

방사능으로 오염된 토양에 대한 Pu 및 Am 방사능 농도 및 동위원소비 측정에 대한 연구

이명호* · 송병철 · 박영재 · 김원호
한국 원자력 연구소 원자력 화학연구부
(2004. 10. 21 접수, 2004. 11. 16 승인)

A Study on the Measurement of Activity Concentrations of Pu and Am and Their Isotopic Ratios in the Radioactively Contaminated Soil

Myung Ho Lee*, Byoung Chul Song, Young Jai Park and Won Ho Kim
Nuclear Chemistry Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute
P. O. Box 105, Yusung, Daejeon 305-600, Korea
(Received Oct. 21, 2004, Accepted Nov. 16, 2004)

요 약 : BOMARC 미사일 발사대 주변에서 채취한 토양에 대하여 입자크기에 따른 Pu 및 Am 방사능 분석 및 동위원소를 측정하였다. BOMARC 토양에서의 Pu와 Am 방사능 농도는 핵실험에 의해 생성된 방사능 낙진 준위보다 매우 높았으며, 입자크기가 증가함에 따라 감소하는 경향을 보여주었다. BOMARC 토양에서 측정된 Pu-238 / Pu-239, 240, Pu-241 / Pu-239, 240 및 Am-241 / Pu-239, 240 방사능비는 핵실험에 의해 생성된 방사능 낙진에 대한 방사능 농도비 보다 약간 낮은 값을 나타내었다. ICP-MS로 측정된 Pu-240 / Pu-239 질량비는 북반구 대기권 핵실험 및 체르노빌 원전사고에 의한 질량비보다 매우 낮은 값을 나타내었고, Greenland Thule 지역에서 핵무기를 탑재한 B52 비행기 사고로 방출된 핵무기에 대한 질량비와 비슷한 값을 나타내었다. BOMARC 토양에서 측정된 Pu 및 Am 동위원소들의 방사능비 및 질량비로부터 BOMARC 토양에 오염된 Pu는 핵무기용 Pu로부터 생성되었다고 판단된다.

Abstract : Soil samples collected from around the BOMARC Missile Site were measured for their activity concentrations and isotopic ratios of Pu and Am isotopes with particle sizes. The activity concentrations of Pu and Am in the BOMARC soil were remarkably higher than the fallout levels, and the activities decreased nearly exponentially with an increasing particle size of the soil due to a decreasing surface area. The activity ratios of Pu-238 / Pu-239, 240, Pu-241 / Pu-239, 240 and Am-241 / Pu-239, 240 observed in the BOMARC soil were much lower than those attributed to the nuclear reprocess plants and the Chernobyl fallout. Also, the atomic ratio of Pu-240 / Pu-239 in the BOMARC soil was remarkably lower than the fallout value influenced by the nuclear weapons testing and the Chernobyl accident. The atomic ratio of Pu-240 / Pu-239 was so close to the value of the weapons grade

★ Corresponding author
Phone : +82+(0)42-868-4728 Fax : +82+(0)41-868-8148
E-mail : mhlee@kaeri.re.kr

Pu released from the crash of a B52 plane in the Thule of the Greenland, such that the Pu isotopes detected in the BOMARC soil could have originated from the weapons grade plutonium.

Key words : Pu and Am isotopes, Soil sample, Activity concentration ratio, Atomic ratio

1. 서 론

악티나이드 원소들에 대한 방사능비, 예를 들면, Pu-238 / Pu-239, 240, Pu-241 / Pu-239, 240 및 Am-241 / Pu-239, 240 방사능비는 생성기원과 악티나이드가 환경으로 유입된 시점에 따라 방사능 비율이 다르다. Pu-238 / Pu-239, 240 방사능비는 핵연료 재처리 공장에서는 0.28, 핵실험에 의한 방사성 낙진의 경우 0.026, 핵무기용 플루토늄의 경우 0.020 수치로 보고되었다.¹ Pu-241 / Pu-239, 240 방사능비의 경우 생성시점을 기준으로 핵연료 재처리 공장에서 평균치는 30, 핵실험에 의한 방사성 낙진의 경우 13, 핵무기용 플루토늄의 경우 5란 평균치가 보고되었다.¹

