

KfK 3418  
August 1984

# **Vorkommen und Verhalten von Tc in der Umwelt (Literaturstudie)**

H. J. Luxenburger, H. Schüttelkopf  
Hauptabteilung Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



**KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE**

**Hauptabteilung Sicherheit**

**KfK 3418**

**Vorkommen und Verhalten von Tc in der Umwelt  
(Literaturstudie)**

**H.J. Luxenburger, H. Schüttelkopf**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe**

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

### Zusammenfassung:

Eine Literaturrecherche wurde über das Vorkommen und das Verhalten von Tc in der Umwelt durchgeführt. Ca. 3600 Publikationen, erschienen zwischen 1925 und 1983, wurden ausgewertet. Die heutigen Kenntnisse über Tc in der Umwelt sind in weiten Bereichen lückenhaft. Viele notwendige Informationen zum Verhalten von Tc in der Umwelt fehlen ganz.

Occurence and Behaviour of Tc in the Environment  
(Literature Review)

### Abstract:

A literature research was performed about the occurrence and the behaviour of Tc in the environment. About 3600 publications, published between 1925 and 1983, were evaluated. The actual knowledge about Tc in the environment within extended regions is fragmentary. A lot of necessary informations about the behaviour of Tc in the environment are lacking completely.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Die Literaturrecherche	1
2. Die Entdeckung und das natürliche Vorkommen von Technetium	2
3. Die nuklearen Eigenschaften von Technetium	4
4. Die chemischen Eigenschaften von Technetium	11
5. Die Analyse von technetiumhaltigen Proben	16
6. Die Überwachung von Technetium in der Abluft, im Abwasser und in der Umgebung kerntechnischer Anlagen	17
7. Die Emission und die Immission von Technetium aus kerntechnischen und nuklearmedizinischen Anlagen	19
7.1 Die Kernwaffenexperimente	19
7.2 Kernkraftwerke	20
7.3 Wiederaufarbeitungsanlagen	20
7.4 Konversions-, Anreicherungs- und Brennstofffabriken	22
7.5 Die Endlagerung der hochaktiven Abfalllösungen	23
7.6 Nuklearmedizinische Institute	23
8. Transport von Technetium in der Umwelt	25
8.1 Transfer Wasser/Lebewesen	25
8.2 Transfer Boden/Pflanze	27
8.3 Transfer Pflanze/Milch, Pflanze/Fleisch und Pflanze/Eier	31
8.4 Technetium in Erdschichten - Mobilität	31
8.4.1 Gesteine	32
8.4.2 Böden	33
8.4.3 Wanderung von Spaltprodukten im Naturreaktor von OKLO, Gabun	34
9. Der Metabolismus von Technetium	35
Literatur	37

## 1. Die Literaturrecherche

Die Chemical Abstracts wurden von 1925 bis 1949, die Nuclear Science Abstracts von 1950 bis 1975 und die Energy Research Abstracts von 1976 bis März 1983 auf Publikationen über Technetium ausgewertet. Insgesamt wurden ca. 3.600 Publikationen erfaßt. Nur ca. 200 davon waren aber von radioökologischem Interesse. Eine Publikation wurde dann als radioökologisch interessant angesehen, wenn sie sich mit den Emissionen von Technetium in die Umwelt, mit dem Vorkommen und der Bestimmung von Technetium in der Umwelt und den Transferprozessen von Wasser und Boden zu Lebewesen auseinandersetzt. Außerdem wurden in die radioökologisch interessanten Arbeiten solche Publikationen einbezogen, die sich mit der Chemie des Technetiums in der Umwelt und in begrenztem Maße mit dem Metabolismus des Technetiums im menschlichen Körper befaßten.

Aus den erfaßten Publikationen geht hervor, daß radioökologische Untersuchungen über Technetium vor 1976 praktisch nicht erfolgten. Die in diesem Bericht angegebenen Literaturstellen sind im allgemeinen Beispiele, wobei häufig versucht wurde, neuere und Arbeiten mit vielen Referenzen zu zitieren.

## 2. Die Entdeckung und das natürliche Vorkommen von Technetium

### Die Entdeckung

Da das periodische System der Elemente von D.I. Mendeleev im 19. Jahrhundert bereits nennenswert mit bekannten Elementen besetzt werden konnte, konnten die chemischen Eigenschaften unbekannter Elemente in vielen Fällen sehr präzise vorhergesagt werden. Das Element mit der Atomnummer 43 war unbekannt und wurde Eka-Mangan genannt, da es in die gleiche Gruppe wie das Mangan eingeordnet werden konnte [1]. Das Element mit der Atomnummer 43 wurde vermeintlich entdeckt und benannt 1846 als Ilmenium [2-8], 1877 als Dawium [9-11], 1896 als Lucium [17] und 1908 als Nipponium [13]. Nach diesen Fehlschlägen berichteten W. Noddak, I. Tacke und O. Berg [14-17] 1925 über die Entdeckung der Elemente mit den Atomnummern 43 und 75 in Pt-Erzen und Columbit. Sie schlugen für diese Elemente die Namen Masurium und Rhenium vor. In den folgenden Jahren wurde die Identifizierung von Rhenium mehrfach bestätigt. Die Entdeckung des Elements mit der Atomnummer 43 erwies sich als ein Irrtum [18-21], obwohl nicht nur die Chemie, sondern auch der wirtschaftliche Einsatz z. B. von der Siemens und Halske AG beschrieben wurden [22-27].

C. Perrier und E. Segré fanden 1937 bei der Bestrahlung von Molybdän mit Deuteronen das Element mit der Atomnummer 43 und schlugen den Namen "Technetium" (technetos = künstlich, griechisch) vor [28-32]. In den folgenden Jahrzehnten wurden viele Isotope des Elements Technetium, das kein stabiles Radionuklid aufweist, im Zyklotron und später im Kernreaktor hergestellt. Durch Kernspaltung von Uran wurden 1948 mg-Mengen von Tc-99 [33] und 1950 g-Mengen hergestellt [34]. Zur Zeit werden jährlich kg-Mengen produziert [35]. Bis zum Jahr 2000

erwartet man eine nukleare Energieproduktion von  $10^7$  MWe/a und daher bei einem Abbrand von 36 000 MWd/t von  $2,8 \cdot 10^5$  kg [36]. Allgemeine Beschreibungen der Entdeckung des Elements Technetium (und des Rheniums) sind enthalten in [22, 37-39].

### Das natürliche Vorkommen

In den dreißiger Jahren waren die Halbwertszeiten der Tc-Isotope nicht bekannt. Man nahm aber an, daß Tc-98 ein besonders langlebiges oder ein stabiles Radionuklid des Technetiums darstellte. So vermutete man, daß von der Nukleogenese stammendes Technetium in geeigneten Mineralien zu finden sein müßte.

Bei der Suche nach Tc-98 waren eine Reihe von Verfassern erfolgreich. Als Nachweismethode wurde die Neutronenaktivierung von Tc-98 angewandt [40-46]. Spätere sorgfältigere Untersuchungen konnten aber die Existenz von Tc-98 in keinem Mineral bestätigen [47]. Da die Halbwertszeit von Tc-98 nur  $1,5 \cdot 10^6$  a beträgt, ist die Existenz dieses Isotops auf der Erde als Folge der Nukleogenese vollständig auszuschließen.

Durch die Spontanspaltung von U-238 und durch die neutroneninduzierte Spaltung von U-235 in Uranerzen entstehen Spaltprodukte. Das langlebige Isotop Tc-99 konnte in guter Übereinstimmung mit der Theorie in verschiedenen Pechblenden identifiziert werden [48, 49].

Technetium wurde in der Sonne identifiziert [50]; dies stellte sich als Irrtum heraus [51, 52]. Die Entdeckung von Technetium in vielen Sternen wurde vielfach bestätigt [53-62]. Der Nachweis der Existenz von Technetium in den Sternen ist wichtig für die später aufgestellte Theorie der Nukleogenese.

### 3. Die nuklearen Eigenschaften von Technetium

#### Die Isotope des Technetiums

Die Suche nach dem Element Technetium in der Umwelt hat sehr früh die Frage nach der Stabilität der Isotope des Technetiums aufgeworfen. Untersuchungen dieses Gegenstandes werden dargestellt in [61-66]. Untersuchungen der Stabilitätskurven zeigen, daß nur die Technetiumkerne mit der Massenzahl 97 und 99 stabil sein sollten [64-66]. Nach der Mattauch'schen-Regel können aber niemals zwei Isobare stabil sein, wenn sich ihre Kernladung nur um eine Einheit unterscheidet. Wie aus Tab. 1 zu ersehen ist, gibt es unter Berücksichtigung der Matauch'schen-Regel keine stabilen Technetiumisotope. Wenn auch die Isotope mit den Massenzahlen 97, 98 und 99 relativ langlebig sind, wurde trotzdem die theoretische Erwartung durch die späteren Untersuchungen voll bestätigt.

Tabelle 1: Isotope von Molybdän, Technetium und Ruthenium

Element	Massenzahl								
	94	95	96	97	98	99	100	101	102
Mo	S	S	S	S	S	$\beta^-$	S	$\beta^-$	$\beta^-$
Tc	EC	EC	EC	EC	$\beta^-$	$\beta^-$	$\beta^-$	$\beta^-$	$\beta^-$
Ru	EC, $\beta^+$	EC, $\beta^+$	S	EC	S	S	S	S	S

S = stabil, EC = Elektroneneinfang,  $\beta^+$ ,  $\beta^-$  =  $\beta$ -Zerfall

Tabelle 2: Technetium-Isotope [67-71]

Massen- <sup>1)</sup> zahl/An- regungs- zustand	Halbwerts- zeit	Art des radioak- tiven Zerfalls	Energie der Strahlung in MeV		Produktions- prozeß der Isotope	Litera- tur
			$\beta$	$\gamma$		
90/m	50 s	$\beta^+$	-	0,948 1,054		
90/g	7,9 s	$\beta^+$	7,9	0,948		
91/m	3,3 min	$\beta^+$	-	0,503		
91/g	3,14 min	$\beta^+$	5,2	2,451 1,640 1,605		
92 /g	4,4 min	$\beta^+$ , EC	4,2	1,510 0,773 0,329 0,148	Mo (p, n) Mo (d, 2n)	
93 /m	43,5 min	EC, I	-	0,39 2,66	Mo (d, n)	[72]
93 /g	2,7 h	EC, $\beta^+$	0,82 1,67	1,35 1,49	Mo (d, n) Mo (p, $\gamma$ )	[72]
94 /m	53 min	EC, I, $\beta^+$	0,56 2,41	0,874 1,85	Mo ( $\alpha$ , 2n) Nb ( $\alpha$ , 3n)	[72,73] [74]
94 /g	4,9 h	EC, $\beta^+$	0,9 2,41	0,705 0,846 0,874	Mo (p, n) Mo (d, 2n) Ru-94 $\beta^+$ Nb ( $\alpha$ , 3n)	[75] [74]
95 /m	60 d	I, EC, $\beta^+$	0,477 0,68	0,204 0,584 0,788 0,837	Mo (d, 2n)	[76-78]
95 /m	20 h	EC	-	0,765 0,84	Mo (d, 2n)	[72,77]
96 /m	52 min	I	-	0,034	Mo (p, n) Mo (d, 2n)	
96 /g	4,3 d	EC	-	0,770 0,800 0,840 1,115	Nb ( $\alpha$ , n) Mo (d, 2n) Mo (d, n) Mo (p, n)	[79] [78-79]
97 /m	91 d	EC	-	0,090 0,099	Mo (d, 2n) Mo (d, n) Mo (d, n) Ru (EC)	[77] [77]

Tabelle 2: Fortsetzung

Massen- <sup>1)</sup> zahl./An- regungs- zustand	Halbwerts- zeit	Art des radioak- tiven Zerfalls	Energie der Strahlung in MeV		Produktions- prozeß der Isotope	Lite- ratur
			$\beta$	$\gamma$		
97 /g	2,6 10 <sup>6</sup> a	EC	-	-	Mo (d, 2n) Tc-97m (I)	[80]
98 /g	4,2 10 <sup>6</sup> a	$\beta^-$	0,30 -	0,74 0,65	Ru (n, p) Mo (p, n) Mo (d, n)	[80] [81]
99 /m	6,0 h	I	-	0,142	Mo-99 $\beta^-$ Ru (n, p) Th (f, $\gamma$ )	
99 /g	2,12 10 <sup>5</sup> a	$\beta^-$	0,292	-	U (f, $\gamma$ ) Mo $\beta^-$ Tc (I) U (f, $\gamma$ ) Mo-99 $\beta^-$	
100 /g	15,8 s	$\beta^-$	2,20 2,88 3,38	0,542 0,60	Mo (n, p) Tc (n, $\gamma$ ) Ru-103 (n, $\alpha$ )	[82] [83]
101 /g	14,2 min	$\beta^-$	1,4	0,307	Mo (d, n) Ru ( $\gamma$ , p) U (f, $\gamma$ ) Mo $\beta^-$ Ru (n, np) U (d, f, $\gamma$ )	[84] [85]
102 /m	4,3 min	$\beta^-$	2	0,473	Ru (n, p) U (d, f, $\gamma$ )	[84]
102 /g	5,3 s	$\beta^-$	4,2		U (f, $\gamma$ ) Mo $\beta^-$	
103 /g	54,2 s	$\beta^-$	2,0 2,2	0,135 0,215 0,350	Ru (n, np) U (f, $\gamma$ )	[84] [73]
104 /g	18,2 min	$\beta^-$	1,8 2,4	0,36 0,89	Mo (d, x n) Ru (d, x n)	[73, 87]

<sup>1)</sup> m = metastabil; g= Grundzustand

Zur Zeit kennen wir 21 Technetium-Isotope. Die Massenzahl, die Halbwertszeit, die Art des radioaktiven Zerfalls, die Strahlung, der Produktionsprozeß und die Literaturstellen werden in Tab. 2 wiedergegeben. Die meisten Isotope des Technetiums wurden durch Bestrahlung von Molybdän mit Deuteronen und Protonen oder durch Bestrahlung von Molybdän und Ruthen mit Neutronen dargestellt [89-102].

