



**Fachgruppe
Nuklearchemie**

**ANLAGEN ZUM
POSITIONSPAPIER DER FACHGRUPPE NUKLEARCHEMIE
IN DER GESELLSCHAFT DEUTSCHER CHEMIKER**

**ARBEITSSCHWERPUNKTE
DER NUKLEARCHEMISCHEN FORSCHUNG UND ANWENDUNG**

Frankfurt am Main, Februar 2000

Anlage 1: Kernchemische Grundlagenforschung

Die kernchemische Grundlagenforschung befaßt sich zum einen mit stofflichen, chemischen Aspekten, wobei die von Menschen synthetisierten Elemente jenseits des Urans im Mittelpunkt des Interesses stehen. Zum anderen befaßt sie sich mit Themen, die Kerneigenschaften und Kernreaktionen betreffen. Kernchemie und Kernphysik stellen dabei methodisch unterschiedliche Wege zur Beantwortung ähnlicher Fragen zur Verfügung und ergänzen sich so gegenseitig. Kernchemische Methoden werden vorteilhaft dort eingesetzt, wo eine eindeutige Identifizierung der Kernladungszahl eines Reaktionsprodukts gefordert ist, gepaart mit einer extrem hohen Nachweiswahrscheinlichkeit.

1.1 Schwerste Elemente

Der wesentliche Beitrag der Kernchemie zum Periodensystem der chemischen Elemente sind zahlreiche mit kernchemischen Methoden entdeckte Elemente. Kernchemische Studien haben die Struktur des Periodensystems an dessen Ende verändert, indem sie die Existenz der Actinidenseerie sichtbar machten, in der in Analogie zur 4f-Schale der Lanthaniden die 5f-Schale aufgefüllt wird. Der Forschung mit Actiniden ist eine gesonderte Einzeldarstellung gewidmet.

Durch systematische Studien von Kernreaktionen, auf die in Anlage 1.2 näher eingegangen wird, und durch das daraus erwachsene vertiefte Verständnis der Synthesereaktionen ist es gelungen, Synthesen schwerster Elemente bis zum Element 112 eindeutig durchzuführen. Durch eine zunehmende dynamische Behinderung des Kernverschmelzungsprozesses werden die Produktionsraten aber von Element zu Element geringer; von Element 112 sind bisher nur zwei Atome beobachtet worden. Die Aussichten, noch wenigstens einige Ordnungszahlen weiter vorzudringen, sind realistisch, wenngleich dazu enorme Anstrengungen gemacht werden müssen. Zur Herstellung des Elementes 114 sind kürzlich Versuche in Dubna, für die Elemente 116 und 118 in Berkeley und Darmstadt durchgeführt worden.

Als besonders interessant haben sich die Kerneigenschaften der schwersten Elemente erwiesen. Entgegen früheren Erwartungen zerfallen sie nicht durch Spontanspaltung, sondern hauptsächlich durch α -Zerfall. Sie müssen demnach noch Spaltbarrieren beachtlicher Höhe besitzen, die einzig und allein auf Schaleneffekte zurückzuführen sind; der Flüssigkeitstropfen-Modell-Beitrag zu den Spaltbarrieren dieser Elemente ist gleich Null. Aus den Q_α -Werten lassen sich die Kernma-

ssen dieser exotischen Kerne ableiten und daraus quantitative Aussagen über die Barrierenhöhen machen. Sie liegen selbst bei den schwersten Elementen bei 6 - 7 MeV. Solche Barrierenhöhen bewirken, daß die Lebensdauern gegen Spontanspaltung um 15 Größenordnungen erhöht sind. Theoretische Rechnungen ergeben Spaltbarrieren, die mit den experimentellen gut übereinstimmen. Dabei hat sich die Landschaft der Kernstabilität in den modernen Rechnungen gegenüber denen der siebziger Jahre wesentlich verändert. Damals gab es für $Z = 114$ und $N = 184$ eine steile Stabilitätsinsel (die sphärischen superschweren Kerne) und davor ein Meer der Instabilität. Die jetzige Stabilitätsinsel erstreckt sich von $Z = 114$ bis $Z = 126$ und von $N = 170$ bis $N = 184$, ist also von West nach Ost langgestreckt und hat einen nach Südwesten reichenden Ausläufer mit erhöhter Stabilität bei der deformierten Neutronenschale $N = 162$. Hiervon profitieren also die schalenstabilisierten schwersten Elemente, die bisher eindeutig nachgewiesen werden konnten. Wir sind also bereits auf der „Insel“ der superschweren Elemente gelandet. Die Herstellung weiterer Isotope der schwersten Elemente und die Messung ihrer Zerfallseigenschaften sollen die experimentelle Karte der Stabilitätslandschaft erweitern helfen.

Kernchemiker sind aber auch an den chemischen Eigenschaften der schwersten Elemente interessiert. Lassen sich die chemischen Eigenschaften in der vierten, fünften, sechsten und siebten Nebengruppe „linear“ zu denen von Element 104, 105, 106 und 107 extrapolieren? Nach Experimenten der ersten Generation in den siebziger Jahren, in denen man einige grundlegende, aber noch relativ unspezifische Eigenschaften von Element 104 und 105 untersuchte, ist man durch die Entwicklung computergesteuerter, automatischer Trennapparaturen jetzt in der Lage, in Hunderten oder Tausenden von reproduzierbaren Einzelexperimenten oder on-line Versuche detaillierte Vergleiche der Chemie der schwersten Elemente mit der der leichten Homologen anzustellen. Diese Experimente, die mit einzelnen Atomen durchgeführt werden müssen, haben überraschende Ergebnisse erbracht: So beobachtet man eine Inversion des Trends der chemischen Eigenschaften, wenn man von den 5d- zu den 6d-Elementen geht. Beispielsweise liegt der Verteilungskoeffizient der anionischen Chloridkomplexe des Elements 105 mit einem Anionenaustauscher immer nahe bei dem des leichten Homologen Niob und unterscheidet sich stark von dem seines nächsten Verwandten Tantal. Diese überraschenden chemischen Eigenschaften der Elemente 104, 105, 106 und 107 lassen sich mit quantenchemischen, relativistischen Molekülorbitalrechnungen „verstehen“, wenn z. B. die Konkurrenz der Hydrolyse mit der Chloridkomplexbildung explizit berücksichtigt wird. Experimente mit dem Element 108 sind in Vorbereitung. Die Schalenstabilisierung der $N = 162$ -Schale stellt auch hier noch Isotope mit Halbwertszeiten von

einigen Sekunden zur Verfügung, mit denen schnelle Chemie gemacht werden kann. Allerdings sinken die Produktionsraten auf weit weniger als 1 Atom/Tag, weshalb anspruchsvolle neue Methoden (Chemie hinter einem elektromagnetischen Separator, Chemie in der Penningfalle) entwickelt werden müssen, mit denen die Empfindlichkeit entsprechend gesteigert werden kann.

1.2 Kernreaktionen

Nach wie vor wird ein breites Spektrum von Kernreaktionen mit kernchemischen Methoden untersucht. Wegen der Konkurrenz durch kernphysikalische Meßtechniken muß der Kernchemiker aber im Einzelfall die Marktlücken erkennen und gezielt dort seine Methoden einsetzen. Im allgemeinen wird dies eine „Aktivierungsmethode“ sein, in der die Radioaktivität der Kernreaktionsprodukte zu ihrem spezifischen Nachweis verwendet wird. Dies kann mit oder ohne chemische Auftrennung des Produktgemischs erfolgen und über Catcherfolientechniken auch Winkel- und Reichweiten-(Geschwindigkeits-)information beinhalten. Im Niederenergiebereich ($E \leq 30$ MeV) finden mehrere konkurrierende Kernprozesse statt, z. B. radioaktiver Einfang, Nukleonemission usw., die experimentell und theoretisch gut untersucht worden sind. Es gibt jedoch einige seltene Prozesse, z. B. die Emission leichter komplexer Teilchen, wie ^3H , ^3He , ^7Be usw., die sehr niedrige Wirkungsquerschnitte aufweisen und die mit Hilfe der Kernmodellrechnungen nicht beschrieben werden können. Hier spielen radiochemische Trennungen und „low-level“-Aktivitätsmessungen eine besondere Rolle. So sind die bisherigen Ergebnisse, insbesondere die mit Neutronen, auf kernchemischem Weg gewonnen worden. Weitere radiochemische Untersuchungen in Kombination mit Massenspektrometrie und Beschleunigermassenspektrometrie erscheinen sehr vielversprechend.

Ein weiteres Niederenergiegebiet, in dem die Nuklearchemie eine wichtige Position einnimmt, betrifft die Untersuchung der Isomerenverteilung bei Kernreaktionen, insbesondere in der Nähe der Reaktionsschwelle. Durch radiochemische Trennungen und die Herstellung dünner Meßpräparate ist es möglich, auch die weiche Gamma- bzw. Röntgenstrahlung zu messen, d.h. die Niederenergie-Kernniveaus vorteilhaft zu charakterisieren. Systematische Untersuchungen als Funktion der Energie und des Drehimpulses des Projektils sind von grundlegender Bedeutung. Auch der Spin des Niveaus spielt eine wichtige Rolle. Solche Untersuchungen werden z. Zt. unter Verwendung von monoenergetischen Neutronen sowie geladenen Teilchen am Zyklotron mit großem Interesse verfolgt.

Es soll hier auch erwähnt werden, daß die Kernreaktionsstudien im Niederenergiebereich nicht nur von grundlegender Bedeutung sind, sondern sie liefern auch Kerndaten, die für Anwendungszwecke außerordentlich wichtig sind. So sind die Neutronendaten für die Fusionsreakorttechnologie und die Daten mit geladenen Teilchen für die Optimierung der Produktionsbedingungen medizinisch relevanter Radionuklide sehr wichtig. Fast alle wichtigen Zyklotronnuklide werden an kleinen bzw. mittelgroßen Zyklotrons im Energiebereich bis 30 MeV erzeugt.

Im Mittelenergiebereich ist die Produktion kosmogener Nuklide durch die galaktische kosmische Strahlung von Interesse. Ihre Produktionsraten werden kompliziert durch sekundäre Teilchenfelder, deren Einfluß in Monte Carlo-Simulationen bzw. in Simulationsexperimenten untersucht wird.

Die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten nukleonen-induzierter Kernreaktionen für mittlere Energien ($< 10 \text{ GeV/A}$) hat in der jüngsten Zeit zusätzliche Aktualität gewonnen. Für Studien zur Machbarkeit der auf Beschleunigern oder schnellen Reaktoren basierenden Transmutation radioaktiver Abfälle werden Wirkungsquerschnitte protonen- und neutronen-induzierter Reaktionen für eine große Anzahl von Elementen von den Schwellen bis ca. 2 GeV benötigt. In diesem Zusammenhang hat sich gezeigt, daß noch beträchtliche Grundlagenforschung erforderlich ist, um ein Verständnis der Spallation, Fragmentation und Hochenergiespaltung schwerer Elemente in nukleonen-induzierten Reaktionen zu erreichen, wie es als Grundlage für die technische Anwendung benötigt wird.

In der niederenergetischen Kernspaltung interessieren gerade-ungerade-Effekte, Drehimpulse der Fragmente und ganz seltene Spaltkanäle. Im Bereich der schwersten Actiniden und Transactiniden hat der Übergang von asymmetrischer zu symmetrischer Spaltung Aufmerksamkeit erregt, sowie die an der Verteilung der totalen kinetischen Energie der Fragmente erkennbare „bimodale“ Spaltung. Hier sind Anstrengungen beobachtbar, die Zahl der Spaltsysteme, die diese bimodale Spaltung zeigen, zu vergrößern und das Phänomen in Z und N einzugrenzen. Theoretische Arbeiten haben die Existenz mehrerer Spaltpfade im selben spaltenden System bestätigt.

Bei den Schwerionenreaktionen geht der Trend zur Zeit zwar zu hohen und ultrarelativistischen Energien, dennoch sind im Bereich an und unterhalb der Barriere noch viele Fragen offen. Hier sind kernchemische Experimente wegen ihrer Empfindlichkeit prädestiniert für weitere Aufklä-

rungen von Reaktionsmechanismen. Während die dynamische Behinderung der Fusion, die die Elementsynthesen der schwersten Elemente zunehmend schwieriger macht, inzwischen hinreichend systematisch untersucht wurde, ist noch wenig darüber bekannt, welche Konkurrenzkanäle (resepation channels) statt der Fusion bevölkert werden. An der Häufigkeit, mit der einzelne Konkurrenzkanäle populiert werden, läßt sich ablesen, welche Phasen des Kernverschmelzungsprozesses das fusionierende Doppelkernsystem bereits durchlaufen hat, bevor es vorzeitig zerbricht. Hierzu ist die Erfassung quasi-elastischer Transferkanäle, tief-inelastischer Kanäle sowie der Quasi-Spaltung erforderlich. Neben ihrer Kanalkopplung mit der Fusion sind auch ihre wechselseitigen Beeinflussungen noch unverstanden. Die DWBA-Beschreibung von quasi-elastischen Transferreaktionen versagt zum Beispiel in Systemen, in denen ein stark in eine Richtung erfolgreicher tief-inelastischer Nukleonenfluß beobachtet wird: Dieser stellt ein Polarisationspotential dar, auf das quasi-elastische Kanäle an der Barriere äußerst empfindlich reagieren. In den komplexen, inelastischen Reaktionen ist die Aufteilung der Anregungsenergie auf die Fragmente eine hochaktuelle Fragestellung.

