

NAA를 이용한 솔잎 분석 및 환경오염 측정

이길용 · 윤윤열 · 심상권 · 양명권 · 서범경 · 정용삼*

한국지질자원연구원 환경지질연구부, *한국원자력연구소 하나로이용연구단

Evaluation of Environmental Pollution with Pine Needles by NAA

Kil Yong Lee, Yoon Yeol Yoon, Sang Kwon Shim, Myung Kwon Yang,
Bum Kyoung Seo and Yong Sam Chung*

Environmental Geology Division,

Korea Institute of Geoscience & Mineral Resources(KIGAM),

30 Kajung-dong, Yusung-ku, Taejon 305-350, Korea

**HANARO Center, Korea Atomic Energy Research Institute(KAERI),*

P.O. Box 105 Yusung, Taejon, 305-600, Korea

NAA was applied to precision analysis of heavy metals in pine needles which is able to be sampled anywhere in Korea and the plant was also investigated to use as a biomonitor for environmental pollution monitoring. Only one year old pine needle was taken from three different places of urban, suburban and rural area with seasons. The pine needle sample was divided with two parts, and then one part was cleaned and the other was not. Under the environment of air and soil, the contamination level of analytes was investigated. Some elements such as As, Br, Ce, W, Zn have shown different characteristics with area, seasons and cleaning. It is found that pine needle is available as a biomonitor.

Key words: Pine needle, NAA, Heavy metals, Biomonitor, Environmental pollution

1. 서 론

환경오염을 측정하기 위한 시료는 크게 수질, 토양, 대기의 세 종류로 여겨져 왔으나 최근에는 이들로부터 영향을 받는 식물, 동물까지도 포함시켜 나가고 있다. 이와 같이 환경시료는 지구상의 거의 모든 물질을 대상으로 하며 성분도 매우 다양하기 때문에 이들을 정확하게 측정하기 위해서는 고도의 다양한 분석기술이 필요하다. 이들 환경 시료 중 수질과 토양은 오래 전부터 분석방법이 표준화되어 있다. 그러나 대기시료나 생체시료들의 분석법에 대해서는 세계적으로도 그 분석법이 확립되어 있지 못한 실정이다. 물과 토양에 비하여 시료의 양이 적고 채취 및 전처리 과정이 매우 복잡한 것이 중요한 이유 중의 하나이다. NAA의 경우, 소량의 시료를 비파괴로 분석이 가능하고 분석감도가 좋기 때문에 최근에 와서 세계적으로도 이들 시료의 분

석에 널리 이용되고 있다.^{1,2)} 국제원자력기구(IAEA)에서는 대기 및 생체환경시료의 분석에 NAA를 최적의 방법으로 이를 적극 권장하고 있다. 또한 NIST와 같은 표준물질의 제조기관에서도 표준물질 제조 및 검증에 NAA를 가장 많이 사용하고 있다.³⁻¹²⁾

식물체는 수질, 토양, 대기와 같은 3대 환경요소에 모두 영향을 받는 2차 환경시료라고 할 수 있다. 환경학적인 지표시료로 선택되기 위해서는 가능한 넓은 지역에 고루 분포되어 있어 지역간 비교가 용이하고, 채취하는데 기술적 혹은 경제적인 문제가 적어야 하며 계절에 의한 영향이 없어야 한다. 이러한 조건을 만족하는 환경지표시료(biomonitor)로 이용되는 식물체는 Moss, Lichen 및 pine needle 등이다.¹²⁻¹⁶⁾ 본 실험에서는 우리나라의 실정에 가장 적합한 솔잎을 선택하여 오염도 차이가 클 것으로 예측되는 3개 지역(대도시 중앙, 도시 변두리, 벽지)을 채취지역으로 정하고 년 4회 실험하여

위치 및 계절에 따른 변화도 함께 조사하였다.