Pu-239와 Pu-240 동위원소들은 방출에너지가 비슷하여 고전적인 알파분광기법으로는 Pu-240 / Pu-239 방사능비 측정이 불가능하다. 따라서 방사능 측정 대신에 질량분석기(TIMS, ICP-MS)를 사용하여 Pu-240 / Pu-239 질량비를 구하는데, 대기권 핵실험 및 핵사고 유형에 의존하여 그 비율이 변한다. 핵실험에 의한 방사성 낙진의 경우에 Pu-240 / Pu-239 질량비는 0.17 - 0.25 범위값을 보였고, 체르노빌 주변지역의 경우 0.56, Kyshtym 주변지역의 경우 0.028이란 수치가 보고되었다.² 또한 핵무기에 사용된 Pu의 경우 핵폭탄 설계 및 폭발 수율에 의해서 Pu-240 / Pu-239 질량비가 결정되어서 마샬제도 부근에서 핵실험에 의해 생성된 Pu-240 / Pu-239 질량비는 0.21 - 0.36 범위값을 보이나³, 네바다 핵실험 부근의 경우 0.035 - 0.050 범위내의 값을 나타내었다.⁴ 따라서 악티나이드에 대한 방사능비(Pu-238 / Pu-239, 240, Pu-241 / Pu-239, 240, Am-241 / Pu-239, 240) 및 질량비(Pu-240 / Pu-239)는 핵실험 및 원자력시설 사고 유형에 따라 매우 다른 값을 보여서 환경시료에서 Pu에 대한 방사능비 및 질량비를 결정하는 것은 환경 중 Pu의 기원 및 거동을 파악하는데 매우 중요한 역할을 한다.

본 연구는 미국 뉴저지 공군기지인 BOMARC (Boeing Michigan Aeronautical Research Center) 미사일 발사대 주변에서 채취한 토양을 구입하여 토양입자 크기별로

분리한 후, 방사 화학적 분리기법을 이용하여 플루토늄 및 아메리슘 동위원소들을 각각 순수 분리하였다. 순수 분리된 시료에 대하여 알파 분광기 및 액체 섬광계수기를 사용하여 플루토늄 및 아메리슘 동위원소를 정량하였고 방사능 비율을 결정하였다. 또한 고분해능 ICP-MS를 사용하여 Pu-240 / Pu-239 질량비를 측정하여 Pu의 기원을 파악하였다.

2. 실험방법

2.1. 시약

Pu 분석 및 회수율을 보장하기 위해 Pu-242 (SRM 4334, NIST, USA) 추적자를 사용하였고 Am 분석에는 Am-243 (SRM 4332, NIST, USA) 추적자를 사용하였다. Pu 순수분리를 위해 음이온 교환수지 (Dowex 1 × 8, 100 - 200 mesh)를 사용하였고, Am 순수분리에는 TRU Spec 수지 (Eichrom)를 사용하였다. Pu 산화수 조절에 사용한 Na₂SO₃ 및 NaNO₂ 산화제는 GR급 (Merck, Germany) 시약을 사용하였다. 또한 방사능 분석에 사용한 질산, 염산 및 불산 등도 GR급을 사용하였다.

2.2. 토양시료 채취

BOMARC 미사일 기지 주변 토양시료 채취지점을 Fig. 1에 나타내었다. 1960년 BOMARC 미사일 발사대에서 화재가 발생하여 핵탄두가 부분적으로 녹았다. 화재 진압과정에서 핵무기용 Pu (WGP, Weapon Grade Plutonium) 일부분이 인근 지역으로 방출되었다. 이 화재로 인해 미공군에서는 BOMARC 미사일 기지를 2000년까지 폐쇄하였으며 2000년에 이 지역에 대해서 재염 계획이 설립되어 2001년에 표층토 (0 - 5 cm)를 토양 채취기로 채취하였다.⁵ BOMARC 토양의 물리화학적 성질을 Table 1에 나타내었다.