Bei Schwerionenreaktionen um 1 GeV/Nukleon ist durch Coulombanregung in sehr peripheren Stößen die Anregung von Riesenresonanzen ein mit großen Wirkungsquerschnitten ablaufender Prozeß. Die Anregungswahrscheinlichkeiten werden so hoch, daß Riesenresonanzen auch in höheren Phononenzuständen bevölkert werden. So haben kürzlich ein physikalisches und ein radiochemisches Experiment übereinstimmend die Anregung der Zwei-Phononen-Dipolriesenresonanz in schweren Kernen nachgewiesen. Die Breite dieses Zwei-Phononen-Zustandes ist überraschend gering und seine Anregungswahrscheinlichkeit höher als in einer harmonischen Näherung vorhergesagt. Das Studium solcher exotischer Zustände in deformierten und superdeformierten Kernen (Spaltisomeren) steht bevor. Das Verständnis der Struktur dieser Zustände und des Anregungsmechanismus ist zur Zeit noch unbefriedigend. Die Anregung von Riesenresonanzen wird derzeit auch systematisch auf instabile leichte und mittelschwere, neutronenreiche Isotope ausgeweitet (siehe Anlage 1.5 Radioaktive Schwerionenstrahlen). Diese experimentellen Arbeiten werden von einer intensiven theoretischen Aktivität begleitet.

In zentralen Stößen bei 100 MeV/Nukleon bis 1 GeV/Nukleon studiert man kollektive Fluß-Phänomene, aus denen man u.a. die nukleare Zustandsgleichung ermitteln will. Ein neuer Reaktionsmechanismus, die Multifragmentation, ist Gegenstand der Untersuchungen, sowie die Produktion von „strangeness“ in der zur „Resonanzmaterie“ angeregten Kollisionszone.

Ein an sich wenig spektakulärer Reaktionsmechanismus bei peripheren Stößen, früher Spallation genannt, wird in Form der Projektilfragmentation ein wichtiger Produktionsmechanismus für Strahlen radioaktiver Kerne („Radioactive Nuclear Beams“).

1.3 Solares Neutrinoproblem

Das „Wasserstoffbrennen“ in der Sonne, die Verschmelzung von Protonen zu Heliumkernen, enthält vier Teilschritte, an denen die schwache Wechselwirkung beteiligt ist und bei denen somit Neutrinos emittiert werden. Neutrinos lassen sich durch inversen Beta-Zerfall nachweisen, und das in der Homestake-Mine in South-Dakota seit 1970 laufende Experiment mit 615 Tonnen Perchlorethylen verwendet dazu die $^{37}\text{Cl}(\nu_e, e)$ -Reaktion zum radioaktiven ^{37}Ar , welches aus dem Perchlorethylentank ausgetrieben und radiochemisch nachgewiesen wird. Nach dem Standardsonnenmodell werden im Tank 1,5 Reaktionen pro Tag erwartet, gemessen werden im Mittel nur 0,5. Nach R. Davis zeigt die Rate der nachgewiesenen Neutrinos sogar einen 11-Jahres-Zyklus in Antikorrelation mit der Zahl der Sonnenflecken. Wenn diese Antikorrelation real ist - sie ist statistisch bisher nicht als gesichert anzusehen - könnte sie auf ein Umklappen des Neutrinospins im Magnetfeld der Sonne zurückzuführen sein. Dies würde ein überraschend großes magnetisches Dipolmoment des Neutrinos erfordern. Im Standardmodell der Elementarteilchen besitzt das masselose Neutrino kein magnetisches Moment. Natürlich kann das Neutrinodefizit im Davis-Experiment auch auf Unzulänglichkeiten des Standardsonnenmodells hindeuten. Wegen seiner hohen Energieschwelle weist das Chlor-Experiment nur die relativ seltenen, hochenergetischen Neutrinos aus Reaktionen nach, die im Zentrum der Sonne ablaufen.

Deshalb sind seit 1989/90 zwei große radiochemische Sonneneutrinoexperimente in Betrieb (SAGE und GALLEX), in denen an 60 Tonnen Gallium bzw. 100 Tonnen Galliumchlorid die Reaktion $^{71}\text{Ga}(\nu_e, e)^{71}\text{Ge}$ abläuft. Diese Reaktion hat eine so geringe Energieschwelle, daß auch die aus der Sonnenoberfläche stammenden pp-Neutrinos nachgewiesen werden. Deren Rate ist durch die Luminosität der Sonne festgelegt und insofern nicht von Details des Standardsonnenmodells abhängig. Das radioaktive ^{71}Ge wird als flüchtiges GeCl_4 aus dem Galexentank ausgetrieben, in GeH_4 umgewandelt und als solches dem Zählgas eines Proportionalzählers beigemischt. Auch hier ist die nachgewiesene Neutrinorate geringer als erwartet, aber nicht so drastisch wie im Chlor-Experiment. Es wird eine energieabhängige Unterdrückung der solaren Neutrinos durch resonante Wechselwirkung mit Elektronen im Innern der Sonne (Mikheyev-Smirnov-

Wolfenstein-Effekt) postuliert oder eine Neutrinooszillation auf dem Weg von der Sonne zur Erde, aus der eine Umwandlung der Elektron-Neutrinos in Myon-Neutrinos resultiert. Die dazu erforderlichen Neutrinoeigenschaften (endliche Ruhemasse) sind jenseits des Standardmodells der elektroschwachen Wechselwirkung. Die mit den beobachteten Neutrinoraten kompatible Neutrino-Massendifferenz ist danach von der Größenordnung 10^{-3} eV. Offenbar tragen die solaren Neutrinoexperimente, die dazu angetreten waren, das Standardsonnenmodell zu testen, dazu bei, unsere Kenntnis von den Eigenschaften der Elementarteilchen zu verfeinern. In dieses Bild paßt die kürzlich vom Kamiokande-Experiment berichtete Evidenz für Neutrinoszillationen, die an in der Erdatmosphäre erzeugten Neutrinos beobachtet wurde.

Zu erwähnen sind an dieser Stelle noch zwei geochemische Neutrinoexperimente (eines benutzt eine unterirdische Molybdänerzlagerstätte als „Detektor“, ein zweites, in Diskussion befindliches, eine Thalliumerzlagerstätte), die Informationen über den über kosmologische Zeiträume integrierten solaren Neutrinofluß liefern können.

1.4 Elementsynthese in Sternen

Seit den schon klassischen Arbeiten von Burbidge et al. („B²FH“) und Cameron aus dem Jahr 1957, in denen die Grundlagen der stellaren Nukleosynthese entwickelt wurden, ist in vielen Arbeiten versucht worden, die Elementbildung in Sternen zu erklären. Gleichzeitige Fortschritte in der Astrophysik und im Verständnis der Kernstruktur haben dazu geführt, daß wir heute in der Lage sind, ein weitgehend konsistentes Bild für die Entstehung der Elemente im Kosmos zu entwickeln, wobei jedoch noch viele Detailfragen offen sind.

Das Standardmodell der primordialen Nukleosynthese besagt, daß im „Urknall“ nur die leichtesten chemischen Elemente H und He sowie etwas Li gebildet worden sind. Dies liegt daran, daß Atomkerne der Massenzahl $A = 5$ und $A = 8$ teilchen-instabil sind, und somit durch Anlagerung eines Neutrons oder Protons an He-Atome keine stabilen schweren Kerne gebildet werden können. In den letzten Jahren wurden jedoch auch inhomogene Big-Bang Modelle diskutiert, die davon ausgehen, daß bei einem QCD Phasenübergang erster Ordnung Fluktuationen der Baryonenzahldichte auftreten können. Damit lassen sich die $A = 5$ und $A = 8$ „Gaps“ überbrücken und in den neutronenreichen Regionen des inhomogenen Universums sogar schwere Elemente durch einen primordialen r-Prozeß synthetisieren. Experimentell interessante Reaktionen sind in diesem Zusammenhang Neutroneneinfang sowie Deuterium- und Tritium-induzierte Reaktionen an in-

stabilen Kernen zwischen ${}^6\text{Li}$ und ${}^{28}\text{Mg}$.

„Jenseits“ der primordialen Nukleosynthese unterscheidet man sowohl vom Standpunkt der Astrophysik als auch der Kernphysik/chemie zwei Gruppen von Elementen. Die erste umfaßt alle diejenigen Elemente, die durch Reaktionen zwischen geladenen Teilchen (p , α , schwere Ionen) aus leichten Kernen aufgebaut werden können. Die zweite Gruppe enthält alle Elemente schwerer als Fe und Ni. Sie werden fast ausschließlich durch Neutroneneinfänge und anschließende Emission von Elektronen und Antineutrinos (β^- -Zerfall) gebildet. Vereinfacht läßt sich die experimentelle Situation wie folgt beschreiben: Reaktionen an stabilen Targetkernen (Fusionsreaktionen, s-Prozeß) sind heute weitgehend untersucht und verstanden, während bei stellaren Prozessen außerhalb des Bereichs der stabilen Atomkerne (rp-, p- und r-Prozeß) noch viele Fragen offen sind. Hier fehlen sowohl experimentelle Daten als auch ein detailliertes Theorieverständnis der Entwicklung der Kernstruktur zwischen Stabilitätstal und extrem kurzlebigen Isotopen mit Teilchen-separationsenergie Null.

Im heißen CNO-Zyklus und dem rp- (rapid proton capture) Prozeß des explosiven H-Brennens werden hauptsächlich (p,γ)-, (p,α)- und (α,p)-Wirkungsquerschnitte bei stellaren Energien benötigt. Als Schlüssel-Reaktionen für den heißen CNO-Zyklus betrachtet man heute z.B. ${}^{13}\text{N}(p,\gamma)$, ${}^{17,18}\text{F}(p,\gamma)$ sowie ${}^{14}\text{O}(\alpha,p)$ und ${}^{18}\text{F}(p,\alpha)$. Wenn die ${}^{14}\text{O}(\alpha,p)$ - und ${}^{15}\text{O}(\alpha,\gamma)$ -Raten schneller als die entsprechenden β^+ -Zerfallsraten werden, bricht der Reaktionsfluß aus dem CNO-Zyklus aus und geht in den rp-Prozeß über. Dieser Prozeß ist ein wichtiger Energieproduzent für Nova-Explosionen. Schlüssel-Reaktionen sind in diesem Zusammenhang ${}^{19}\text{Ne}(p,\gamma)$, ${}^{27,31}\text{Si}(p,\gamma)$ und ${}^{39}\text{Ca}(p,\gamma)$.

Für das Verständnis der während des He-Brennens in Roten Riesen ablaufenden s-(slow neutron capture) Prozeß-Nukleosynthese benötigt man die Kenntnis der stellaren Neutroneneinfangraten an stabilen Kernen mit einer Genauigkeit von $\leq 5\%$. Abgesehen von einigen wenigen seltenen Isotopen, wurde dies inzwischen experimentell erreicht. Zu untersuchen bleiben noch (n,γ)-Wirkungsquerschnitte von etwa 40 langlebigen radioaktiven Nukliden, bei denen s-Prozeß-Verzweigungen auftreten und/oder die als stellare Uhren oder Thermometer dienen können. Hier sind Nuklearchemiker insbesondere für die Präparation isotonenreiner „heißer“ Targets gefragt. Weiterhin aktuell ist auch die Untersuchung der potentiellen Neutronenquellen für den s-Prozeß. Neben den Produktions-Reaktionen ${}^{13}\text{C}(\alpha,n)$, ${}^{22}\text{Ne}(\alpha,n)$ und ${}^{18}\text{O}(\alpha,n)$ müssen auch die

entsprechenden (α, γ)-Kanäle sowie die Wirksamkeit möglicher „Neutronengifte“, wie z. B. $^{25}\text{Mg}(n, \gamma)$ oder $^{56}\text{Fe}(n, \gamma)$ experimentell bestimmt werden.

Als letzter Nukleosyntheseprozess ist der r- (rapid neutron capture) Prozess angesprochen. Nach heutigem Wissensstand findet er bei einer Supernova-Explosion am Rande des sich bildenden Neutronensterns in der sogenannten „High-Entropy Bubble“ statt. Bei den dort herrschenden Bedingungen sind die Zeiten für Neutroneneinfänge bis fast zur „Drip-Line“ ($S_n = 0$) sehr viel kürzer als die typischen β^- -Zerfallszeiten. Damit verläuft der r-Prozesspfad entlang extrem neutronenreicher Nuklide, die im allgemeinen dem Experiment absolut unzugänglich sind. Daher war man lange Zeit ausschließlich auf einfache theoretische Eingangsdaten (Kernbindungsenergien, β^- -Zerfallsraten, β^- -verzögerte Neutronenemissionsraten, usw.) für astrophysikalische r-Prozess-Rechnungen angewiesen. Erst in den letzten Jahren ist es (überwiegend) Kernchemikern gelungen, einige der für das Verständnis des r-Prozess-Ablaufs wichtigen „Waiting-Point“-Isotope bei den magischen Neutronenzahlen $N = 50$ (^{79}Cu , ^{80}Zn , ^{81}Ga) und $N = 82$ (^{129}Ag , ^{130}Cd , ^{131}In) zu identifizieren. Diese experimentell schwierigen Messungen haben, zusammen mit inzwischen wesentlich verbesserten mikroskopischen Modellen für Kernmassen, Kernstruktureigenschaften und β^- -Zerfallsgrößen der experimentell nicht zugänglichen r-Nuklide, erstmals zu einer kern- und astrophysikalisch konsistenten Beschreibung sowohl der globalen solaren r-Prozess-Elementhäufigkeitsverteilung, als auch bestimmter Isotopenanomalien in Meteoriten geführt. Mit diesem Ergebnis konnten wesentliche Eingrenzungen astrophysikalischer r-Prozessparameter erhalten werden, die z. B. das lange favorisierte Szenario des explosiven He-Schalenbrennens als Ort für den r-Prozess ausschließen. Diese neuen Erkenntnisse haben die Planung weiterer Kernstruktur-Experimente, u.a. mit exotischen radioaktiven Strahlen und chemisch hochselektiven Laser-Ionenquellen, motiviert, an denen die Nuklearchemie maßgeblich beteiligt ist.

