

土壤侵蚀稀土元素示踪法操作技术研究

刘普灵 田均良 周佩华 李雅琦 琚彤军

(中国科学院水土保持研究所 陕西杨陵 712100)
水利部

摘 要 作为研究土壤侵蚀垂直分布的一种新方法,较详细地描述了稀土元素示踪法的原理与操作技术;通过实例说明了诸如示踪元素的选择原则,施放量的计算,施放方法及其注意事项等实际应用中可能遇到的各种问题的解决办法;给出了利用本法研究土壤侵蚀的精度计算公式。室内外试验的结果表明:我们所提出的 REE 示踪法研究土壤侵蚀操作技术是正确可行的,能够满足研究工作的需要。

关键词 稀土元素 示踪法 操作技术 研究

Studies of Operating Techniques on REE Tracer Method Applying to Soil Erosion

Liu Puling Tian Junliang Zhou Peihua Li Yaqi Ju Tongjun

(Institute of Soil and Water Conservation, Chinese Academy of Sciences
and Ministry of Water Resources Yangling Shaanxi 712100)

Abstract REE tracer method, as a new method for studies of vertical distribution of soil erosion intensity, has been adopted and introduced in this paper, especially for its principles and operating techniques. The troubles that may be met in practice (such as the selection of tracers, the calculation of tracer quantity added and the marking method) and the resolvable ways have been discussed by examples. A formula for calculating precision has been also given. Experimental results in a rainfall simulation plot and a field plot show that the operating rules pointed out in the paper are correct and both the reliability and accuracy are satisfactory.

Key words REE tracer method operating techniques study

利用示踪技术研究土壤侵蚀在国外已有近 20 年的历史。因其量化程度及可研究的地域面积等方面均优于土壤侵蚀研究中的传统方法,故受到重视并有较快的发展。

在 70 年代中期, Simpson^[1]等人利用在全球广为沉降的核爆产物¹³⁷Cs 等核素作为示踪元素,研究其在土壤和沉降物中的分布,估算农林系统土壤侵蚀和沉积;我国张信宝^[2]等也利用该方法开始了土壤侵蚀研究并取得了初步成效。但这种方法仅适宜进行大时间尺度的侵蚀量

宏观估算,对于侵蚀现状,特别是对于黄土高原,由于侵蚀严重地段沉降的 ^{137}Cs 核素多侵蚀殆尽,该方法则无能为力。

对于近期的侵蚀状况,国内外多沿用径流小区的径流泥沙测定法。该法大都用于侵蚀总量的推算,而对于不同地形部位产沙量的差异研究则不适宜。

研究土壤侵蚀分布及产沙来源的另一种方法是人为施放示踪原子法。由于可根据需要选择施放的地形部位和标记化合物,则比利用大气沉降的天然或核爆核素的方法具有更大的灵活性,适于确定侵蚀强度的分布,乃至小流域的产沙来源定量研究,使研究结果更具有实用价值。

Robbins 等人 1979 年曾指出利用放射性核素标记土壤剖面,可方便地研究土壤侵蚀沉积过程。但由于放射性对环境的污染问题,使该方法的应用受到了限制。

1986 年美国 Knaus^[3]等人利用稳定性稀土元素(REE)示踪和中子活化分析技术,克服了放射性元素示踪法的限制,成功地在野外测定了沼泽地侵蚀、沉积速率。

我们借鉴 Knaus 的研究方法,在国内首次将 REE 示踪法用于黄土高原土壤侵蚀垂直分布及小流域泥沙来源的研究。其基本原理是将示踪元素化合物与土壤均匀混合后布设于被研究地区的不同地形部位,使之在整个降雨过程中随径流泥沙一起迁移,尔后采集径流池中的泥沙样品,利用中子活化分析方法测定示踪元素的含量,最后根据元素平衡法计算不同侵蚀区的侵蚀量。目前,有关这方面的参考资料很少。在几年的工作中,我们逐步总结出一些具体的操作方法,并提出一些计算公式,其中大部分是在国内首次提出。实践证明,这些操作方法和公式正确可行,经整理归纳,简要介绍如下:

1 示踪元素的选择

用于土壤侵蚀研究的示踪元素,应具有和土壤有较好的结合能力,难溶于水、不易被植物吸收以及对生态环境无害等基本特征,以保证其在土壤侵蚀过程中对泥沙的示踪作用。此外,从方法的分析精度及实验成本和推广应用前景等方面综合考虑,示踪元素还应具有土壤背景值低,示踪元素施加量少且易于识别、探测等特征。

镧系的 REE(包括 La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、等 14 种元素),化学性质极其相似,大都具有基本相同的表生地球化学行为,在黄土高原土壤中含量甚低($\text{mg/kg} \sim \mu\text{g/kg}$ 级)。仪器中子活化分析(INAA)对大多数 REE 分析灵敏度高,且分析方法简便。在土壤侵蚀研究中,选用 REE 为示踪元素,尚可克服因不同元素间化学性质的差异而产生的实验误差,因此选用 REE 作为示踪物质能够满足上述要求。

另外,考虑到市售氧化稀土(分析级)的价格及所需的施放量,试验选用 La、Ce、Nd、Sm、Eu、Dy、Yb 7 种 REE 为示踪元素较为合适。

2 REE 施加量的计算方法

利用 REE 示踪法研究土壤侵蚀,示踪元素施放量的计算是十分重要的,也是该法的操作基础。它包括两个方面:(1)根据研究内容及要求,对被研究侵蚀区进行类型划分;(2)根据(1)所确定的不同侵蚀类型区,进行施放量的计算。

2.1 不同侵蚀单元(地貌、类别)的划分

类型区的划分要根据研究工作的需要,对被研究的区域面积按不同地貌单元、侵蚀类型以

及侵蚀部位分类划分,其目的一是确定示踪元素数量,因为每一类型区布设一种元素,二是可以确定每一示踪元素所代表的面积,不同示踪元素施放面积是施放量计算的基础。同时在划分类型的过程中,必须注意两个问题:①在满足研究工作需要的前提下,尽量减少分类数,以降低投资;②各类型区之间的面积比不宜太大,太大将会导致投资大幅度上升(这个问题下面还要进一步详细讨论)。

2.2 REE 施放量的计算

施放量的计算公式按田均良等^[4]给出的施放浓度方程式计算:

$$C_j = K \cdot B_j \cdot 10^{-3} / R_j \text{ (g/kg)} \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (1)$$

式中: n —— 被研究坡面划分的段数; C_j —— 第 j 种示踪元素的施放浓度; B_j —— 第 j 种示踪元素的土壤背景值; R_j —— 第 j 种示踪元素施放部位相对侵蚀量的最小期望值; K —— 考虑到其它因素的综合保证系数。

上述施放浓度计算公式在实际操作中有诸多不便之处,主要是 K 值的确定及 R_j 的选择较为困难。为了便于实际应用,假定将任一给定的流域面积(径流小区等)划分为 n 个不同的侵蚀类型区,其中第 j 个类型区示踪元素的总施放量可按下列公式计算:

$$Q_j = K \cdot B_j \cdot W_j \cdot 10^{-6} / R_j \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (2)$$

式中: n —— 被研究区域划分的类型数; Q_j —— 第 j 种示踪元素的总施放量; B_j —— 第 j 种示踪元素的土壤背景值 mg/kg; W_j —— 第 j 种示踪元素所代表的总土方量 kg; R_j —— 第 j 种侵蚀类型区最可几侵蚀率 ($0 < R_j < 1$)。

为了灵活应用公式(2),对其各因子说明如下:

① $K \cdot B_j$: 示踪元素的施放量,首先必须保证侵蚀泥沙中该元素的分析结果在统计学上的显著性,侵蚀泥沙中示踪元素的浓度应与其土壤背景值差异显著,本研究令侵蚀泥沙中第 j 种示踪元素的浓度等于 K 倍的背景值。实际上该值可根据不同示踪元素的探测灵敏度选择不同的值,太小影响分析精度,太大使投资上升。