식물체는 서식지 토양 및 수질 그리고 대기의 일차 환경 등 복합적 인자들에 영향을 받으나, 부위에 따라서 각각의 환경인자에 영향을 다르게 받기 때문에 식물체를 측정함으로써, 서식지의 환경오염을 조사할 수 있다. 본 연구에서는 이와 같은 식물체를 이용한 환경 오염조사의 기초조사를 위하여, 국내 어디에나 널리 분포되어 있는 소나무를 대상으로 지역 및 계절에 따라 중금속의 오염특성을 측정하였다. 도심지와 준 도심지, 그리고 청정지역의 세 곳에서 연 4회 1년생 솔잎만을 채취하여 15종의 원소들에 대한 지역별, 계절별 분포특성을 조사하였다. 또한, 채취한 각각의 솔잎을 이등분하고 그중 한 부분만을 세척하여 분석함으로써 대기환경오염상태를 간접적으로 측정할 수 있는지의 여부를 알아보고자 하였다. 원소농도의 측정은 생체시료의 분석에 적용하기 좋은 중성자방사화분석법(NAA, Neutron Activation Analysis)을 적용하였으며^{17,18)} 시료채취, 전처리 등의 실험과정을 최적화하고 공통적으로 측정이 가능한 15종의 원소에 대하여 환경오염 특성을 조사하였다. 분석과정의 최적화 및 검증을 위하여, 솔잎 표준물(NIST SRM-1575)을 이용하였으며, 분석결과의 비교에서 보증 값 및 권고 값에 대하여 10% 미만의 범위 내에서 일치하였다. 지역 및 계절에 따라 As, Br, Ce, W, Zn와 같은 몇 가지 원소에서는 환경오염과의 상관성을 관찰할 수 있었다.

2. 시료의 채취 및 전처리

2.1. 솔잎의 채취

솔잎은 가지와 잎의 형태를 세밀하게 관찰하여 채취 지역에서 20cm 이상의 소나무를 대상으로, 지상으로 부터 1~1.5 m 높이의 1년생 잎만을 한 개씩 뽑아서 채집하여 미리 세척한 PE 봉지에 즉시 넣고 밀봉하여 채취 후부터 실험 전까지 외부공기의 유입을 방지하였다. 깨끗이 세척한 PE (polyethylene) 장갑을 착용하여 채취 중의 오염을 방지하였다. 또한 시료의 변질을 방지하기 위하여 실험실로 운반 즉시 냉장고에 보관하였다. 시료의 양은 매회 150 g정도를 취하였다.

2.2. 솔잎의 전처리

솔잎은 점성의 수액을 분출하기 때문에 표면에 묻은 먼지 등은 주변 대기의 상태에 영향을 많이 받게 되며, 솔잎조직 자체는 주로 수질, 토양 환경에 의한 영향을

많이 받게 된다. 따라서 표면오염도의 조사를 위하여 채취한 솔잎을 이등분하여 한 부분은 1% 염산과 증류수로 세척하여 솔잎 표면에 부착되어 있는 먼지 등을 제거해 주었고, 나머지 한 부분은 세척과정을 거치지 않았다. 건조과정에서의 휘발성분의 손실을 방지하기 위하여, -50°C 온도와 100 mtorr 의 조건에서 2주간 동결건조를 하였다. 분석에 사용되는 시료의 양은 수g 미만이므로 시료의 대표성을 확보하기 위하여 ball mill 을 이용하여 150 mesh이하의 크기로 분쇄하고 mixer mill에서 충분히 혼합하였다.

3. NAA 분석방법

200 mg의 솔잎 분말을 PP(polypropylene) 시료용기에 담고 중성자 선속 측정용 Au, Co monitors를 부착하였다. 분석의 정확도를 검증하기 위하여 표준물질(NIST SRM 1575, pine needle)도 시료와 같은 방법으로 준비하였다. 시료 및 표준물질들을 연구용 원자로(HANARO, 한국원자력연구소)의 공압이송장치(PTS)를 이용하여 30분간 중성자 조사하였다. 시료조사 위치에서의 열중성자 선속 밀도(thermal neutron flux density, $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$)는 1.8×10^3 정도이었다. 1차 감마선 계측은 중성자 조사후 약 2일 후였으며 1차 계측에서 검출된 성분들은 As, Au, Br, K, La, Na, Sm, W들이었다. 2차 계측은 7일 후에 실행하였고, 이때 검출된 성분은 Au, Br, Ca, La이었다. 3차 계측은 장반감기 핵종(long lived nuclide)을 생성하는 원소들로서 중성자조사가 끝난 후 20일 후에 측정하였으며, 이 때 Ba, Ce, Co, Cr, Eu, Fe, Rb, Sb, Sc, Th, Zn 등을 검출할 수 있었다. 이들 감마선스펙트럼과 실험조건으로부터 SCM-IC(Single Comparator Method-Interference Correction) 프로그램을 이용하여 각 성분들의 함량을 계산하였다. Fig. 1에 솔잎의 전처리를 포함한 NAA의 분석과정을 나타내었다.