1.5 Kernstruktur

Die Kernstruktur wird einerseits bestimmt von globalen Größen wie Masse und Ladung, darüber hinaus aber auch von der Besetzung der Quantenzustände durch unabhängige Teilchen, welche durch ihre Wechselwirkungen die globalen Eigenschaften modifizieren. Die Vielzahl von Kombinationsmöglichkeiten exotischer Einteilchenzustände verkompliziert das Bild, je weiter man sich vom Stabilitätstal entfernt. Dies eröffnet aber gleichzeitig einzigartige Gelegenheiten, völlig neue Phänomene zu beobachten, die aus unserer heutigen Kenntnis der Kerntheorie nicht ohne weiteres abzuleiten sind. Mit Erreichen der Stabilitätsgrenzen läßt sich z. B. die nukleare Zu-

standsgleichung verbessern. Auf den Wegen bis zu den „Drip-Lines“, an denen Kerne instabil gegen Protonen- bzw. Neutronenemission aus dem Grundzustand werden, wurden neue, exotische Zerfallsarten entdeckt, neue Kernmaterie- und Ladungsverteilungen, sowie neue Phasenübergänge und ungewöhnliche Kernformen. In diesem Zusammenhang seien die derzeitigen Untersuchungen von Neutronen-Halos erwähnt, die nahezu reine Neutronenmaterie geringer Dichte darstellen; oder die Beobachtung identischer Rotationsbanden sowohl bei hohen als auch bei niedrigen Drehimpulsen, die als möglicher Ausdruck einer Sättigung der Kollektivität („Superdeformation“) interpretiert werden. Neue Informationen über neutronenreiche Kerne tragen dazu bei, das Verständnis astrophysikalischer Neutroneneinfangprozesse zu verbessern. Weitab der β -Stabilität wurden neue Einteilchenzustände identifiziert, die es erlauben, unsere derzeitigen Vorstellungen über die Einteilchenstruktur der Kerne zu testen sowie die diese Struktur modifizierenden Restwechselwirkungen. Besonders interessante Gebiete für die Zukunft sind hier die der exotischen, doppelmagischen Isotope ^{78}Ni , ^{100}Sn und ^{132}Sn .

Jedoch auch nahe der β -Stabilität gibt es noch interessante Phänomene zu untersuchen. Erwähnt seien die Bemühungen um „vollständige Spektroskopie“ von Kernen, die in Zukunft eine umfassende Verbindung zwischen Nieder- und Hochspinzuständen etablieren können. Hier spielt derzeit auch die Frage nach „Ordnung“ und „Chaos“ der Quantensysteme eine wichtige Rolle.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß das „alte“ Gebiet der Kernstruktur auch in Zukunft noch viele Überraschungen bringen wird, die unser Verständnis fundamentaler Zusammenhänge bei der Beschreibung der Kerneigenschaften erweitern werden. Experimentell ermöglicht werden diese Untersuchungen durch bereits existierende (ISOLDE-CERN, LISE-GANIL, FRS-GSI) und geplante Verbundforschungseinrichtungen mit radioaktiven Schwerionenstrahlen.

1.6 Radioaktive Schwerionenstrahlen

Ein neuer technologischer Zugang, u.a. auch zu den in Kap. 1.3 und 1.4 interessierenden radioaktiven Kernen und ihrer Kernstruktur, ist die Herstellung exotischer Kerne und ihre Verfügbarmachung als radioaktive Schwerionenstrahlen („Radioactive Nuclear Beams“). Auf diesem Gebiet sind weltweit beachtliche Aktivitäten zu beobachten. Drei unterschiedliche Konzepte werden verfolgt: a) Die ISOL (Isotope Production on-line)-Produktion radioaktiver Kerne mit einem hochintensiven Protonenstrahl von ca. 1 GeV in einem dicken Target, aus dem sie chemisch hindurchdiffundieren und nach Ionisierung von einem Schwerionenbeschleuniger auf Energien kurz

oberhalb der Coulombbarriere beschleunigt werden. b) Die Projektilfragmentation hochenergetischer Schwerionenstrahlen mit anschließender magnetischer Separation der radioaktiven Fragmente. c) Die Beschleunigung von Spaltprodukten aus einem Hochflußreaktor. Während ISOL-Projekte und Spaltproduktbeschleuniger bisher nur in der Diskussion sind, gibt es in USA, Japan, Frankreich und Deutschland bereits produzierende Projektilfragmentations-Maschinen. In Darmstadt handelt es sich dabei um die Kombination eines Fragmentseparators (FRS) mit dem Experimentierspeicherring (ESR), in dem die separierten radioaktiven Strahlen gespeichert, gekühlt und auf Energien in der Nähe der Coulombbarriere abgebremst werden können.

1.7 Bewertung und Perspektiven

An den der Grundlagenforschung zuzurechnenden Arbeitsschwerpunkten arbeiten derzeit kernchemische Arbeitsgruppen aus Darmstadt (GSI), Hannover, Jülich, Karlsruhe, Köln, Mainz und Rossendorf/Dresden. Die Arbeiten sind national und international sehr anerkannt.

Es besteht keine einheitliche Forschungsförderung: Kernreaktionen und Kernstrukturuntersuchungen werden vom BMBF gefördert (Projektträger „Komplexe Systeme der Kern- und Teilchenphysik“, zukünftig „Hadronen- und Kernphysik“). Andere Vorhaben fördert die DFG, sowohl im Normalverfahren als z.B. auch im Schwerpunktprogramm „Relativistische Effekte in der Chemie und Physik schwerer Elemente“, wie auch im Teilbereich nukleare Astrophysik. Obwohl die Konkurrenz der Kernphysik überall stark ausgeprägt ist, hat die nuklearchemische Forschung hier ihren festen Stellenwert mit komplementären und vielfach unabdingbaren Arbeitsmethoden.

Bei allen hier angesprochenen Arbeitsgebieten werden zur Zeit starke Aktivitäten entwickelt, die auch zukünftig fortgesetzt werden sollen. Beispielhaft seien die chemischen Untersuchungen für die schwersten Elemente genannt. Neben weiteren Studien zur Chemie der Elemente 106 und 107 sollen bereit im Jahr 2000 erste Versuche zum Verhalten des Elementes 108 gemacht werden. Darüber hinaus gibt es bereits sehr detaillierte Planungen, das Element 114 mit chemischen Verfahren zu untersuchen.

Anlage 2: Actinidenchemie

Zu den Actiniden zählen die schwersten in der Natur vorkommenden bzw. künstlich herstellbaren Elemente bis zum Lawrencium. Aufgrund ihrer elektronischen Struktur als 5f-Elemente nehmen sie in ihrem chemischen Verhalten innerhalb des Periodensystems eine Sonderstellung ein. Daher resultiert ein grundlegendes Interesse an dem chemischen Verhalten, der Koordinationschemie, den Bindungsverhältnissen und der elektronischen Struktur ihrer Verbindungen. Ihr chemisches Verhalten ist für die Herstellung von Kernbrennstoffen, die Wiederaufarbeitung von abgebrannten Kernbrennstoffen, bzw. ihre Abtrennung von Spaltprodukten für die Transmutation wichtig. Einen weiteren Schwerpunkt bildet die Untersuchung des geochemischen Verhaltens der Actiniden in Hinblick auf die Langzeitsicherheitsanalyse der Endlagerung radioaktiver Abfälle.

2.1 Präparative Chemie der Actiniden

Die präparative Chemie der Actiniden umfaßt die der Metalle, Legierungen, intermetallischen Verbindungen, oxidischen Systemen und metallorganischen Verbindungen.

Die elektronischen Eigenschaften der 5f-Elektronen der metallischen und intermetallischen Verbindungen der Actiniden zeigen ein intermediäres Verhalten zu den delokalisierten Valenzelektronen der d-Übergangsmetalle und den lokalisierten f-Elektronen entsprechender Lanthanidverbindungen. Daraus ergeben sich sehr interessante physikalische Eigenschaften, wie das Auftreten komplexer magnetischer Ordnungsphänomene, Supraleitung und die Existenz schwerer Fermionen-Verbindungen. Die physikalische Untersuchung dieser Effekte mit Hilfe der Neutronenstreuung, Photoemissionsspektroskopie, Mössbauerspektroskopie etc. wird, teilweise auch unter Hochdruckbedingungen sowie bei tiefen Temperaturen, vorzugsweise an Einkristallen vorgenommen, die in reiner Form chemisch nur sehr aufwendig herzustellen sind. Die quantitative Beschreibung der physikalischen Eigenschaften erfordert eine theoretisch sehr anspruchsvolle Berechnung der Elektronenstrukturen dieser Systeme. Als technische Anwendung werden zur Zeit die metallischen Actinidenlegierungen als Brennelemente für kompakte Reaktoren untersucht.

Die Möglichkeit der Wechselwirkung von Oxiden mit verschiedenen Substraten wie z.B. Silikaten, Phosphaten etc. wird untersucht, mit dem Ziel, geeignete Mineralformen für die Transuranelemente zu finden, die für eine langfristige Lagerung geeignet wären.

Die magnetischen und elektrischen Eigenschaften von ternären Oxiden der vierwertigen Actinide mit Perowskitstruktur ($M^{II}An^{IV}O_3$) erwiesen sich als sehr informativ im Hinblick auf das Verständnis von kollektiven magnetischen Erscheinungen und der Supraleitung.

Im Gegensatz zu den Koordinationsverbindungen bilden die metallorganischen Verbindungen eine für chemische und thermodynamische Untersuchungen hervorragend geeignete Verbindungsklasse, weil sie sich in organischen Lösungsmitteln molekular lösen. So kann man an einen Metallorganylrest jeden beliebigen ionischen Liganden anbringen und die entsprechende chemische Bindungsstärke mittels spektroskopischer Methoden untersuchen. Ist dieses Metallorganylrest wasserstabil, so kann die Hydrolyse der Metall-Ligandbindung leichter, effektiver und genauer untersucht werden, als im Falle einer in Wasser hydrolysierenden Transuranelementverbindung.

Die Untersuchung der metallorganischen Verbindungen der Actiniden lieferte in den letzten Jahren neue Erkenntnisse über die Zusammenhänge zwischen Molekülsymmetrie und Ladungsverteilung im Molekül, so daß genaue Voraussagen nicht nur über die Existenz von chemischen Verbindungen, sondern auch über Bindungsabstände und -winkel möglich sind.

Im Einzelnen beinhaltet dies:

- Gezielte Synthese von geeigneten Komplexen durch selektive Wahl der entsprechenden Liganden.
- Isolierung, Charakterisierung und Untersuchung der neuen Verbindungen.
- Züchtung von Einkristallen, Ermittlung der Molekül- und Kristallstruktur.
- Messung der Ladungsverteilung im Molekül (Lösungen der Verbindung in polaren und nicht polaren Lösungsmitteln).
- Theoretische Berechnung der partialen elektrischen Momente zwischen Metallion und koordinierendem Atom des Liganden unter Berücksichtigung der Abstände und Winkel aus den kristallographischen Untersuchungen.

So konnte z.B. die Stabilität der chemischen Bindung zwischen vierwertigem Thorium bzw. vierwertigem Uran, sowie zwischen dreiwertigen Lanthanidionen und den einfachen Aminosäuren Glycin, Alanin, Phenylalanin, Serin, Cystein und Thyrosin untersucht werden.

Weitere Informationen können erzielt werden über die Zusammenhänge zwischen Molekülsymmetrie und Ligandenstärke, wodurch die Reaktivität des jeweiligen Moleküls erfaßt werden kann. Ein weiterer Untersuchungsgegenstand ist die katalytische Wirkung der metallorganischen Actinidenkomplexe, die durch eine maßgeschneiderte Molekülgeometrie eine hohe Effizienz und Selektivität aufweisen kann.

2.2 Separationschemie der Actiniden

Einen Hauptschwerpunkt der Actinidenforschung bildete bis in die siebziger Jahre die Separationschemie der Actiniden mit Hilfe von Fällungsreaktionen, Ionenaustauschern und durch Lösungsmittlextraktion. Insbesondere die Extraktion mit organischen Phosphorverbindungen, die ihre technische Anwendung im PUREX-Prozess bei der Abtrennung von U und Pu aus den Lösungen abgebrannten Brennelemente mittels Tri-n-butylphosphat findet, wurde eingehend untersucht. Seitdem in Deutschland auf eine eigene Wiederaufarbeitung verzichtet wird, besteht kein Interesse mehr an der Fortführung dieser Untersuchungen. Allerdings wird zur Zeit im Zusammenhang mit Diskussion um die Transmutation Forschungsbedarf in Bezug auf Abtrennverfahren der Transuranelemente von den Spaltprodukten (u.a. von den Lanthaniden) ersichtlich. Das Langzeitgefährdungspotential durch die Transuranelemente soll dabei durch Spaltung in kürzerlebige Produkte herabgesetzt werden.

Eine weitere Anwendung finden Separationsmethoden im Bereich der Umweltanalytik, die zunehmend an Bedeutung gewinnt. Hier werden Trennverfahren für den quantitativen Nachweis der Actiniden im sub-nanomol Bereich entwickelt.

2.3 Aquatische Chemie der Actiniden

Die Chemie der Actiniden im wäßrigen Milieu ist durch die hohe Ladung der Metallionen in allen stabilen Oxidationsstufen, die ausgeprägte Tendenz zur Wechselwirkung mit harten Pearson-Basen sowie hohe Koordinationszahlen gekennzeichnet. Einmalig im Periodensystem ist die Stabilisierung der penta- und hexavalenten Actinidionen unter Bildung von linearen Dioxokationen AnO_2^{m+} ($An = U, Np, Pu, Am; m = 1, 2$). Kennzeichnend für die Actinidenchemie ist ferner das komplexe Redoxverhalten der leichteren Actiniden. So kann z. B. Pu in wäßriger Lösung gleichzeitig nebeneinander als Pu(III), Pu(IV), Pu(V) und Pu(VI) vorliegen.