② W_j : 其值应等于第 j 种类型区的面积 S_j (m²) × 施放深度 D_j (m) × 被研究区的土壤容重 ν (kg/m³),单位为 kg。

如果令试验类型区的示踪载体的总重量为 W_T ,则:

$$W_T = \sum_{j=1}^n W_j$$

③ R_j : 第 j 种类型区次降雨的最可几的侵蚀率,无量纲,为经验估计值:

$$\sum_{j=1}^n R_j = 1,$$

若一次降雨的总侵蚀量为 E_T ,第 j 种侵蚀类型区的估计侵蚀量则为:

$$E_T = \sum_{j=1}^n E_j \cdot R_j$$

④ 10^{-6} : mg~kg 的单位换算系数。

在对上述各量说明之后,我们再从另一角度理解公式(2),设一次降雨的总侵蚀量为 E_T ,第 j 种类型区的侵蚀量为 E_j ,其它物理量定义不变,那么在满足测量统计条件下的第 j 种示踪元素的总施放量应为:一次降雨第 j 种侵蚀区的单位侵蚀泥沙中示踪元素对总侵蚀量中该

元素的最小贡献乘以第 j 种示踪元素的总载体重量:

$$Q_j = \frac{K \cdot B_j E_T}{E_j} \cdot W_j \cdot 10^{-6} = \frac{K \cdot B_j \cdot E_T}{E_T \cdot R_j} \cdot W_j \cdot 10^{-6} = \frac{K \cdot B_j \cdot W_j \cdot 10^{-6}}{R_j}$$

此结果与公式(2)一致。

通过公式(2)计算的施放量为该元素的纯度,市售氧化稀土的浓度一般在 85%~99.99% 不等。因此,实际的氧化稀土施放量应对公式(2)的计算结果做两次修正,一为浓度修正,二是氧化物修正,方能满足研究需要,在此就不一一赘述了。

2.3 本研究的实用举例

2.3.1 室内模拟试验的施放量计算 试验小区布设在水土保持研究所侵蚀实验大厅,小区面积为 $6.5\text{m} \times 2\text{m} = 13\text{m}^2$,坡度 15° ,沿坡长自上而下均匀分为 A,B,C 三段,分别以 Eu,Sm,Ce 为示踪元素,施放方法采用段面施放法。为了探寻 REE 示踪法在野外应用的可行性,简化施放方法,在两次模拟降雨试验后,在 A,B,C 三段分别又追加了一条 20cm 宽的横向条带,依次施放了 Yb,Nd,La 三种稀土元素(图 1)。

以段面法为例,根据公式(2):

$$Q_j = K \cdot B_j \cdot W_j \cdot 10^{-6} / R_j$$

首先由 A,B,C 三段均布条件算出每个段面的面积;根据沿小区山上至下最小 5cm,最大 20cm 的施放深度计算得出: $W_1 = 293.8\text{kg}$, $W_2 = 593.8\text{kg}$, $W_3 = 706.2\text{kg}$;各段最可几的侵蚀率 $R_1 = 0.1$, $R_2 = 0.4$, $R_3 = 0.5$;土壤背景值 Eu=

1.4mg/kg, Sm=7.5mg/kg, Ce=72mg/kg;土壤容重约等于 1。为了确保分析精度,系数 K 在本研究中修正为 Eu=3, Sm=2, Ce=1, 将上述各量代入公式得: $Q_{\text{Eu}} = 0.0123\text{kg}$, $Q_{\text{Sm}} = 0.0224\text{kg}$, $Q_{\text{Ce}} = 0.1059\text{kg}$ 。

最后进行浓度和氧化物修正,市售上述三种单一氧化稀土的各项修正系数如下:

氧化稀土	浓度(%)	氧化物—元素转换系数
Eu_2O_3	99.99	0.863
Sm_2O_3	96.00	0.810
Ce_2O_3	99.00	0.810

修正后的施放量应为: $Q_1 = 12.34\text{g} / (0.9999 \times 0.863) = 14.3\text{g}$

$$Q_2 = 22.44\text{g} / (0.9600 \times 0.862) = 27.12\text{g}$$

$$Q_3 = 105.93\text{g} / (0.9900 \times 0.81) = 132.10\text{g}$$

2.3.2 野外全坡长小区的施放量计算 如图所示:小区长 113m,水平投影 100m,布设倾向于保守计算,仍按 113m 计,小区宽 5m,面积 565m^2 ,自上而下分为 6 个段面,分别以 La, Ce, Nd, Sm, Eu, Dy 为示踪元素,不同元素示踪面积除 La 为 $23 \times 5 = 115\text{m}^2$; Ce 为 $20 \times 5 = 100\text{m}^2$ 外,其余均为 $17.5 \times 5 = 87.5\text{m}^2$ 。施放深度 La、Ce 为 20cm,其余段面均为 30cm,根据以

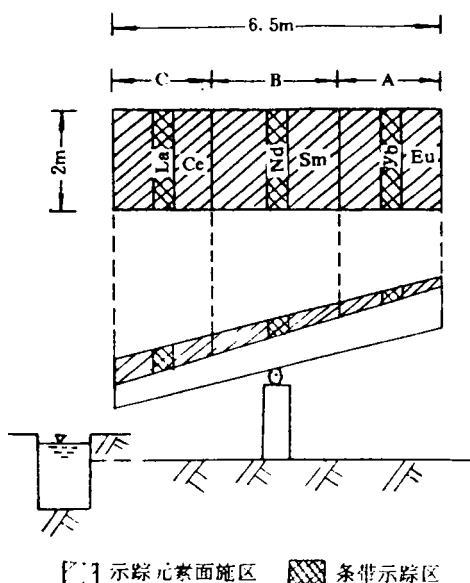


图1 人工降雨小区示踪元素布设示意图

上参数, 施放量的计算结果见表 1。

表 1 野外全坡长小区不同段面施放量的计算结果

断面	示踪元素	2.5 B _i (mg/kg)	W _i (kg)	R _i 估算值	浓度校正系数	氧化物校正系数	Q _i (kg)
1	La	80	23000	0.035	0.99	0.85	62.47
2	Ce	150	20000	0.088	0.99	0.81	42.51
3	Nd	90	26250	0.140	0.99	0.857	19.90
4	Sm	15	26250	0.193	0.96	0.862	2.39
5	Eu	3	26250	0.246	0.99	0.878	0.368
6	Dy	12	26250	0.298	0.99	0.863	1.241

3 REE 的施放方法

在不同类型区示踪元素的施放量确定之后, 施放方法就是从技术上保证示踪元素必须能够代表示踪载体的运移规律。理论上说, 如果能够保证示踪元素均匀地分布于被示踪的土体中并且随侵蚀泥沙一起运移, 就能完全保证研究结果的可靠性。但是在实际操作过程中, 要做到这一点十分困难, 特别是对于野外较大面积的试验研究, 要使全部示踪元素在被研究区域面积内的不同浓度上均匀分布, 其工作量之大显而易见。为了解决这个矛盾, 我们在段面施放法的基础上, 提出了条带法和点穴法, 下面分别作以介绍。

3.1 不同施放方法及其适用性

3.1.1 段面法 将示踪元素和被示踪土体全部均匀混合后施放于其代表的类型面积上, 厚度依施放深度值确定。优点: 结果可靠, 准确度与精度高。缺点: 工作量大, 野外难操作。适用室内模拟试验。