2.3. 입자크기 분석

BOMARC 미사일 기지 주변 토양시료에 대하여 체를 사용하여 입자크기별로 토양시료를 구별하여 그 결

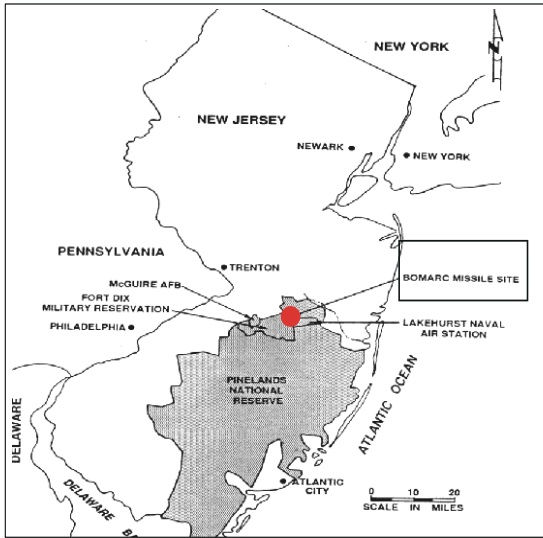


Fig. 1. Sampling site.

Table 1. Characteristics of the BOMARC soil

Organic carbon	1.89 ± 0.02%
pH	8.20 ± 0.1
Silt & clay (< 53 μm)	2.54%
Sand (> 53 μm)	97.46%

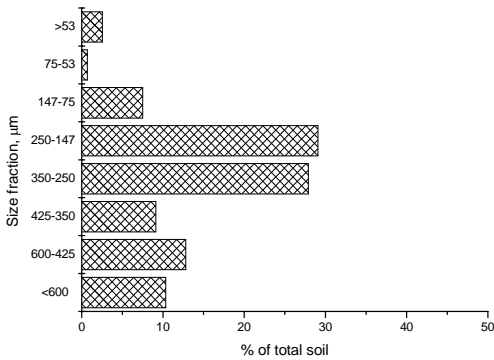


Fig. 2. Particle size distribution of the BOMARC soil.

과를 Fig. 2에 나타내었다. BOMARC 토양 입자중 약 60%가 250 - 147 μm 와 350 - 250 μm 입자크기에 분포하였다.

2.4. 방사능 분석

500 $^{\circ}\text{C}$ 로 회화시킨 토양시료 2 g을 테프론 비이커로 옮기고 Pu-242 및 Am-243 추적자를 가한 후 65% 질산 100 mL 및 HF 10 mL를 가해 토양시료를 분해시켰다 (두번 반복). 잔유물을 8 M 질산 100 mL을 사용하여 hot plate위에서 2시간 이상 교반 한 후, 5시간 이상 방치한 다음 상등액을 membrane filter (0.2 μm)로 여과하였다.

Pu 및 Am 성분 등이 추출된 질산수용액에 대하여 Pu 산화가를 +4로 고정시키기 위해 Na_2SO_3 2 g 및 NaNO_2 1 g를 첨가한 후 80 $^{\circ}\text{C}$ 정도에서 2-3분간 가열하였다. Pu 및 Am 방사능 분석 절차를 Fig. 3에 나타내었다. 음이온 교환수지 (Dowex 1 \times 8, 100 - 200 mesh, NO_3^- form, 내경; 1 cm, 높이; 8 cm)를 사용하여 Pu 동위원소를 컬럼에 흡착시켰다. Pu가 흡착된 컬럼을 8 M 질산 100 mL로 세정한후 여액과 세정액은 Am 분석에 사용하였다. 9 M 염산 250 mL을 사용하여 컬럼을 세정하여 Th를 제거한 후, 음이온 교환컬럼에 흡착된 Pu 성분을 0.36 M HCl/0.01 M HF 20 mL를 사용하여 Pu 동위원소만을 추출하였다.

