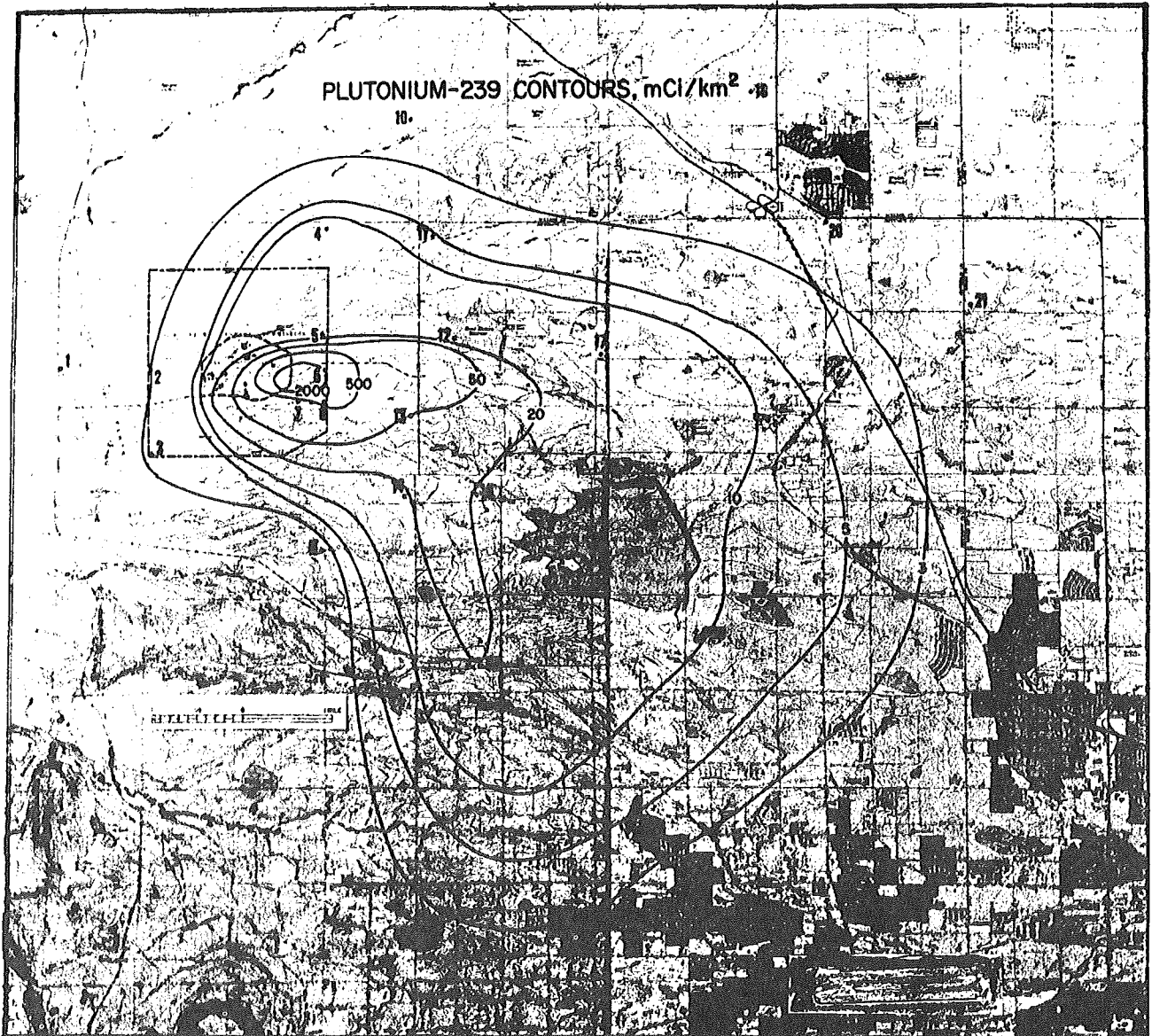


Abbildung 3: (aus (61,62)) Dow Rocky Flats Plutonium-Anlage und Umgebung mit eingezeichneten Probenahmestellen und Isodosenlinien

TABELLE 8 (aus 48) Analysenergebnisse der Untersuchungen von Rocky Flats Erdproben

Ort der Probe- nahme	Bodentiefe (cm)	dpm pro Gramm Erdboden		mCi pro km ²	
		Pu-239	Pu-238	Pu-239	Pu-238
6	0 - 5	171	3,35	1425	27,9
	5 - 8	35,8	0,659	482	8,7
	8 -10	8,50	0,180	119	2,5
	10 -13	1,20	0,0216	16	0,3
	13 -15	0,287	0,0056	4	0,08
	15 -18	0,290	0,0053	8	0,1
8	0 - 6	11,6	0,35	252	7,61
	6 - 9	6,72	0,131	82,3	1,60
	9 -13	0,355	0,0080	7,7	0,17
	13 -20	0,745	0,157	46,8	0,99
12	0 - 5	2,14	0,0409	46,2	0,88
	5 -20	0,0443	0,0053	4,6	0,54
26	0 - 5	0,0343	0,0022	0,88	0,06
	5 -20	0,0136	0,0009	1,7	0,12

5 cm (s. Abbildung 6), doch wird Bodenbearbeitung als Ursache für das tiefe Eindringen vermutet. Unterhalb 13 cm werden nur 1 % des Pu-239 vermutet.

S.E. Poet und E.A. Martell berichten von späteren Untersuchungen, für die die Proben nur in der obersten Erdschicht, bis zu 1 cm Tiefe entnommen wurden (72). "Fast alle Proben wurden an glatten, ungestörten Stellen, die nicht den Auswirkungen von Bewässerung oder Pflügen ausgesetzt waren, entnommen..... Die Plutonium-Kontamination ist hauptsächlich begrenzt auf die oberen 1 oder 2 cm". Bei einem Vergleich der Flächenverteilung stimmten "die Ergebnisse dieser Untersuchungen und die von P.W. Krey und E.P. Hardy (61), wie sie in Abbildung 3 wiedergegeben sind, ziemlich gut überein". Dagegen wird die insgesamt freigesetzte Plutonium-Menge von S.E. Poet und E.A. Martell jedoch wesentlich höher geschätzt.