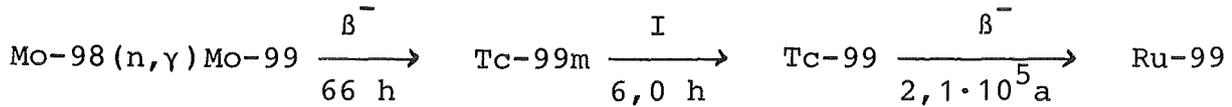
### Die Produktion wichtiger Technetium-Isotope

Die wichtigsten Isotope des Technetiums sind Tc-95m, Tc-97m, Tc-99m und Tc-99. Die ersten beiden werden durch die Bestrahlung von Molybdän mit Deuteronen und Protonen hergestellt; in Tab. 3 sind die Einfangquerschnitte für 10,2-MeV-Deuteronen durch Molybdän-Isotope wiedergegeben.

Tabelle 3: Einfangquerschnitte von 10,2-MeV-Deuteronen durch Mo-Isotope

Stabile Mo-Isotope	Einfangquerschnitt in barn	Gebildete Tc-Isotope
Mo-95	1,00	Tc-95m
Mo-95	13,3	Tc-95
Mo-96	3,3	Tc-96m
Mo-97	2,4	Tc-97m
Mo-98	12	Tc-98

Tc-99m wird im wesentlichen durch Bestrahlung von MoO<sub>3</sub> mit Neutronen produziert nach:



Die aufgebaute Mo-99-Aktivität im Molybdän-Target wird berechnet nach:

$$A = 5,2 \cdot 10^{-9} \phi (1 - e^{-0,248 \cdot t}) \quad (1)$$

- A = Spezifische Aktivität von Mo-99 in  $\mu\text{Ci/g}$   
 $\phi$  = Neutronenflußdichte in  $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$   
t = Bestrahlungsdauer in d

Eine Reihe von chemischen Methoden für die Abtrennung von Tc-99m vom Targetmaterial Molybdän oder auch vom Targetmaterial Uran wurde beschrieben [103-112]. Vor allem für den medizinischen und wissenschaftlichen Bedarf wird das produzierte Mo-99 in einer geeigneten chemischen Form gelagert und das rasch nachgebildete Tc-99m durch entsprechende chemische Methoden immer wieder abgetrennt. Ein solcher Tc-99m-Generator ist im allgemeinen bis zu zwei Wochen benützbar.

Eine große Zahl von Technetium-Isotopen, vor allem aber Tc-99, werden durch die Spaltung von Uran, Thorium und Plutonium dargestellt. In Tab. 4 werden die Spaltausbeuten für die wichtigsten bei der U-235-Spaltung erhaltenen Technetium-Isotope angegeben. In Tab. 5 werden die Spaltausbeuten für

Tc-99 für die Spaltung verschiedener schwerer Kerne mit Neutronen unterschiedlicher Energie angegeben. Eine allgemeine Gleichung für den Aufbau von Tc-99 in einem Kernreaktor durch die Spaltung von U-235 und der während des Betriebes des Kernreaktors gebildeten Isotope Pu-239 und Pu-241 wird in [113] angegeben.

$$N_{\text{Tc}} = \frac{A}{6,02 \cdot 10^{23} \cdot 100 (\sigma_c^{235} - \sigma_\gamma^{\text{Tc}})} \text{ in mg/kg Uran} \quad (2)$$

$$A = 99 \cdot 10^3 \cdot N_{\text{O}}^{235} \cdot \sigma_f^{235} (1+\beta) \cdot \delta^{\text{Tc}} [1 - e^{-(\sigma_c^{235} - \sigma_\delta^{\text{Tc}}) \psi \cdot t}] \cdot e^{-\sigma_\delta^{\text{Tc}} \cdot \psi \cdot t}$$

- $N_{\text{O}}^{235}$  = U-235-Kerne in 1 kg Uran
- $\sigma_c^{235}, \sigma_f^{235}$  = Einfang- und Spaltquerschnitt für U-235 in  $\text{cm}^2$
- $\psi \cdot t$  = Neutronenfluß in  $\text{cm}^{-2}$
- $\beta$  = Verhältnis der Spaltungen von Pu-239+Pu-241 zu denen von U-235
- $\delta^{\text{Tc}}$  = Spaltausbeute von Tc-99 (für U-235, Pu-239 und Pu-241 als gleich genommen)

Die Ergebnisse dieser Formeln stimmen weitgehend mit den Meßwerten überein. Die Abtrennung des Tc-99 aus Spaltprodukten wird in einer großen Zahl von Publikationen beschrieben wie zum Beispiel in [114-126].

Tabelle 4: Spaltausbeuten der Tc-Isotope bei der durch thermische Neutronen induzierten U-235-Spaltung [70]

Technetium-Isotope	Spaltausbeute in %
Tc-99	6,07
Tc-101	5,19
Tc-102	4,34
Tc-103	3,03
Tc-104	1,93
Tc-105	0,97
Tc-107	0,15

Tabelle 5: Bildung von Tc-99 während der Kernspaltung [128]

Isotop, das gespalten wird	Neutronenenergie	Spaltausbeute in %
Th-232	schnell	2,7
Th-232	8 MeV	3,1
U-233	thermisch	4,8
U-235	thermisch	6,06
U-235	14 MeV	5,17
U-238	schnell	6,3
Pu-239	thermisch	5,9
Pu-239	schnell	5,9

#### 4. Die chemischen Eigenschaften von Technetium

Technetium kann in den Wertigkeiten zwischen -1 und +7 auftreten [129]. Es bildet eine Vielzahl von Komplexen und ist mit einer Reihe von organischen Lösungsmitteln unter verschiedenen chemischen Bedingungen extrahierbar [130-159]. Technetium bildet flüchtige Verbindungen [160-162] und sein Verhalten gegenüber Ionenaustauschern ist entsprechend seinen verschiedenen Wertigkeitsstufen äußerst differenziert [163-185]. Technetium fällt mit vielen inaktiven Trägern mit und bildet selbst viele schwerlösliche Verbindungen [186-190].

Es kann daher hier nicht Ziel sein, die gesamte Chemie des Technetiums zu beschreiben. Vielmehr soll nur der Teil der Technetiumchemie berührt werden, der in der Kerntechnik von Bedeutung sein könnte und der das Verhalten von Technetium in der Umwelt bestimmt.

##### Sauerstoffverbindungen [191-196]

Von den verschiedenen Oxidationsstufen des Technetiums sind Tc(VII) und Tc(IV) die wichtigsten und die in der Umwelt stabilsten.  $\text{TcO}_2$  ist ein Technetiumoxyd, das schwarz und weitgehend unlöslich ist. Das Oxid  $\text{Tc}_2\text{O}_7$ , das zweite wichtige Oxid des Technetiums, ist eine hellgelbe kristalline Substanz, nennenswert flüchtig und bildet bei Kontakt mit Wasser die Verbindung  $\text{HTcO}_4$ .

Diese Säure dissoziiert zum  $\text{TcO}_4^-$  -Ion, welches bei Raumtemperatur, oxidierenden Bedingungen und neutralem pH extrem stabil und ausgesprochen wasserlöslich ist.

Für die Abhängigkeit des Dampfdruckes von  $Tc_2O_7$  von der Temperatur gilt:

$$\text{Festes } Tc_2O_7: \quad \lg p = 18,279 - \frac{7205}{T} \quad (3)$$

$$\text{Flüssiges } Tc_2O_7: \quad \lg p = 8,999 - \frac{3571}{T} \quad (4)$$

Schmelzpunkt: 119,5 °C

Siedepunkt: 310,5 °C

p in Torr

T in K

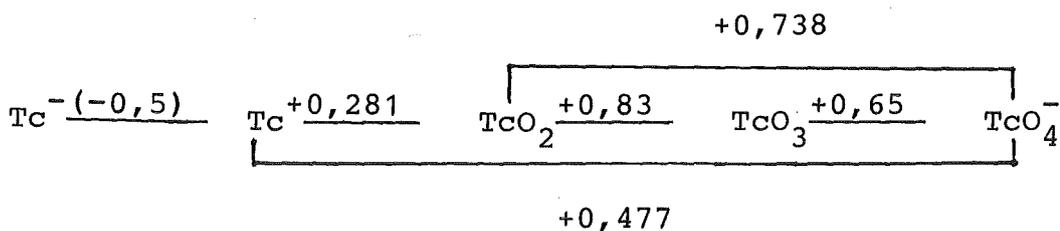
Auch  $HTcO_4$  ist eine flüchtige Verbindung. Für ihren Dampfdruck gilt:

$$\text{Wasserfreies } HTcO_4: \quad \lg p = 8,207 - \frac{2395}{T} \quad (5)$$

$$\text{Gesättigte wäßrige Lösung: } \lg p = 8,201 - \frac{2375}{T} \quad (6)$$

$TcO_2$  erhält man unter reduzierenden Bedingungen oder durch Erhitzen von Ammoniumpertechnetat. Dieses ist bei Raumtemperatur und neutralen Bedingungen stabil, wird aber unter oxidierenden Bedingungen leicht in  $Tc_2O_7$  umgewandelt.

In wäßrigen Lösungen sind die Normalredoxpotentiale wichtig. Die Normalredoxpotentiale in saurer Lösung sind:



### Sulfide

Analog zu den wichtigsten Oxiden existieren die Sulfide  $\text{Tc}_2\text{S}_7$  und  $\text{TcS}_2$ . Das dunkelbraune  $\text{Tc}_2\text{S}_7$  bildet sich in saurer Lösung aus  $\text{TcO}_4^-$  durch  $\text{H}_2\text{S}$ . Die Sulfide sind unlöslich in Wasser und sauren Lösungen.

### Fluoride [197-203]

Die wichtigsten Fluoride des Technetiums sind die Verbindungen  $\text{TcF}_6$ ,  $\text{TcF}_5$  und  $\text{TcO}_3\text{F}$ .  $\text{TcF}_6$  und  $\text{TcF}_5$  bilden sich, wenn Technetium mit elementarem Fluor reagiert. Das goldgelbe  $\text{TcF}_6$  hat einen Schmelzpunkt von  $37,4\text{ }^\circ\text{C}$  und einen Siedepunkt von  $55,3\text{ }^\circ\text{C}$ .

Der Dampfdruck beträgt für:

$$\begin{array}{l} \text{Festes } \text{TcF}_6 \\ (-16,32 \text{ bis } -5,3\text{ }^\circ\text{C}): \quad \lg p = - \frac{3564,8}{T} - 10,787 \cdot \lg T + 41,1252 \end{array}$$

$$\begin{array}{l} \text{Festes } \text{TcF}_6 \\ (-5,3 \text{ bis } 37,4\text{ }^\circ\text{C}): \quad \lg p = - \frac{2178,0}{T} - 2,295 \cdot \lg T + 15,33427 \end{array}$$

$$\begin{array}{l} \text{Flüssiges } \text{TcF}_6 \\ (37,4 \text{ bis } 51,67\text{ }^\circ\text{C}): \quad \lg p = - \frac{2404,9}{T} - 5,8036 \cdot \lg T + 24,8087 \end{array}$$

Das gelbe  $\text{TcF}_5$  bildet sich bei der Produktion von  $\text{TcF}_6$  als Nebenprodukt und ist stabil bis etwa  $60\text{ }^\circ\text{C}$ ; danach erfolgt Zersetzung. Läßt man  $\text{TcO}_2$  mit  $\text{F}_2$  reagieren, erhält man gelbes  $\text{TcO}_3\text{F}$ . Sein Schmelzpunkt ist  $18,3\text{ }^\circ\text{C}$  und sein Siedepunkt liegt bei ca.  $100\text{ }^\circ\text{C}$ . Bei Raumtemperatur ist die Verbindung stabil; mit  $\text{F}_2$  wird es in  $\text{TcF}_6$  umgewandelt.