3.1.2 条带法 假设在小区的每一不同类型区总能找出一条有限宽度的带, 其土壤侵蚀强度等于或接近类型区的平均侵蚀强度, 这样我们就可利用该条带作为此类型区的示踪部位, 将示踪元素均匀布设于此条带中即可。该项研究试验结果证明: 条带法的精度和段面法一样令人满意, 能够取代段面法用于较大区域范围的土壤侵蚀研究。优点: 野外布设工作量较小, 精度高, 可行性强。缺点: 能否用于小流域泥沙来源研究尚不完全清楚, 还有待于试验证明。

该项研究的野外小区布设就采用条带施放法, 根据经验与室内试验结果, 各条带均布设在每个类型区长度的下 1/3 处。

3.1.3 点穴法 其处理和条带法一样, 如果能在一类型区找到一个或多个能代表该类型区的平均侵蚀强度的点, 即找到了最佳布设部位。这样的话, 就可大大降低野外工作量, 使 REE 示踪法研究小流域泥沙来源简单化。通过室内外试验证明, 该法施放虽然简单, 但由于点的定位选择较为复杂, 所选点穴难以很好满足上述代表区平均侵蚀强度要求而使其可靠性降低。但试验也证明, 点穴施放法确能计算不同点穴面积上的侵蚀量, 这样我们可在一选定的流

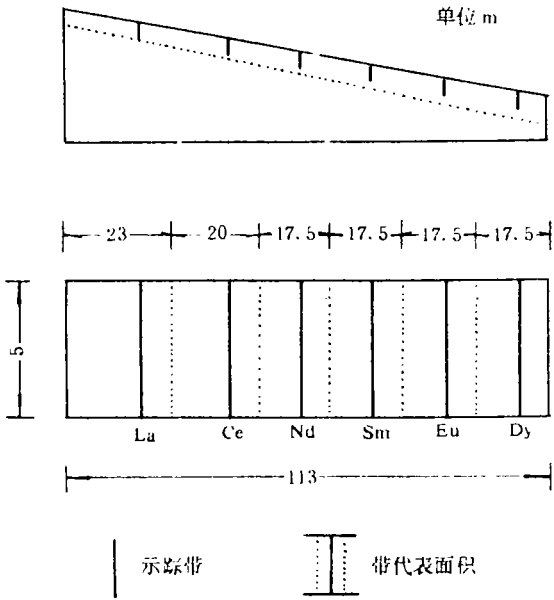


图 2 野外全坡长小区布设示意图

域面积上,利用网格法布设多个标记穴位,求得每个点穴面积上的侵蚀量,再用插值法计算整个流域不同地貌单元的侵蚀量变化趋势与分布。

3.2 野外布设的几个注意事项

(1) 为使 REE 能和土壤颗粒均匀紧密的结合在一起,示踪载体必须风干后过筛。

(2) 示踪元素与载体的混合过程采用稀释法,逐步稀释逼近施放浓度。

(3) 严格防止在操作过程中的交叉污染。

(4) 条带法和点穴法在野外布设时,先利用铁皮将被施放部位圈起土墙和周围隔离,按照布设深度挖出其中土壤,然后用标记载体替换原条带(点穴)中土壤。注意表层标记载体需要洒水固定。

3.3 几个应注意的问题

3.3.1 不同类型区的相对侵蚀率 在实际研究工作中,科学工作者更关心的不是总侵蚀量 E_T ,而是各不同类型区的相对侵蚀率(即最可几侵蚀率 R_j),在小区布设完成之后,欲求每次降雨的侵蚀量分布,只要求得各类型区的 R_j 值即可。至此,所有问题都已简单化。根据元素平衡原理:

各不同类型区的侵蚀量 $E_j \times$ 该区施放浓度 $C_j =$ 侵蚀泥沙总量 $E_T \times$ 侵蚀泥沙中第 j 种示踪元素的浓度 V_j ,那么由 R_j 的定义可知:

$$R_j = \frac{E_j}{E_T} = \frac{V_j}{C_j}$$

施放浓度 C_j 为已知量,侵蚀泥沙中各示踪元素浓度 V_j 由测量获得。

如果为条带施放法,令 S 为第 j 种类型区的长度, S_0 为条带宽度,则:

$$R_j = \frac{V_j \cdot S}{C_j \cdot S_0}$$

3.3.2 示踪元素配置的经济性 在 REE 示踪法研究土壤侵蚀的过程中,在类型区划分和示踪元素确定后,有一个问题必须引起足够的重视,就是示踪元素与类型区的优化配置问题,注意同一元素布设于不同的类型区将导致投资的大幅度变化,下面对此作一简单讨论。

首先令 ¥_j 为第 j 种示踪元素的市场售价,单位为:元/kg,则购第 j 种元素所需经费 T_j 为:

$$T_j = \frac{K \cdot B_j \cdot W_j \cdot 10^{-6}}{R_j} \cdot \text{¥}_j \quad (3)$$

分析公式(3)可以知道:

① 假如每一类型区的施放面积、深度相同, R_j 亦相同,则 B_j 越小,投资越少, ¥_j 越低,投资越低。

② 一般来说,在相同土地利用情况下, R_j 的变化范围在 0.1~0.5 之间,公式中, B_j 的变化范围在 1~75 之间, ¥_j 在 25~5 000 之间,系数取 2.5,土体重量 W_j 都为不确定值,要得到最小投资的示踪元素部位配置组合,较为复杂,但不同的配置投资相差又非常大,因此必须经过反复计算寻求最优。我们经过大量计算觉得有一规律可循,即 R_j 大的类型区,适合施放 B_j 小, ¥_j 高的元素,即沟坡下部适合布设 Eu、Dy 等元素;La、Ce 等元素的土壤背景值高, ¥_j 低,适合布设在沟坡上部。

③ 该法不适合于 R_j 差别太大的不同侵蚀类型区,否则会无限度的增加投资而使研究工

作无法进行。例如将林地与农耕地放在同一被研究区域考虑,假设两相同面积的农耕地和林地,农耕地一次降雨的最大侵蚀量为 165t,林地为 3t,那么农耕地 R_j 为 0.982,林地为 0.018,相同情况下农地投资为 0.5 万元,林地则需 $0.5 \text{ 万元} \times 0.982/0.018 = 28 \text{ 万元}$ 。

④ 为了减小投资,可利用示踪元素数等于分类数减一,即空一类型区不予布设,空白区的相对侵蚀率 $R = 1 - \sum_{j=1}^n R_j$ 计算得出。但这样作精度较差,误差集中在空白区内。

4 分析方法及质量控制、分析精度计算

4.1 分析方法与分析质量控制

所有样品 REE 的含量测定采用仪器中子活化分析(INAA)方法,使用我们为土壤元素分析建立的活化分析程序进行^[5]。其包括样品处理,辐照与计数以及分析质量控制三方面内容。

4.1.1 样品处理 待分析的所有土壤样品首先在室温下风干,均匀混合后利用网格法取 100g 左右利用玛瑙研钵研磨后过 100 目筛,最后称取 50~100mg 样品封装在 1cm×1cm 左右的铝箔小袋内作为活化的靶备用。整个过程严格保证样品的代表性及无交叉污染。

野外收集的过程样及水样,首先经过滤使泥水分离,分离后的泥沙样品处理方法与上述土壤样品相同。分离后的水样定容后在坩锅内加热蒸发,蒸发后的残留盐分全部收集,粉碎过筛制靶备用。

4.1.2 辐照与计数 样品辐照在北京原子能科学研究所的核反应堆进行,每 50 个样品(包括标准样品和质控样品)被封装在约 5cm×2cm×2cm 的铝箔内组成一活化的靶,照射中子积分通量为 $n \times 10^{13}$ 中子/cm²,对于每一活化的靶来说,中子积分通量是相同的。