Geologische, seismische, hydrologische, meteorologische und ökologische Gegebenheiten dieses Gebietes sind beschrieben (73)

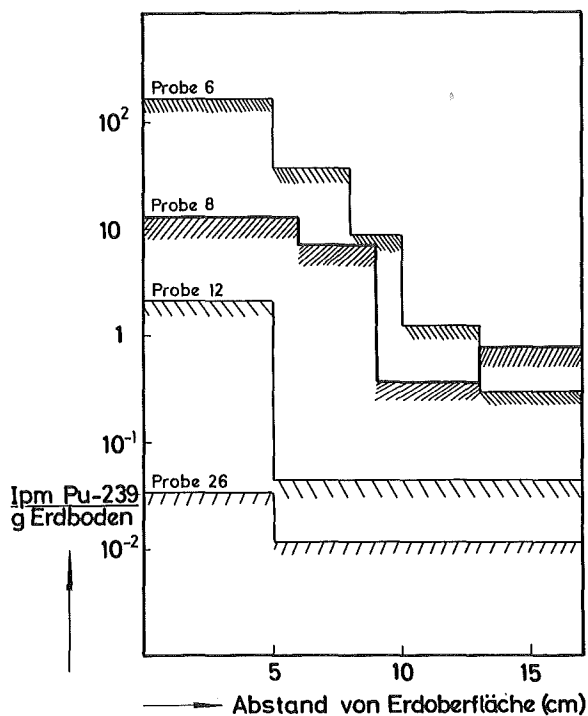


Abbildung 4: Tiefenverteilung von Pu-239 im Erdboden von Rocky Flats (s. Tabelle 8)

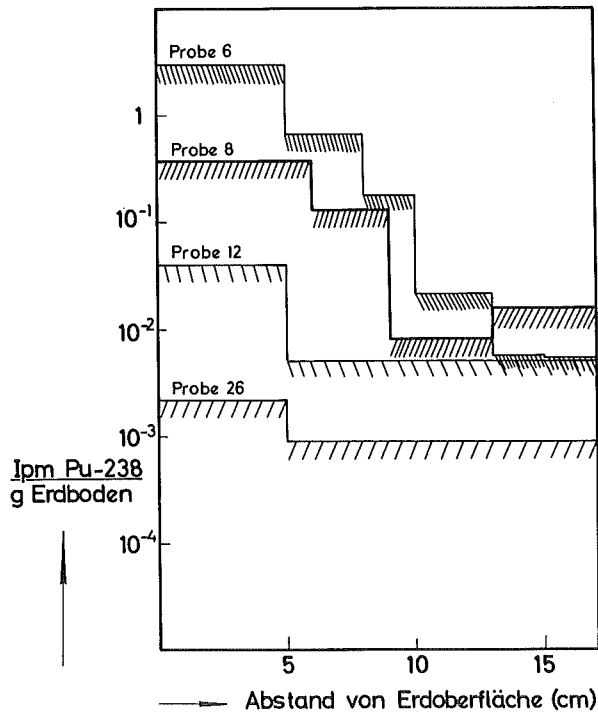


Abbildung 5: Tiefenverteilung von Pu-238 im Erdboden von Rocky Flats (s. Tabelle 8)

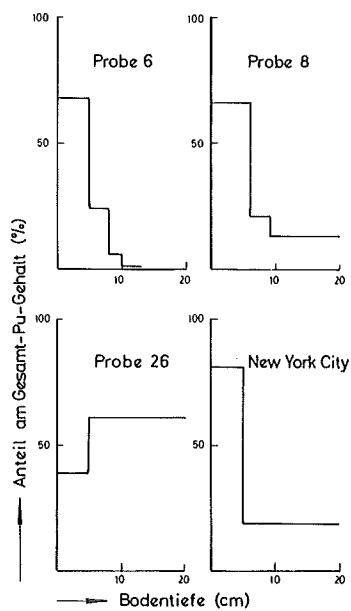


Abbildung 6: Tiefenverteilung von Pu-239 im Erdboden Rocky Flats verglichen mit New York City (reiner "fallout") (s. Tabelle 9)

TABELLE 9 (aus 61) Tiefenverteilung von Plutonium-239 im Boden

Ort	Abstand von der Erdoberfläche cm	% des Gesamt-Pu in der Schicht 0-20 cm
Rocky Flats	0 - 5	68
Ort "6"	5 - 8	24
(Lit.)	8 - 10	6
	10 - 13	1
	13 - 18	1
Rocky Flats	0 - 6	66
Ort "8"	6 - 9	21
	9 - 20	13
Rocky Flats	0 - 5	39
Ort "26"	5 - 20	61
New York City	0 - 2,5	66
(Fallout-Pu)	0 - 5	81
	5 - 20	19

4. Plutonium-Aufnahme von Pflanzen

Das Plutonium aus dem Erdboden kann über Pflanzen oder Tiere in die Nahrungsmittelkette gelangen. Die Aufnahmefähigkeit der verschiedenen Pflanzen für Pu-239 ist unterschiedlich und außerdem noch von verschiedenen Faktoren abhängig, wie z.B. Art des Bodens, chemische Form des Plutoniums, Teilchengröße etc. So berichteten L. Jacobson und R. Overstreet bereits 1948 über Versuche, bei denen Plutonium in Zwergerbse und Gerste nachgewiesen werden konnte, die auf PuO_2^{++} , Pu^{4+} und Pu^{3+} -haltigen Böden gezogen worden waren und stellten die höchste Konzentration in den Wurzeln fest (74).

H. Nishita et al. untersuchten die Aufnahme radioaktiver Zerfallsprodukte durch Nutzpflanzen und die Verteilung der Isotope innerhalb der Pflanzen (75). Sie fanden, "daß die relative Größenordnung der Aufnahme von Spaltprodukten und Plutonium durch Pflanzen aus kontaminiertem Erdboden in der Reihenfolge Sr-89/90 > J-131 > Ba-140 > Cs-137, Ru-106, Ce-144, Y-91, Pm-147, Zr-95, Nb-95 > Pu-239 abnimmt".

J.F. Cline verglich die Aufnahme von Am-241 mit Pu-239 und fand: "die Konzentration von Am-241 war 20 bis 30 mal größer als die von Pu-239 im Pflanzengewebe, das auf Mutterboden gewachsen war, der gleiche Mengen der Radioisotope enthielt" (43).

D.O. Wilson und J.F. Cline untersuchten inwieweit Pu-239 von Pflanzen (Gerste) aufgenommen und dadurch aus dem Erdboden entfernt wird (76). Sie stellten fest: "Gerste, die auf verschiedenen Böden wächst, nimmt nur geringe Mengen Pb-210 auf, weniger Pu-239" (vergl. Tabelle 10).

Den Einfluß der Pflanzenart verdeutlichen Versuche von W.A. Thomas, die zeigen, daß Bohnen, die auf Curium-haltigem Boden gewachsen sind, erhebliche Aktivität zeigten, während Gras unter gleichen Bedingungen gezogen, keine Aktivität zeigte (77,78). Bemerkenswert geringe Pu-Aufnahme durch Gräser wurden ebenfalls von S.L. Cummings und L. Bankert beobachtet, die ein Verhältnis der Pu-Aktivität in Hafer, der auf verschiedenen Pu-haltigen Böden gezogen worden war zu der des Bodens von 10^{-4} bis 10^{-6} analysierten (79), wie auch von W. Bliss und L. Dunn, die im Zusammenhang mit Untersuchungen auf dem Nevada-Testgelände in der auf Pu-verseuchtem Boden gewachsenen Gerste kein Pu fanden (51).

E. Romney et al. untersuchten die Plutonium-Aufnahme durch Klee im Verlauf von 5 Jahren. "Ladino clover" wurde auf einem Boden gezogen, der Pu-239 kontaminierten Fallout enthielt (80,81,37). Die aufgenommene Plutonium-Menge nahm von Jahr zu Jahr zu (s. Tabelle 11). Dabei können einmal das sich weiterentwickelnde Wurzelwerk zum anderen aber auch zunehmende Chelatbildung eine Rolle spielen.