4. 결과 및 고찰

4.1. 솔잎시료의 채취 및 전처리 조건

시료의 채취는 특히 환경시료에서 매우 중요한 과정이다. 채취 지점의 설정, 채취방법에 따라서 시료의 대표성이 결정되기 때문에 고도의 지식과 세심한 주의가 필요하다. 시료 채취과정에서 가장 중요한 것은, 시료의 대표성 확보와 분석성분의 오염을 방지하는 것이다.

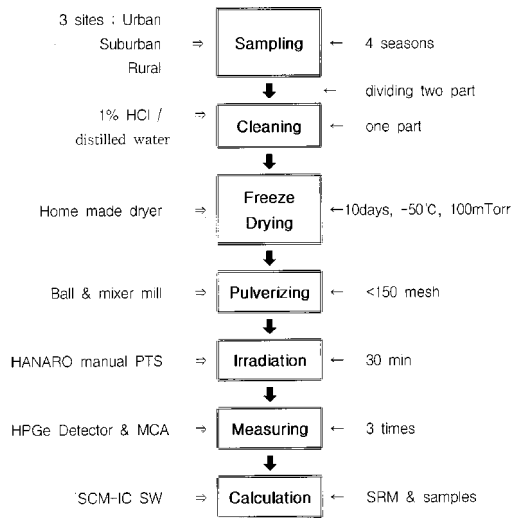


Fig. 1. Flow chart for sampling and NAA of pine needle.

또한 분석에 알맞는 시료의 전처리 과정에서는 시료의 균질도 확보와 분석성분의 손실 및 오염을 방지해야 한다. Table 1에 본 실험에서 적용한 솔잎시료의 채취 및 전처리 조건을 나타내었다.

4.2. 표준 시료 및 채취시료의 분석결과

Table 2에 표준시료의 분석결과를 보증 값과 비교하여 나타내었다. 분석된 15종의 성분중 Br, Ca, Ce, Co, Cr, Eu, Fe 및 Rb은 보증 값과 5%이내의 오차 범위로 잘 맞았으며, As, K, La, Sc와 Th은 10% 오차범위로 보증 값과 일치하였다. Au, Na, Sm, W의 경우는 권고 값과 역시 10%내에서 일치하였다. Zn의 경우는 권고 값에 비하여 12% 적게 측정되었다. 통계 오차가 포함된 측정원소의 상대표준편차는 As, Ce, Eu, La, Sc를 제외하고 10% 이내이었다. 이들 성분의 함량범위가 ppm 수준임을 감안하면 본 연구에서 수행한 실험과정은 신뢰성을 가진다고 평가할 수 있다.

Table 2~4에 도심지역, 준 도심지역 및 청정지역에서 계절별로 채취한 솔잎시료의 NAA 분석결과를 각각 나타내었다. 솔잎의 주 금속성분인 Ca, K의 경우 세 지역에서 모두 수천 ppm으로 높게 나타났으며 청정지역이 다른 두 지역에 비하여 10-20% 정도 낮게 나타났다. 이는 토양의 영향으로 추측할 수 있을 것이다. 그 다음 함량이 높은 Fe, Na 및 Zn은 세 지역에서 모두 수십에서 수백 ppm이 함유되어 있으며 Zn의 경우는 청정지역에서 낮게 나타났고, 도심지역에서도 계절별 차이가 현저하여 4월에 채취한 솔잎에서 다른 시기보