음이온 교환수지를 통과한 여액과 세정액을 증발건 고한 후 잔유물을 2 M 질산 20 mL를 사용하여 녹였다. 1 M NH_4SCN 을 한방울 정도 시료용액에 첨가한 후 용액이 빨간색을 나타내면 300 mg ascorbic acid를 첨가하여 Fe(III)으로 환원시켜 TRU-Spec 컬럼 사용시 철 영향을 최소화 시켰다. TRU-Spec 컬럼 (bed volume; 1.3 mL, column length; 2.6 cm)에 2 M 질산 20 mL를

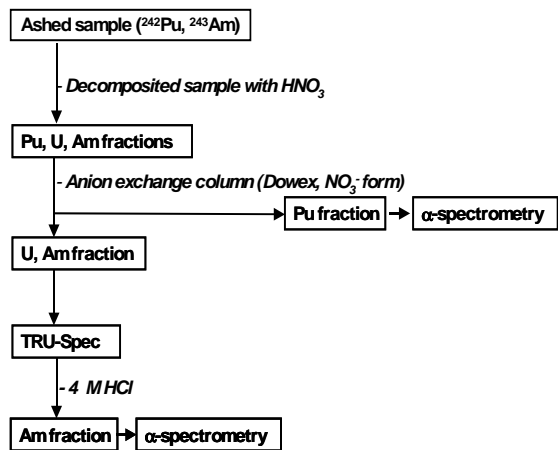


Fig. 3. Flow chart for separation of Pu and Am in the soil sample.

통과하였다. 시료용액을 미리 2 M 질산을 통과시킨 TRU-Spec 컬럼에 통과하여 Am 성분을 흡착 시킨 후 2 M 질산 20 mL을 사용하여 컬럼을 세정하였다. 9 M HCl 4 mL를 컬럼에 통과하여 토륨 성분을 제거한 후 4 M HCl 15 mL를 사용하여 Am 성분을 추출하였다.

2.5. 방사능 및 질량비 측정

순수분리된 Pu 및 Am 성분을 전기전착한 후 알파스펙트로메타(EG & G, Ortec)로 Pu 및 Am 동위원소들을 정량하였다.⁶ 베타선 방출핵종인 Pu-241은 액체섬광계수기(Tricarb 2770, Packard)로 측정하였고,⁷ Pu-240 / Pu-239 질량비는 고분해능 ICP-MS (AXIOM, VG Elemental Ltd.)로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. Pu 및 Am 동위원소에 대한 방사능 농도

입자크기에 대해 플루토늄 및 아메리슘 동위원소의 방사능 농도를 Table 2에 나타내었다. 작은 입자(75 - 47 μm)에 대한 플루토늄 및 아메리슘 방사능 농도는 과거 핵실험에 의해 전지구적으로 오염된 방사능 낙진에 대한 방사능 준위⁴보다 약 10배정도 높은 준위이다. 입자크기는 인공방사성 핵종인 플루토늄등의 환경중 분포에 가장 큰 영향을 주는 인자중의 하나이다. 플루토늄 및 아메리슘과 같은 인공방사성 핵종의 방사능 농도는 Fig. 4에 나타난 것처럼 입자크기가 증가함에 따라서 지수함수로 감소하였다. 이 원인은 입자크기가 증가함에 따라 상대적으로 입자 표면적이 감소하여 플루토늄 및 아메리슘이 토양 표면에 코팅 형태로 흡착될 확률도 감소함을 의미한다. 또한 BOMARC 토양(대부분 모래 성분)에서 측정된 유기물 함량(1.89%)은 매우 적어서 플루토늄 및 아메리슘 방사능 분포에 큰 영향을 주지 못했다.

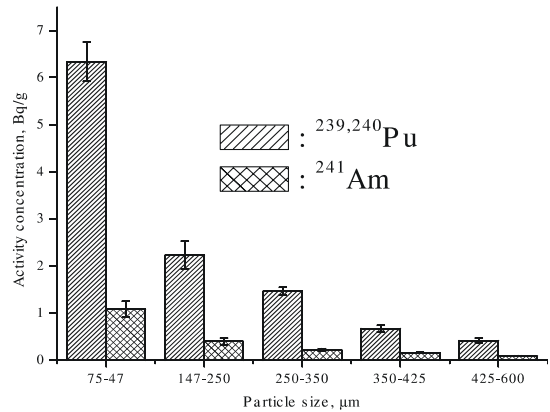


Fig. 4. Activity concentrations of $^{239, 240}\text{Pu}$ and ^{241}Am observed in various particle size fractions for the BOMARC soil.