TABELLE 10 (aus 76) Aufnahme von Pu-239, Cr-185 und Pb-210 durch Gerste aus drei verschiedenen Bodenarten

Isotop	Bodenart	Bodenaktivität $\mu\text{Ci/g}$	Pflanzenausbeute g	Konzentration im Gewebe nCi/g
Pu-239	Ephrata	10	$1,5 \pm 0,02$	$1,3 \pm 0,13$
Pu-239	Milville	10	$1,5 \pm 0,02$	$0,4 \pm 0,08$
Pu-239	Cinebar	10	$1,0 \pm 0,02$	$2,2 \pm 0,37$
Cr-185	Ephrata	0,1	$1,2 \pm 0,1$	380 ± 5
Cr-185	Milville	0,1	$1,4 \pm 0,1$	80 ± 5
Cr-185	Cinebar	0,1	$0,8 \pm 0,1$	7 ± 1
Pb-210	Ephrata	0,1	$1,6 \pm 0,02$	$0,2 \pm 0,02$
Pb-210	Milville	0,1	$1,8 \pm 0,03$	$0,2 \pm 0,05$
Pb-210	Cinebar	0,1	$1,0 \pm 0,03$	$0,5 \pm 0,05$

TABELLE 11 (aus 80) Pu-239 im aufeinanderfolgenden Ernten von "Ladino clover" (Klee) der auf kontaminiertem Erdboden unter "Glashaus-Bedingungen" gewachsen war

Erntezeitraum	Ernte Ausbeute g Trockengewicht	Pu-239 im trockenen Pflanzenmaterial Zerfall/min/Ernte	d/m/g
1958	66	205	3,1
1959	110	737	6,7
1960	194	1377	7,1
1961	310	3565	11,5
1962	316	7142	22,6

Eine steigende Aufnahme von Spaltprodukten und Plutonium durch verschiedene Pflanzen mit abnehmendem pH-Wert der Nährlösung konnten J.H. Rediske et al. beobachten (82).

Der Einfluß von Chelaten auf die Aufnahme von Transuranen durch Pflanzen wurde mehrfach untersucht. So schreiben z.B. V.Q. Hale und A. Wallace, daß DTPA die Pu-239-Aufnahme durch Pflanzen vermehrt und daß Am-241 von Buschbohnen um nahezu einen Faktor 10^3 mehr aufgenommen wird, wenn dem Boden DTPA zugesetzt wurde (83), während EDDHA nur geringen Einfluß hatte (84). Nach E.M. Romney erhöhte DTPA die Aufnahme von Pu-239 durch Luzerne wesentlich, während EDDHA wiederum weniger wirksam war (37).

5. Plutonium im Wasser

Nach J.V. Panesko ist das Verhalten von trockenem Plutoniumoxid-Pulver unter Wassereinwirkung abhängig von der Stoßkraft der Wassertropfen (85). In jedem Fall, auch unter der Einwirkung des fein versprühten Wassers einer Sprinkler-Anlage, verspritzt zunächst das Pulver, dann bildet sich in der obersten Schicht ein Sumpf. Durch diesen Sumpf dringt das Wasser nur noch langsam tiefer in das Pulver ein. Wird dagegen das Pulver ins Wasser geschüttet, sinkt es sofort ab oder bildet, wenn es sich um sehr feines Material handelt, eine Suspension.

Die ersten Meerwasseruntersuchungen und der Nachweis von Plutonium im Meerwasser aus dem Fallout wurde von Pillai et al. 1964 durchgeführt (86). Eine Zusammenfassung der Arbeiten bis 1970 über das Schicksal des Plutoniums im Ozean, sowohl in seichtem Küstenwasser, wo es sich im Schlamm und Sand anreichert, als auch in tiefen Wasserschichten wurde von V.E. Noshkin, K.M. Wong et al. gegeben (87,88).

An Hand von Analysen des Plutonium-Gehalts sowohl im Meerwasser als auch in den Ablagerungen konnten V.E. Noshkin und V.T. Bowen zeigen, daß Plutonium im Meerwasser schneller absinkt als ^{90}Sr oder ^{137}Cs und zwar mit einer Geschwindigkeit von

392 m bis 70 m im Jahr (89). In den Sedimentproben wurde Plutonium bis zu einer Tiefe von ca. 12 cm gefunden. Die Gesamtmenge des im Meer gemessenen Plutoniums stimmt, jeweils für denselben Breitengrad, gut mit dem aus Erdproben errechneten Fallout überein. Die Autoren schließen aus diesen Ergebnissen, daß Plutonium als ein ausgezeichneter Fallout-Indikator angesehen werden kann.

Untersuchungen über das Verhalten von PuO_2 in Meerwasser wurden unter natürlichen, und auch unter Laborbedingungen von S.Z. Mikhail und D.A. Kubose durchgeführt (90). Dabei wurde das Löslichkeitsverhalten bei verschiedenen Temperaturen und Drucken und bei unterschiedlichen Salzgehalten getestet. Bei den Untersuchungen unter natürlichen Bedingungen wurde festgestellt, daß 70 % der PuO_2 -Partikel nach 5 Monaten von aufgewachsener mariner Kruste umhüllt waren (91). Dadurch wird voraussichtlich der Grad der Löslichkeit der Pu-Aktivität aus den Teilchen vermindert, andererseits stellt sich die Frage, ob sich die Wahrscheinlichkeit, daß die Partikel in die Meeres-Nahrungsmittelkette aufgenommen werden, erhöht. Nach G.P. Dix und T.J. Dobry ist die Auflösung von Plutonium in wäßriger Umgebung abhängig von (1):

- 1.) der Größe der Plutonium-Oberfläche
- 2.) der chemischen Zusammensetzung
- 3.) der Natur der umgebenden Lösung.

Theoretische (44,85,92-94) und Laboruntersuchungen (95,117) berücksichtigen besonders das Verhalten von Plutonium in Wasser in Abhängigkeit vom pH-Wert und der Plutonium-Konzentration, vom Ionen-Gehalt und dem Einfluß von Komplex-Agentien. Ebenso wurden Untersuchungen über die Absorption von PuO_2 an das Material des Meeresbodens durchgeführt.

Ein Untersuchungsprogramm, das Auskunft über die Fortbewegung von Plutonium in wäßrigen Systemen geben soll, wird

J.P. B.

Dobry

1964

von D. Paine et al. angekündigt (96). Die Abhängigkeiten von der Wasserbewegung, dem Volumen und der Tiefe der Wasserbecken, dem pH-Wert, der Temperatur, der gelösten Sauerstoffmenge und der Leitfähigkeit sollen ermittelt werden. Wasserpflanzen und tierisches Leben in den drei Hauptwasserläufen von Rocky Flats sollen untersucht werden. Doch wurde von D.A. Kubose et al. (91) schon gefunden, daß PuO_2 -Partikel auf dem Meeresboden nur sehr geringfügig wandern.

5.1. Thule

Der Plutonium-Gehalt des Meerwassers wurde an und in der Nähe der Absturzstelle (s. 2.5) im August 1968 untersucht (55) (vergl. Tabelle 12 und Abbildung 2).