Einen Schwerpunkt der Actinidenforschung im wäßrigen Milieu bilden thermodynamische Un-

tersuchungen von Redox- und Komplezierungsreaktionen, sowie die Untersuchung der Gleichgewichtsreaktionen mit Festphasen. Aufgrund der starken Hydrolyseneigung der hochgeladenen Actinidionen und der damit verbundenen meist geringen Löslichkeit im neutralen pH-Bereich sind die Untersuchungen überwiegend im sauren Medium durchgeführt worden. Die Komplexierung mit anorganischen Liganden, wie F^- , Cl^- , NO_3^- und organischen Liganden (Mono- und Di-Carbonsäuren, Polyaminosäuren etc.) in den verschiedenen Oxidationsstufen der Actinidionen ist eingehend untersucht worden.

Im Hinblick auf die Langzeitsicherheitsbewertung der Endlagerung radioaktiver Abfälle (siehe Anlage 8) steht zur Zeit das chemische Verhalten der Actiniden unter natürlichen aquatischen Bedingungen im Vordergrund des Interesses. Ziel dieser Arbeiten ist es, eine abgesicherte Datenbasis für die ablaufenden chemischen Reaktionen im geochemischen Milieu des Endlagernah- und Fernfeldes zu schaffen, um mit Hilfe von Modellrechnungen die Freisetzung und Ausbreitung von Actiniden aus dem Endlager zu prognostizieren.

Das chemische Verhalten der Actinidionen in natürlichen aquatischen Systemen ist in erster Linie durch die im jeweiligen Milieu vorliegende Oxidationsstufe geprägt. Die grundlegenden Redox-eigenschaften der Actiniden sind insbesondere im sauren pH-Bereich eingehend untersucht. Forschungsbedarf besteht an der Aufklärung der Redoxprozesse und der Redoxkinetik an Mineral-Grenzflächenphasen sowie unter dem Einfluß von Huminstoffen.

Mit Ausnahme der pentavalenten Actinidionen ist die Hydrolyse bei Abwesenheit von Komplexbildnern die dominierende Reaktion im neutralen pH-Bereich. In Verbindung mit Polymerisationsreaktionen ist sie Vorstufe für die Bildung von polynuklearen und kolloidalen Spezies, die Ausfällung schwerlöslicher Festphasen sowie die Sorption an Mineraloberflächen.

Unter natürlichen Verhältnissen konkurriert mit der Hydrolyse die Komplexierung mit im Grundwasser anwesenden Anionen. Insbesondere das omnipräsente Carbonat bildet mit den höherwertig geladenen Metallionen sehr stabile Komplexe, die im alkalischen pH-Bereich die Löslichkeitsbestimmenden Spezies darstellen. Dahingegen ist die Komplexierung mit anderen anorganischen Anionen wie Chlorid, Sulfat, Phosphat etc. meist aufgrund der geringeren Komplexierungstendenz bzw. der niedrigen Konzentration weitgehend zu vernachlässigen.

Als organische Komplexbildner sind die Humin- und Fulvinsäuren für die Stabilisierung höherwertig geladener Metallionen von herausragender Bedeutung. Diese Huminstoffe sind im natürlichen aquatischen System ubiquitär und kommen in einem breiten Konzentrationsbereich vor. Die Huminstoffe liegen als makromolekulare Polyelektrolyte vor und stabilisieren die natürlich gelösten Schwermetalle sowie höherwertig geladene Radionuklide durch Komplexierung. Da die mineralischen Oberflächen im natürlichen System weitgehend durch Huminstoffe belegt sind, bestimmt die Huminstoffkomplexierung auch die Wechselwirkung der mobilen Phase mit der Geomatrix. Die thermodynamische Beschreibung der Komplexierung der Huminstoffe mit Metallionen, sowie der Einfluß auf die Immobilisierung bzw. Mobilisierung der Radionuklide sind Gegenstand zukünftiger Untersuchungen. Offene Fragen bestehen bezüglich der Reaktionskinetik, insbesondere ist unklar, ob die Actiniden irreversibel an Huminstoffe gebunden werden können. Diese Frage ist von entscheidender Bedeutung für die Radionuklidenausbreitung im Deckgebirge eines Endlagers. Neben den natürlichen organischen Komplexbildner spielen künstliche Chelatbildner, wie EDTA, die als Dekontaminationsmittel eingesetzt werden und so ins Endlager geraten können, für Komplexierung ebenfalls eine gewisse Rolle.

Als experimentelle Methode zur Ableitung von Hydrolyse- und Stabilitätskonstanten werden Löslichkeitsexperimente in Abhängigkeit der Ligandenkonzentration bzw. des pH-Wertes durch radiometrische Titration durchgeführt. Daneben kommen Fraktionierungsmethoden, wie Extraktion und im Falle der Huminstoffkomplexierung Ultrafiltration, in Frage. Aufgrund der geringen Löslichkeiten fester Phasen mit polyvalenten Actinidionen im neutralen pH-Bereich liefern die genannten Methoden nicht immer belastbare Ergebnisse. Aus diesem Grunde werden spektroskopische Verfahren, wie Absorptions- und Fluoreszenzspektroskopie der 5f-Elektronenübergänge, die auf der direkten Speziation der vorliegenden Komplexe basieren, zur Ableitung thermodynamischer Daten bevorzugt. Aufgrund der sehr geringen Actinidionenkonzentration sind hierfür hochempfindliche laserspektroskopische Verfahren erforderlich.

Umfassende thermodynamische Daten zur Hydrolyse und Komplexierung liegen für die tri- (Am(III), Cm(III)) und pentavalenten Actinidionen (Np(V)) vor. Insbesondere für Cm(III) wurde mit Hilfe der zeitaufgelösten Laserfluoreszenzspektroskopie (TRLFS) die Hydrolyse und die Komplexierung mit Carbonat, Sulfat, Phosphat, Chlorid, Fluorid, Humin- und Fulvinsäure eingehend untersucht. Weniger gut sind entsprechende Reaktionen für die hexavalenten Actiniden (U(VI) und Pu(VI)) bekannt. Für die tetravalenten Actiniden, insbesondere für Pu(IV), fehlen die

Daten noch weitgehend. Hier ist weiterer Forschungsbedarf vorhanden.

Ein Schwerpunkt der gegenwärtigen Arbeiten bildet die Ableitung von thermodynamischen Daten bei hohen Ionenstärken, wie sie für die Endlagerung im Salz relevant sind. Entsprechende Untersuchungen wurden für Cm(III) und Np(V) durchgeführt und mit Hilfe des Pitzer-Modells quantifiziert. Thermodynamische Daten für erhöhte Temperaturen, die für den Endlagernahbereich (bis 200 °C) relevant sind, liegen bisher nicht vor.

2.4 Fest/flüssig Phasengleichgewicht und Grenzphasenreaktionen (Sorption)

Die Kenntnis der fest/flüssig Phasengleichgewichte (Löslichkeitsprodukte) ist zur Bestimmung der (thermodynamischen) Löslichkeiten im gegebenen aquatischen Milieu von entscheidender Bedeutung. Allerdings sind thermodynamische Daten der festen Gleichgewichtsphasen nur für wenige Systeme verfügbar. Wichtiger als die Kenntnis der reinen Festphasen ist im Endlagernahbereich die Bildung von Mischphasen (feste Lösungen). Die sich bei der Korrosion der Abfallgebinde bildenden Sekundärphasen können Radionuklide einbauen und damit immobilisieren. Diese Prozesse lassen sich mit Hilfe der Mischphasenthermodynamik quantifizieren, wobei sowohl der Nichtidealität der Systeme als auch der Kinetik der Gleichgewichtseinstellung (sehr langsame Kinetik) Rechnung getragen werden muß. Eine systematische Untersuchung der grundlegenden Prozesse des Einbaus von Radionukliden in feste Mischphasen liegt bisher nicht vor.

Die chemischen Reaktionen der Radionuklide an der Wasser/Mineral Grenzphase stellen neben dem Einbau in feste (Sekundär)-Phasen die wichtigsten Mechanismen für Rückhaltung von Radionukliden dar. Die Quantifizierung der Sorption erfolgt bislang meist phänomenologisch durch ein Verteilungsgleichgewicht zwischen fester und flüssiger Phase (z.B. K_d -Ansatz) ohne Berücksichtigung der in Lösung und an der Oberfläche tatsächlich vorliegenden Radionuklidspesies. Belastbare Aussagen lassen sich nur durch die Aufklärung der ablaufenden Prozesse und eine thermodynamisch fundierte Quantifizierung der Reaktionen an der Grenzphase erhalten. In den letzten Jahren sind verstärkt Ansätze gemacht worden, Sorptionsvorgänge mit thermodynamischen Modellen, wie etwa dem Oberflächenkomplexierungsmodell, zu parametrisieren. Die Ableitung von Oberflächenkomplexierungskonstanten erfolgt dabei meist durch Anpassung von Sorptionsverteilungsgleichgewichten als Funktion von Radionuklidkonzentration, pH und Ionenstärke, ohne Möglichkeit die postulierten Oberflächenkomplexe direkt verifizieren zu können.

Spektroskopische Speziationsverfahren (TRLFS an Cm(III)) wurden eingesetzt, um die auf natürlichen Mineraloberflächen sorbierten Actinidenspezies direkt zu charakterisieren und quantifizieren. Damit können die Sorptionsmechanismen aufgeklärt und fest/flüssig-Grenzphasenreaktionen auf Basis eines Oberflächenkomplexierungsmodell thermodynamisch beschrieben werden. Es besteht in diesem Bereich weiterer Forschungsbedarf, um eine fundierte thermodynamische Beschreibung der Sorptionsprozesse an relevanten Mineralphasen für die Actinidionen zu erhalten.

2.5 Spektroskopische Speziation der Actiniden

Zur experimentellen Untersuchung der im natürlichen aquatischen Medium ablaufenden komplexen Multikomponentenreaktionen bedarf es einer Methode, die vorliegenden chemischen Spezies zu charakterisieren und zu quantifizieren. Die verfügbaren chemischen Speziationsmethoden, die auf einer Fraktionierung etwa durch Elektrophorese, Ionenaustausch oder Extraktion beruhen, haben zwar in Kombination mit radioanalytischen Methoden die erforderliche Empfindlichkeit. Allerdings sind sie nicht immer auf die pH-Bedingungen natürlicher Systeme anwendbar und führen zu einer Störung des Gleichgewichtes.

Die optische Spektroskopie der elektronischen Übergänge innerhalb der 5f-Schale ermöglicht die Charakterisierung der Actinidionen in den verschiedenen vorliegenden Oxidationsstufen und damit auch ihre quantitative Bestimmung. Insbesondere die UV-Absorptionsspektroskopie findet weite Anwendung zur Analytik und Speziation. In den letzten Jahren sind hochempfindliche laserspektroskopische Methoden entwickelt worden, die die Speziation der Actiniden auch im Spurenkonzentrationsbereich erlauben und somit auch den Bedingungen in natürlichen aquatischen Systemen nahe kommen.

Eingesetzt werden die photothermische Absorptionsspektroskopie (Laser-induzierte Photoakustische Spektroskopie (LPAS), „Thermal Lensing“ Spektroskopie (TLS)) und die zeitaufgelöste Laser-induzierte Fluoreszenzspektroskopie (TRLFS) zum Oxidationsstufen- und Komplexiierungsspezifischen Nachweis. Die letztgenannte Methode weist die höchste Empfindlichkeit auf, ist allerdings in der Anwendbarkeit im wesentlichen auf U(VI) und Cm(III) eingeschränkt. Die photothermischen Verfahren sind auf die meisten Actinidenoxidationsstufen anwendbar, sind aber nicht immer empfindlich und selektiv genug, um eine Speziation im natürlichen aquatischen System zu erlauben. Als extrem empfindliche Speziationsmethode wurde ferner die elektropho-

retische Ionenfokussierung in Kombination mit der Detektion durch die Resonanz-Ionisations-Laser-Massenspektrometrie (RIMS) entwickelt.

Die Nutzung von Synchrotronstrahlungsquellen für die Röntgenfeinstrukturanalyse (EXAFS, XANES) als Speziationsverfahren wird eine zunehmende Bedeutung erfahren. Die in den letzten Jahren hierfür eingerichteten Beamlines an verschiedenen Strahlungsquellen, insbesondere das Strahlrohr ROBL (Rossendorf Beamline des Forschungszentrums Rossendorf) an der Europäischen Synchrotronstrahlungsquelle in Grenoble (ESRF), haben vielversprechende Ergebnisse und neue Ansatzpunkte zum Verständnis der nanoskopischen Prozesse insbesondere an der Grenzfläche fest-flüssig geliefert.

Angewendet wird die spektroskopische Speziation zur Ableitung thermodynamischer Daten in aquatischen Medien definierter Zusammensetzung, so daß eine von Löslichkeitsmessungen unabhängige Methode zur Verfügung steht. Eine weitere wichtige Anwendung ist die Speziation der Radionuklide in natürlichen aquatischen Systemen zur Validierung thermodynamischer Modellrechnungen.

Zur Bestimmung der Ionisationsenergien der Transplutoniumelemente, die entweder wegen ihrer starken Radioaktivität nur in geringen Mengen zu handhaben oder überhaupt nur in solchen Mengen verfügbar sind, wurde die Lasermassenspektrometrie eingesetzt. Das Verfahren beruht auf der Messung der Photoionisationsschwellen in Abhängigkeit eines äußeren, statischen elektrischen Feldes. Nach dem klassischen Sattelpunktmodell kommt es zu einer Absenkung des Coulomb-Potentials eines Atoms in Richtung des elektrischen Feldes. Die energetische Lage der Ionisationsschwelle hängt linear von der Wurzel der Feldstärke ab. Durch Extrapolation auf Feldstärke Null erhält man die Ionisationsenergie, die als fundamentale Größe der Elemente für viele physikalische und chemische Prozesse von großer Bedeutung ist.