Table 1. Sampling and preparation of pine needle for the environmental pollution monitoring

Procedure	Condition and consideration
1. Sampling	
Sampling area	more than 500㎡
Number of tree	more than 20 trees per site
Sampling height	1.5~2.0 m
Year of needle	one year old
Sampling method	pull out a needle a time with PE glove
Container	cleaned PE zipper bag
Storage place	dark and cool
2.Preparing	
Cleaning	water-1% HCl-water
Drying	freeze drying
Pulverizing	100 μm with ball mill
Mixing	30 min with mixer mill
Storage	Desiccator

Table 2. Analytical results of a SRM, NIST 1575 pine needle

Element	(unit:ppm)		
	NIST	This Work	Differences (%)
As	210 ± 40	230 ± 38	9.5
Au	(0.60)	0.55 ± 0.12	(8.3)
Br	9.0 ± 0.9	9.2 ± 0.8	2.2
Ca	4100 ± 200	3900 ± 220	4.8
Ce	210 ± 50	220 ± 45	4.7
Co	100 ± 14	105 ± 11	5.0
Cr	2.6 ± 0.2	2.5 ± 0.22	3.8
Eu	6.0 ± 1.3	5.7 ± 1.5	5.0
Fe	200 ± 10	210 ± 20	5.0
K	3700 ± 200	3900 ± 250	5.4
La	200 ± 40	180 ± 22	10
Na	(50)	48 ± 12	(4.0)
Rb	12 ± 0.1	12 ± 0.1	0.0
Sb	200 ± 17	190 ± 21	5.0
Sc	30 ± 8	33 ± 6	10
Sm	(20)	21 ± 2	(5.0)
Th	37 ± 3	41 ± 2	10
W	(50)	52 ± 11	(4.0)
Zn	(67)	59 ± 6	(12)

*NIST values in parentheses are not certified value (recommended or consensus mean value), Difference values in parentheses are comparative value with the not certified value.

다 약 50% 낮게 나타났다. Fe와 Na는 지역이나 계절에 따른 차이가 나타나지 않았다. 또한 세척한 부분과 (C) 세척하지 않은 부분(N)을 함께 나타내었다. 대부분

Table 3. Analytical results of fifteen elements in pine needles from urban area

(unit:ppm)

Element	September		November		February		April	
	N	C	N	C	N	C	N	C*
As	0.29	0.15	0.39	0.19	1.3	0.62	0.54	0.19
Au	0.0058	0.0035	0.011	0.0025	0.012	0.0066	0.010	0.0054
Br	4.7	3.6	3.8	2.2	5.2	4.0	6.6	5.1
Ca	5100	3700	4700	3300	5300	4700	4000	3400
Ce	0.72	0.18	0.74	0.32	0.93	0.66	0.62	0.38
Co	0.35	0.31	0.32	0.29	0.36	0.31	0.29	0.30
Cr	4.1	4.0	3.6	3.4	3.9	2.3	3.6	3.4
Eu	0.011	0.009	0.007	0.007	0.010	0.008	0.011	0.005
Fe	110	95	120	89	240	180	170	140
K	7600	7200	6600	5200	5000	4600	4700	4800
La	0.48	0.18	0.58	0.18	0.59	0.38	0.51	0.20
Na	53	24	86	29	130	79	110	110
Rb	17	13	9.6	7.8	6.1	4.8	7.4	7.2
Sb	0.10	0.093	0.097	0.093	0.16	0.095	0.23	0.16
Sc	0.030	0.020	0.033	0.024	0.081	0.041	0.059	0.053
Sm	0.044	0.023	0.050	0.042	0.098	0.045	0.047	0.020
Th	0.051	0.045	0.063	0.024	0.17	0.065	0.097	0.064
W	0.26	0.15	0.31	0.14	0.21	0.23	0.18	0.057
Zn	74	62	60	57	80	75	36	30

*N,C: results from not cleaned and cleaned needle, respectively.