TABELLE 12 (aus 55) Pu-239 Niveau im Meerwasser von Thule, Zone I, im August 1968

Probenahme- stelle	Tiefe der Probenahme- stelle [m]	gefundene Aktivität [fCi/l]
48	2	4,8 ± 0,5
48	180	9,1 ± 1,3
49	2	4,3
49	195	2,1
49	195	4,9
50	2	4,8
50	175	1,7
50	175	3,4
51	2	11,7
51	178	4,4

Ein Unterschied des Plutonium-Gehaltes im Wasser nahe der Oberfläche gegenüber dem im Wasser in Bodennähe konnte nicht gefunden werden. Der Hauptanteil des Plutoniums hat sich auf dem Meeresboden abgelagert, wo auf einer elliptischen Fläche von ca. 30 km² ungefähr 3 Ci Plutonium angenommen werden. Tiere und Pflanzen, die mit dem Meeresboden in Kontakt kommen, oder sich von mit dem Meeresboden in Kontakt kommenden Lebewesen ernähren, zeigen einen höheren Plutoniumgehalt als diejenigen, die im freien Meerwasser leben. Aus diesen zur Untersuchung der Nahrungsmittelkette (s. Abbildung 7) dienenden Analysen wurde geschlossen, daß "keine Proben Plutoniummengen enthielten, die als gefährlich angesehen werden können für in der Umgebung von Thule oder in anderen Teilen Grönlands lebende Menschen oder höhere Tiere" (55). Nachuntersuchungen im August 1970 haben gezeigt, daß der Plutonium-Gehalt in allen Proben gegenüber 1968 abgenommen hat, aber doch noch bemerkenswert über den Fallout-Werten liegt (57). Beim Unfall freigesetztes Plutonium ist in den Meeresboden bis zu einer Tiefe von 10 cm eingedrungen und wurde bis zu 30 km Entfernung von der Unfallstelle nachgewiesen.

Von verschiedenen Algen (z.B. *Gelidium* sp., *Zoneira* sp., *Sargossum* sp.) und anderen Meerespflanzen konnte gezeigt werden, daß sie Plutonium aus dem Meeresboden in hohem Maße aufnehmen (84,97,98). Besonders Braunalgen (*Fucus* und *Laminaria*) scheinen empfindliche Plutonium-Indikatoren des Meerwassers zu sein (55).

Ebenso nehmen V.E. Noshkin et al. aufgrund ihrer Untersuchungen an, daß Muscheln ausgezeichnete Plutonium-Indikatoren sind (99). Sie fanden, daß im Muschelfleisch weniger Plutonium enthalten ist, als in den Schalen. Auch in den Skeletten von Fischen wurde mehr Plutonium gefunden, als im Fleisch. In knorpeligen Skeletten von Tieren, die unter ähnlichen Bedingungen leben, wie solche mit verkalkten Skeletten war weniger Plutonium enthalten. Dies bestätigt Untersuchungen von E.E. Ward, daß bei Hummern, die man in Pu-239 angereichertes Wasser gesetzt hatte, der Hauptplu-

toniumanteil sich in den Schalen ablagert, während im Fleisch und den Weichteilen wesentlich geringere Mengen nachzuweisen waren (100). Diese Befunde sind wichtig im Hinblick auf die Plutonium-Aufnahme in die Nahrungsmittelkette (s. Abbildung 7).

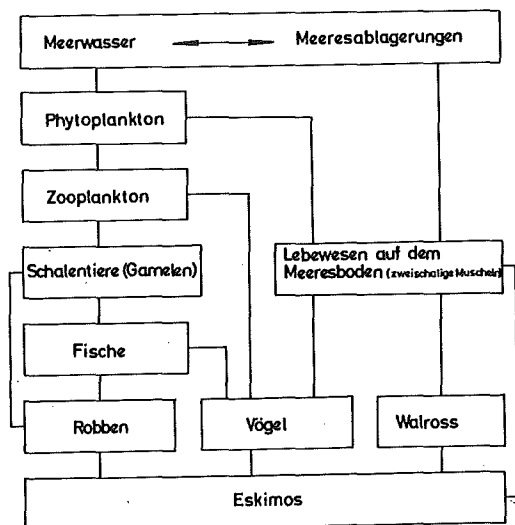


Abbildung 7: (aus (55)) Nahrungsmittelkette in arktischem Meerwasser

6. Plutonium in der Luft

Über das Verhalten von Plutonium in Luft sind zahlreiche Veröffentlichungen bekannt. Durch Verfolgen des Pu-238 aus dem SNAP-9A Unfall, bei dem eine Pu-238-Isotopenbatterie verglühte, konnte das Verhalten des Plutoniums in höheren Luftschichten sehr genau beobachtet werden. Die Wahrscheinlichkeit einer Freisetzung von Plutonium aus Herzschrittmachern in höheren Luftschichten ist gering, deshalb soll dieses Problem hier nicht weiter untersucht werden. In bodennahe Luftschichten jedoch kann Plutonium durch Feuer und Überhitzungs-Unfälle, wie auch durch Resuspension (s.S. 9) gelangen.

J. Mishima und L.C. Schwendiman untersuchten die Freisetzung von Plutonium in verschiedener chemischer Form beim Erhitzen bis 1000°C (14,15) und geben die Gewichtsanteile des Plu-

toniums an, die nach dem Erhitzen in der Luft verbleiben. Die Art der Plutonium-Verbindung, Teilchengröße, Geschwindigkeit des Luftstroms und die Temperatur beeinflussen die Menge des in der Luft verbleibenden Plutoniums. Ähnliche Untersuchungen wurden bereits 1963 von K. Stewart beschrieben (101).

6.1. SNAP-9A (System of Nuclear Auxiliary Power)

Am 21. April 1964 verglühte, wahrscheinlich in 46 km Höhe über dem Indischen Ozean, eine Pu-238 betriebene Batterie, die ca. 17 kCi, das sind ca. 1 kg Pu-238 enthielt (2,3,102-105). Es wird angenommen, daß die Batterie völlig zerstört wurde, das Pu-238 verbrannte und die kleinen Partikel verstreut wurden (105). Untersuchungen zur Lokalisierung des Hauptanteils und über das Verhalten des Plutoniums in Abhängigkeit von den Jahreszeiten wurden durchgeführt. Aufgrund dieser Untersuchungen werden ca. 75 % des Pu-238 aus SNAP-9A in der Stratosphäre des südlichen und nur ca. 20 % in der Stratosphäre der nördlichen Hemisphäre vermutet (2,105). Die Verteilung des Pu-238 stimmt überein mit einem Modell, das die Zirkulation über der nördlichen und südlichen Halbkugel in der Stratosphäre in Abhängigkeit von den Jahreszeiten beschreibt.

Die Ablagerung von Pu-238 auf dem Erdboden wird aus Beobachtungen des Pu-238/Pu-239+240-Verhältnisses ermittelt. Die Untersuchungen widersprechen sich insofern, als einerseits bereits 6 Monate nach dem SNAP-9A-Unfall ein erhöhter Pu-238-Gehalt gefunden wurde (103), während andere Autoren bis 1966 eine Verschiebung des Pu-238/Pu-239+240-Verhältnisses nicht klar nachweisen konnten (105-109). Es wird angenommen, daß sich Mitte 1970 bereits 95 % dieses Pu-238 auf dem Erdboden abgelagert hatten (2,3).

7. Zusammenfassung

Im Rahmen der Risikobetrachtung für Herzschrittmacher wurde die Literatur auf die vorhandenen Erfahrungen über das Verhalten von freigesetztem Plutonium ausgewertet.