Der Dampfdruck beträgt für:

Festes  $\text{TcO}_3\text{F}$   
(-8,78 bis 18,28 °C):  $\lg p = 12,448 - \frac{3239,4}{T}$

Flüssiges  $\text{TcO}_3\text{F}$   
(18,28 bis 51,82 °C):  $\lg p = 8,417 - \frac{2064,6}{T}$

### Technetium in $\text{HNO}_3$ -saurer Lösung

In  $\text{HNO}_3$ -saurer Lösung liegt Technetium als Tc(VII) vor; die chemische Verbindung ist  $\text{HTcO}_4$  bzw. dissoziiert zum Pertechnetat-Ion. Die Säurekonstante von  $\text{HTcO}_4$  beträgt  $K_S = 10^8$  [306, 307].

Technetium kann aus basischen, sauren und neutralen Lösungen mit Alkoholen, Ketonen, Äthern, Estern, organischen Phosphorverbindungen und organischen Stickstoffverbindungen extrahiert werden. Aus 1 M  $\text{HNO}_3$  ist die Extraktion in Tributylphosphat > 0,1 M Trioctylamin in Cyclohexan > Cyclohexanon > Cyclohexanol > 0,1 M Trioctylphosphinoxid in Cyclohexan. Mit wachsender  $\text{HNO}_3$ -Konzentration nimmt der Verteilungskoeffizient zwischen organischer und wäßriger Phase bis zu einem Maximum zu und nimmt dann exponentiell ab. Das Maximum liegt bei Cyclohexanol bei 1 M  $\text{HNO}_3$ , in Trioctylphosphinoxid bei 0,1 M  $\text{HNO}_3$  und bei Tributylphosphat ebenfalls bei niedrigen  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen. Der Verteilungskoeffizient nimmt mit wachsender Konzentration des organischen Extraktionsmittels in einem inerten Lösungsmittel zu. Im allgemeinen wird durch eine Erhöhung der Salzkonzentration in der wäßrigen Phase der Verteilungskoeffizient des Technetiums zwischen organischer und wäßriger Phase erhöht.

Dies gilt auch für TBP; Ausnahmen sind lösliche Salze der  $\text{HClO}_4$ . Der Einfluß verschiedener Nitratre in einmolarer Konzentration auf den Verteilungskoeffizient zwischen Tributylphosphat und der wäßrigen Phase wird in Tab. 6 wiedergegeben [205-211].

Detaillierte Beschreibungen der Chemie des Technetiums sind zu entnehmen aus [212-226].

Tabelle 6: Verteilung von  $\text{TcO}_4^-$  zwischen wäßrigen Lösungen und Tributylphosphat [204]

Gelöste Verbindung, 1 Mol/l	Verteilungskoeffizient
$\text{HNO}_3$	28,3
$\text{LiNO}_3$	14,7
$\text{NH}_4\text{NO}_3$	4,6
$\text{NaNO}_3$	2,2
$\text{KNO}_3$	1,1
$\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$	15,6
$\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$	5,4
$\text{Al}(\text{NO}_3)_3$	4,4

## 5. Die Analyse von technetiumhaltigen Proben

Die Produktion von Tc-99 in großen Mengen bei der Kernspaltung, die interessanten Eigenschaften von Technetium beim Korrosionsschutz und auf dem Gebiet der Supraleitung, sein Einsatz als Betastrahlenquelle in Medizin und Forschung, machen analytische Methoden für Technetium für sehr unterschiedliche Konzentrationsbereiche notwendig. Der Aufschluß technetiumhaltiger Proben erfolgt im allgemeine oxidierend mit  $\text{HNO}_3$ , mit Königswasser, mit  $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{O}_2$  und anderen Gemischen oxidierender Säuren. Da Technetium unter diesen Bedingungen flüchtig ist, darf ein solcher Aufschluß nur unter Rückfluß erfolgen. Eine andere Methode kleinere Proben aufzuschließen, ohne Technetium zu verlieren, ist die  $\text{Na}_2\text{O}_2$ -Schmelze.

Hohe Konzentrationen von Technetium werden gravimetrisch oder durch Titration und mittlere Konzentrationen durch Photometrie, Emissionsspektrometrie, Atomabsorptionsspektrometrie, Polarographie und andere elektrochemische Methoden bestimmt [223-226, 227-232]. Extrem niedrige Konzentrationen können bestimmt werden durch die Massenspektrometrie [233-240], die Neutronenaktivierungsanalyse [241-246], die Flüssigszintillationsspektrometrie [247-249] und durch die Betaaktivitätsmessung nach geeigneter Präparation der Technetiumspuren [250-255]. Ein großer Teil der Analysemethoden für Technetiumspuren wurde entwickelt zu dessen Nachweis in der Umwelt [234-240, 248 und 254].

## 6. Die Überwachung von Technetium in der Abluft, im Abwasser und in der Umgebung kerntechnischer Anlagen

Während Meßmethoden für die Isotope Tc-99m und Tc-99 weitgehend untersucht wurden, gibt es praktisch keine publizierten Methoden zur Probenahme von Technetiumverbindungen in Abluft und Abwasser. Offensichtlich nur geplante und komplizierte Methoden werden in [247] und [256] beschrieben. Technetium wird bei den heute angewandten Methoden der Abluft-, Abwasser- und Umgebungsüberwachung nicht erfaßt.

### Die Abluftüberwachung

Die Abluft wird mit Aerosolfiltern, Aktivkohlepatronen für Jod und Anlagen zur Tritiummessung in der Luftfeuchte überwacht. Tritt Technetium als Gas auf, wird es von den Aerosolfiltern nicht zurückgehalten; es ist aber zu erwarten, daß es auf der Aktivkohle adsorbiert wird. Da Tc-99 - das in der Kerntechnik wichtigste Technetiumisotop - ein reiner Betastrahler ist, wird es bei der nachfolgenden Gammaskopie auf Jodisotope nicht erfaßt. Die Messung des Tritiums wird wegen der starken Unterschiede der Betaenergien und der im Vergleich niedrigen Aktivität des Tc-99 kaum beeinflusst werden.

### Die Abwasserüberwachung

Bei der Abwasserüberwachung erfolgt die Messung der Alpha- und Betaaktivität an eingedampften Proben, die der Gammastrahler durch Gammaskopie und die des Tritiums in Destillaten. Beim Eindampfen von Wasserproben wird 100 °C erreicht und im Augenblick des Trocknens überschritten. Durch diese Probenpräparation kann Tc-99 aus der Probe verdampfen. Für die Gammaskopie und die Tritiummessung für den Fall, daß Tc-99 destilliert wird, gilt das oben gesagte.

### Die Umgebungsüberwachung

Die Überwachung von Umgebungsproben erfolgt durch Alpha- und Betaaktivitätsmessungen, durch Gammaskpektrometrie und durch Tritiummessungen in H<sub>2</sub>O-Proben der Umgebung. Bei der Alpha- und Betaaktivitätsmessung werden die Proben im allgemeinen verascht, in jedem Fall aber getrocknet, bevor sie ausgemessen werden. Dabei kann ein Verlust erfolgen. Für die Gammaskpektrometrie und die Tritiummessung gilt das oben gesagte.

## 7. Die Emission und die Immission von Technetium aus kerntechnischen und nuklearmedizinischen Anlagen

Der natürliche Untergrund von Tc-99, und dieses ist das in der Kerntechnik einzig wichtige Radionuklid, ist bedingt durch die Spontanspaltung der Uranspuren in der Umwelt und durch die neutroneninduzierte Kernspaltung von U-235. Diese Tc-99-Konzentrationen sind unmeßbar klein.

Durch die Kernwaffenexperimente wurde der Tc-99-Gehalt der Umwelt angehoben. Wegen der hohen Flüchtigkeit von Technetium-Verbindungen, die in der Kerntechnik von Bedeutung sind, kann Technetium mit dem Abgas emittiert werden. In Anbetracht seiner guten Löslichkeit in wäßrigen Systemen ist es in den Abwasserströmen der Kerntechnik zu erwarten. In der Nuklearmedizin werden hohe Aktivitäten von Tc-99m eingesetzt, und da dieses in Tc-99 zerfällt, ist aus den Produktionsanlagen und den nuklearmedizinischen Anlagen sowie in den häuslichen Abwässern eine Tc-99-Emission zu erwarten.

### 7.1 Die Kernwaffenexperimente

Erste Versuche in Washington, USA, Tc-99 in der bodennahen Atmosphäre zu bestimmen, ergaben Werte  $< 6 \text{ aCi/m}^3$ . In der bodennahen Atmosphäre bei Richland, Washington, wurden Werte zwischen 3 und 180  $\text{aCi/m}^3$  gemessen [257-259]. In Niederschlägen wurden Tc-99-Konzentrationen von  $0,14 \cdot 10^{-2}$  bis  $7,1 \cdot 10^{-2}$   $\text{pCi/l}$  bestimmt. An anderer Stelle wurden Werte von  $1,8 \cdot 10^{-3}$  bis  $3,6 \cdot 10^{-2}$   $\text{pCi/l}$  gemessen. In Japan wurde in der Zeit zwischen 10. und 14. Januar 1972 Tc-99m in Regen und in trockenem Fallout nach einem chinesischen Atombombenexperiment qualitativ identifiziert [260-262]. Eine einzige Publikation

ist den Verfassern bekannt, in der Tc-99 in Pflanzen bestimmt wurde [240]. Die Tc-99-Konzentrationen lagen zwischen 1,7 und 35 fCi/g Trockengewicht; außerdem werden Werte für die Tc-99-Kontamination von Pflanzen vor dem Beginn nuklearer Kernwaffenexperimente angegeben. In [263] wird als kernwaffenbedingte Kontamination der Erde ein Wert von 0,17 pCi/kg Trockengewicht angegeben.

## 7.2 Kernkraftwerke

Im Kernbrennstoff selbst wurde beobachtet, daß Technetium sich durch den Brennstoff in den Ringraum zwischen dem oxidischen Brennstoff und der Brennstabhülle bewegt. Weisen die Brennstäbe Haarrisse auf, wird ein Teil des im Ringraum befindlichen Technetiums in das Primärkühlmittel freigesetzt werden. Nach [264-266] ist mit einer untergeordneten Freisetzung von Tc-99 in die Umwelt im Bereich von einigen nCi/a zu rechnen. Im Vorfluter des Argonne National Laboratory, im Sawmill Creek, wurde ein Mittelwert von 0,9 pCi Tc-99/l gemessen. Es ist nicht sicher, ob diese Tc-99-Kontamination auf Kernreaktoren oder andere nukleare Tätigkeiten im Bereich des Argonne National Laboratory zurückzuführen ist.

## 7.3 Wiederaufarbeitungsanlagen

Die heutigen Wiederaufarbeitungsanlagen arbeiten nach dem PUREX-Prozeß, einem Verfahren, bei dem die Kernbrennstoffe Uran und Plutonium in  $\text{HNO}_3$  gelöst werden und mit Tributylphosphat extrahiert werden. Im folgenden werden andere Konzepte der Wiederaufarbeitungstechnik nicht berücksichtigt. Untersuchungen zum Verhalten von Technetium bei der Extraktion aus  $\text{HNO}_3$ -saurer Lösung mit Tributylphosphat ergaben relativ hohe Verteilungskoeffizienten für Technetium, allerdings in Abhängigkeit von der  $\text{HNO}_3$ -Konzentration, der TBP-

Konzentration in der organischen Phase und von der Extraktionstemperatur [268-271].

Angaben über die Freisetzungen von Technetium aus Wiederaufarbeitungsanlagen streuen über einen weiten Bereich. Nach [272, 273] wird die winzige Emission von 45  $\mu\text{Ci}$  Tc-99/a aus einer Wiederaufarbeitungsanlage erwartet. Nach [274, 275] wird eine Jahresemission von 0,14 Ci/a erwartet. Nach [276] erwartet man Technetium im Produkt Uran; 20 % des im Kernbrennstoff vorhandenen Technetiums sollen mit dem Uran die Wiederaufarbeitungsanlage verlassen, < 1 % mit dem Plutonium und etwa 70 bis 80 % des Technetiums sollen in den Spaltproduktlösungen verbleiben [277-279]. In [280] wird im Produkt Uran der Wiederaufarbeitungsanlage < 0,04 % des Technetiums des Kernbrennstoffs wiedergefunden. Der Rest befindet sich mit hoher Wahrscheinlichkeit im hochaktiven Abfallkonzentrat.

In der Nähe der Wiederaufarbeitungsanlagen von Hanford wurden in Vegetationsproben 0,08 bis 0,14 pCi Tc-99/g Trockengewicht gemessen. Eine umfangreichere Untersuchung von verschiedenen Pflanzen und Pflanzenteilen ergab Konzentrationen von 70 fCi/g bis 12 pCi/g [240, 246, 281]. Das Verhalten von Tc-99 wurde in einem Sickerbecken nahe der Savannah-River-Anlagen beobachtet, und die außergewöhnliche Mobilität von Technetium im Boden konnte bestätigt werden. Da ein wesentlicher Teil des Technetiums in den aktiven Abfalllösungen verbleibt, ist es nicht überraschend, daß Proben, entnommen aus der Irischen See, und Proben, entnommen in der weiteren Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage in Cap La Hague, Tc-99 enthalten [239, 254, 282-284].