活化后的样品在我们的多道——计算机系统上测定,探测器采用 ORTEC 高纯锗探测器(其对⁶⁰Co 的 1 332keV 的 γ 射线分辨率为 2.4keV)。测量时严格保证标准和样品的几何条件相同。这样获取的计数在经过衰变校正、测量时间与样品重量归一化后,分析样品中各元素的浓度由下式给出:

$$C_j = \frac{S_{sj}}{S_{sj}} \cdot S_{nj} \quad j = 1, 2, \dots, n \quad (4)$$

式中: n ——被分析的元素数; C_j ——第 j 种元素的浓度; S_{sj} ——标准样品中单位重量第 j 种元素的计数; S_{nj} ——被测量样品单位重量第 j 种元素的计数; S_{ej} ——标准样品第 j 种元素的浓度保证值,单位为浓度单位。

4.1.3 分析质量控制 为了保证分析精度,我们在每批分析样品中加入国际通用的标准参考物质(SRMs)作为质控样品。该方法对于本研究涉及的元素三次重复的精密度偏差小于 10%,方法的准确度由对质控样品的分析结果和其保证值的比较给出,结果十分满意。元素 Dy 的测定由北京原子能科学院在反应堆上利用短照方法直接进行,其分析误差均小于 10%。

4.2 分析结果及精度计算

在各样品内示踪元素的浓度知道之后,各类型区的最可几侵蚀率 R_j 可按下式计算:

$$R_j = \frac{\text{侵蚀泥沙中第 } j \text{ 种示踪元素的浓度}}{\text{该元素的施放浓度}}$$

我们以计算侵蚀量与理论值的比较来表示 REE 示踪法的计算精度,其值在实际应用中以下式计算:

(下转第 20 页)

技术和 REE 示踪研究土壤侵蚀,其定量化程度和精密程度均优于土壤侵蚀研究中的传统方法,中子活化分析的精度也满足 REE 示踪法精度的要求。

参考文献

1 柴之芳. 活化分析基础. 原子能出版社, 1980

2 Tian Junliang et al. INAA determination of major and tracer elements in loess, palesol and precipitation layers in a Pleistocene loess section, China. J. Radioanal. Nucl. chem, 1987, 110 (1): 261 ~ 274, 61 ~ 274

(上接第 16 页)

$$\sigma = (1 - \frac{\sum_{j=1}^n W_j}{W_r}) \times 100\% \qquad j = 1, 2, 3, \dots, n \qquad (5)$$

式中: n ——不同侵蚀类型区的划分数量; W_j ——第 j 种类型区的计算侵蚀量; W_r ——示踪小区的总侵蚀量。

本研究室内外试验分析结果的精度令人满意,误差均小于 15%,说明了 REE 示踪法在研究土壤侵蚀、泥沙运移、沉积及小流域泥沙来源中有广阔的应用前景。

5 结 语

经过 4 年多的试验研究证明,我“CN 32-1315/P”踪法研究土壤侵蚀操作技术(包括示踪元素的选择、REE 施放量的计算、REE 的施放方法、泥沙样品的采集和处理、中子活化分析质量控制及精度计算等)是正确可行的。该方法是土壤侵蚀垂直分布定量分析研究比较理想的方法。其可以观测任一所给定坡段次暴雨的产沙量和沉积量,可以深入分析任一所给定坡面点的冲淤变化及其影响因素,因而有广阔的应用前景。

参考文献

1 Simpson, H. J. et al. Man-made radionuclides and sedimentations in the Hudson River estuary. Sciences 194: 1976, 179~183

2 张信宝等. ^{137}Cs 测定梁峁坡农耕地土壤侵蚀初报. 水土保持通报, 1988, (5)

3 Knaus, R. M. et al., Accretion and canal impacts in a rapidly subsiding wetland. ■ A new soil horizon marker method for measuring recent accretion. Estuaries, 1989, 12(4)

4 田均良. 土壤侵蚀 REE 示踪法研究初报. 水土保持学报, 1992, 6(4)23~27

5 Tian Junliang et al. J. Radioanal Chem., Vol. 110, No. 1, (198)261~274