Die gravierendsten Emissionen waren: die Atombombenexplosionen von New Mexico, Nagasaki und auf dem Nevada-Testgelände, der Absturz von Atombomben tragenden Flugzeugen über Palomares und Thule und Unfälle in der Plutonium-Anlage von Rocky Flats. Im Einzelnen wird das Verhalten von freigesetztem Plutonium auf und im Erdboden, im Wasser und soweit es einen Pu-238-Unfall betrifft, auch in der Luft behandelt.

Bekannt sind Untersuchungen des Resuspensionsverhaltens von Plutonium. Die Resuspension läßt sich für verschiedene Umweltbedingungen durch Resuspensionsfaktoren beschreiben. Die Eindringtiefe des Plutoniums in den Erdboden ist in einigen Fällen gemessen worden. Danach scheint das Plutonium fest an das Bodenmaterial gebunden zu werden und nur sehr langsam zu wandern. Andererseits zeigen Messungen in Tuffsteinboden, daß offensichtlich durch Ritze und Spalte die Kontamination rasch durchsickert. Es liegen aber keine ausreichenden Untersuchungen über den Einfluß der physikalischen und chemischen Beschaffenheit des Plutoniums, des Erdbodens und der Niederschlagsmenge vor, wie auch über den Einfluß von Huminsäuren wenig bekannt ist. Ebenso konnten keine Daten für die vertikale Wanderung bei hoher Kontaminationsdichte ($> 1 \text{ mg/dm}^2$) gefunden werden.

Über die Plutonium-Aufnahme durch Pflanzen die mit und ohne Zusatz von Chelatbildnern auf verschiedenen Böden gezogen wurden, wird mehrfach berichtet. Aus den Angaben kann man schließen, daß Gräser Plutonium nur wenig, Blattpflanzen dagegen mehr aufnehmen. Auch von bestimmten Algenarten wird Plutonium stärker inkorporiert, es wird sogar vorgeschlagen, diese Algen als Plutonium-Kontaminationsindikator zu verwenden. Das Verhalten von Plutonium im Wasser (reines Wasser, Meerwasser, Flußwasser) wird von mehreren Autoren beschrieben. Löslichkeits-, Sedimentations- und Transportverhalten wurden untersucht.

Summary

Within the framework of the hazard consideration for pacemakers the literature has been evaluated with respect to experience available on the behavior of plutonium released.

The most serious emissions had been: the explosions of atomic bombs in New Mexico, Nagasaki and on the Nevada test field, the crash of airplanes carrying nuclear bombs over Palomares and Thule, and accidents taking place in the plutonium facility of Rocky Flats. It is detailed upon the behavior of released plutonium on and in the soil, in water and - as far as an accident involving Pu-238 is concerned - also in the air.

It is known that investigations have been made into the resuspension behavior of plutonium. Resuspension can be described by resuspension factors for various environmental conditions.

The depth of penetration of plutonium into the soil was measured in some cases. According to these measurements plutonium seems to be strongly bound to the soil material and migrate but slowly. On the other hand, measurements performed in tufaceous limestone soil show that the contamination obviously works down quickly through fissures and gaps. However, sufficient studies are not available about the influence exerted by the physical and chemical nature of soil and of plutonium as well as about the amount of precipitations. The influence of humic acid is yet unknown and data on the vertical migration at a high contamination density ($>1 \text{ mg/cm}^2$) could not be found.

Several publications deal with the plutonium uptake by plants cultivated on various soils with and without addition of chelating agents. It can be concluded from the indications that grasses take up little plutonium while the uptake is higher with foliage plants. Plutonium is also incorporated

to a greater extent by specific algae and it is even suggested to use these algae as an indicator of possible plutonium contamination.

The behavior of plutonium in water (pure water, seawater, river water) has been described by several authors. The studies related to the solubility, sedimentation, and transport behavior.

Résumé

Dans le cadre de l'analyse des risques de rythmeurs cardiaques on a exploité la littérature quant aux expériences existantes sur le comportement du plutonium relâché.

Les émissions les plus graves étaient: les explosions de bombes atomiques de New Mexico, de Nagasaki et sur le terrain d'essai de Nevada, la chute sur Palomares et Thule d'avions portant des bombes atomiques et des accidents survenus dans l'installation de plutonium de Rocky Flats. On traite en particulier du comportement du plutonium relâché à la terre, dans le sol, dans l'eau, et dans la mesure où il s'agit d'un accident au Pu 238, dans l'air également.

On connaît des études sur le comportement de resuspension du plutonium. Pour différentes conditions de l'environnement, la resuspension peut être décrite par des facteurs de resuspension.

La profondeur de pénétration du plutonium dans le sol n'a été mesurée que dans certains cas. Il paraît d'après ces mesures que le plutonium est fortement lié à la matière du sol et ne se déplace que très lentement. D'autre part, des mesures faites dans du sol de tuf montrent qu'apparemment la contamination pénètre rapidement à travers des rainures et des fentes. Mais on ne dispose pas d'études suffisantes sur l'influence de la nature physique et chimique du sol et du plutonium ainsi que de la quantité précipitée, et des connaissances sur l'influence d'acides humiques font défaut. De même, on n'a pas pu trouver des données relatives à la migration verticale à des densités de contamination élevées ($> 1 \text{ mg/cm}^2$).

Plusieurs publications traitent du captage du plutonium par des plantes cultivées dans différentes terres avec et sans addition d'agents chélatants. Il résulte des indications que des herbes ne captent que peu de plutonium, mais que par contre des plantes à feuilles en captent davantage. De même, le plutonium est plus fortement incorporé par certaines

espèces d'algues, et l'on propose même d'utiliser ces algues comme indicateur de contamination de plutonium.

Le comportement du plutonium dans l'eau (eau pure, eau de mer, eau de rivière) est décrit par plusieurs auteurs. Le comportement au point de vue solubilité, sédimentation et transport a fait l'objet d'études.

8. Literaturverzeichnis

1. G.P. Dix and Dobry, T.J., Health Physics 22, (1972)
S. 569-74
Critical Parameters in Plutonium Safety Evaluations
2. E.P. Hardy, Krey, P.W. and Volchok, H.L., HASL-250 (1972)
Global Inventory and Distribution of Pu-238 from SNAP-9A
3. E.P. Hardy et al., Nature 241 (1973) No. 5390, S. 444-45
Global Inventory and Distribution of Fallout Plutonium
4. D.C. Hunt, Nuclear Safety, 12, (1971) 2, S. 85-9
Restricted Release of Plutonium - Part 1: Observational
Data
5. R.A. Penneman and Johnson, L.J., Seminar on Radiation
Protection Problems Relating to Transuranium Elements,
Karlsruhe 21.-25. Sept. 1970, Germany
Experience with Handling Transuranium Elements at Los
Alamos
6. Serious Accidents 269, 7 (1966)
Fire during Glovebox Cleanup Leads to \$. 23.000 Damage
Via Contamination Spread
7. Serious Accidents 264, 5 (1966)
Plutonium-Fire Outside of Glovebox Leads to \$ 30.000
Contamination Cleanup Cost
8. Serious Accidents 262, 3 (1966)
Maintenance on Plutonium Machining Coolant Lines Leads
to \$ 17.500 Fire
9. Serious Accidents 293, 8 (1968)
Glovebox Explosion Causes \$ 42.000 Damage and Plutonium-238
Contamination Spread
10. Serious Accidents 241, 1 (1965)
Plutonium Specimen Disintegrates Under Pressure