Experimentell wird ein angeregter Zustand des Atoms in zwei Stufen durch Laserlicht resonant populiert. Anschließend wird das in einem vorgegebenen statischen elektrischen Feld befindliche Atom durch einen Laserstrahl ionisiert, dessen Frequenz über den Bereich der Ionisationsschwelle abgestimmt wird. Die erzeugten Ionen werden in einem Flugzeitmassenspektrometer massenselektiv nachgewiesen. Die Lage der Ionisationsschwelle ergibt sich aus dem spontanen Anstieg des Ionensignals. Auf diese Weise konnten zum ersten Male überhaupt Ionisationsener-

gien von Am, Cm, Bk, Cf und Es bestimmt werden, und zwar mit Probenmengen von 10^{12} Atomen (0,4 ng). Die Genauigkeit dieses Verfahrens liegt bei etwa $2 \cdot 10^{-4}$ eV. Weiterhin wurden die Ionisationsenergien von Th, U, Np und Pu nochmals vermessen. Die erhaltenen Werte stimmen gut mit früheren laserspektroskopischen Daten überein.

2.6 Bewertung und Perspektiven

Die Actiniden nehmen aufgrund ihrer besonderen elektronischen Struktur, hervorgerufen durch besetzte 5f-Niveaus, eine Sonderstellung im Periodensystem ein. Hieraus ergibt sich ein grundlegendes Interesse an der Untersuchung der chemischen Eigenschaften, der Bindungsverhältnisse und elektronischen Struktur sowie an der Aufklärung von Struktur-Eigenschaftsbeziehungen ihrer Verbindungen.

Sehr große praktische Bedeutung besitzt die Actinidenchemie für Fragen der Langzeitsicherheit in der Nuklearen Entsorgung. Die bei der Nutzung der Kernenergie anfallenden Transuranelemente, insbesondere Neptunium, Plutonium und Americium, bestimmen aufgrund ihrer Menge und Langlebigkeit das radiotoxische Potential der hochaktiven Abfälle über sehr lange Zeiträume. Zukünftig gilt es vor allem der Aufklärung grundlegender Reaktionsmechanismen der Actiniden in natürlichen aquatischen Systemen stärkeres Gewicht zukommen zu lassen. Dies bedarf der Neu- und Weiterentwicklung experimenteller Methoden und Techniken zur nanoskopischen Untersuchung des Verhaltens von Actiniden. Nur auf der Basis des grundlegenden Verständnisses der relevanten Prozesse auf molekularem Niveau lassen sich fundierte Aussagen zur Langzeitsicherheit der Entsorgung radioaktiver Abfälle ableiten. Auch für die Bewertung alternativer Entsorgungskonzepte, wie z. B. der Transmutation, wird die Actinidenchemie zukünftig einen entscheidenden Beitrag zu leisten haben. Zukünftig werden in diesen Gebieten neben experimentellen Untersuchungen auch mehr und mehr quantenmechanische Berechnungen einfließen. Eine Zusammenarbeit zwischen Experimentatoren und Theoretikern auf diesem Gebiet beginnt sich gegenwärtig zu entwickeln.

Die Zahl der Laboratorien, die über entsprechende experimentelle Einrichtungen zum Umgang mit Actiniden verfügen, aber auch die Zahl der Erfahrungsträger in diesem Gebiet hat in den letzten Jahren stetig abgenommen. Gegenwärtig wird in Deutschland Actinidenchemie in den Forschungszentren Jülich, Karlsruhe und Rossendorf (FZJ, FZK und FZR) sowie an den Universitäten Berlin, Mainz und München betrieben.

Anlage 3: Radioanalytik

Radioanalytik umfaßt in einer allgemeinen Definition alle solche Methoden und Verfahren, bei denen die Eigenschaften von Atomkernen zur Analyse der chemischen Zusammensetzung, der Struktur und der elektronischen Zustände von Stoffen oder Prozessen genutzt werden. Dabei ist sowohl aus grundsätzlichen Überlegungen als auch in der Praxis die Grenze zu nicht nuklearen Verfahren und zwischen mehr nuklearchemischen und mehr kernphysikalischen Methoden fließend. So nutzt die Massenspektrometrie ionisierte Atome und selten den vollständig ionisierten Atomkern. Aber das Meßsignal wird aus der Massendifferenz von Atomkernen gewonnen. Andere radioanalytische Verfahren verknüpfen elektronische mit Kerneigenschaften oder verbinden chemische Trennverfahren mit nuklearen Nachweismethoden. Beispiele sind im ersten Fall die kernmagnetische Resonanz (NMR) und die Mössbauerspektrometrie, im zweiten die Beschleunigermassenspektrometrie. Die folgende Klassifizierung radioanalytischer Verfahren ist möglichst weitgehend; sie gibt aber die Realität praktischer nuklearchemischer Analytik in Grundlagenforschung und Anwendung wieder:

- Untersuchungen mit stabilen und radioaktiven Tracern
- Isotopenverdünnungsanalyse
- Aktivierungsanalyse
- Massenspektrometrische Verfahren
- Direkter Nachweis des radioaktiven Zerfalls
- Analytik mit Ionenstrahlen
- Neutronenstreuung und –beugung
- Kernmagnetische Resonanzspektrometrie
- Mössbauerspektrometrie

Mit diesen Verfahren können verfahrenstypisch in unterschiedlichem Maße Informationen über die Masse oder Konzentration von Stoffen oder speziellen Isotopen, über ihre räumliche Verteilung (lateral und in die Tiefe), ihre chemische und physikalische Speziation und ihre elektronische oder atomare Struktur, sowie über Kinetiken und Reaktionsmechanismen gewonnen werden.

Radioanalytische Verfahren und Arbeitsmethoden, die auf dem Einsatz von radioaktiven Stoffen, von Kernreaktoren oder Beschleunigern bzw. ionisierender Strahlung beruhen, spielen in allen

Bereichen der Analytik eine zum Teil bedeutende Rolle. Die Besonderheiten, die sich aus der Natur der Kernstrahlung, ihrer isotopenspezifischen Zuordnung und der Möglichkeit ihres extrem empfindlichen Nachweises ergeben, gestatten in vielen Fällen einzigartige Überprüfungsmöglichkeiten analytischer Teilschritte. Sie ermöglichen darüber hinaus den Aufbau spezieller Analysemethoden, die oftmals Spitzenstellungen innerhalb des analytischen Methodenkanons einnehmen oder herausgehobene Rollen als analytische Referenzsysteme spielen. Ihr Einsatz wird daher regelhaft bei der Qualitätssicherung in Verbundverfahren bei Anwendung und Vergleich unabhängiger Analysenverfahren, bei der Zertifizierung von Referenzmaterialien und bei der Ausbeuteevaluation analytischer Grundoperationen gefordert. Dies gilt nicht nur für Bestimmungen im sub- $\mu\text{g/g}$ -Spurenbereich der Elemente und Verbindungen, sondern auch für Bereiche der Haupt- und Nebenbestandteile. Einige radioanalytische Methoden und Verfahren sollen im folgenden näher betrachtet werden.

3.1 Anwendung von stabilen und radioaktiven Tracern

Breite analytische Anwendung hat die Unterscheidbarkeit der stabilen und radioaktiven Isotope eines Elementes durch die verschiedensten Markierungsverfahren mit stabilen und radioaktiven Tracern gefunden. Durch Markierung chemischer Elemente mit radioaktiven Isotopen oder durch Verschiebung der natürlichen Isotopenhäufigkeiten durch Equilibrierung des zu untersuchenden Elementes mit angereicherten stabilen Isotopen können sowohl Spurenelementkonzentrationen mit hoher Genauigkeit bestimmt werden, als auch von ihren chemischen Eigenschaften her nicht unterscheidbare Atome und Spezies gekennzeichnet und durch chemische Reaktionen, Trennverfahren sowie durch natürliche und technische Prozesse verfolgt werden. Der Nachweis solcher Tracer kann dabei sowohl über massenspektrometrische Verfahren (Isotopenverdünnungsanalyse) als auch über die Messung der Kernstrahlung der radioaktiven Tracer direkt oder nach Aktivierung stabiler Tracer mit hohen Aktivierungswirkungsquerschnitten erfolgen.

Die Anwendung von Markierungstechniken mit ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{33}P , ^{35}S , ^{45}Ca etc. in Verbindung mit chromatographischen Trennverfahren ist heute unverzichtbarer Bestandteil des analytischen Methodenspektrums in Biochemie, Genetik und anderen Lebenswissenschaften. Langlebige natürliche und anthropogene Radionuklide werden mit großem Erfolg als Tracer in der Kosmo- und Geochemie, der Meteorologie und Klimatologie, der Hydrologie, Ozeanologie, Glaziologie und Archäologie sowie zur stofflichen Analyse und zur Charakterisierung von Umweltprozessen genutzt.

Von besonderer Bedeutung sind Tracerverfahren bei der Diagnostik von Analysenverfahren. Die Strukturierung des analytischen Prozesses und die ganzheitliche Behandlung des Analysenverfahrens als einer Summe fehlerbehafteter Teilschritte hat insbesondere in der Spurenanalytik den Blick für Quellen systematischer Fehler geschärft und die Entwicklung von Methoden zu ihrer Erkennung stimuliert. Dies gilt in besonderem Maße für die in dem Teilbereich Probenvorbereitung zusammengefaßten Stoffumwandlungs- und Trennschritte, aber auch für die Abklärung des Fehlerspektrums neuartiger Analysenprinzipien. Zu einer der bedeutendsten und leistungsstärksten Methoden der Fehlerdiagnostik innerhalb des Analysenverfahrens hat sich der Einsatz von Radiotracern entwickelt. Ihr Einsatz wird daher regelhaft bei der Entwicklung und Überprüfung von Analysenverfahren für spurenanalytische Fragestellungen gefordert. Die strikte Anwendung von Radiotracern bei Analysen trägt dazu bei, durch Erkennen schwerwiegender Quellen systematischer Fehler volkswirtschaftliche Schäden in Milliardenhöhe zu vermeiden.

3.2 Quantitative Elementanalyse

Radioanalytische Verfahren haben ihren festen Platz in der chemischen Elementanalytik. Klassische radioanalytische Analysenprinzipien spielen bei der Lösung spezieller analytischer Fragestellungen innerhalb des einsetzbaren Methodenspektrums oftmals eine zentrale Rolle. In manchen Fällen sind sie als einzige zur Problemlösung in der Lage, oder liefern als Referenzsysteme wertvolle Beiträge zur Bewertung von Analyseergebnissen.

Radioreleasemethoden sind für die Spurenbestimmung in Gasen unverzichtbar. Isotopenverdünnungsanalysen dienen vielfach als Schieds- oder Referenzverfahren, ihr Einsatz zur Bestimmung von Syntheseausbeuten und Betriebsverlusten, z.B. bei der Chloralkalielektrolyse, ist essentiell und nicht substituierbar. Die verschiedenen Derivatverfahren der Isotopenverdünnungsanalyse spielen im Bereich der klinischen Chemie und der Biochemie eine zentrale Rolle bei der Bestimmung nicht-antigener Spurenstoffe. Sie stellen dabei eine ideale Ergänzung zu den Immunoassaymethoden, z.B. den Radioimmunoassays dar, die aus der klinischen Diagnostik nicht mehr wegzudenken sind. Beiden Verfahrensgruppen wird hohes Anwendungspotential im Bereich der Ökoanalytik bescheinigt.

Die instrumentelle und radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse gehört zu den nachweisstärksten Methoden zur Multielementspurenanalyse. Bei richtiger Anwendung (frühzeitiger Akti-

vierung der Proben bei minimaler Probenvorbereitung) ist sie weitgehend immun gegenüber Blindwertproblemen und gestattet in einfacher Weise das Erkennen von Substanzverlusten. Ihrer inneren Struktur nach ist sie von daher oftmals eine nahezu ideale Referenzmethode. Ihr entsprechender Einsatz in spurenanalytischen Verbundverfahren und Ringversuchen ist essentiell. Ihre Mitverwendung bei der Charakterisierung und Zertifizierung von Standardreferenzmaterialien ist unverzichtbar, zumal sie in speziellen Fällen auch als Absolutmethode verwandt werden kann. Die Aktivierungsanalyse mit geladenen Teilchen und mit Photonen ergänzt die Neutronenaktivierungsanalyse in sinnvoller Weise. In der extraterrestrischen Analytik ist die Rutherforddrückstreuung erfolgreich eingesetzt worden.

Neuartige Varianten der Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) eröffnen dem Multielementanalysenprinzip zunehmend auch den Spurenbereich und gestatten in Verbindung mit der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) als Referenz äußerst attraktive und informationsstarke analytische Untersuchungen. Die Röntgenfluoreszenzanalyse mit totalreflektierendem Probenträger deckt dabei bevorzugt den Flüssigkeitsbereich und die Waferanalytik ab, während die sich entwickelnde RFA mit polarisierter Anregungsstrahlung für die Feststoffanalytik prädestiniert ist. Die Röntgenfluoreszenzanalyse mit Synchrotronstrahlung (SYRFA) entwickelt sich zu einer besonders leistungsstarken Multielementmikrosonde, die die Möglichkeiten der Particle Induced X-Ray Emission Spectroscopy (PIXE) und der Sekundärionenmassenspektroskopie (SIMS) ergänzt und erweitert. Die Einführung von Kapillaroptiken zur Fokussierung der anregenden Röntgenstrahlung ermöglicht mit SYRFA Multielementspurenanalysen im Auflösungsbereich unterhalb von 1 μm .

Neben der Analytik von Mikro- und Spurenelementen werden radioanalytische Verfahren auch zur Bestimmung von Haupt- und Nebenbestandteilen bei Massengütern (Bulk Media Assay) angewandt. Hier spielen speziell Aktivierungsverfahren mit Radionuklidneutronenquellen und Neutronengeneratoren bei den verschiedensten technischen Prozessen, u.a. auch bei der Überwachung und beim Aufspüren von Sprengstoffen, eine zunehmende Rolle.

3.3 Spurenanalytik von radioaktiven Isotopen

Auch der quantitative Nachweis von radioaktiven Isotopen in Materie ist ein Problem der Spurenanalytik bei dem die verschiedensten radioanalytischen Verfahren zum Einsatz kommen. Diese reichen von der direkten Messung der beim Zerfall emittierten Kernstrahlung über Kernstrahlungsmessungen nach chemischer Separation bis hin zu verschiedenen massenspektrometrischen

Verfahren.