Table 4. Analytical results of fifteen elements in pine needles from suburban area

(unit:ppm)

Element	September		November		February		April	
	N	C	N	C	N	C	N	C
As	0.20	0.12	0.51	0.093	0.69	0.20	0.24	0.12
Au	0.0074	0.0049	0.0056	0.0016	0.0053	0.0048	0.0039	0.0015
Br	5.1	5.0	5.9	3.7	3.5	3.2	3.9	3.4
Ca	4900	3800	4400	3400	3200	2800	4500	3700
Ce	0.65	0.41	0.74	0.38	0.69	0.63	0.69	0.35
Co	0.49	0.36	0.52	0.32	0.36	0.31	0.41	0.38
Cr	1.8	1.9	1.9	1.7	1.9	1.6	2.7	2.5
Eu	0.012	0.0065	0.016	0.009	0.012	0.012	0.015	0.007
Fe	170	130	160	120	160	130	160	110
K	6600	6400	6800	4300	6200	5100	3400	2700
La	0.79	0.36	0.52	0.22	0.70	0.60	0.38	0.22
Na	180	140	49	39	80	51	110	110
Rb	12	11	15	12	10	10	7.1	3.8
Sb	0.09	0.062	0.062	0.061	0.11	0.089	0.18	0.095
Sc	0.032	0.024	0.029	0.022	0.038	0.023	0.034	0.029
Sm	0.012	0.065	0.083	0.044	0.060	0.023	0.045	0.023
Th	0.090	0.077	0.063	0.021	0.087	0.054	0.14	0.072
W	0.82	0.065	0.49	0.15	0.068	0.042	0.13	0.064
Zn	78	54	75	59	68	62	74	69

*N,C: results from not cleaned and cleaned needle, respectively.

Table 5. Analytical results of fifteen elements in pine needles from rural area

Element	(unit:ppm)							
	September		November		February		April	
	N	C	N	C	N	C	N	C
As	0.076	0.052	0.075	0.038	0.32	0.19	0.28	0.088
Au	0.0030	0.0013	0.0040	0.0010	0.0050	0.0020	0.0021	0.0018
Br	2.7	2.3	3.3	2.5	3.8	3.7	3.4	2.6
Ca	3500	2800	3700	2700	3800	2800	2900	2600
Ce	0.56	0.50	0.59	0.48	0.55	0.53	0.63	0.23
Co	0.57	0.48	0.61	0.58	0.65	0.54	0.35	0.33
Cr	3.3	3.3	2.6	2.6	3.0	2.7	2.8	2.5
Eu	0.0065	0.0068	0.0055	0.0056	0.011	0.0053	0.011	0.0066
Fe	130	98	100	77	130	94	160	100
K	5700	5600	5800	5200	5200	5100	4800	4500
La	0.26	0.17	0.36	0.12	0.26	0.17	0.21	0.15
Na	86	30	50	38	74	62	120	50
Rb	13	11	8.9	8.3	8.4	6.7	6.9	5.4
Sb	0.039	0.039	0.037	0.035	0.099	0.068	0.10	0.045
Sc	0.048	0.027	0.047	0.027	0.044	0.036	0.045	0.023
Sm	0.035	0.023	0.021	0.017	0.038	0.026	0.020	0.0091
Th	0.051	0.035	0.047	0.037	0.066	0.045	0.074	0.041
W	0.29	0.092	0.15	0.035	0.096	0.034	0.13	0.033
Zn	33	21	35	27	35	23	26	24

*N,C: results from not cleaned and cleaned needle, respectively.