3.2. Pu 및 Am 동위원소에 대한 방사능비

플루토늄과 아메리슘 동위원소들에 대한 방사능 및 질량비는 생성시점 및 기원에 따라 그 비율이 다르기 때문에 Pu와 Am 동위원소들의 방사능비와 질량비를 측정하는 것은 환경중 Pu의 거동 파악에 중요하다. BOMARC 토양에서 측정된 입자크기에 따른 Pu-238 / Pu-239, 240, Pu-241 / Pu-239, 240 및 Am-241 / Pu-239, 240 방사능비를 Table 3에 나타내었는데 입자크기 변화에 따른 방사능 농도비와의 상관성은 발견되지 않았다.

Pu-238 / Pu-239, 240 방사능비는 0.018 - 0.033 범위의 값으로 핵무기용 플루토늄에서 측정되는 Pu-238 / Pu-239, 240 방사능 농도비 평균값(0.020)과 과거 핵실험에 의한 낙진에서 검출되는 수치(0.026)에 유사한 값을 보였다. 그러나 1964년 동력원으로 사용된 Pu-238이 내장된 인공 위성(SNAP-9A)이 대기권에서 폭발하여 Pu-238이 환경으로 유입된 결과로 인해, 현재 북반구에서 측정되어지는 방사성 낙진에 대한 Pu-238 / Pu-239, 240 방사능 농도비

Table 2. Activity concentrations of Pu and Am isotopes in the BOMARC soil

Particle size (μm)	$^{239, 240}\text{Pu}$ (Bq/g)	^{238}Pu (Bq/g)	^{241}Pu (Bq/g)	^{241}Am (Bq/g)
75 - 47	6.34 ± 0.42	0.110 ± 0.008	15.28 ± 0.98	1.08 ± 0.17
147 - 250	2.23 ± 0.30	0.049 ± 0.006	4.50 ± 0.62	0.40 ± 0.07
250 - 350	1.46 ± 0.08	0.038 ± 0.002	2.54 ± 0.39	0.22 ± 0.03
350 - 425	0.67 ± 0.07	0.022 ± 0.003	0.92 ± 0.12	0.16 ± 0.01
425 - 600	0.42 ± 0.05	0.010 ± 0.001	0.67 ± 0.10	0.09 ± 0.01

Table 3. Activity ratios of Pu and Am isotopes in the BOMARC soil

Particle size (μm)	^{238}Pu	^{241}Pu	^{241}Am
	/ $^{239,240}\text{Pu}$	/ $^{239,240}\text{Pu}$	/ $^{239,240}\text{P}$
75 - 47	0.017 \pm 0.002	2.41 \pm 0.22	0.17 \pm 0.029
147 - 250	0.022 \pm 0.004	2.02 \pm 0.39	0.18 \pm 0.039
250 - 350	0.026 \pm 0.002	1.74 \pm 0.28	0.15 \pm 0.022
350 - 425	0.033 \pm 0.006	1.37 \pm 0.23	0.24 \pm 0.029
425 - 600	0.024 \pm 0.004	1.60 \pm 0.30	0.21 \pm 0.035

평균값이 0.04임⁴ 고려하면, BOMARC 토양에서 검출된 Pu의 기원은 핵실험에 의한 방사능 낙진의 영향이라고 보다는 핵무기용 Pu에서 생성되었다고 유추 할 수 있다.

Pu-241 / Pu-239, 240 방사능비는 2.87에서 3.52 범위의 값으로 측정되었으며 생성시점을 기준으로 산출한 방사능 농도비(핵실험; 13, 핵무기용 Pu; 5) 보다 낮은 방사능비를 나타내었다. 그러나 Pu-241 / Pu-239, 240 방사능비의 경우 시간이 경과함에 따라 Pu-241 방사능 붕괴(반감기 14.4 y)로 인해 방사능비는 감소하고 있다. 현재 북반구에서 5,60년대 핵실험에 의한 전지구적 방사성 낙진의 영향을 받은 Pu-241 / Pu-239, 240 방사능비는 3-7의 범위의 값으로 보고되고 있으며⁸ 생성시점을 기준한 값인 13보다 상당히 감소되었음을 알 수 있다. BOMARC 미사일에 사용된 Pu에 대해서 Pu-241 / Pu-239, 240 방사능 농도비는 사고 당시(1960년도)에는 5 정도로 추정되나 40년 이상이 경과한 현재의 방사능 농도비는 2-3 범위내 값으로 감소되었음을 예측 할 수 있어 BOMARC 토양에서 측정된 Pu-241 / Pu-239, 240 방사능비는 전형적인 핵무기용 Pu의 방사능 농도비와 일치함을 알 수 있었다.