#### 7.4 Konversions-, Anreicherungs- und Brennstofffabriken

In vielen wissenschaftlichen Publikationen wird die Abtrennung von  $TcF_6$  vom  $UF_6$  durch Adsorption an  $NaF$  und  $MgF_2$  untersucht [285-292]. Ein Teil dieser Arbeiten dürfte zurückgehen auf die zur Zeit nicht weiterverfolgten Pläne der Wiederaufarbeitung durch Fluorierung des abgebrannten Brennstoffs; bei einem Teil dieser Arbeiten wird darauf hingewiesen, daß Tc-99 in Uran, das aus Wiederaufarbeitungsanlagen angeliefert wird, enthalten ist.

Die Rückgewinnung von Technetium und Neptunium als Nebenprodukte einer Konversionsanlage, die Abtrennung von Tc-99 aus dem Abwasser einer Konversionsanlage durch Ionenaustausch und die Beschreibung einer Meßmethodik für Technetium in einer großen Zahl gasförmiger, flüssiger und fester Probenmaterialien aus einer Anreicherungsanlage - Oak Ridge Gasdiffusionsanlage - werden beschrieben [249, 293, 294]. Bedauerlich ist, daß gerade bei der letzten Arbeit kein einziges Ergebnis der Analysen angegeben wird.

Emissionswerte aus Konversions- und Anreicherungsanlagen werden von verschiedenen Verfassern zitiert. Dabei ist es außergewöhnlich schwierig zu unterscheiden, ob es sich um angenommene ("calculated") Werte oder um tatsächliche Meßwerte handelt. Emissionsraten zwischen 0,54 Ci/a und 5,9 Ci/a werden angegeben [272, 274, 295-298].

Die Angaben über Tc-99 in der Umgebung von Konversions- und Anreicherungsanlagen sind spärlich. In der Umgebung des Portsmouth Gaseous Diffusion Plant wurden in Wasser 0,31 bis 0,36 pCi/ml, in Pflanzen 4,7 bis 6,3 pCi/g Trockensubstanz und in Erde 0,38 bis 4,9 pCi/g Trockensubstanz identifiziert. In der Umgebung des Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant wurden

Tc-99-Konzentrationen gemessen, um Transferfaktoren zu berechnen. Obwohl keine Einzeldaten angegeben wurden, läßt die große Zahl von Transferfaktoren, die bestimmt wurden, auf eine umfangreiche, leider nicht publizierte Zahl von Tc-99-Messungen schließen [248, 299].

#### 7.5 Die Endlagerung der hochaktiven Abfallösungen

Die Verglasung der hochaktiven Abfallösungen stellt eine Technologie dar, bei der flüchtige Elemente aus der Glasmelze ausgetrieben werden können. Einige wenige Untersuchungen zum Tc-99 liegen vor. Das überraschende Ergebnis, daß Tc-99 nur zu 0,15 % bzw. nach einer anderen Arbeit zu 0,2 bis 1,4 % während der Kalzinierung der  $\text{HNO}_3$ -Lösungen freigesetzt wird, ist um so erfreulicher, da Verglasungsanlagen mit Rückhalteeinrichtungen ausgerüstet sein werden, die auch  $\text{Tc}_2\text{O}_7$  effektiv abscheiden können. Mit dem Blickpunkt auf die Einlagerung von Glaskörpern in Salzstöcken wird die Auswaschung von Technetium aus Glaskörpern im Kontakt mit verschiedenen Lösungen untersucht. Dabei stellt sich heraus, daß die anfänglich besonders großen Auswaschraten für Technetium nach 150 Tagen um praktisch vier Größenordnungen abnehmen [300-303].

#### 7.6 Nuklearmedizinische Institute

Arbeitstäglich wurden im Abwasser einer Kläranlage, die unter anderem die Abwässer von zehn Krankenhäusern verarbeitete, 70 mCi Tc-99m gemessen. Im Ohio River, in den die Abwässer der Kläranlage eingeleitet wurden, wurde 1 pCi Tc-99m/l bestimmt. Bei einer ähnlichen Untersuchung, bei der die Abgaben von 21 Krankenhäusern in einer Kläranlage erfaßt wurden, wurde ein jährlicher Anstieg von 10 bis 15 % gemessen.

Konzentrationen von 1 bis 4 pCi Tc-99m/l wurden im Ohio River festgestellt. In der Bundesrepublik Deutschland werden jährlich ca. 15 000 Ci Tc-99m produziert. Da 1 Ci Tc-99m in ca. 3 nCi Tc-99 zerfällt, ist mit einer Abgabe von 0,5 mCi Tc-99/a zu rechnen. Die Abgabe von Tc-99 aus Hospitälern, Tc-99m-Produktionsstätten und aus privaten Haushalten dürfte daher ohne Bedeutung für die Umgebungsexposition der Bevölkerung sein [277, 304, 305].

## 8. Transport von Technetium in der Umwelt

Eine Abschätzung der Gefährdung des Menschen durch die Freisetzung von Tc in die Umwelt setzt die Kenntnis zuverlässiger Transferdaten für Technetium voraus. In mariner Umgebung interessieren naturgemäß die Transferfaktoren Wasser/Pflanze und Wasser/Tier, auf dem Land die Faktoren Boden/Pflanze, Pflanze/Milch, Pflanze/Fleisch und Pflanze/Eier. Weiterhin ist die Mobilität von Technetium in Erdschichten von Bedeutung.

### 8.1 Transfer Wasser/Lebewesen

Die Ableitung leichtaktiver Abwässer der am Meer gelegenen Wiederaufarbeitungsanlagen sowie in untergeordnetem Maße die zunehmende Verwendung von Tc-99m in der Medizin bedingen ein Ansteigen des Tc-Inventares der Meere. Die Adsorption von Pertechetat durch Bodensedimente ist reversibel und bewirkt daher keine Abreicherung [308, 310].

Der Anreicherungsfaktor F für den Transfer Wasser/Pflanze bzw. Wasser/Meerestier ist definiert als

$$F = (C_i/g \text{ Frischgewicht}) / (C_i/g \text{ Wasser}).$$

Zusätzlich zu den in der Tabelle 7 aufgeführten Ganzkörper-Transferfaktoren wurden auch Faktoren für bestimmte Gewebe und Organe ermittelt [314, 312]. Für *Haliotis rufescens* werden z.B. 253 für die Kiemen und 271 für die Verdauungsorgane angegeben [314].

Der für die an den kälteren Küsten beheimatete Fucusart der Braunalge im Laborexperiment bestimmte sehr hohe Wert F wird durch Messungen in der natürlichen Umgebung bestätigt [313, 317, 318]. Es finden sich in Seegebieten nahe den Ableitungen leichtaktiver Abwässer von Wiederaufarbeitungsanlagen Braunalgen (*Fucus vesiculosus*) mit Tc-Gehalten von 500-3500 pCi/kg Trockengewicht (La Hague) bzw. 4551-21275 pCi/kg Trockengewicht (Windscale).

Tabelle 7: Transferfaktoren Wasser/Lebewesen

Pflanze bzw. Tier	Art	Transferfaktor F	Kontaktzeit in d	biolog. Halbwertszeit in d	Literatur
Algen	<i>Fucus vesiculosus</i>	70.000			[311]
Würmer	<i>Nereis diversicolor</i>	Tc(VII): 178-343	14	245	[312]
		Tc(IV): 57-131	14	138	[312]
Asseln	<i>Anilocra mediterranea</i>	35	42	301	[312]
Garnele	<i>Palaemon elegans</i>	8	28		[312]
	<i>Crangon vulgaris</i>	14	32		
Hummer <sup>1)</sup>	<i>Hommarus gammarus</i>	1160	60	211	[313]
Schnecken	<i>Haliotis rufescens</i>	135-205	40	60	[314]
		100	35		[315]
	<i>Helisoma</i>	121	14	38,8	[316]
Muscheln [310]	<i>Mytilus galloprovincialis</i>	1,3 - 1,7	28	104-143	[312]
		1,5	60		[315]
		1,4	60		[315]
Scholle	<i>Pleuronectes platerna</i>	6	55	30	[313]
		8,7	61	46	[315]
Mosquitofisch	<i>Gambusia affinis</i>	75	14	5,0	[316]
Karpfen	<i>Caprinus carpio</i>	11	14	2,6	[316]

<sup>1)</sup> bezogen auf Trockengewicht

Im Vergleich zu dem Verhältnis Tc-99/Cs-137 von 0,01 im Wasser finden sich in Braunalgen Werte von 3,81-35,1 [318]. Die große Anreicherung durch Fucusarten zeigt auch die Extraktion von fast 90% Pertechnetat aus 900 ml Seewasser durch 25 g Fucus serratus. Andere Braunalgenarten sind bisher nicht untersucht. Grünalgen und Rotalgen reichern nach Feldexperimenten dagegen kaum an.

Das sehr unterschiedliche Verhalten einer Art wird auch bei Wachstumsexperimenten deutlich [319, 320]. Während das Wachstum von blau-grünen Algen bereits ab 3 µg Pertechnetat pro ml merklich beeinflusst wird, zeigen Rotalgen und Grünalgen bis 600 µg keinerlei Effekt. Das Pertechnetat stört das Wachstum nicht aufgrund seiner Radioaktivität oder seiner Oxidationswirkung, sondern rein chemisch, indem es die Photosynthese verhindert. Es zerstört das c-Phycocyanin [320].

Auch für Schnecken und Hummer bestätigen sich die hohen Transferfaktoren in Tieren nahe Wiederaufarbeitungsanlagen [313, 317]. Ein untersuchter Wurm enthielt dagegen kaum Technetium [317].

Die bisher vorliegenden Daten gestatten noch keine systematischen Aussagen. Ungeklärt ist z.B. das sehr unterschiedliche Verhalten von Pertechnetat gegenüber Gliederfüßlern und Weichtieren. Fest steht dagegen, daß für Dosisberechnungen verwendete Jod-Werte zur Berechnung von Strahlenbelastungen durch inkorporiertes Technetium nicht übernommen werden können [316].

## 8.2 Transfer Boden/Pflanze

Der Anreicherungsfaktor F für den Transfer Boden/Pflanze ist definiert als:

$$F = (C_i/\text{kg trockene Pflanze}) / (C_i/\text{kg trockenen Boden})$$

Die Laborexperimente zur Bestimmung der Transferfaktoren ergeben im allgemeinen sehr hohe Werte von 50 - 300 (Tabelle 8). Für Setzlinge und bestimmte Pflanzenteile werden auch Werte bis 1000 erreicht [328, 329].

Diese hohen Werte ergeben sich durch das übliche Verfahren Keimlinge in kontaminierten Boden zu pflanzen. Werden dagegen bereits gealterte Pflanzen zu den Versuchen eingesetzt, so nehmen die ermittelten Faktoren mit zunehmendem Alter ab. In einem Feldexperiment, auch in der Umgebung von Urananreicherungsanlagen, findet man in Gräsern dagegen Transferfakten  $<10$ . Dies wird vom Autor auf das größere Verhältnis von Wurzel zu Boden in Laborexperimenten zurückgeführt. Weiterhin werden in Laborexperimenten um Zehnerpotenzen höhere Tc-Konzentrationen eingesetzt, so daß sich Redox-Prozesse in den Böden kaum auswirken [323].

Die Aufnahme von Pertechnetat erfolgt sehr schnell. Nach einem Monat sind bereits 75%, nach 2 Monaten 95% des maximal in die Pflanze aufnehmbaren Technetiums aus dem Boden aufgenommen [332].

Deutliche Änderungen des Erscheinungsbildes von Sojabohnen und Weizen treten bereits 5 Tage nach dem Einpflanzen bei einem Gehalt von  $0,1 \mu\text{g Tc-99/g}$  Boden auf. Nach Ausbreitung der Keimblätter verzögert sich das Wachstum bis zum Stillstand. Bei höheren Tc-Konzentrationen tritt kein Wachstum ein. Bei niedrigeren Konzentrationen, bei denen die Pflanzen gesund erscheinen, nehmen diese 80% bis 90% des Technetiums aus dem Boden auf [324]. Die Toxizität von Pertechnetat ist auf biochemische Eigenschaften zurückzuführen und nicht auf die Wirkung der Strahlung [335].

Der auffälligste Unterschied zwischen den verschiedenen Feldfrüchten ist das Konzentrationsverhältnis  $>1$  bei der Verteilung des Tc in der Pflanze zwischen Wurzel und Schößling bei zweikeimblättrigen Pflanzen (Rettich, Sojabohnen) im Vergleich zu einkeimblättrigen Pflanzen (Getreide, Hafer, Gerste und Weizen), welches auf physiologische Unterschiede zwischen den Pflanzenarten hinweist [325].

Gänsefußgewächse und Gräser finden Interesse, da diese Pflanzen an ein arides Klima gut angepaßt und in der Nähe der Hanford Anlagen (USA) beheimatet sind.