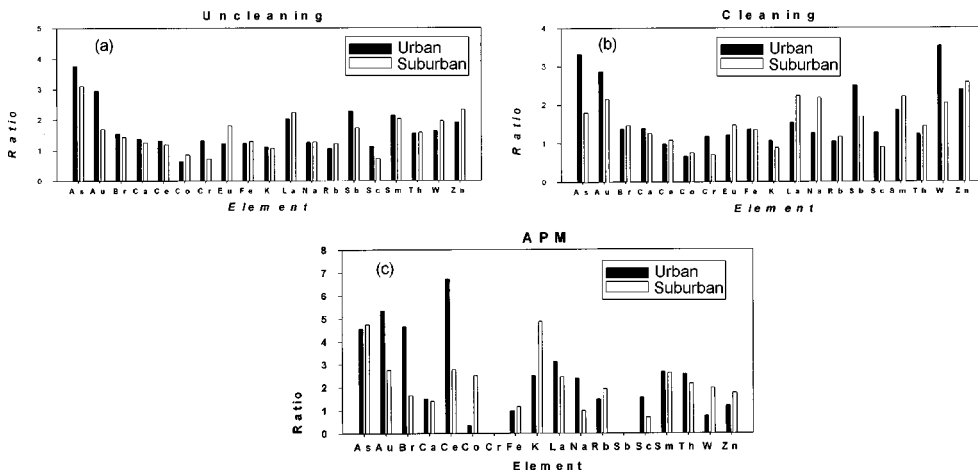


Fig. 2. Mean concentration ratios of uncleaned(upper) and cleaned(middle) pine needle and airborne particulate matter(APM, lower) in urban and suburban area based on rural area. (APM data=uncleaned value-cleaned value, Pine Needle data=cleaned value)

의 성분들이 세척한 솔잎에서 낮게 나타났으며 이는 솔잎표면에 중금속을 함유한 대기 입자상 물질이 흡착되어 있고 이는 대기환경오염과 관련이 있음을 의미한다(6,8,17).

4.3. 표면세척 효과와 환경오염의 관계

Fig. 2에 청정지역의 4회 평균값을 기준으로 도심지역과 준 도심지역에서 얻은 분석결과의 평균값을 비교하여 나타내었다. Fig. 2(a)와 Fig. 2(b)는 각각 세척하지 않은 솔잎과 세척한 솔잎의 분석결과로부터 산출하여 도식화하였다. Fig. 2(c)는 도심지역의 비율(ratio)을 아래의 식 1)로서 구하였다. 준 도심지역의 경우도 같