11. L.A. König, Atompraxis 16, 5 (1970) S. 320-24
Erfahrungen bei der Luftüberwachung auf radioaktive
Aerosole
- 11a L.A. König, 2. Int.Cong. IRPA: Radiation and Man, 3.-8.
Mai (1970), Brighton, England. Health Physics 19, (1970)
No. 1, Experience in Radiation Protection Gained in an
Major Contamination Incident
12. H. Kiefer and Moehrle, G., Seminar on Radiation
Protection Problems Relating to Transuranium Elements,
Karlsruhe 21.-25.9.1970 Germany, EUR 4612 d-f-e
Erfahrungen bei Zwischenfällen mit Transuranen
13. Docket-50139-1 (1972), University of Washington Nuclear
Reactor, Plutonium Contamination Incident of June 13, 1972
14. J. Mishima and Schwendiman, L.C., BNWL-SA-3379 (1970)
5. Midyear Symposium of the Health Physics Society,
Idaho Falls, Idaho, 3.-6.11.1970
Amount and Characteristics of Plutonium Made Airborne
under Thermal Stress
15. J. Mishima and Schwendiman, L.C., American Nucl.Soc. 1969
Winter Meeting, San Francisco, Calif., 1.-4.12.1969 Hinsdale,
Ill., Transactions of the Amer.Nucl.Soc., 12 (1969) No. 2
The Airborne Release of Plutonium During Overheating Incidents
16. B.R. Fish et al., ORNL-NSIC-74 (1972) IX,
Calculation of Doses Due to Accidentally Released
Plutonium from an LMFBR
17. J.E. Ballou et al., Health Physics 13 (1967) S. 1087-92
Comparative Toxicity of Plutonium-238 and Plutonium-239
in the Rat.
18. J.C. Nenot et al., Health Physics 22 (1972) S. 657-65
An Experimental Comparative Study of the Behaviour of
Np-237, Pu-238, Pu-239, Am-241 and Cm-242 in Bone
19. L.J. Mullins et al., 2. Intern.Sympos. on Power from
Radioisotopes, Madrid 29. Mai - 1. Juni 1972; OECD Nuclear
Energy Agency, Characterization and Properties of Medical-
Grade Pu-238 Fuels

20. S.G. Abrahamson in: D.E. Thomas et al., Nuclear Metallurgy, Vol. 14 (New York: Amer. Inst. of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers 1969) 14. Symp. on Materials for Radio Isotope Heat Sources Gatlinburg, Tenn. 2.-4. Okt. 1968 S. 96-108
Properties and Fabrication of Fuel Forms
21. E.P. Hardy and Krey, P.W., LA-4756: Proc. of Environmental Plutonium Symposium, LASL 4.-5.8.1971 S. 37-42
Determining the Accumulated Deposit of Radionuclides by Soil Sampling and Analysis
22. M.C. de Bortoli and Gaglione, P., Health Physics 17 (1969) S. 701-10
Natural and Fallout Radioactivity in the Soil
23. J.P. Vaane, Actinides Review 1 (1969) S. 337-70
Hazards Connected with the Handling of Transuranium Elements and Methods Used for the Protection of Personnel
24. D.E. Patterson, Proc. 18. Conf. on Remote Systems Technology, Washington, D.C., 16.-18.11.1970
Fire Protection Criteria for Nuclear Facilities
25. R.L. Shearin and Phillips C.R., IAEA-Symp., Rapid Methods for Measuring Radioactivity in the Environment 5.-9.7.1971, München, Germany
Contingency Response for Rapid Evaluation of Radiological Pollution from a Space Vehicle Launch Accident
26. G.P. Dix, 2. Intern. Symp. on Power from Radioisotopes, Madrid 29.5.-1.6.1972 OECD Nuclear Energy Agency 1972, S. 779-97
Advances in the Safety of Space Nuclear Power Systems
27. S.E. Bronisz, LA-4914-MS (1972) IV,
Source Term Calculations for Pioneer Radioisotopic Thermoelectric Generators
28. S. Lenkeit, KFK-Ext. Ber. 20/69-1 (1969)
Strahlenschutzprobleme beim Umgang mit Plutonium

29. W.H. Langham, LA-4756, Proc. of Environmental Plutonium Symp. LASL 4.-5.8.1971
Plutonium Distribution as a Problem in Environmental Science
30. J.W. Healy, LA-4558 MS (1971)
Surface Contamination: Decision Levels
31. W.H. Langham et al., LA-1981
Plutonium Dispersal by Accidental or Experimental Low-Order Detonation of Atomic Weapons
32. K. Stewart, Intern. Symp. on Surface Contamination Gatlinburg, Tenn., 8.6.1964
The Resuspension of Particulate Material from Surfaces
33. R.A. Bagnold, Int. J. Air Poll. 2 (1960) S. 357-63
The Re-Entrainment of Settled Dusts
34. I.S. Jones and Pond, S.F., Intern. Symp. on Surface Contamination, Gatlinburg, Tenn., 6.1964
Some Experiments to Determine the Resuspension Factor of Plutonium from Various Surfaces
35. J. Mishima, HW 83668 (1964) Hanford Lab.
A Review of Research on Plutonium Releases During Overheating and Fires
36. D.W. Rhodes, Soil Science 84 (1957) S. 465-70
Adsorption of Plutonium by Soil
37. E.M. Romney, Mork, H.M. and Larson, K.H., UCLA-12-754 (1969) and Health Physics 19 (1970), S. 487-91
Persistence of Plutonium in Soil, Plants and Small Mammals
38. K.H. Larson et al., UCLA 108 (1951)
 α -Activity Due to the 1945 Atomic Bomb Detonation at Trinity, Alamogordo, New Mexico
39. P.H. Gudiksen et al., UCRL-51242 (1972) VI; NSA-26 (1972)-455
Environmental Levels of Radioactivity in the Vicinity of the Lawrence Livermore Laboratory, Jan.-Dec. 1971

40. B.F. Hajek, BNWL-CC-925 (1966)
Plutonium and Americium Mobility in Soils
41. C.W. Christenson and Thomas, R.G., TID 7628 (1961)
S. 248-81
Movement of Plutonium through Los Alamos Tuff
42. C.W. Francis et al., ORNL-4759; Ecological Sciences
Division Annual Progress Report, Period Ending Sept. 30,
1971 S. 9-15
Soil-Plant Relations
43. J.F. Cline, BNWL-714 (1968) S. 8.24-8.25
Uptake of Am-241 and Pu-239 by Plants
44. W.L. Polzer, Proc. of the Rocky Flats Symp. on Safety
in Plutonium Handling Facilities, 13.-16.4.1971 S. 411-29
Solubility of Plutonium in Soil/Water Environments
45. K.C. Knoll, BNWL-860 (1969)
Reactions of Organic Wastes and Soils
46. K.H. Larson et al., UCLA-140 (1951)
The 1949 and 1950 Radiological Soil Survey of Fission
Product Contamination and Some Soil - Plant Interrelationships
of Areas in New Mexico
Affected by the First Atomic Bomb Detonation
47. J.H. Olafson, H. Nishita and Larson, K.H., UCLA 406 (1957)
The Distribution of Plutonium in the Soils of Central and
Northeastern New Mexico as a Result of the Atomic Bomb Test
of July 16, 1945
48. M. Sakanoue and Tsuji, T., Nature, 234 (1971) S. 92-3
Plutonium Content of Soil at Nagasaki
49. M. Sakanoue, Nakaura, M. and Imai, T., IAEA-Symp.
Rapid Methods for Measuring Radioactivity in the Environment,
München 5.-9.7.1971 Germany
Determination of Plutonium in Environmental Samples
50. E.M. Romney and Davis, J.J., UCLA-12-848 (1971)
Ecological Aspects of Plutonium Dissemination in Terrestrial
Environments; What Have We Learned from Nevada Test Site Data?