Tabelle 8: Transferfaktoren Boden/Pflanze

Pflanze	Art	Transferfaktor F	Literatur
Sojabohnen	Glycin max.	160	[324]
- Stengel		46,9	
- Blätter		115	
- Knospen		12,2	
- Keimblätter		528	
		48 <sup>1)</sup>	[325]
Weizen	Tricicum aestivum		[324]
- Blätter		389	
- Halm		2,1	
- Ähre		0,6	
- Gesamte Pflanze		210	
		162 <sup>1)</sup>	[325]
		129 <sup>2)</sup>	[325]
Gerste	Hordeum vulgare	156	[325]
Hafer	Avena sativa	144	[325]
Rettich	Raphanus sativus		
- Wurzel		54,7	[325]
- Schößling		284	[325]
Mais	Zea mays	76,7	[325]
Gänsefuß- gewächs	Salsola kali	214	[326]
		223	[327]
Süßgräser	Bromus tectorum	161	[326]
		252	[327]
Gräser <sup>3)</sup>		0,4 - 9,5	[323]
- Festuca arundinacea		1,7	
- Lespedeza cuneata		5,4	
- Panicum sp.		8,2	
- Sorghum sp.		0,4	
- Rubus sp.		1,5	
- verschiedene Arten <sup>4)</sup>		9,5	

<sup>1)</sup> 10 Tage alte Setzlinge

<sup>2)</sup> reife Pflanze

<sup>3)</sup> Feldexperimente

<sup>4)</sup> Umgebung einer Urananreicherungsanlage

Neben dem Alter der Pflanzen und der Bodenvorbereitung sind für die Transferfaktoren vor allem Bodenart und Standzeit des kontaminierten Bodens vor der Bepflanzung von Bedeutung. In einer Untersuchung von 11 Minnesotaerden nehmen die Transferfaktoren für Weizen-Setzlinge mit zunehmendem Kohlenstoffgehalt ab (Tabelle 9). Andere Faktoren, wie pH und Zusammensetzung des Bodens sind praktisch nicht von Bedeutung. Die geringeren Transferfaktoren für gedüngten Boden sind auf die Verdrängung von Per-technetat durch Nährmaterialien zurückzuführen [330, 333, 336]. Durch die längere Standzeit Tc-haltiger Böden wird das Tc immobilisiert, die Transferfaktoren nehmen ab (Tabelle 10).

Tabelle 9: Transferfaktoren Boden/Weizen-Setzlinge verschiedener Minnesotaerden [325]

Bodenart	Kohlenstoff- gehalt in %	pH	Eisenoxid in %	Transferfaktor	
				ungedüngt	gedüngt
Bearden	5,39	7,68	0,09	830	462
Hegne	2,20	8,00	0,29	1120	762
Hibbing	2,29	5,48	1,40	927	713
Nicollet (Oberfläche)	2,39	5,91	0,86	1198	857
Nicollet (Untergrund)	0,12	8,40	1,35	1065	913
Omega	1,26	7,87	1,20	655	443
Bergland	5,67	6,35	2,39	957	800
Arveson	2,80	7,70	0,21	683	248
Waukegan	2,36	6,25	1,03	1162	873
Zimmerman	0,80	5,74	0,47	1057	827
Peat	45,95	7,83	0,40	588	662

Tabelle 10: Transferfaktoren Boden/Gänsefußgewächse und Boden/Süßgräser in Abhängigkeit von der Standzeit des Bodens

Pflanze	Zeit vor dem Einpflanzen in d	Transferfaktoren F
Gänsefußgewächs	1	185
	10	140
	30	159
	100	91
Süßgras	1	148
	10	123
	30	112
	100	82

### 8.3 Transfer Pflanze/Milch, Pflanze/Fleisch und Pflanze/Eier

Zum Transfer Pflanze/Milch und Pflanze/Fleisch sind keine experimentellen Daten vorhanden. In [337] wird die Tc-Konzentration mit Hilfe einer Reihe von Annahmen sowie eines mittleren Transferfaktors von 50 für Boden/Pflanze für Vegetation, Fleisch und Milch in Abhängigkeit von der Tc-Konzentration im Boden berechnet. Zum Transfer Pflanze/Eier ist ein Versuch mit der Wachtel *Cotourinix japoniua* bekannt. Bei Ernährung mit Tc-haltigen Pflanzen finden sich 7,4-8,8% der Gesamtzufuhr im Ei; davon ca. 80% im Eidotter und 20% an Eiweiß-Albumin. Für andere Vögel soll der Transferfaktor kleiner sein [338].

### 8.4 Technetium in Erdschichten - Mobilität

Eine besonders große Zahl von Autoren befaßt sich mit dem Verhalten von Technetium in Gesteinen und Böden. Das Interesse an diesen Fragestellungen ist vor allem durch die in einigen Ländern geplante Endlagerung hochaktiver Abfälle in Gesteinsformationen und die angenommene Freisetzung des langlebigen Tc-99 aus den Endlagern durch Wassereinträge bedingt.

### 8.4.1 Gesteine

Der Verteilungskoeffizient  $K_d$  bzw.  $R_d$  für Wasser/Gestein ist für Pertechneat unter oxidierenden Bedingungen im allgemeinen sehr niedrig (siehe Tabelle 11) und entspricht dem von Iod [342].

$K_d$  = Aktivität pro g Feststoff / Aktivität pro ml Wasser

$K_d$  - Verteilungskoeffizient nach Gleichgewichtseinstellung

$R_d$  - Verteilungskoeffizient nach bestimmter Zeit

Tabelle 11: Kd-Werte verschiedener Mineralien für Pertechneat unter oxidierenden Bedingungen

Mineral	$K_d$ (ml/g)	Literatur
Apatit	0,8	[348]
Basalt	4,7 0 - 15	[348] [344]
Dolomit	0,3 0	[348] [356]
Granit	0,9 0,05	[348] [340]
Hematit	5,4	[348]
Hornblende	1,3	[348]
Korund	0,7	[348]
Magnetit	0,8	[348]
Monazit	2,0 - 6,3	[348]
Quarz	3,4	[348]
Tuff	0,2 - 0,3 <sup>1)</sup> 8 - 26 <sup>2)</sup>	[244, 349]
Zirkon	0,9	[348]

<sup>1)</sup> Luft

<sup>2)</sup> Stickstoff

Größe der Oberfläche, Teilchengröße, Temperatur und Gesteinsart sind für die  $K_d$ -Werte von untergeordneter Bedeutung. Wichtig sind aber die Gehalte an organischen Bestandteilen [339-343, 355-359].

Unter nichtoxidierenden Bedingungen ergibt sich bereits ein Anstieg der Tc-Sorption [349,353,354]. Die Möglichkeit der Reduktion von Pertechetat unter anaeroben Bedingungen trägt viel zur Unsicherheit über die wirklich zu erwartende Technetium-Mobilität mit dem Grundwasser bei [350-352]. Starke Sorption wird in sulfidischen Mineralien oder in solchen die Cu, Pb und Fe(II)-Ionen enthalten festgestellt [366, 367].

Bei Elutionsversuchen im Labor wird Tc, wie aus den  $K_d$ -Werten zu erwarten ist, kaum retardiert [361-363]. In neueren Arbeiten wird auch die Diffusion untersucht [364, 365].

#### 8.4.2 Böden

In Untergrundböden verhält sich Tc wie in Mineralien [368,369].

An Oberflächenböden wird Pertechetat bei kurzen Kontaktzeiten kaum adsorbiert [370,371]. Man findet  $K_d$ -Werte von 0,007 bis 2,8 ml/g. Nach 2-5 Wochen sind dagegen an 8 von 11 untersuchten Bodenarten ca. 98% des zugegebenen Technetiums absorbiert. Nur Böden mit geringen Gehalten an organischem Material absorbieren nicht (Tabelle 12).

Die Sorption verringert sich nach Behandlung des Bodens mit Wasserstoffperoxid bzw. nach Sterilisation [370].

Die organischen Bestandteile sollen durch Ionenaustauschereigenschaften oder durch Komplexbildung zur Tc-Sorption beitragen [371]. Wie bereits aus den niedrigen  $K_d$ -Werten zu erwarten ist, ergeben Säulenversuche nur eine sehr geringe Retention für Technetium. Diese wird von den Autoren wieder mit dem Gehalt an organischem Material in Beziehung gesetzt [372, 373].

Versuche mit Tc(IV) und Tc(V) zur Simulation des Verhaltens unter anaeroben Bedingungen ergeben kein eindeutiges Verhalten. Adsorbiertes Tc wird durch Chelatkomplexbildner wie EDTA, DPTA und Citrat kaum freigesetzt. Bereits mit EDTA komplexiertes Tc wird dagegen von Böden kaum adsorbiert. Mit Citrat als Komplexbildner soll Tc(V) stark absorbiert werden, Tc(IV) praktisch nicht [374, 375].

Tabelle 12: Absorption von Technetium an Böden

Bodenart	Kohlenstoffgehalt in %	absorbiertes Tc in %	Kontaktzeit in d
Bearden	5,39	99	14
Hegne	2,20	65	50
Hibbing	2,29	99	35
Nicollet (Oberfläche)	2,39	98	35
Nicollet (Untergrund)	0,12	0	60
Omega	1,26	96	35
Bergland	5,67	99	14
Averson	2,80	98	49
Waukegan	2,36	99	49
Zimmerman	0,8	0	60
Peat	45,95	99	20

#### 8.4.3 Wanderung von Spaltprodukten im Naturreaktor von OKLO, Gabun

Der natürliche Kernreaktor von OKLO arbeitete vor ca. 2 Milliarden Jahre für die Dauer von 500.000 Jahren. In dieser Zeit fielen nach Berechnungen 10 Tonnen Spaltprodukte an. Das bei dieser Kernspaltung gebildete Tc-99 mit der im Verhältnis zu diesen Zeiträumen kurzen Halbwertszeit von 213.000 Jahren ist vollständig zu Ru-99 zerfallen. Die Bestimmung der ursprünglichen Tc-Verteilung erfolgt über das Isotopenverhältnis des Folgenuklids Ru-99 zu anderen Ru-Isotopen. Bei der Kernspaltung fallen nur Isotope des Rutheniums mit Massen >100 an. Der natürliche Untergrund wird aus dem Gehalt an Ru-100 und den bekannten Isotopenverhältnissen des Rutheniums ermittelt und kann daher berücksichtigt werden.

In der Zeit der möglichen Tc-Wanderung hat sich dieses nach den vorliegenden Ergebnissen nicht weiter als 10 m von den einzelnen Reaktorzonen entfernt. Ortsabhängig wurden einige An- und Abreicherungen festgestellt [376, 377].

## 9. Der Metabolismus von Technetium

Eine umfangreiche Zahl von Publikationen befaßt sich mit dem Metabolismus technetiumhaltiger Pharmazeutika und von biologisch relevanten Verbindungen. Das sehr unterschiedliche Verhalten von Technetium, eingebaut in diese Verbindungen im menschlichen Körper, kann hier nicht erörtert werden. Von Interesse sind radioökologisch ausschließlich die chemischen Verbindungen, die in der Umwelt vorkommen können. Dazu gehören: Pertechnetat, Technetium-Oxyd und Hydroxyd und die Chloride und Nitrate von Technetium.

Für die Aufnahme von Pertechnetat aus dem Magen-Darm-Trakt des Menschen wird ein Bruchteil von 0,95 angegeben [378]. Aus anderen Untersuchungen geht hervor, daß der Bruchteil, der nach oraler Verabreichung über den Magen-Darm-Trakt aufgenommen wird, stark schwankt [379]. In Ratten wurde ein Bruchteil von 0,5 bei Verabreichung von Technetium-Chlorid über den Magen-Darm-Trakt aufgenommen [380, 381]. Von der International Commission on Radiological Protection wird der Faktor 0,8 empfohlen [382].

Die Task Group on Lung Dynamics der International Commission on Radiological Protection setzte fest, daß die Oxyde, Hydroxyde, Halogenide und Nitrate des Technetiums zur Inhalationsklasse W und alle anderen Verbindungen des Elements zur Inhalationsklasse D gehören [383]. Experimente mit Pertechnetat im Menschen sind in guter Übereinstimmung mit dieser Klassifizierung [384].

Intravenös eingebrachtes Pertechnetat wird in der Schilddrüse, im Magen-Darm-Trakt und in der Leber angereichert. Die Ganzkörperrückhaltung dieses Pertechnetats im Menschen wird gut wiedergegeben durch die Funktion

$$R(t) = 0,7 \cdot 1^{-0,693 \cdot t/1,6} + 0,19 \cdot 1^{-0,693 \cdot t/3,7} + 0,043 \cdot 1^{-0,693 \cdot t/22}$$

$R(t)$  ist dabei der Bruchteil, der zur Zeit  $t$  im Körper verblieben ist;  $t$  ist die Zeit in d.