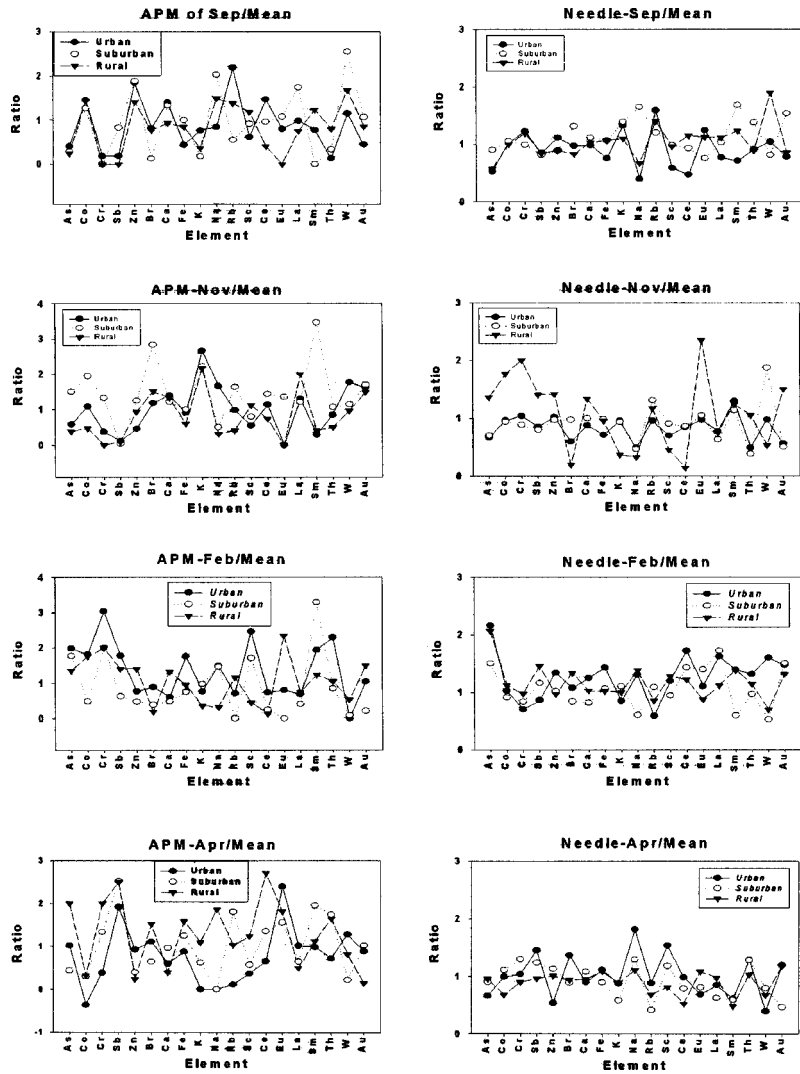


Fig. 3. Concentration ratios of elements based on mean value in APM(left) and pine needle(right) with seasons.

은 방법으로 구한 값이다.

$$Ratio = \frac{(U-C)_{urban}}{(U-C)_{rural}}$$

여기에서, U 및 C는 각각 세척하지 않은 솔잎과 세척한 솔잎의 분석결과(ppm)의 평균값을 나타낸다.

세척 여부에 관계없이 대부분의 성분들이 청정지역보다 도심지역 및 준 도심지역에서 오염되어 있음을 확인할 수 있다. Fig. 2(a)를 보면, 대부분의 성분들이 도심지역과 준 도심지역에서 거의 같은 농도로 함유되어 있음을 알 수 있다. 청정지역보다 3배 이상 높은

성분은 As, Au(도심지역에서)의 두 종류이었다. 세척한 솔잎의 분석결과에서는 그 경향이 매우 다름을 알 수 있으며, 도심지역의 As, Au, Sb 및 W이 청정지역 뿐만 아니라 준 도심지역보다 꽤 높게 함유되어 있음을 보여준다. 이는 토양의 성분에 차이가 있음을 암시한다. 맨 아래 세척된 부분의 경우는, 솔잎표면에 흡착된 입자상 물질의 차이일 것이며, 결과적으로 대기오염을 정도를 알 수 있게 해준다. Au, Br, Ce의 세 성분은 도심지역에서 다른 두 지역보다 2~6 배정도 높게 나타났다. 반면, As의 경우는 준 도심지역과 유사한 농도를 보여주고 있다. 이들 세 그림으로부터 본 실험에서 수행한 지역 및 시기의 경우, 15종의 분석 성분 중에서는,

오염과 상관성이 있는 성분은 As, Au, Br, Ce, Sb, W 및 Zn임을 알 수 있다.

4.4. 계절별 성분변화

Fig. 3에 각 지역의 4회 측정값의 평균에 대한 계절별 농도를 식 1)에서 구한 대기분진 부분(APM, 왼쪽)과 세척한 솔잎(Needle, 오른쪽)에서의 차이를 나타내었다. 대기분진 부분에서 APM과 Needle에서 계절별 특이성을 보면 다음과 같다.

1) 9월: APM의 경우, 도심지역에서는 Co, Zn, Rb가 평균치보다 높았으며, 준 도심지역에서는 Co, Zn, Na, W이 평균치보다 높았다. 그리고 청정지역에서는 Co를 제외한 거의 모든 성분이 평균치와 같거나 낮은 농도를 보여주고 있다. Needle 경우는 APM에서와 달리 전 지역에서 모든 성분들이 평균값과 유사한 농도를 보여주었다. 단지, W의 경우 준 도심지역에서 약간 높게 나타났다.

2) 11월: APM의 경우, 도심지역 및 청정지역에서는 거의 모든 성분들이 평균치와 차이가 없었다. 준 도심지역의 경우는 Br, Sm이 평균치보다 약 2배가량 높게 나타났다. Needle의 경우는, 청정지역에서 Co, Cr, Eu의 함량이 평균치보다 2배정도 높게 나타났고, 도심지역과 준 도심지역에서는 모든 성분들이 평균치와 유사한 농도를 나타냈다.