51. W. Bliss and Dunn L., LA 4756, Proc. of Environmental Plutonium Symp., LASL 4.-5.8.1971 S. 89-92
Measurement of Plutonium in Soil Around the Nevada Test Site
52. W. Bliss and Dunn, L., Proc. of the Rocky Flats Symp. on Safety in Plutonium Handling Facilities, 13.-16.4.1971 S. 320-27
Measurement of Plutonium in Soil Around the Nevada Test Site
53. H.S. Jordan, LA 4756: Proc. of Environmental Plutonium Symp. Held at LASL 4.-5. Aug. (1971) S. 21-24
Distribution of Plutonium from Accidents and Field Experiments
54. L.T. Odland, Thomas, R.G., Taschner, J.C., Kaufman, H.R. and Benson, R.E.,
Proc. of a Symp. Richland, Wash., USA 15.-7.5.1967 S. 256-65
Diagnosis and Treatment of Deposited Radionuclides
Bioassay Experiences in Support of Field Operation
Associated with Widespread Dispersion of Plutonium
55. A. Aarkrog, Health Physics, 20 (1971) 1, S. 31-47
Radioecological Investigations of Plutonium in an Arctic Marine Environment
56. W.C. Hanson, Health Physics, 22 (1972) 1, S. 39-42
Plutonium in Lichen Communities of the Thule, Greenland Region During the Summer of 1968
57. A. Aarkrog, EUR 4800, Int. Symp. "Die Radioökologie, angewendet auf den Schutz des Menschen..." Rom 7.-10.9.1971 S. 1213-18
A Re-Examination of Plutonium at Thule, Greenland, in 1970
58. Serious Accidents 306 (1969)
Fire - Rocky Flats Plant - May 11, 1969
59. Nucleonics Week, 11 (1970) 7, S. 1-2
AEC Says Rocky Flats Plutonium Poses no Danger to Workers or Public

60. Nucleonics Week, 11 (1970) 32, S. 1a-1b
AEC Study Tends to Confirm Nonhazardous Plutonium Levels
Near Rocky Flats
61. P.W. Krey and Hardy, E.P., HASL-235 (1970) IV,
Plutonium in Soil Around the Rocky Flats Plant
62. H.L. Volchok, LA-4756: Proc. of Environmental Plutonium,
Symp. Held at LASL, 4.-5. Aug. (1971) S. 99-103
Resuspension of Plutonium-239 in the Vicinity of Rocky Flats
63. S.E. Hammond, LA-4756: Proc. of Environmental Plutonium,
Symp. Held at LASL, 4.-5. Aug. (1971) S. 25-35
Industrial-Type Operations as a Source of Environmental
Plutonium
64. Nucleonics Week, 13 (1972) 11, S. 8
Rocky Flats Plutonium Air-Concentrations are Higher than
Reported
65. D. Shapley, Science 174 (1971) 4009, S. 569-71
Rocky Flats: Credibility Gap Widens on Plutonium Plant
Safety
66. D. Shapley, Science 174 (1971) 4009, S. 570
Plutonium Cancer Shadow Hangs over Rocky Flats, AEC
67. H.L. Volchok, Knuth, R. and Kleinman, M.T., HASL 246 (1972)
I/2-I/17
Plutonium in the Neighborhood of Rocky Flats, Colorado:
Airborne Respirable Particles
68. B. Nelson, Science 168 (1970) S. 1326-28
Colorado Environmentalists: Scientists Battle AEC and
Army - Plutonium Incident
69. W.C. Bright, Proc. of Rocky Flats Symp. on Safety in
Plutonium Handling Facilities 13.-15.4.1971 S. 316-19
Rocky Flats Environmental Research

70. E.A. Martell et al., Colorado Committee for Environmental Information, Boulder, Colorado, Brief an G.T. Seaborg, Chairman USAEC 13.1.1970
Report of the Dow Rocky Flats Fire: Implications of Plutonium Releases to the Public Health and Safety
71. H.L. Volchok, Knuth, R.H. and Kleinman M.T.,
Health Physics 23 (1972) 3, S. 395-6
The Respirable Fraction of Plutonium at Rocky Flats
72. S.E. Poet and Martell, E.A., Health Physics 23 (1972)
S. 537-48
Plutonium-239 and Americium-241 Contamination in the Denver Area
73. Plutonium Recovery Facility, Rocky Flats Plant, Colorado,
WASH-1507 (1972) II
74. L. Jacobson and Overstreet, R., Soil Science 65 (1948)
S. 129-34
The Uptake by Plants of Plutonium and Some Products of Nuclear Fission Adsorbed on Soil Colloids
75. H. Nishita, Romney, E.M. and Larson, K.H., Agricultural and Food Chemistry 9 (1961) S. 101-06
Uptake of Radioactive Fission Products by Crop Plants
76. D.O. Wilson and Cline, J.F., Nature 209 (1966) S. 941-2
Removal of Pu-239, W-185 and Pb-210 from Soils
77. W.A. Thomas, ORNL-4316 (1968) S. 104-05
Behavior of Curium in Plants
78. W.A. Thomas and Jacobs, D.G., Soil Science 108 (1968)
S. 305-07
Curium Behavior in Plants and Soil
79. S.L. Cummings and Bankert, L., Radiological Health and Data Reports, 12 (1971) 2, S. 83-5
The Uptake of Cerium-144, Promethium-147 and Plutonium-238 by Oat Plants from Soils

80. E.M. Romney Mork, H.M. and Larson, K.H., UCLA-12-815
Annual Progress Report for the Period Ending June 30,
(1971) S. 92
Persistence of Plutonium in Soil, Plants and Small Mammals
81. H. Nishita, Romney, E.M. and Larson, K.G., in E.P. Fowler:
Radioactive Fallout, Soils, Plants, Foods, Man; Elsevier
Publ. Co (1965) S. 55-81
Uptake of Radioactive Fission Products by Plants
82. J.H. Rediske, J.F. Cline and A.A. Seiders, HW-36734 (1955)
The Absorption of Fission Products by Plants
83. V.Q. Hale and Wallace, A., Soil Science 109 (1970) 4,
S. 262-64
Effect of Chelates on Uptake of Some Heavy Metal Radionuclides
from Soil by Bush Beans
84. A. Wallace, 11, Hanford Biology Symp.: The Biological
Implications of the Transuranium Elements, 26.-29.9.1971
Richland, Wash.
Increased Uptake of Am-241 by Plants Caused by the Chelating
Agent DTPA
85. J.V. Panesko, ARH-2401 (1972) III
Mobility of Plutonium Compounds in Simulated Fire
Sprinkler Spray
86. K.C. Pillai, Smith, R.C. and Folsom T.R., Nature 203 (1964)
S. 568-71
Plutonium in the Marine Environment
87. V.E. Noshkin, NYO-2174-132 (1971) 11, Hanford Biology Symp.:
The Biological Implications of the Transuranium Elements,
26.-29.9.1971 Richland, Wash.
Ecological Aspects of Plutonium Dissemination in Aquatic
Environments: What has the Plutonium Data to Tell Us About
Other Transuranics?
Health Physics 22 (1972) S. 537-49