Nachdem Technetium den Magen-Darm-Trakt verlassen hat, wird ein Anteil von 0,04 in die Schilddrüse verlagert und wird dort mit einer biologischen Halbwertszeit von 0,5 d zurückgehalten. Weitere Bruchteile von 0,1 und 0,03 werden in die Magenwände und in die Leber verlagert. Vom restlichen Technetium wird angenommen, daß es gleichförmig über alle Organe und Gewebe des Körpers, außer der Schilddrüse, der Magenwand und der Leber, verteilt wird. Vom Technetium, das in irgend ein Organ oder ein Gewebe des Körpers, außer der Schilddrüse, verlagert wurde, werden die Bruchteile 0,75, 0,20 und 0,05 mit biologischen Halbwertszeiten von 1,6, 3,7 und 22 Tagen im Körper zurückgehalten.

Will man das Verhalten und die Verteilung von Technetium im Körper in der ersten Zeit nach einer intravenösen Verabreichung beschreiben, ist ein außergewöhnlich kompliziertes Multikompartimentmodell notwendig. Das oben beschriebene einfache Modell wurde aus [382] entnommen.

Literatur

- [1] Mendeleev, D.J., ZhRFKhO 1, 1869, 60
- [2] Hermann, R.J., Prakt. Chemie 38, 1846, 91
- [3] Hermann, R.J., ibd. 40, 1849, 457
- [4] Hermann, R.J., ibd. 68, 1876, 65
- [5] Hermann, R.J., Jahresbericht 1, 1847, 404
- [6] Hermann, R.J., ibd. 8, 156, 371
- [7] Hermann, R.J., ibd. 18, 1866, 207
- [8] Hermann, R.J., Bull. Soc. Imp. Moscou 15, 1877, 4105
- [9] Kern, S., Compt. Rend. Acad. Sci. Colon. 85, 1877, 72
- [10] Kern, S., Chem. Trade News 36, 1877, 4, 114 und 155
- [11] Kern, S., Nature 17, 1878, 245
- [12] Barrieth, M., Chem. Trade News 74, 1896, 159
- [13] Ogawa, M., J. Chem. Soc. 94, 1908, 952
- [14] Noddack, W., et al., Naturwissenschaften 13, 1925, 567
- [15] Noddack, W., et al., Sitzb. Preuss. Akad. Wissenschaften, 1925, 400
- [16] Tacke, J., Z. angewandte Chemie 38, 1925, 1157
- [17] Noddack, W., et al., Continental Met. & Chem. Eng. 1, 1926, 109
- [18] Prandtl, W., Z. angew. Chemie 39, 1927, 1049
- [19] Prandtl, W., Z. angewandte Chemie 40, 1927, 561
- [20] Prandtl, W., Ber. 60 B, 1927, 621, cf. C.A. 21, 2404
- [21] Herzsfindel, M., Compt. rend. 184, 1927, 968
- [22] Swinne, R., Z. techn. Physik 6, 1925, 464
- [23] Siemens & Halske A.-G., Ger. 483, 495, 19.06.1925, C.A. 24:1188<sup>4</sup>
- [24] Siemens & Halske A.-G., Fr. 682, 446, 30.09.1929, C.A. 24:4362<sup>5</sup>
- [25] Hardy, Ch., Ind. Eng. Chem., News Ed. 9, 208, 1931, 213
- [26] Druce, J.G.F., Science Progress 27, 1933, 687
- [27] Freitag, R., Wärme 58, 1935, 662
- [28] Perrier, C., et al., Nature 140, 1937, 193
- [29] Segre, E., Nature 143, 1939, 460
- [30] Perrier, C., et al., Nature, 159, 1947, 24

- [31] Cragg, L.H., *Can. Chem. Prozess Inds.* 31, 1947, 455, 458, 472
- [32] Crane, E.J., *Chem. Eng. News* 29, 1951, 2181
- [33] Parker, G.W., et al., *Unclassified Document, A.E.C.D.*, 1948, 2043
- [34] Cobble, J.W., et al., *J. Am. Chem. Soc.* 74, 1952, 1852
- [35] Boyd, G.E., *J. Chem. Educ.* 36, 1959, 3
- [36] Haug, H.O., *KfK-1945*, 1974
- [37] Druce, J.G.F., *Chemistry and Industry* 1936, 577
- [38] Boyd, G.E., *J. Chem. Educ.* 36, 1959, 3
- [39] Kenna, B.T., *J. Chem. Educ.* 39, 1962, 436
- [40] Herr, W., *Z. Naturforsch.* 9a, 1954, 907
- [41] Alperovitch, E.A., *NYO-6139*, 1954
- [42] Alperovitch, E.A., et al., *BNL-2113*, 1954
- [43] Alperovitch, E.A., et al., *Nature* 176, 1955, 299
- [44] Alperovitch, E.A., *Dissertation Univ. Microfilms (Ann. Arbor, Mich.)*, Publ. No. 16831, 1956
- [45] Anders, E., *AECU-3131*, 1955
- [46] Anders, E., et al., *J. Chem. Phys.* 24, 1956, 622
- [47] Boyd, G.E., et al., *J. Phys. Chem.* 60, 1956, 707
- [48] Kenna, B.T., et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.* 26, 1964, 493
- [49] Kenna, B.T., et al., *J. Inorg. Nucl. Chem.* 28, 1966, 1491
- [50] Moore, C., *Science* 114, 1951, 59
- [51] Greenstein, J., et al., *Bull. Astron. Inst. Neth.* 19, 1957, 13
- [52] Duorah, H.L., et al., *Proc. Natl. Inst. Sci. India Pt. A*, 27, 1961, 407
- [53] Nahmias, E., *Compt. rend.* 239, 1954, 1595
- [54] Arnould, M., *Ann. Astrophys.* 30, 1967, 397
- [55] Boesgaard, A.M., *Astrophys. J.* 161, 1970, 1003
- [56] Peery, B.F., *Astrophys. J.* 163, 1971, L1
- [57] Peery, B.F. Jr., *Publ. Astron. Soc. Pac.* 83, 1971, 162
- [58] Hackos, W., *Doktorarbeit, Univ. Bloomington, Indiana, Microfilms, Order No. 71-17*, 445, 1970
- [59] Peery, B.F., et al., *Publ. Astron. Soc. Pac.* 83, No. 494, 1971, 496
- [60] Cohen, J.G., *Publ. Astron. Soc. Pac.* 85, No. 504, 1973, 187

- [61] Hackos, W., Publ. Astron. Soc. Pac. 86, No. 509, 1974, 78
- [62] Schlesinger, B.M., Astrophys. J. 188, No. 1, 1974, 141
- [63] Segré, E., Nuovo Cimento [10] 9, 1952, 1008
- [64] Sness, H.E., Phys. Rev. 81, 1951, 1071
- [65] Way, K., et al., Phys. Rev. 94, 1954, 119
- [66] Gol'danskü, V.J., "New Elements in the Periodic System", Atomizdat, Moskau, 1964
- [67] Seaborg, G.T., et al., "Table of Isotopes", IL, Moskau, 1956
- [68] Dzhelepov, B.S., et al., "Decay Schemes of Radioactive Nuclei", Izd. AN SSSR, Moskau-Leningrad, 1963
- [69] "Chemisis Handbook", Vol. 1, Goskhinzdat, Moskau-Leningrad, 1962
- [70] Seelmann-Eggebert, W., et al., "Karlsruher Nuklidkarte", Gernsbach und Sohn Verlag, München, 1981
- [71] Lederer, M., Hollander, J.M., Perlman, I., "Table of Isotopes", John Wiley & Sons, Inc., New York, 1967
- [72] Vingiani, G.B., et al., Nuovo Cimento [10] 23, 1962, 729
- [73] Kienle, P., et al., Z. Physik 176, 1963, 226
- [74] Mauszer, J.M. Sugihara, T.T., Nucl. Phys. 42, 1963, 582
- [75] Monaro, S., et al., Nuovo Cimento [10] 28, 1962, 63
- [76] Chiolori, G., et al., Nuovo Cimento [10] 19, 1961, 1121
- [77] Unik, J.P., et al., Phys. Rev. 115, 1959, 1687
- [78] Dzhelepov, B.S., et al., Izv. Akad. Nank SSSR, Ser. Fiz. 17, 1963, 172
- [79] Monarco, S., et al., Physica 28, 1962, 52
- [80] Katcoff, S., Phys. Rev. 111, 1958, 575
- [81] Boyd, G.E., et al., Phys. Rev. 99, 1955, 1030
- [82] Boyd, G.E., et al., J. Phys. Chem. 60, 1956, 707
- [83] Scikai, J., et al., Nucl. Phys. 41, 1963, 316
- [84] Flegenhimer, J., et al., Z. Naturforsch. 12a, 1957, 351
- [85] Flegenhimer, J., et al., Z. Naturforschung 11a, 1956, 678
- [86] Kienle, P., et al., Radiochim. Acta 1, 1963, 84

- [87] Kienle, P., et al., *Naturwissenschaften* 49, 1962, 294
- [88] Flegenheimer, J., et al., *Z. Naturforsch.* 10a, 1955, 798
- [89] Kalbfell, D.C., *Phys. Rev.* 54, 1938, 543
- [90] Cacciapuoti, B.N., *Phys. Rev.* 55, 1939, 110
- [91] Sagane, R., et al., *Phys. Rev.* 57, 1940, 750
- [92] Motta, E.E., et al., *Phys. Rev.* 71, 1947, 210
- [93] Gugelot, P.C., et al., *Helv. Phys. Acta* 19, 1946, 418
- [94] Edwards, J.E., et al., *Phys. Rev.* 72, 1947, 384
- [95] Mandeville, C.E., et al., *Phys. Rev.* 73, 1948, 848
- [96] Huber, O., et al., *Phys. Rev.* 73, 1948, 1208
- [97] Huber, O., et al., *Phys. Rev.* 73, 1948, 1211
- [98] Sugarman, N., et al., *Phys. Rev.* 73, 1948, 1411
- [99] Medicus, H., et al., *Helv. Phys. Acta* 23, 1950, 299
- [100] Boyd, G.E., BNL-C-9, 1949, 106
- [101] Katcoff, S., *Phys. Rev.* 99, 1955, 1618
- [102] Feuerstein, H., KfK-358, 1965
- [103] Raonik, V., et al., *Vestn. Slov. Kem. Drus.* 13, 1966, 19
- [104] British Patent 1, 131, 910. Oct. 30, 1968, Priority date Jan. 17, 1967, United States
- [105] Lieberman, E., et al., British Patent 1, 131, 546, Oct. 23, 1968, Filed June 8, 1966
- [106] Bruno, G.A., et al., U.S. Patent 3, 440, 423, Apr. 22, 1969, Filed Apr. 10, 1967
- [107] Shibata, N., et al., *Proc. Jap. Conf. Radioisotop.*, 9th, 1969, 44
- [108] Alian, A., et al., *Radiochim. Acta* 16, No. 2, 1971, 75 (341)
- [109] Maki, Y., et al., *Nippon Kagaku Zasshi* 92, No. 12, 1971, 1211
- [110] Tucker, W.D., et al., BNL-4940, 1960
- [111] Buebulian, S., et al., *Kernteknik* 8, 1966, 118
- [112] Karpeles, A., et al., CNEA-267, 1970
- [113] Kir'yanov, B.S., et al., *At. Energ.* 13, 1962, 595
- [114] Yaffe, L., *Proc. Conf. Nuclear Chem., Chem. Inst. Can.* (Ottawa), 1947, 117

- [115] Tomlinson, R.E., et al., A/CONF.28/P/252, United Nations Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 1964
- [116] Wheelwright, E.J., BNWL-SA-1945, 1968
- [117] Koch, H., et al., Isotopenpraxis 12, No. 2, 1976, 49
- [118] Exxon Nuclear Co., Inc., Richland, Washington, XN-FR-ER-2 (Rev.1), 1978
- [119] Wiley, J.R., DP-MS-78-30, 1978
- [120] Horwitz, E.P., et al., U.S. Patent Application 865, 347, Dec. 28, 1977
- [121] Brown, K.B., CF-60-7-108, 1960
- [122] Coleman, C.F., et al., Nuclear Sci. and Eng., 8, 1960, 507
- [123] Roberts, F.P., et al., HW-SA-2581, 1962
- [124] Panesko, J.V., ARH-733, 1968
- [125] Moore, R.H., Frech Patent 2, 236, 786/A/10, July 1974
- [126] Gorski, B., et al., Isotopenpraxis 14, No. 5, 1978, 137
- [127] "Inorganic Chemistry and Radiochemistry", Ed. H.J. Emelens, A.G. Sharpe, Academic Press, New York, 1968
- [128] Katcoff, S., Nucleonics 16, 1958, 78
- [129] Ossicini, L., et al., Metodologie Analitiche et Equilibri in Soluzione, Roma, 1968, 103
- [130] Lederer, M., Anal. Chim. Acta 12, 1955, 146
- [131] Faddeev(a), M.S., et al., Zhur. Neorg. Khim. 3, 1958, 165
- [132] Boyd, G.E., et al., J. Phys. Chem. 64, 1960, 988
- [133] Rimshaw, S.J., et al., Anal. chem. 33, 1961, 751
- [134] Ryabchikov, D.J., et al., Doklady Akad. Nank SSSR 144, 1962, 585
- [135] Posdnyakov, A.A., et al., Doklady Akad. Nank SSSR 144, 1962, 861
- [136] Slaria, G.B.S., et al., Anal. Chem. 35, 1963, 983
- [137] Toshiyasu, K., et al., Bull. Chem. Soc. Japan 36, 1963, 663
- [138] Yoshinaga, O., et al., Nippon Kagaku Kaishi 85, 1964, 128
- [139] Zaitsev, A.A., et al., Radioklimiya 6, 1964, 445
- [140] Beck, A., et al., Acta Chem. Scan. 18, 1964, 1695