Bereits seit den oberirdischen Kernwaffenversuchen spielt die Messung von Radionukliden in Umweltproben eine wichtige Rolle in der Vorsorge für die Sicherheit der Bevölkerung. Als zu untersuchende Matrices kommen dabei Luft, Wasser, Boden, Bewuchs und Nahrungsmittel, aber auch andere Gegenstände des allgemeinen Bedarfs in Betracht. Die zivile Nutzung der Kernenergie hat die Bedeutung radioanalytischer Verfahren bei der Emissions- und Immissionsüberwachung noch verstärkt.

Von zunehmender Bedeutung ist die Analyse natürlich vorkommender Radioaktivität im Hinblick auf die Bewertung der natürlichen Strahlenexposition und speziell von erhöhten Expositionen aus natürlichen Quellen. Hierbei handelt es sich u.a. um die Bestimmung der Konzentration von Radon und α -strahlenden Rn-Folgeprodukte in der Luft, die Untersuchung geologischer Anomalien, die Überwachung von Abfällen und Reststoffen aus genehmigungspflichtigen Tätigkeiten und sonstigen Arbeiten, bei denen Reststoffe mit erhöhten Konzentrationen natürlicher radioaktiver Stoffe auftreten, und die sinnvolle Sanierung von Altlasten, wie z. B. den Hinterlassenschaften des Erzabbaus und -aufbereitung in Sachsen und Thüringen.

Charakteristisches Kennzeichen der radiochemischen Umweltanalytik ist die Bestimmung sehr geringer Aktivitätskonzentrationen in größeren Probevolumina mit z.T. inhomogener Zusammensetzung. Die Messung γ -strahlender Radionuklide ist meist ohne vorhergehende chemische Auftrennung möglich; allerdings sind häufig Meßanordnungen erforderlich, die wie z. B. Anticompton-Koinzidenzspektrometer, eine wirksame Reduzierung der Umgebungsstrahlung bewirken. Spezielle Meßaufgaben, wie die zerstörungsfreie Charakterisierung von Abfallgebinden, erfordern analytisch quantitative, bildgebende Verfahren, die durch scannende γ - und n-Spektrometrie realisiert werden. Zur Bestimmung von reinen β - und α -Strahlern müssen jedoch meist aufwendige radiochemische Trennverfahren eingesetzt und zusätzlich spezielle Low-level Meßeinrichtungen verwendet werden.

Die Ergebnisse von radiochemischen Umweltanalysen können u. U. Anlaß zur Einleitung administrativer Maßnahmen (wie z. B. Verzehrverbote) sein. Ihrer Richtigkeit und Zuverlässigkeit kommt daher hohe Bedeutung zu; das bedeutet, daß ihre Durchführung nur in entsprechend ausgerüsteten Laboratorien und durch qualifizierte Bearbeiter erfolgen sollte. Verstöße gegen diese

Forderung haben in der Vergangenheit schon wiederholt zu gravierenden Fehlschlüssen und öffentlicher Aufregung geführt.

Zur radiochemischen Umweltanalytik kann auch die ^{14}C -Analytik, z. B. in archäologischen Probenmaterialien, gezählt werden, die wegen der geringen Aktivitätskonzentrationen, der niedrigen Strahlungsenergie und der geforderten Genauigkeit einen besonders hohen Schwierigkeitsgrad aufweist. Hier werden die Grenzen der Messung langlebiger radioaktiver Isotope über den Nachweis der beim Zerfall emittierten Kernstrahlung deutlich.

^{14}C und eine ganze Reihe langlebiger technogener und kosmogener Radionuklide, z. B. ^{10}Be , ^{26}Al , ^{32}Si , ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{60}Fe , ^{59}Ni , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs und die Pu- und Np-Isotope, lassen sich wegen ihrer extrem langen Halbwertszeiten nur in größeren Konzentrationen über ihren radioaktiven Zerfall nachweisen. Hier bietet die direkte Zählung der vorhandenen radioaktiven Kerne eine Alternative zu ihrem Nachweis. Allerdings ist ein solcher Nachweis mit konventioneller Massenspektrometrie wegen Interferenzen durch Molekülonen und durch benachbarten Isobare und Isotope, die viele Zehnerpotenzen häufiger als die gesuchten Kerne sind, schwierig oder nicht möglich. Auswege haben sich hier in den letzten Jahren durch die Entwicklung alternativer radioanalytischer Methoden ergeben, die in der Empfindlichkeit um Größenordnungen leistungsfähiger als die Zerfallsmessungen und weitgehend frei von den genannten Interferenzen sind.

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS = accelerator mass spectrometry), die auch zum Nachweis seltener stabiler Isotope eingesetzt werden kann, ist ein solches Verfahren. Hierbei wird das Element des zu bestimmenden Radioisotops aus der Matrix, eventuell nach Zugabe von stabilem Trägerisotop, chemisch abgetrennt und das Isotopenverhältnis des radioaktiven Isotops zu einem stabilen Isotop mittels einer AMS-Anlage gemessen. AMS-Anlagen sind meist Tandem-Beschleunigeranlagen, bei denen das zu untersuchende Material in Form negativer Molekülonen in den Beschleuniger eingeschossen wird, interferierende Molekülonen durch Umladung der Strahlteilchen an einem Strippertarget zerstört werden, und die gewünschten Isotope mittels kernphysikalischer Nachweismethoden unter hoher Diskriminierung von störenden Massen- und Kernladungszahlen gezählt werden. Isotopenverhältnisse benachbarter Isotope bis herab zu 10^{-15} sind dabei routinemäßig erreichbar. Durch die Entwicklung der AMS wurde eine Vielzahl von Anwendungen der langlebiger Radionuklide ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{32}Si , ^{36}Cl , ^{53}Mn , ^{60}Fe , ^{59}Ni und ^{129}I als natürliche und anthropogene Tracer erst möglich, und man kann derzeit eine stürmische Ent-

wicklung immer neuer Anwendungsbereiche verzeichnen.

Ein weiteres Verfahren ist die Resonanzionisationsmassenspektrometrie (RIMS), bei der die Kopplung von Laserspektroskopie mit Massenspektrometrie einen höchstselektiven und empfindlichen Nachweis technogener Radionuklide, wie ^{90}Sr , ^{99}Tc und von Actiniden in Umwelt-, biologischen und technischen Proben, erlaubt. Hier erreicht man durch mehrfach resonante Anregung und Ionisation des betreffenden Elementes mittels gekoppelter Laser eine extrem hohe Selektivität. Die anschließende Massenanalyse in einem magnetischen, Flugzeit- oder Quadrupolmassenspektrometer, die zudem eine effiziente Untergrundunterdrückung ermöglicht, erlaubt dann die Bestimmung der Isotopenzusammensetzung. Die hohe Empfindlichkeit der Methode resultiert aus den großen optischen Wirkungsquerschnitten bei den Anregungsprozessen und beim Photoionisationsprozess und der guten Nachweiseffizienz für Ionen. RIMS wurde erfolgreich zur Analyse langlebiger Radionuklide in verschiedenen Matrices eingesetzt. Experimentell verifizierte Nachweisgrenzen liegen bei 10^6 Atomen/Probe und damit für einige der radiologisch wichtigsten, langlebigen Radionuklide weit unterhalb der radiometrischen Nachweisgrenzen. Obwohl die Anwendung von RIMS derzeit noch auf hoch-spezialisierte Laboratorien beschränkt ist, so zeichnet sich doch ab, daß dieses radioanalytische Verfahren durch methodische Weiterentwicklung, z.B. Vereinfachungen des experimentellen Aufbaus, Nutzung von Laser-Dioden und weitere Automatisierung, zu einem analytischen Standardverfahren entwickelt werden kann.

Gekoppelt mit modernen, selektiven chemischen Anreicherungsverfahren werden die neuen radioanalytischen Verfahren in der Radioökologie zum Nachweis radiotoxischer Nuklide eingesetzt. Anwendungsbereiche der für den Nachweis extrem langlebiger Radionuklide entwickelten Methoden findet man auch in der Kosmochemie, beim Nachweis solarer Neutrinos (^{98}Tc , ^{205}Pb), in der Geochemie und Glaziologie sowie bei biologischen Altersbestimmungen. In all diesen Fällen haben sich die radioanalytischen Methoden behauptet.

3.4 Oberflächen- und Strukturanalytik

Die qualitative und quantitative Erfassung von oberflächennahen Schichten spielt in verschiedenen Fachdisziplinen, insbesondere aber im Bereich der Mikrostrukturtechnik, eine bedeutende Rolle. Analytisch zu erfassen sind gezielte Dotierungen bzw. Verunreinigungen der Basismaterialien, aber auch gewünschte und unerwünschte Oberflächenbeladungen. Die intensive, den UV- und Röntgenbereich abdeckende Synchrotronstrahlung bietet für derartige Fragestellungen be-

sonders attraktive Ansätze, wobei die Polarisierung eine Untergrundreduktion bewirkt.

Benutzt man den Röntgenbereich der Synchrotronstrahlung als Anregungsquelle für Röntgenfluoreszenz unter Bedingungen, die eine Totalreflexion an der zu untersuchenden Oberfläche bewirken, so ist je nach Detektor die gleichzeitige Analyse nahezu aller darin enthaltenen Elemente möglich. Bei hochpolierten Oberflächen kann durch Variation des Einfallswinkels in gewissem Umfang auch eine Tiefenauflösung erreicht werden.

Registriert man die bei derartigen Anregungen auftretenden Photoelektronen entsprechend ihrer Energie (Photoelektronenspektroskopie; ESCA), so erhält man Informationen über die elementare Zusammensetzung der 2 - 3 µm dicken Oberflächenschichten, bzw. die von Monolagen.

Führt man derartige Anregungen mit dem UV-Anteil der Synchrotronstrahlung durch, erhält man Informationen über die Bindungssituation in derartigen Monolagen.

In Verbindung mit der Augerelektronenspektroskopie und der Sekundärionenmassenspektroskopie steht damit der sich stürmisch entwickelnden Erfassung und Anwendung von Oberflächenschichtungen ein adäquates Methodenpaket zur Verfügung, dessen Leistungsaktivität durch den Einsatz neuer, leistungsstärkerer Synchrotronstrahlungsquellen noch beträchtlich gesteigert werden kann.

In der Strukturanalytik spielen Schwingungs-, Kernresonanz- und Massenspektroskopie sowie Beugungsmethoden die zentrale Rolle. Von dominierender Bedeutung sind hier Neutronenstreuung und -beugung, die als instrumentelles nukleares Analysenverfahren gleichermaßen zum Methodenkanon von Chemie, Physik und Biologie gehören. Die Einrichtung spezieller Hochleistungsneutronenquellen für dieses Verfahren belegt das große Interesse an und den großen Erfolg dieses Analysenverfahrens.

Daneben verwendet man aber auch an Teilchenbeschleunigern oder Forschungsreaktoren hergestellte Atomkerne und Elementarteilchen, z. B. Mesonen, als „nukleare Sonden“, um Informationen über die atomare Umgebung aufzunehmen und meßbar zumachen. Die Wechselwirkung zwischen Sonde und Probenmaterial beeinflusst die Eigenschaften der Zerfallsstrahlung. Gemessen werden Art, Richtung, Energie und Zeitpunkt von einzelnen oder mehreren Zerfallsteilchen.

Als Sonden werden Positronen, Müonen und Kerne von ^8Li bis $^{57}\text{Co}/^{57}\text{Fe}$ bzw. ^{111}Cd bis ^{206}Pb verwendet. Die interessierenden Wechselwirkungen sind hauptsächlich die zwischen den magnetischen Dipol- und den elektrischen Quadrupolmomenten der Sonden und den entsprechenden Feldern (Magnetfeld, elektrischer Feldgradient) der zu untersuchenden bestrahlten Materie. Genutzt wird die Abhängigkeit dieser Größen von Struktur und Temperatur sowie ihre zeitliche Änderung. Untersucht werden dünne Filme, amorphe Materialien, Kristalle, Metalle, Legierungen, Schmelzen, Halbleiter und Supraleiter.

Rutherforddrückstreuung, Mössbauerspektroskopie, Positronenannihilation, Gestörte Winkelkorrelationen, Müonenspinrotation (μSR) und Implantationen orientierter Sondenkerne (μSR) sind Beispiele für Methoden, die Informationen z.B. über Gitterstruktur, lokale Bindungen im Gitter, chemische Wertigkeit, innere magnetische und elektrische Felder, thermische Fluktuationen, Diffusion von Fremdatomen, Leerstellenkonzentrationen und lokale Strahlenschäden liefern können.

Bei Röntgenabsorptionsuntersuchungen verändert der Massenabsorptionskoeffizient an der Absorptionskante drastisch seinen Wert. Die Feinstruktur in ihrer Nähe liefert Informationen über den Bindungszustand der bestrahlten Atome. Derartige EXAFS- (Extended X-Ray Absorption Fine Structure) bzw. XANES-Messungen (X-Ray Absorption Near Edge Structure) sind in der Lage, den Einfluß der nächsten Nachbarn der jeweils untersuchten Atome zu charakterisieren. Es können Bindungsabstände, Bindungswinkel sowie mittlere Elektronendichten ermittelt werden. Der Einsatz von Synchrotronstrahlung zur Anregung hat die Leistungsfähigkeit dieser Methode beträchtlich erhöht. Strukturanalytische Untersuchungen an Clusterverbindungen und metallhaltigen Enzymen verdeutlichen die Einsatzbreite.

Bei der Strukturauflösung großer und empfindlicher Moleküle leistet schließlich die mit ^{252}Cf betriebene Plasmadesorptions-Massenspektroskopie wertvolle Beiträge, da sie eine besonders schonende und sehr charakteristische Fragmentierung verursacht sowie oftmals die Erfassung der mit anderen Methoden nicht erhältlichen Molekülpeaks ermöglicht.