3) 2월: APM의 경우, 도심지역에서 As, Co, Cr, Sb, Zn, Sc 그리고 Th이 평균치보다 높게 나타났고, 준 도심지역에서는 11월의 경우와 같이 Sm이 평균치보다 높게 나타났다. Needle의 경우, As이 세 지역 모두에서 평균치보다 1.5~2배 가량 높게 나타났다.

4) 4월: APM의 경우, 도심지역에서 Sb 및 La가, 준 도심지역에서 As, Cr, Sb, Ce가 평균치보다 높게 나타났으며, 청정지역에서는 Rb, Sm의 두 성분이 평균치보다 약 2배 높게 나타났다. Needle의 경우는 전 지역, 모든 성분에서 평균치와 거의 같은 농도를 보여주었다.

5. 결 론

솔잎 및 표면에 함유되어 있는 중금속의 NAA분석을 통하여 환경오염을 간접적으로 측정하고자 하였다. 솔잎의 채취 및 전처리 그리고 NAA 실험조건을 도출하였고, 분석결과는 지역별, 계절별 그리고 솔잎표면과 내부에서의 중금속 성분들의 함유량의 차이를 조사하였다. As, Au, Br, Ce, Sb, W 및 Zn의 성분들은 지역

및 계절에 따라서 구별할 수 있는 특이성을 관찰할 수 있었다. 결과적으로 솔잎을 국내의 환경지표시료로서 활용하기 위해서는 장기적인 계획하에 보다 많은 시료에 대한 분석자료가 필요할 것으로 생각한다. 또한 소나무의 목질부분, 주변의 토양, 대기분진 등에 대한 종합적인 분석이 수행되어야 할 것이다. 국내에 널리 분포되어 있는 소나무 이외의 식물체에 대한 조사도 함께 수행한다면 보다 정확한 환경지표식물의 선정이 가능할 것이다.

참고문헌

- 1) P. J. Elving, V. Krivan and I. M. Koltoff, 1986, "Treatise on analytical Chemistry", 2nd Ed., part 1, Vol. 14, 645, John Wiley & Sons, New York, U.S.A.
- 2) S. Landsberger, *Anal. Chem.*, 1988, 60, 1842.
- 3) E. Steinnes, 1977, Report KR-154, Institutt for Atomenergi, Kjeller, Norway.
- 4) J. P. Rambaek and E. Steinnes, 1980, *Nuclear methods in Environmental Research*, (CONF-800433), USDOE, 175.
- 5) E. Steinnes, J. P. Rambaek and J. E. Hanssen, *Chemosphere*, 1992, 35, 735.
- 6) J. Caplan, E. Lobersli, R. Naeumann and E. Steinnes, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1987, 114, 13.
- 7) D. L. Samudralwar, H. K. Wankhade and A. N. Grag, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1987, 116, 307.
- 8) G. Capannesi, S. Caroli and A. Rosada, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1988, 123, 713.
- 9) M. Dermelj, V. Ravnik, L. Kosta, *Radiochem. Radioanal. Lett.*, 1977, 28, 231.
- 10) R. Cornelis, *Analyst*, 1992, 117, 583.
- 11) M. Carmo Freitas, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1995, 192, 171.
- 12) V. M. Nazarov, M. V. Frontasyeva, V. F. Peresedov, V. P. Chinaeva, T. M. Ostrovnyaya, S. F. Gundorina and V. V. Nikonov, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1995, 192, 229.
- 13) A. Ruhling and G. Tyler, *Water, Air, Soil Pollut.*, 1984, 173.
- 14) A. Ruhling and G. Tyler, *J. Appl. Ecol.*, 1971, 8, 497.
- 15) E. Steinnes, O. Johansen, O. Royset and M. Degard, *Environ. Monitor Assessment*, 1993, 25, 87.
- 16) J. Schaung, J. P. Rambark, E. Steinnes and R. C. Henry, *Atmospheric Environment*, 1990, 24A(10), 2625.
- 17) A. Wyttenbach, S. Bajo and L. Tobler, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1987, 114(1), 137.
- 18) M. V. Frontasyeva, F. Grass, V. M. Nazarov and E. Steinnes, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 1995, 192(2), 371.