- [141] Yoshinaga, O., et al., Nippon Kagaku Kaishi 85, 1964, 784
- [142] Orlandini, K.A., et al., Anal. Chem. 37, 1965, 1148
- [143] Goldstein, G., et al., Radiochim. Acta 5, 1966, 18
- [144] Foster, R., et al., Anal. Chem. 39, 1967, 563
- [145] Moskvina, L.N., et al., Radioklimiya 9, 1967, 377
- [146] Qureshi, J.H., et al., Radiochim. Acta 12, 1969, 107
- [147] Baishya, N.K., et al., Radichem. Radioanal. Lett. 4, 1970, 15
- [148] Ferricos, D.C., et al., Talanta 17, 1970, 551
- [149] De, A.K., et al., Van Nostrand Reinhold Company, London, 1970
- [150] Fouche, K.F., J. Inorg. Nucl. Chem. 33, 1971, 857
- [151] Denig, R., et al., J. Radioanal. Chem. 5, No. 2, 1970, 223
- [152] Swindle, D.L., et al., Radiochem. Radioanal. Lett. 7, No. 4, 1971, 229
- [153] Archemdia, C., et al., CONF-680423, 1968, 183
- [154] Avad., Kh.K., et al., Sov. Radiochem. 13, No. 3, 1971, 472
- [155] Neirincks, R.D., et al., Anal. Chim. Acta 59, No. 2, 1972, 324
- [156] Sebesta, F., et al., Radiochem. Radioanal. Lett. 11, No. 6, 1972, 359
- [157] Iqbal, M., et al., J. Radioanal. Chem. 23, No. 1-2, 1974, 51
- [158] D'Olieslager, W., et al., Talanta 22, No. 4-5, 1975, 395
- [159] Souka, N., et al., J. Radioanal. Chem. 26, No. 2, 1975, 271
- [160] Mizzan, E., PDB-101, 1953
- [161] Mutsuo, K., Bull. Chem. Soc. Japan 34, 1961, 1766
- [162] Fujinaga, T., et al., Nippon Kagaku Kaishi 87, 1966, 369
- [163] Huffman, E.H., VCRL-3324, 1956
- [164] Sen Sarma, R.N., et al., J. Phys. Chem. 63, 1959, 559
- [165] Hiroshi, H., et al., Anal. Chem. 36, 1964, 1654
- [166] Ossicini, L., et al., J. Chromatog. 16, 1964, 524
- [167] Ryabchikov, D.J., et al., Dold. Akad. Nank SSSR 161, 1965, 896

- [168] Posdnyakov, A.A., et al., Radiokhimicheskie Metody. Opredeleeniya Mikroelementov, Moskau, 1965, 130
- [169] Markl, J., et al., Z. Anal. Chem. 219, 1966, 160
- [170] Meloni, S., et al., Radiochim. Acta 10, 1968, 97
- [171] Panesko, J.V., ARH-1279, 1969
- [172] Hirsch, R.F., et al., Anal. Chim. Acta 49, 1970, 473
- [173] Walter, C.W., et al., Microchim. Acta No. 1, 1971, 81
- [174] Walter, C.W., et al., Microchim. Acta No. 1, 1971, 137
- [175] Walter, C.W., et al., Microchim. Acta No. 1, 1971, 158
- [176] Walter, C.W., et al., Microchim. Acta No. 1, 1971, 181
- [177] Shmidt, V.S., et al., Sov. Radichem. 12, No. 5, 1970, 711
- [178] Yokotsuka, S., et al., J. Nucl. Sci. Technol. 8, No. 11, 1971, 622
- [179] Jha, S.K., et al., Anal. Chim. Acta 62, No. 1, 1972, 163
- [180] Zakharova, N.S., et al., Russ. J. Phys. Chem. 47, No. 3, 1973, 377
- [181] Akatsu, E., et al., J. Nucl. Sci. Technol. 10, No. 8, 1973, 453
- [182] Polkowska-Motrenko, H., et al., J. Chromatogr. 88, No. 2, 1974, 387
- [183] Petters, J.M., et al., Radiochem. Radioanal. Lett. 21, No. 1-2, 1975, 11
- [184] Marsh, S.F., et al., LA-7083, 1978
- [185] Storton, J.M., "Management of low-level radioactive waste", Vol. 1, Pergamon Press, New York, 1979, 411
- [186] Zuber, G., et al., Radiochim. Acta 21, No. 1-2, 1974, 60
- [187] Ichikawa, F., Bull. Chem. Soc. Japan 32, 1959, 1126
- [188] Matsumura, K., et al., Bunsaki Kogaku 7, 1958, 792
- [189] Rimshaer, S.J., U.S. Patent 3,005,683, 24. Okt. 1961
- [190] Qaim, S.M., J. Inorg. Nucl. Chem. 28, 1966, 666
- [191] Malakhov, Ya.S., et al., IZV. Akad. Nank SSSR, Neorg. Mater 2, 1966, 2162
- [192] Cobble, J.W., et al., J. Am. Achem. Soc. 75, 1953, 5777

- [193] Smith, W.T., et al., J. Am. Chem. Soc. 75, 1953, 5773
- [194] Boyd, G.E., et al., J. Am. Chem. Soc. 74, 1952, 556
- [195] Magueli, A., et al., Acta Chem. Scand. 9, 1955, 1378
- [196] Krebs, B., Z. Anorg. Allg. Chem. 380, No. 2, 1971, 146
- [197] Selig, H., et al., J. Inorg. & Nuclear Chem. 19, 1961, 377
- [198] Selig, H., et al., J. Inorg. Nuclear Chem. 24, 1962, 641
- [199] Edwards, A.J., et al., Nature 200, 1963, 672
- [200] Canterford, J.H., "Halides of the transition elements: Halides of the second and third row transition metals", London, John Wiley & Sons, 1968
- [201] Nagarajan, G., et al., Z. Naturforsch. 26a, No. 10, 1971, 1658
- [202] Ronx, J-P., et al., CEA-R-4424, 1973
- [203] Osborne, D.W., et al., J. Chem. Phys. 68, No. 3, 1978, 1108
- [204] Boyd, G.E., J. Phys. Chem. 64, 1960, 988
- [205] Campbell, M.H., HW-75943, 1962
- [206] Spitsyn, I., et al., Doklady Akad. Nank SSSR 144, 1962, 1066
- [207] Zenab EL-Sayed Monstafa, Doktorarbeit, Mainz, Johannes-Gutenberg-Universität, 1962
- [208] Zaitsev, A.A., et al., Radioklimiya 6, 1964, 440
- [209] Valentini, M.T.G., et al., Gazz. Chim. Ital. 103, No. 1-2, 1973, 205
- [210] Pruett, D.J., Separation Science and Technology 16, No. 9, 1981, 1157
- [211] Denig, R., et al., J-Radioanal. Chem. 6, No. 2, 1970, 231
- [212] Boyd, G.E., Record Chem. Progress 12, 1951, 67
- [213] Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie. System-Nr. 60/70. Masurium, Rhenium, Verlag Chemie, Berlin, 1955
- [214] Posdnyakov, A.A., Usp. Khim. 34, 1965, 300
- [215] Goldstein, G., Doktorarbeit, Univ. of Tennessee, Knoxville, Tenn., USA, 1965
- [216] Hirsch, R.F., Doktorarbeit, Univ. of Michigan, Ann. Arbor, Mich., USA, 1965

- [217] Pacer, R.A., Doktorarbeit, Univ. of Michigan, Ann. Arbor, Mich., USA, 1965
- [218] Schick, H.L., ed., "Thermodynamics of certain refractory compounds", Volume II. Thermodynamic tables, bibliography, and property file, Section VII, VIII, and IX, Academic Press, New York, 1966
- [219] Korkisch, J., "Modern Methods for the Separation of rarer Metal Ions", Pergamon Press, Oxford, 1969
- [220] Cavrukhina, A.K., et al., "Analytical Chemistry of the Elements", Ann. Arbor-Humphrey Science Publishers, 1970
- [221] Cross, R.J., et al., Annu. Rep. Progr. Chem. Sect. A 67, 1970, 341
- [222] Menke, H., T-743, 1972, 3.49, Second European Conference of TRIGA reactor users, Pavia, Italy, 13.09.1972
- [223] Anders, E., "The Radiochemistry of Technetium", NAS-NS3021, Department of Commerce, Washington 25, D.C., 1960
- [224] Kolthoff, I.M., Elving, P.J., ed., "Treatise on analytical Chemistry", Part II, Interscience Publishers, New York, 1964
- [225] Colton, R., "The Chemistry of Rhenium and Technetium", Interscience Publishers, New York, 1965
- [226] Kotegov, K.V., et al., "Technetium", in Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry, Volume 11, Academic Press, New York, 1968
- [227] Cordovi, M.A., Steel 123, No. 25, 1948, 88
- [228] Timma, D.L., J. Optical Soc. Am. 39, 1949, 898
- [229] Love, D.L., et al., VSNRDL-TR-388, 1959
- [230] American Society for Testing and Material, ed., ASTM E 417-70T, Philadelphia, 1970
- [231] Hareland, W.A., et al., Anal. Chem. 44, No. 3, 1972, 520
- [232] Carlin, W.W., et al., U.S. Patent 3,922,231, 25. November 1972
- [233] Sites, J.R., et al., ORNL-1327, 1952
- [234] Kaye, J.H., BNWL-1950, Pt. 4, 1975, 35

- [235] Kaye, J.H., BNWL-2000, Pt. 4, 1976, 31
- [236] Kaye, J.H., BNWL-2100, Pt. 4, 1977, 85
- [237] Anderson, T.J., DP-MS-77-75, 1978
- [238] Kaye, J.H., et al., CONF-771072, 1977, 210
- [239] Anderson, T.J., DP-1529, 1979, 105
- [240] Kaye, J.H., PNL-2850, Pt. 4, 1979, 2.43
- [241] Foti, S., et al., AD-733450, 1971
- [242] Foti, S., et al., AD-734380, 1971
- [243] Foti, S., et al., Anal. Chim. Acta 60, No. 2, 1972, 261
- [244] Foti, S., et al., Anal. Chim. Acta 60, No. 2, 1972, 269
- [245] Bate, L.C., in Lyon, W.S., ed., Radioelement analysis: progress and problems, Ann Arbor Science Publishers, Inc., Ann Arbor, 1980, 175
- [246] Brauer, F.P., et al., BNWL-SA-6263, 1977
- [247] Fernandez, S.J., et al., ICP-1174, 1978
- [248] Walker, C.R., et al., GAT-T-2953, 1979
- [249] Rucker, T.L., et al., K/TL-865, 1979
- [250] Box, W.D., U.S. Patent 3,374,157, 19. März 1968
- [251] Petit, G.S., et al., K-1761, 1968
- [252] Ueno, K., Nippon Kagaku Kaiski, 90, 1969, 718
- [253] Rane, A.T., et al., Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 24, No. 7, 1973, 385
- [254] Patti, F., et al., CEA-N-2140, 1980
- [255] Holm, E., et al., IAEA, International Symposium on methods of low-level counting and spectrometry, Berlin, April 6, 1981
- [256] Gordon, R.L., BNWL-SA-6311, 1977
- [257] Thomas, C.W., BNWL-1751(Pt.1), 1973, 123
- [258] Thomas, C.W., BNWL-1751(Pt.2), 1973, 46
- [259] Thomas, C.W., BNWL-2000(Pt.3), 1976, 20
- [260] Attrep, M., et al., Environ. Sci. Technol. 5, 1971, 344
- [261] Ehrhardt, K.C., et al., Am. Chem. Soc. 12, 1978, 55
- [262] NIRS-RSD-34, 1972, 15