3.6 Prozeßanalytik

Nukleare Methoden besitzen in der Prozeßanalytik Vorteile wegen ihrer Vielseitigkeit, Empfindlichkeit und guten Automatisierbarkeit. Nachteilig auf den Einsatz wirken der erhöhte Genehmigungsaufwand sowie in Einzelfällen notwendige Strahlenschutz- und Entsorgungsmaßnahmen.

Für die ständige Prozeßanalytik, -kontrolle und -Steuerung haben sich umschlossene Quellen mit niedrigen Aktivitäten in großer Variabilität für die Dicken-, Dichte- und Füllstandskontrolle bewährt.

Mit Leitisotopen markierte große Stoffströme können durch Verfolgung des Aktivitätsverlaufs besonders gut kontrolliert und gesteuert werden. Oftmals wird die kurzlebige Aktivität dabei durch Neutronenaktivierung *in situ* mit Hilfe von ^{252}Cf -Quellen erzeugt. Kontinuierliche Vorgänge des Stofftransports, der Stoffvereinigung und Stofftrennung können so effektiv verfolgt werden. In Verbindung mit quantitativen Aktivitätsmessungen, d.h. durch *in situ*-Aktivierungsanalyse lassen sich z.B. Asche-, Feuchtigkeits- und Heizwerte von Brennstoffen (Braunkohle) kontinuierlich bestimmen.

Verschleiß-, Korrosions- und Tribologiestudien an mit Beschleunigerhilfe dünnfilmaktivierten technischen Originalbauteilen sind wohl das bedeutendste Anwendungsfeld nuklearer Methoden in der Technik. Meßtechnisch geht dabei der Trend zu tomographischen Methoden, da sie die Erfassung räumlich verteilter Vorgänge gestatten. Die Vorzüge der Radioindikatortechnik sowie die ihrer breiten Anwendung derzeit im Wege stehenden Hindernisse werden beim Arbeitsschwerpunkt „Radioindikatoren in der Technik“ näher angesprochen.

Markierungen mit Positronenemittern gestatten die tomographische Verfolgung von Strömungs- und Schmierverhalten in technischen Aggregaten. Transmissionscomputertomographie und Comptonrückstreuungscomputertomographie werden vor allem zur Charakterisierung von komplexen Strukturen aus Verbundwerkstoffen eingesetzt.

In der Kernenergie-technik sind radiochemische Analysen unverzichtbare Kontrollmaßnahmen zur Überwachung des sicheren Betriebes der Anlagen. In erster Linie ist hier der Betrieb der Kernkraftwerke zu nennen, wo die radiochemische Analytik von der Überwachung der Primärkühlmittel bis zur Charakterisierung der radioaktiven Betriebsabfälle reicht. Dieser Themenkomplex wird bei der „Nuklearenergie - Technologie“ näher behandelt.

3.7 Bewertung und Perspektiven

Radioanalytische Arbeitsweisen und Verfahren spielen praktisch in allen Bereichen der analytischen Chemie, insbesondere aber in der Spurenanalytik eine bedeutende Rolle. Für die Auf-

spürung von Quellen systematischer Fehler sind sie ebenso unverzichtbar wie für die Durchführung von Referenz-, Schieds- und Ringanalysen. Spezielle Fragestellungen der Oberflächen- und Strukturanalytik sind ohne sie nicht lösbar; im Bereich der Prozeßanalytik gestatten sie oftmals besonders einfache, elegante und kostengünstige Anordnungen. Die Anwendungsbreite ist enorm, die Anwendungsformen sind oftmals besonders innovativ.

Einschränkende Bedingungen für die Anwendung radioanalytischer Methoden ergeben sich aus dem Umgang mit Radionukliden bzw. der Anbindung an stationäre Großgeräte. Der Einsatz radioaktiver Stoffe erfordert speziell genehmigte Überwachungs- oder Kontrollbereiche, über die im allgemeinen nur die analytisch arbeitenden Gruppen bzw. Labors der Nuklearchemie verfügen. Die Nutzung überregionaler stationärer Großgeräte erfordert die Kooperation mit den an diesen Geräten im Bereich der Nuklearchemie arbeitenden Gruppen.

Vor diesem Hintergrund erscheint es sinnvoll und notwendig, zur Verbesserung der Situation und Fortentwicklung der Radioanalytik die wissenschaftliche Durchdringung und Zusammenarbeit von analytisch arbeitenden Nuklearchemikern und klassischen Analytikern zu verbessern und zu stimulieren. Wichtig ist insbesondere, daß die den Nuklearchemikern zugänglichen Arbeitsmöglichkeiten und Methoden in entsprechenden Kooperationen auch anderen, „normal“ analytisch arbeitenden Gruppen zugänglich gemacht werden, denn viele analytische Gruppen wissen um die Vorzüge des radioanalytischen Instrumentariums, sehen aber aus technischen, organisatorischen bzw. logistischen Gründen keine Möglichkeiten zu seiner routinemäßigen Nutzung.

Die dazu notwendigen Weichenstellungen sind erfolgt. Auf Beschluß der Vorstände der Fachgruppen Analytische Chemie und Nuklearchemie der GDCh ist am 22.4.1993 der Arbeitskreis „Analytik mit Radionukliden und Hochleistungsstrahlenquellen“ gegründet worden. Er dient der Fortentwicklung der Radioanalytik und soll insbesondere Organisationsstrukturen aufbauen, die allen analytisch arbeitenden Gruppen den Zugang zu radioanalytischen Instrumentarien und den Hochleistungsstrahlenquellen erleichtern bzw. ermöglichen.

Ziel dieses Arbeitskreises ist es, analytisch orientierte Radiochemiker und Analytiker zu interdisziplinären Forschungsaufgaben zusammenzuführen, die Verbreitung der an den Hochleistungsstrahlenquellen möglichen neuen Methoden zu fördern und den Zugang zu den Großgeräten bzw. den Laboratorien, in denen mit radioaktiven Stoffen umgegangen werden darf, zu koordinieren.

4. Nuklearchemie in den Lebenswissenschaften

Nuklearchemische Methoden und Produkte spielen in den Lebenswissenschaften eine bedeutende Rolle. Die sich durch ihren Einsatz ergebenden Möglichkeiten sind in vielen Fällen einzigartig und nicht substituierbar. Dies gilt sowohl für die biochemische und pharmazeutische Forschung, als auch für die diagnostische und therapeutische Medizin. In diesen Bereichen finden die Tracerherstellung sowie radioanalytische und radiodiagnostische Ansätze in großer Variabilität und mannigfacher Verknüpfung eine breite Anwendung.

Die moderne Analytik in den Biowissenschaften ist ohne die Radioindikator-Methode undenkbar. Der Fortschritt auf wichtigen Feldern der naturwissenschaftlichen und medizinischen Wissenschaften basiert auf der Pflege und Weiterentwicklung der analytischen und diagnostischen Möglichkeiten der Tracertechnik. Bedeutende Beispiele für den analytischen Einsatz der meist verwendeten Nuklide (*in vitro*: ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{33}P , ^{35}S , ^{125}I ; *in vivo*: ^{11}C , ^{18}F , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{123}I , ^{131}I , ^{201}Tl) findet man in folgenden Bereichen:

Die (Bio-)Chemie schafft die Voraussetzung der Herstellung markierter Tracer und Wirkstoffe, profitiert jedoch von deren Verwendung zur Untersuchung von Reaktionsmechanismen, sowie Verlaufsstudien von (Bio-)Synthesen und letztlich ihrer Optimierung. In der Molekularbiologie werden Radiotracer zur Identifizierung und Sequenzierung von Nukleotiden herangezogen.

In der Umweltforschung und Agrochemie ist die Verwendung langlebig markierter Wirkstoffe unerlässlich, um Fragen zum Metabolismus, zur Rückstandsanalytik sowie zu Stofftransport und -eigenschaften und damit zur Anwendungssicherheit z.B. von Pflanzenschutzmitteln zu klären. In gleicher Weise profitiert die Pharmazie in Studien zur Pharmakokinetik, Metabolismus und Sicherheit von Arzneimitteln.

In der Pharmakologie werden mit Hilfe von Radiotracern Wirkmechanismen von Arzneimitteln aufgeklärt und insbesondere Charakterisierungen von Rezeptoren und deren Liganden durchgeführt. Entsprechend dienen sie in der Pflanzen- und Tierphysiologie in Zell- oder systemischen Studien zur Aufklärung von Metabolismus, Biosynthese und Transportmechanismen.

In der Veterinärmedizin helfen sie u.a. bei der Hormonanalytik sowie bei Untersuchungen der Futtermittelverwertung. In der Humanmedizin finden Radiotracer *in vitro* im Rahmen immuno-

radiometrischer Assays (Blut-, Uringehaltsanalysen) sowie als Radiodiagnostika zur biochemischen bzw. pharmakologischen Funktionsanalyse und als Radiotherapeutika zur systemische Strahlentherapie vielseitige Verwendung.

Die Entwicklung und Bereitstellung geeigneter Radiotracer oder Radiopharmaka für diese vielfältigen Anwendungen ist Aufgabe der Radiochemie bzw. der Radiopharmazeutischen Chemie. Die in der *in vitro* Radiotracertechnik hauptsächlich verwendeten Radionuklide ^3H und ^{14}C können aufgrund der von ihnen emittierten niederenergetischen Strahlung für *in vivo* Experimente, bei denen nicht-invasiv durch einfache äußere Strahlenmessung chemische Vorgänge im Organismus sichtbar zu machen sind, nicht verwendet werden. Die insbesondere für die Positronen-Emissions-Tomographie (PET) verwendeten, sehr kurzlebigen Positronenstrahler, wie ^{15}O , ^{13}N , ^{11}C oder ^{18}F mit Halbwertszeiten von 2, 10, 20 bzw. 110 Minuten, erfordern eine Produktion der Radioisotope und Synthese der Radiotracer am Anwendungsort. Dagegen wird eine Vielzahl mit ^3H -, ^{14}C - und ^{125}I langlebig markierten Verbindungen für verschiedenste biochemische oder klinische *in vitro* Untersuchungen kommerziell angeboten.

Typischerweise wird bei der Wirkstoffentwicklung (Arzneimittel, Pflanzenschutzmittel) zunächst die Synthese eines Wirkstoffvorläufers für die radioaktive Markierung entwickelt. Dies erfordert vielfach die Erarbeitung neuer Techniken für den Umgang mit dem radioaktiven Material im subnanomolaren Maßstab. Apparaturen und experimentelle Handhabung müssen demzufolge auf die speziellen Erfordernisse dieser chemischen Prozesse ausgerichtet sein.

Obwohl Markierungsverfahren für langlebige Radionuklide, wie ^3H , ^{14}C oder ^{131}I , lange etabliert sind, stellen neue Substanzen häufig spezifische Anforderungen. Dabei zielt die Entwicklung neuer oder eine Verbesserung bestehender Markierungsmethoden und –agenzien ganz wesentlich auf schnelle, unkomplizierte und – sofern möglich - automatisierbare Verfahren. Einstufige Reaktionen oder zumindest Ein-Topf-Synthesen werden auch aus Strahlenschutzgründen bevorzugt. Weiterhin zielen die Entwicklungen auf hohe spezifische Aktivitäten sowie positionsspezifische und chemoselektive Markierungen, auch unter Einbeziehung enzymatischer Methoden. Die Methodik ist sowohl an Hochschulen, an Großforschungseinrichtungen als auch in der Industrie etabliert. Einige der wichtigsten Anwendungsgebiete werden im folgenden ausführlicher dargestellt.

4.1 Tracermethoden in Biochemie, Gentechnologie und Wirkstoffentwicklung

Im Methodenspektrum der modernen Molekularbiologie und der Gentechnologie kommt den Tracertechniken unter Einsatz von Radionukliden ein besonderer Stellenwert zu.

Häufig verwendete Nuklide in der Genomanalyse sind ^{32}P und ^{35}S , neuerdings auch ^{33}P . Essentiell ist die Markierung von Nukleotiden mittels Polymerasen oder Kinasen unter Einsatz von $[\text{}^{35}\text{S}]\text{PSO}_3$, $[\text{}^{32}\text{P}]\text{PO}_4$ oder $[\text{}^{33}\text{P}]\text{PO}_4$ hoher spezifischer Radioaktivität, die für das Sequenzieren oder einen spezifischen Sequenznachweis von Nukleotiden nötig ist. Im übrigen können markierte Nukleotide spezifischer Sequenz, in Analogie zu markierten Liganden in Rezeptor-Bindungsstudien, für Identifizierungen von Nukleotidabschnitten verwendet werden.

Die Sequenzierung von Oligo-/Polynukleotiden stellt das Rückgrat der molekularbiologischen/gentechnologischen Methoden dar; in seiner Bedeutung dem Proteinnachweis der klassischen Biochemie vergleichbar. Das Sequenzieren bzw. ein spezifischer Sequenznachweis über "Blotting"-Verfahren gehören zum alltäglichen Methodenspektrum auch in der molekularen Virologie (HIV, Herpes Simplex etc.). Der speziell bei Retro-Viren (HIV) wichtige "reverse transcription assay" verwendet ebenfalls markierte Nukleotide.

Ein weiteres wichtiges Arbeitsfeld ist z.B. die Untersuchung und Charakterisierung von Rezeptoren mit ^3H - oder ^{125}I -markierten Liganden. Die von P. Ehrlich postulierten Rezeptoren haben erst durch die Radiotracer methode ein "Gesicht" erhalten. In Kombination mit der Autoradiographie eröffnet die Radiotracer technik ein weiteres essentielles Gebiet der Biochemie und Pharmakologie.

Verteilungsstudien und Metabolismusuntersuchungen sind unabdingbar für Stoffe, deren Eigenschaften für ihre Anwendung als Arzneistoff, Pflanzenschutzmittel oder anderweitig einsetzbare Produkte (Kosmetika, Dermatika, Chemikalien) geprüft sein müssen. Erforderlich sind derartige Studien nicht nur im Rahmen von Neugenehmigungen, sondern auch für die Überprüfung von zuzulassenden Altstoffen oder bei speziellen Fragestellungen, die sich aus neuen Anwendungen ergeben.