Pu-241 붕괴로 인해 생성된 Am-241 방사능 농도는 핵실험 당시(1950-1960년대)에는 무시할 정도였으나 시간이 경과함에 따라 Pu-241 방사능 농도 감소에 반비례하여 그 딸핵종인 Am-241 방사능 농도는 증가하고 있어 환경중 Am-241 방사능 농도 측정은 환경감시 측면에서 중요한 핵종중의 하나이다. 방사평형식을 사용하여 환경중 Am-241 방사능 농도가 이론적으로 최대가 되는 시점을 계산하면 대략적으로 2140년으로 산출되며 그 시점에서 Am-241 / Pu-239, 240 방사능비는 0.42로 구해진다.⁹ BOMARC 토양에서 측정된 Am-241 / Pu-239, 240 방사능비는 0.15에서 0.24 범위의 값으로, 대기권 핵실험에 의한 전형적인 방사능 농도비 (0.3-

0.4) 보다 약간 낮은 값을 보여 주었다.

3.3. Pu-240에 대한 Pu-239 방사능비 및 질량비

BOMARC 토양(입자크기; 75 - 47 μm)에 대한 Pu-240과 Pu-239 방사능 농도 측정은 알파스펙트로메타를 이용하였다. 방출에너지(Pu-239; 5.1555 MeV, Pu-240; 5.1682 MeV)가 비슷한 Pu-240과 Pu-239는 일반적으로 이용되는 알파스펙트럼 프로그램을 사용하면 피크 분리가 어렵다. 따라서 피크분리(peak deconvolution) 프로그램을 사용하여 Pu-239 피크 분리를 시도하였다. 원래 알파스펙트럼에 커브피팅을 한 후, 피팅스펙트럼(Pu-239 + Pu-240)에서 Pu-240 기여분을 감하면 Pu-239 농도가 구할 수 있다. 그러나, Fig. 5에 나타난 것처럼, BOMARC 토양에서는 Pu-239 방사능 농도에 대하여 상대적으로 Pu-240 방사능 농도가 너무 적어서 신뢰성 있는 분리스펙트럼(deconvoluted spectrum) 얻기가 불가능하여 Pu-239 방사능 농도에 대한 Pu-240 방사능 농도를 구별할 수 없었다.

알파분광기 대신에 고분해능 ICP-MS (multi-collector)를 사용하면 Pu-239에 대한 Pu-240 방사능비 대신에 질량비값을 구할 수 있다. 방사능비, 예를 들면 Pu-241 / Pu-239, 240 경우처럼 시간이 경과하면 방사능 붕괴로 인한 단반감기 핵종 농도(Pu-241)가 감소하여 방사능 비율이 감소하는데 비해, 질량분석기를 사용하여 질량비 측정의 경우에 Pu-241 및 Pu-239, 240 등의 질량변화가 시간의 경과에 무시할 정도로 적어서 시간의 경과에 비교적 무관한 일정한 값을 나타내는 장점이 있다. Table 4는 ICP-MS를 사용하여 BOMARC 토양에 대한 Pu-240 / Pu-239 질량비를 나타내었다. ICP-MS로 측정된 Pu-240 / Pu-239 질량비는 0.0559에서 0.0594의 범위의 값으로 측정되었다. 이 값은 대기권 핵실험에 의해서 낙진 형태로 유입되었던 Pu-240 / Pu-239 질량비² (0.17 - 0.25)와 체르노빌 원전사고 사고 결과로 방출된 Pu-240 / Pu-239 질량비¹⁰ (0.39 - 0.41) 보다 매우 낮은 값이다. 그러나 BOMARC 핵무기 제조시 사용된 Pu-240에 대한 Pu-239 질량비인 0.059 수치⁴와 정확하게 일치하였다. 핵무기 제조시 사용된 Pu-240 / Pu-239 질량비가 핵실험에 의한 방사성 낙진의 경우에 비해 낮은 원인은 Pu-239 핵분열 반응에서 기인한다고 생각된다. 즉 핵실험의 경우에는 대부분의 Pu-239가 핵분열 반응에 이용되어서 핵실험 후에 Pu-239 존재비는 Pu-240에 비해 상대적으로 감소되었다고 생각된다. 또한