- [263] Cataldo, D.A., et al., in: Proc. Symp. on the Environmental Chemistry and Cycling Processes, Augusta, Georgia, 27.-30.04.1976
- [264] Eickelpasch, N., et al., Symposium on Experience from Operating and Fuelling Nuclear Power Plants, IAEA, Wien, 08.10.1973, 381
- [265] Neeb, K.H., Diefenbacher, W., (Hrsg.), Technetium-Fachgespräch am 04.11.1981 im Kernforschungszentrum Karlsruhe, 16
- [266] Duncan, R.N., et al., Conference on Fast Reactor Fuel Element Technology, New Orleans, La., American Nuclear Society, 13.04.1971, 291
- [267] TID-25006, 1968
- [268] Siddall, Th.H., DP-364, 1959
- [269] Macasek, F., Radiochem. Radioanal. Lett. 22, No. 3, 1975, 175
- [270] Odoj, R., Technetium-Fachgespräch am 04.11.1981 im Kernforschungszentrum Karlsruhe, 33
- [271] Lieser, K.H., bd., 28
- [272] Till, J.E., et al., ORNL/TM-6260, 1978
- [273] Finney, B.C., Oak Ridge National Laboratory, personnel communication, 1977, in [272]
- [274] Till, J.E., et al., Health Physics 36, 1979, 21
- [275] Palms, J.M., et al., Seminar on Radioactive Effluents from Nuclear Fuel Reprocessing Plants, Karlsruhe Nuclear Research Center, Germany, 22.-25.11.1977
- [276] Story, A.J., Letter to Mr. W.R. Golliher, Union Carbide Corporation, Subj. "Status Report on the Behaviour of Tc and  $\text{NO}_x\text{UF}_x$  Compounds in the Cascade as of October 28, 1974," in [272]
- [277] McFadden, K.M., PNL-2579, 1980
- [278] Roberts, F.P., BNWL-B-49, 1971 aus [277]
- [279] Campbell, M.H., HW-69712, 1961 aus [277]
- [280] Berg, R., Technetium-Fachgespräch am 04.11.1981 im Kernforschungszentrum Karlsruhe, 24

- [281] Garland, T.R., et al., PNL-33(Pt. 2), 1980, 79
- [282] Dutton, J.W.R., et al., Symposium on the Determination of Radionuclides in Environmental and Biological Materials, Sudbury House, a. U.K., 2.-3. April 1973
- [283] Pentreath, R.J., et al., Symposium on marine radioecology, Tokyo, 1.-5. Oktober 1979
- [284] Jeanmaire, L., et al., Marine Pollution 12, 1981, 29
- [285] Coleman, C.F., et al., Nuclear Sci. and Eng. 8, 1960, 507
- [286] Golliker, W.R., et al., TID-18290, 1963
- [287] Katz, S., ORNL-3544, 1964
- [288] Golliker, W.R., U.S. Patent 3,165,376, 12. Januar 1965
- [289] Chilenskas, A.A., et al., ANL-6994, 1966
- [290] Barghusen, J.J., Technol. 10, 1967, 309
- [291] Mailen, J.C., et al., ORNL-TM-2170, 1969
- [292] Carr, W.H., et al., ORNL-4574, 1971
- [293] Brown, K.B., CF-60-3-136, 1960
- [294] Storton, J.M., Management of low-level radioactive waste, Vol. 1, Pergamon Press, Elmstord, New York, 1979, 411
- [295] US-ERDA-1542, 1976 aus [274]
- [296] US-ERDA-1549, 1977 aus [274]
- [297] Kaye, S.V., et al., CONF-7810133, 1978
- [298] Müller, H., Technetium-Fachgespräch am 04.11.1981 im Kernforschungszentrum Karlsruhe, 67
- [299] Bondietti, E.A., et al., ORNL-5700, 1981, 22
- [300] Rimshaw, S.J., et al., ORNL-5562, 1980
- [301] Knox, C.A., et al., PNL-3741, 1981
- [302] Woolsey, G.B., et al., DP-MS-81-54, 1981
- [303] Bradley, D.J., et al., PNL-3152, 1979
- [304] Sodd, V.J., et al., Health Phys. 28, No. 4, 1975, 355
- [305] Bremer, K.H., Technetium-Fachgespräch am 04.11.1981 im Kernforschungszentrum Karlsruhe, 72
- [306] C.L. Rulfs. R.A.Pacer, R.F. Hirsch, J. Inorg.Nucl.Chem. 29, 1967, 681
- [307] G.E. Boyd, J.W. Cobble, C.M. Nelson, W.T. Smith, J. Am. Chem. Soc. 74, 1952, 556

- [308] V.V. Gromov, Radiokhimiya 16, 1975, 757
- [309] V.V. Gromov und V.I. Spitsyn, Sov. Radiochem. 16, 1974, 157
- [310] I.M. Beasley, J.J. Gonor, DOE/EV/10251-3, 1981
- [311] V.V. Gromov, Mar. Sci. Commun, 2, 1076, 227
- [312] S.W. Fowler, G. Benayoun, P. Parsi. M.W.A. Essa, Impacts of Radionuclide Releases into Marine Environment, Wien 1980
- [313] P.J. Pentreath, Ibid.
- [314] R.B. Spies, Health Phys. 29, 1974, 695
- [315] I.M. Beasley, H.V. Lorz, J.J. Gonor, DOE/EV/10251-4
- [316] B.G. Blaylock, M.L. Frank, D.L. DeAngelis, Health Phys. 42, 1982, 257
- [317] L. Jeanmaire, M. Masson, F. Patti, P. Germain, L. Cappelini, Marine Pollution Bulletin 12, 1981, 29
- [318] P.J. Pentreath, D.F. Jefferties, M.B. Lovett, D.M. Nelson, Ministry of Agriculture, Fisheries and Food, UK
- [319] P. Gearing, Ch. van Baalen, P.L. Parker, Plant Physiol. 55, 1975, 240
- [320] P.J. Gearing, Ch. van Baalen, P.L. Parker, Conf.-710501-82, Vol. 2, 1971
- [321] J.L. Birks, Nature 255, 1975, 621
- [322] Y.C. Ng, C.S. Burton, S.E. Thompson, R.K. Tandy, H.K. Kretner und N.W. Pratt, Handbook for Estimating Internal Dose from Radionuclides Released in the Biosphere, UCRC-50163, Part IV, 1968
- [323] F.O. Hoffman, ORNL - 5856, 1982, Environmental Science and Technology 16, 1982, 214
- [324] R.E. Wildung, T.R. Garland und D.A. Cataldo, Health Physics 32, 1977, 315
- [325] R.G. Gast, E.R. Landa, L.J. Thorvig, D.F. Grigal und J.C. Balogh, COO - 2447 - 6, 1979
- [326] R.C. Routson und D.A. Cataldo, Health Phys. 34, 1978, 685
- [327] D.A. Cataldo, PNL - 2740, 1979
- [328] R.E. Wildung, T.R. Garland, D.A. Cataldo, BNWL - 1950, Pt 2, 1974
- [329] E.R. Landa, H. Thorvig, R.G. Gast, Conf.-750929

- [330] R.G. Gast, COD - 2447 - 1, 1975
- [331] D.A. Cataldo, D. Paine, C.E. Cushing, R.M. Emery, B.E. Vaughan, PNL - 2253
- [332] R.G. Routson, D.A. Cataldo, BNWL - 2183, 1977
- [333] R.G. Gast, L.H. Thorvig, E.R. Landa, K.J. Gallagher, Conf.-760429, 1978
- [334] G. Dermet, J. Sinnaeve, S.C. van der Geijn, G.A. Ringoet, INIS-mf-6303, 1980
- [335] R.E. Wildung, K.M. McFadden, T.R. Garland, J. Environ, Qual. 8, 1979, 156
- [336] D.A. Cataldo, R.E. Wildung, T.R. Garland, BNWL - 2000, Pt 2, 1976
- [337] J.E. Till, F.O. Hoffman, D.E. Punning. Health Phys. 36, 1979, 21
- [338] T.R. Garland, R.G. Schreckhise, PNL-4100, Pt 2, 1982
- [339] B.R. Erdal, R.D. Aguilar, B.P. Bayhurst, W.R. Daniels, C.J. Duffy, F.D. Lawrence, S. Maestas, P.Q. Oliver, K. Wolfsberg, LA-7456-MS, 1979
- [340] B. Allard, H. Kiptasi, B. Torstenfelt, J. Rydberg, Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Plenum Press, New York 1979
- [341] J.F. Relyea, L.L. Ames, R.J. Serne, R.W. Fulton, C.D. Washburne, PNL-SA-7455-MS, 1979
- [342] J.F. Relyea, L.L. Ames, R.J. Serne, R.W. Fulton, C.D. Washburne, PNL-SA-7352 Vol. II, 1978
- [343] B.R. Erdal, R.D. Aguilar, B.P. Bayhurst, P.Q. Oliver, K. Wolfsberg, LA-7455-MS, 1979
- [344] K. Wolfsberg, B.R. Erdal und J.R. Smyth, LA-8471-PR, 1980
- [345] L.L. Ames, J.E. McGarrah, PNL - 3146, 1980
- [346] J.F. Relevea, R.J. Serne, D. Rai, M.J. Masson, PNL - SA - 6957, 1977
- [347] K.L. Erickson, SAND - 79 - 0988C, 1979
- [348] D.A. Palmer, R.E. Meyer, J. Inorg. Nucl. Chem. 43, 1981, 2979
- [349] B.M. Crowe, LA-8152-PR, 1979
- [350] C.W. Francis, M. III Reeves, E.A. Bondietti, B.A. Smith, PNL - SA - 7352, Vol. I, 1978

- [351] E.A. Bondietti, C.W. Francis, Science 203, 1979, 1337
- [352] E.A. Bondietti, NUREG/CP - 0022, 1982
- [353] R.G. Dosch, SAND - 79 - 2468, 1980
- [354] W.R. Daniels, LA - 8586 - PR, 1981
- [355] B.R. Erdal, B.P. Bayhurst, B.M. Crowe, W.R. Daniels, D.C. Hoffmann, F.O. Lawrence, J.R. Smyth, J.L. Thompson, K. Wolfsberg, Underground Disposal of Radioactive Wastes, Wien 1979
- [356] A.W. Lynch, R.G. Dosch, SAND - 80 - 1064, 1980
- [357] D.G. Coles, H.C. Weed, J.D. Tewhey, UCRL - 52929, 1980
- [358] K.L. Erickson, SAND - 8 - 1557, Vol. 2, 1981
- [359] R.G. Dosch, A.W. Lynch, SAND - 78 - 0297, 1978
- [360] P.F. Salter, L.L. Ames, J.E. McGarrah, RHO-BWI-LD-48, 1981
- [361] D. Rai, D.J. Serne, PNL - 2651, 1978
- [362] R. Failor, D. Isherwood, E. Raber, T. Vandergraaf, UCRL-53308, 1982
- [363] H.C. Weed, F. Bazan, J. Fantanilla, J. Garrison, J. Rego, A.M. Winslow, UCRL-85508, 1981
- [364] B. Torstenfelt, K. Anderson, H. Kipatsi, B. Allard, U. Olofsson, Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Plenum Press, New York, 1982
- [365] E.J. Nowak, SAND - 82 - 1258C, 1982
- [366] A.M. Friedman, S. Fried, Trans. Am. Nucl. Sci. 28, 1978, 365
- [367] J.R. Eliason, Am. Min. 51, 1968, 324
- [368] R.C. Routson, G. Jansen, A.V. Robinson, Health Phys. 33, 1977, 311
- [369] R.C. Routson, G. Jansen, A.V. Robinson, BNWL-1889 (1975)
- [370] E.R. Landa, L. Thorvig, R.G. Gast, J. Environ. Qual. 6, 1977, 181
- [371] R.E. Wildung, R.C. Routson, R.J. Serne, T.R. Garland, BNWL-1950, Pt 2, 1974
- [372] J.C. Balogh und D.F. Grigal, Soil Science 130, 1980, 278
- [373] D.H. Sisson, S.C. McLean, R.K. Schulz, R.J. Borg, UCRL-4178, 1982

- [374] A.J. Franz, L.Y. Martin, D.J. Wiggins, PNL-4178, 1982
- [375] L.Y. Martin, A.J. Franz, PNL-SA-8733, 1980
- [376] A. Cancarz, G. Cowan, D. Curtis und W. Maeck, Scientific Basis for Waste Management, Plenum Press, New York 1980
- [377] A.E. Norris, LA - 8054 - PR, 1979
- [378] T.M. Beasley, H.E. Palmer, W.B. Nelp, "Deposition and Excretion of Technetium in Humans", Health Physics, 12, 1425-1435, 1966
- [379] M.T. Hays, "Tc-99m-Perthchnetate transport in man: absorption after subcutaneous and oral administration: secretion into saliva and gastric juice", J. Nucl. Med. 14, 331-335, 1973
- [380] J.G. Hamilton, Medical and Health Physics Division, Quarterly Report, University of California, UCRL-98, 1948, p.8
- [381] M.F. Sullivan, T.M. Graham, D.A. Cataldo and R.G. Schreckhise "Absorption and retention of inorganic and originally incorporated technetium-95 by rats and guinea pigs" In: PNWL Annual Report for 1977, Part 1, Biomedical Sciences, Feb. 1978, PNL-2500
- [382] "Limits for Intakes of Radionuclides by workers", A report of Committee 2 of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 30, Pergamon Press, Oxford, New York, Frankfurt, 1979
- [383] ICRP Task Group and Lung Dynamics "Deposition and Retention models for internal dosimetry of the human respiratory tract", Health Physics, 12, 173-207, 1966
- [384] D.J. Cooke, H. Lander, "Inhalation Pulmonary Scintiphotography using perthchnetate", An. J. Roent, 113, 682-689, 1971