88. K.M. Wong, Noshkin, V.E., Surprenant, L. and Bowen, V.T.,
HASL-227 (1970) S. I/25-I/33
Plutonium-239 in Some Marine Organisms and Sediments
89. V.E. Noshkin and Bowen, V.T., COO-3563-3 (1972) Symp.
on the Interaction of Radioactive Contaminants with the
Constituents of the Marine Environment, Seattle, Wa.,
10-14.7.1972
Concentrations and Distributions of Long-Lived Fallout
Radionuclides in Open Ocean Sediments
90. S.Z. Mikhail and Kubose, D.A., 14. Symp. on Materials
for Radio-Isotope Heat Sources, Proc. of the 1968 Nuclear
Metallurgy Symp. 2.-4.10.1968 Gatlinburg, Tenn. S. 323-54
Corrosion of Fuel Capsules and Release of Radionuclide
Fuels to Seawater
91. D.A. Kubose et al. USNRDL-TR-68-74 (1968)
Radioactivity Release from Radionuclide Power Sources VIIa:
Dissolution Studies of Plutonium Dioxide in the Ocean -
5 Month Exposure
92. G.L. Silver, MLM-1870, TID-4500 (1971)
Plutonium in Natural Water
93. G.L. Silver, MLM-1888; Mound Laboratory Chemistry and
Physics Progress
Report: Oct.-Dec. 1971 (1972) S. 13-14
Plutonium in Natural Waters
94. G.L. Silver, MLM-1903; Mound Laboratory Chemistry and
Physics Progress
Report: Jan.-March 1972 (1972) S. 20-21
Suggestion for the Study of Plutonium in Environmental
Waters
95. J.B. Andelman and Rozzell, T.C., Radionuclides in the
Environment, Advances in Chemistry Series 93, Symp. 155.
Meet. of Am. Chem. Soc. 1.-3.4.1968 San Francisco
Plutonium in the Water Environment: I. Characteristics
of Aqueous Plutonium

96. D. Paine, Johnson, J.E. and Watters, R.L., Proc. of the Rocky Flats Symp. on Safety in Plutonium Handling Facilities, 13.-16.4.1971 S. 407-10
Plutonium Movement in Aquatic Systems: A Review
97. K.M. Wong, Hodge, V.F. and Folson, T.R., LA 4756: (1971) S.93-98
Concentrations of Plutonium, Cobalt and Silver Radionuclides in Selected Pacific Seaweeds
98. K.M. Wong, Burke, J.C. and Bowen, V.T. in Voilleque, Baldwin, B.R.: Health Physics Aspects of Nuclear Facility Siting. Proc. 5th. Ann. Health Physics Soc. Midyear Topical Symp., Idaho Falls, Idaho, NSA-25(1971)-55161
Plutonium Concentration in Organisms of the Atlantic Ocean
99. V.E. Noshkin et al., NYO-2174-130 (1971)
3rd National Symp. on Radiology, Oak Ridge, Tenn. 10.-12.5.1971
Plutonium in North Atlantic Ocean Organisms; Ecological Relationships
100. E.E. Ward, Nature 209 (1966) 5023, S. 625-26
Uptake of Plutonium by the Lobster Homarus Vulgaris
101. K. Stewart, Progress in Nuclear Energy, Series IV, Vol. 5 (1963) Pergamon Press, N.Y.
The Particulate Material Formed by the Oxidation of Plutonium
102. R.B. Korsmeyer, Nuclear Safety 5 (1964) 4, S. 308-09
Progress in Aerospace Nuclear Safety, SNAP Isotopic Space Generators
103. T. Mamuro and Matsunami, T., Science 163 (1969) S. 465-67
Plutonium-238 in Fallout
104. Y. Miyake, Katsuragi, Y. and Sugimura, Y., J. Geophys. Research 75 (1970) 12, S. 2329-30
A Study on Plutonium Fallout
105. P.W. Krey, Science 158 (1967) S. 769-71
Atmospheric Burnup of a Plutonium-238 Generator

106. H.L. Volchok, HASL-227-(1970) S. I/34-I/38
Fallout of Pu-238 from the SNAP-9A Burnup - V
107. COO-3568-1 O.J.
Plutonium Concentration along Fresh-Water Food Chains
of the Great Lakes USA - General Summary of Progress
1971-72
108. M.C. de Bortoli and Gaglione, P., Health Physics
16 (1969) S. 197-204
SNAP-Pu-238 Fallout at Ispra, Italy
109. J. Mishima and L.C. Schwendiman, BNWL 1651, Ptl (1972)
S. 82-87
Airborne Release of Plutonium and its Compounds During
Overheating Incidents
110. J. Mishima and L.C. Schwendiman, BNWL 1751, Ptl (1973)
S. 28-33
Airborne Release of Plutonium and its Compounds During
Overheating Incidents
111. B.L. Schmalz, IDO-10049 (1972) VIII,
Radionuclide Distribution in Soil Mantle of the
Lithosphere as a Consequence of Waste Disposal at the
National Reactor Testing Station
112. P.E. Bramson and J.P. Corley, BNWL-1683 (1972) IV
Environmental Surveillance at Hanford for CY-1971
113. WASH-1520 (DR) (1972)
Contaminated Soil Removal Facility, Richland, Washington,
Environmental Statement
114. D. Ramsden et al., Health Physics 19 (1970) S. 9-17
In-Vivo and Bioassay Results from Two Contrasting Cases
of Plutonium-239 Inhalation
115. W.S. Snyder et al., in Diagnosis and Treatment of
Deposited Radionuclides, Symp. Richland, Wash. 15.-17.5.1967
The Use of Excretion Data to Predict the Systemic Body
Burden of Plutonium

116. W.S. Snyder in Assessment of Radioactive Contamination in Man, IAEA-Symp.-150/35, Wien (1972)
A Method of Interpreting Excretion Data which Allows for Statistical Fluctuation of the Data
117. L.D. Sheidina and E.N. Kovarsdays, UDC 54-168:546.799.4
Translated from Radiokhimiya, Vol. 12 (1970) S. 253/59
118. L.H. Hempelmann et al., LA-5148 (1973) III
Twenty-Seven Years Study at Selected Los Alamos Plutonium Workers
119. R. Gillette, Science 118 (1973) S. 728/30
Radiation Spill at Hanford: The Anatomy of an Accident
120. H. Schüttelkopf, IAEA/SM-180/31
Symp. on Environmental Surveillance Around Nuclear Installations, Warschau 5.-9.11.1973
Environmental Surveillance for Plutonium at the Karlsruhe Nuclear Research Center from 1969 until 1973