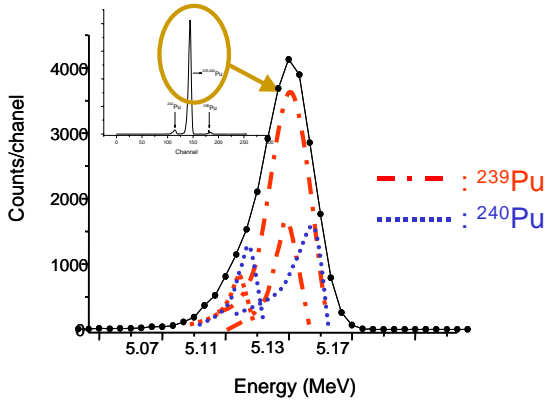


Fig. 5. Typical alpha spectrum of ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu in the BOMARC soil.

Table 4. Atomic ratios of ²⁴⁰Pu / ²³⁹Pu in the BOMARC soil.

Particle size (μm)	Atomic ratio (²⁴⁰ Pu / ²³⁹ Pu)
75 - 47	0.0567 ± 0.0009
147 - 250	0.0588 ± 0.0017
250 - 350	0.0571 ± 0.0014
350 - 425	0.0559 ± 0.0013
425 - 600	0.0594 ± 0.0010

체르노빌 원전 주변에서 검출된 Pu는 핵연료(Pu) burn-up 시간이 증가함에 따라서 Pu-240 생성이 증가되어 결과적으로 Pu-240 / Pu-239 질량비가 증가되었다고 보고되었다.¹⁰ 따라서 BOMARC 토양에서 검출된 대부분의 Pu 동위원소들은 핵탄두를 만드는데 사용되었던 핵반응이 진행되지 않은 플루토늄으로 판단된다.

4. 결 론

Pu-238 / Pu-239, 240, Pu-241 / Pu-239, 240 및 Am-241 / Pu-239, 240 방사능비는 핵실험에 의한 방사능 농도비 보다 약간 낮은 값을 나타내었다. 또한 Pu-240 / Pu-239 질량비도 핵실험에 의한 질량비보다 매우 낮은 값으로 핵무기용 Pu-240 / Pu-239의 질량비와 일치하였다. 따라서 BOMARC 토양에서 검출되는 대부분의 Pu 및 Am 동위원소들의 기원은 대기권 핵실험에 의한 방사성 낙진의 영향은 거의 받지 않고 핵무기용 플루토늄에서 생성되었다고 사료된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력 중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

참고 문헌

1. E. Holm, A. Aarkrog, S. Ballestra, H. Dahlgaard, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **79**, 27-32(1986).
2. M. H. Dai, K. O. Buesseler, J. M. Kelley, J. E. Andrews, S. Pike, J. F. Wacker, *J. Environ. Radioactivity*, **53**, 9-25(2001).
3. Ken O. Buesseler, *J. Environ. Radioactivity*, **36** 69-83(1997).
4. J. H. Harley, *J. Radiat. Res.*, **21**, 84-104(1980).
5. S. E. Rademacher, E. V. Sheely, D. D. Thomas : Lakehurst Naval Air Engineering Station (NAES) radiological baseline survey in support of USAF BOMARC missile accident site remediation waste transportation plan, New Jersey, IERA-SD-SR -2002-0004, 2002.
6. M. H. Lee, C. W. Lee, *Nucl. Instr. Meth. A*, **447**, 573-576(2000).
7. M. H. Lee, C. W. Lee, *Radiochimica Acta*, **84**, 177-181(1999).
8. Y. F. Yu, H. E. Bjornstad, B. Salbu, *Analyst*, **117**, 439-442(1992).
9. Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, 1982, Report to the General Assembly, United Nations, New York, 1982.
10. Y. Muramatsu, W. Ruhm, S. Yoshida, K. Tagami, S. Uchida, E. Wirth, *Environ. Sci. Technol.*, **34**, 2913-2917(2000).