Für Untersuchungen von Stoffen, die wie z.B. Rezeptorliganden oder Enzyminhibitoren eine Wirksamkeit in pico- bis nanomolaren Konzentrationen entfalten, bietet sich die Verwendung der trägerarm radiomarkierten Form für eine pharmakologische Charakterisierung *in vitro* an, z.T. in Zellstudien. Die pharmakologische Wirk- und Sicherheitskontrolle von Wirkstoffen am intakten Gesamtorganismus ist jedoch unerlässlich und kann störungsfrei nur mittels Tracermethoden durchgeführt werden. Das markierte Material wird dazu in Tier- oder Pflanzenversuchen zur Verfolgung von Aufnahme, Verteilung, Umwandlung und Eliminierung des jeweiligen Wirkstoffs eingesetzt. Im Hinblick auf die Anwendungssicherheit sowie Wirkungsprüfung ist auch das Transport- und Abbauverhalten von Pflanzenschutzmitteln in Boden, Luft, Pflanze und Tier zu prüfen. Die Entstehung und der Verbleib von Abbauprodukten ist praktisch nur über radiomarkierte Substanzen zu verfolgen.

Bei oral applizierten Arzneimitteln interessieren vorrangig die Geschwindigkeit des Übergangs der Substanz aus dem Magen-Darm-Trakt in das Blut, die Maximalkonzentration und die Gesamtmenge an resorbierter Substanz sowie die Verteilung auf die verschiedenen Kompartimente des Organismus, z. B. die Anreicherung im Zielorgan, sowie die ihrer Metabolite. Verschiedene Zubereitungen eines Wirkstoffs können hinsichtlich der Resorption im Vergleich geprüft werden. Die Quantifizierung der Radioaktivität in den Ausscheidungen und die Isolierung von radioaktiven Produkten aus Faeces, Urin und Blut geben Aufschlüsse über die Eliminationskinetik bzw. weisen auf strukturelle Veränderungen des Wirkstoffs während der Passage durch den Organismus hin. Die notwendige Bilanzierung der Aufnahme und des Verbleibs der Präparate ist nur über Radioaktivitätsmessungen zuverlässig möglich. Für die Aufklärung von Wirkmechanismen und Wirkorten stellt die hochauflösende Autoradiographie von Dünnschnitten die wichtigste Analysenmethode dar.

Nach gründlichen Vorstudien an Tieren werden Untersuchungen schließlich auch an Menschen durchgeführt. Diese Studien unter Einsatz von Radioaktivität sind wie die anderer, vorgelagerter Studien von den Zulassungsbehörden explizit gefordert.

Ergebnisse der geschilderten Traceruntersuchungen sind innerhalb eines vernünftigen Zeitrahmens nur mit Hilfe radioaktiv markierter Verbindungen zu erhalten. Die Methodik ist weltweit Standard und wurde in den Jahrzehnten ihrer Anwendung ständig verfeinert. Die Nachweismöglichkeiten und damit die Aussagekraft wurden verbessert. In ständiger, offener

Konkurrenz mit nichtradioaktiver Analytik hat die Radiotracer-technik auf vielen Anwendungsgebieten ihre Effizienz und ihre Bedeutung eher noch steigern können. Herausragend ist die Möglichkeit, mit Hilfe der Autoradiographie die authentische, bildliche und quantitative Wiedergabe einer zweidimensionalen Substanzverteilung in Gewebe zu erhalten. Nichtradioaktive Verfahren gleicher Effizienz und Aussagekraft gibt es nicht.

4.2 Nuklearchemische Grundlagen für die nuklearmedizinische Diagnostik

Die diagnostische Nuklearmedizin geht auf den ungarischen Chemiker G. v. Hevesy zurück, der das Prinzip des Radioindikators mitentwickelte und es als erster für physiologische Studien an Lebewesen anwandte, wofür er 1943 den Nobelpreis erhielt. Sie nahm nach dem zweiten Weltkrieg eine stürmische Entwicklung. Dies begründet sich einerseits auf die notwendige Verfügbarkeit geeigneter Radioisotope, die in Kernreaktoren oder Teilchenbeschleunigern (Zyklotronen) hergestellt werden, sowie auf die Entwicklung schneller Meßverfahren, wie der Einzel-Photonen- und insbesondere der Positronen-Emissions-Tomographie (SPECT und PET).

Im Unterschied zu anderen tomographischen Verfahren, wie CT, MR und MEG, die mit externen Strahlenquellen arbeiten, ermöglichen die PET und SPECT die Messung radioaktiver Strahlung, die von entsprechend radiomarkierten chemischen Stoffen ausgeht; d.h. die Diagnose beruht auf den "strahlenden" Molekülen. Die räumliche Auflösung ist mit ca. 5 mm geringer als bei den oben genannten physikalischen Verfahren, die jedoch nur die Morphologie darstellen, während über die Verteilung und Anreicherung der Radiotracer die einzigartige Möglichkeit besteht, biochemische und physiologische Vorgänge im menschlichen Körper störungsfrei von außen mit hoher Sensitivität zu bestimmen.

Die PET hebt sich von der SPECT dadurch ab, daß sie bei hoher Zeitauflösung eine absolute Aktivitätsbestimmung und mittels geeigneter biomathematischer Modelle eine quantitative Bestimmung physiologischer Größen, wie Umsatzraten oder Konzentrationen von Stoffwechselkomponenten, ermöglicht. Somit ist insbesondere die PET über die bloße Bildgebung hinaus ein *in vivo* biochemisches Verfahren, wie schon 1994 in einer Stellungnahme des Wissenschaftsrates betont wird.

Die nuklearmedizinische Diagnostik ist essentiell auf den *in vivo* Einsatz radioaktiv markierter Substrate als Tracer zur Darstellung pathologischer Organ- bzw. Stoffwechselzustände ange-

wiesen. Die Radiosynthese solcher Substanzen sowie deren pharmakokinetische und physiologische Evaluierung stellen zur Zeit einen an Bedeutung stark zunehmenden Bereich der Nuklearchemie und der Radiopharmazie dar.

4.2.1 Entwicklung von Radiopharmaka für die planare Szintigraphie und die Single-Photon-Emission-Computer-Tomographie (SPECT)

Die Single-Photon-Emission-Computer-Tomographie ist eine für die Klinik maßgeschneiderte Methode, da es gelungen ist, als Quelle ihrer Radiopharmaka das breit eingeführte Nuklid Technetium-99m zu adaptieren. Das Radioisotop wird in Form geeigneter Verbindungen seit langem in der szintigraphischen, planaren Darstellung von Organen verwendet. Gegenüber anderen Photonenstrahlern, wie ^{123}I ($T_{1/2} = 13,2 \text{ h}$), ^{111}In ($T_{1/2} = 67,2 \text{ h}$) und ^{201}Tl ($T_{1/2} = 73,1 \text{ h}$), hat es überragende Bedeutung.

Die Zerfalleigenschaften des $^{99\text{m}}\text{Tc}$ erfüllen in idealer Weise die Forderungen, die an ein Nuklid für die *in vivo* Diagnostik gestellt werden. Die physikalische Halbwertszeit von 6 Stunden erlaubt die Untersuchung wichtiger physiologischer Prozesse, wobei die Strahlenbelastung für den Patienten niedrig bleibt. Mit 140 keV liegt die γ -Strahlung dieses Nuklids im optimalen Auflösungsbereich der in der Klinik vorhandenen Gammakameras mit NaI(Tl)-Detektoren. Eine unabdingbare Voraussetzung für die enorme Verbreitung dieses Nuklids ist aber der $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Generator. Das $^{99\text{m}}\text{Tc}$ kann in wenigen Minuten vom fixierten ^{99}Mo abgetrennt und in reiner Form zur Verfügung gestellt werden. Basis der nuklearmedizinischen Versorgung mit $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ist somit ^{99}Mo , das aus dem bei der Kernspaltung von ^{235}U entstehenden Nuklidgemisch trägerfrei isoliert wird. Vorübergehende Engpässe konnten in den letzten Jahren durch Einrichtung entsprechender Aufarbeitungslabors für ^{99}Mo geschlossen werden, so daß der Bedarf langfristig gedeckt werden kann.

Als weiteres Radionuklid für SPECT hat sich ^{123}I bewährt. Aufgrund seiner günstigen γ -Linie von 160 keV und seines im Vergleich zu ^{131}I niedrigen Strahlenpotentials hat es dieses in der Diagnose weitgehend ersetzt. Iodmarkierte Verbindungen ergänzen den Anwendungsbereich von SPECT, da es leichter als mit $^{99\text{m}}\text{Tc}$ möglich ist, analoge biochemische bzw. organische Moleküle zu markieren. Es ist darauf zu achten, Substanzen so zu markieren, daß das synthetisierte Produkt auch im Menschen stabil ist. Darüber hinaus muß das Produkt pharmakokinetische Eigenschaften aufweisen, welche die gewünschte diagnostische Aussage ermöglichen. Spezielle Anwendungen

haben auch die Nuklide ^{111}In , z.B. in Chelat-Komplexen von Proteinen, und ^{201}Tl , letzteres fast ausschließlich für die Bestimmung der Myokardperfusion, erfahren.

Aufgrund dieses Sachverhalts wurden Anstrengungen unternommen, Syntheseverfahren für die Umsetzung von geeigneten Substraten mit $^{99\text{m}}\text{Tc}$ zu entwickeln. Ein entscheidender weiterer Vorteil von $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ist dabei die Möglichkeit, $[\text{}^{99\text{m}}\text{Tc}]\text{Pertechnetat}$ in organischen und anorganischen Lösungen zu reduzieren und *in situ* mit geeigneten Chelaten und Liganden zu komplexieren. Dies ist für viele $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Radiopharmaka in Form eines Markierungsbestecks (Kit) bei Raumtemperatur möglich, was neben der steten Verfügbarkeit (^{99}Mo -Generator) des Isotops seine Anwendung sehr erleichtert.

Da $^{99\text{m}}\text{Tc}$ immer nur trägerarm in sehr geringen Substanzmengen (pMol – nMol) vorliegt, können auch die entsprechenden Komplexe nicht makroskopisch synthetisiert werden, was ihre Charakterisierung und Identifizierung erschwert. Für die Strukturaufklärung hat sich die Kernresonanzspektroskopie mit dem in Makromengen verfügbaren, langlebigen Isotop $^{99\text{g}}\text{Tc}$ sehr bewährt. Der $^{99\text{g}}\text{Tc}$ -Kern besitzt eine Spinquantenzahl von $9/2$ und ist daher ein geeigneter Kern für die NMR. Die abschließende Strukturaufklärung der Komplexe erfordert stets die Isolierung der entsprechenden Kristalle mit dem langlebigen Isotop $^{99\text{g}}\text{Tc}$ und eine Röntgenstrukturanalyse. Oft werden analoge Komplexverbindungen des aufgrund der Lanthaniden-Kontraktion isotypischen Rheniums für makroskopische Vergleiche der Struktur herangezogen.

Der Zusammenhang zwischen Struktur und biologischer Wirkung ist bei $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Präparaten nur schwer vorherzusehen und macht eine intensive Zusammenarbeit zwischen den Disziplinen erforderlich, die biologische Mechanismen und Wirkungen von Substanzen untersuchen.

Die Entwicklung der Radiopharmaka auf der Basis von $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Komplexen kann man in drei Phasen einteilen. Beispiele der ersten Generation sind Technetiumkomplexe klassischer Liganden, wie $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -DTPA für die Nierenfiltration, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Diphosphonat für die Knochenszintigraphie oder einfach $[\text{}^{99\text{m}}\text{Tc}]\text{Pertechnetat}$ für die Schilddrüse, aber auch $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -markierte Erythrozyten zur Blutvolumenbestimmung und $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Mikrosphären (Albumine) für die Messung der Lungenperfusion. Von vielen dieser täglich genutzten Radiopharmaka wurden bis heute nicht eindeutig die Strukturen ermittelt, da sie bei der Kit-Präparation *in situ* trägerarm gebildet werden. Die Aufnahme dieser Tracer im Zielorgan beruht weitgehend auf physiko-

chemischen Eigenschaften und angezeigte Parameter beschränken sich weitgehend auf biophysikalische Prozesse wie Filtration, Perfusion, Sekretion oder Ventilation und nicht auf biochemische Funktionen.

Dies gilt auch weitgehend für die zweite in die klinische Routine eingeführte Generation von ^{99m}Tc -Radiopharmaka, deren Entwicklung jedoch auf einem Design beruhen und die insbesondere durch makroskopische Synthese der ^{99g}Tc -Komplexe eindeutig spektroskopisch charakterisiert wurden. Prominent zu nennen sind ^{99m}Tc -MIBI für die Herzperfusion, ein Isonitrilkomplex mit der Ladung +1, der einwertige Kationen imitieren soll, und ^{99m}Tc -MAG₃, ein Mercaptotriglycin-Komplex, der zur Bestimmung der Nierenfunktion dient. Die Indikatoren der Hirnperfusion, ^{99m}Tc -HMPAO und ^{99m}Tc -ECD, waren das Resultat der Bemühungen, kleinere neutrale Komplexe zu optimieren, die aufgrund ihrer Lipophilie die Blut-Hirnschranke durchdringen. Beim ECD, einem Dicystein-diester-Komplex, wird die neutrale lipophile Form im Hirngewebe aufgenommen, wo es nach Hydrolyse einer Esterfunktion als Anion retentiert wird. Bei der Entwicklung dieser Tracer zeigte sich der Einfluß geringer struktureller Veränderungen auf die Bioverteilung und damit die Notwendigkeit eines breiten Screenings. Auch wurden diese Radiopharmaka auf eine relativ lange Retention im Zielgewebe hin entwickelt, um der längeren Aufnahmezeit (30 – 60 min) der älteren SPECT-Kameras Rechnung zu tragen. Moderne Vielkopf-Geräte haben hier eine wesentlich höhere Zeitauflösung und ermöglichen somit die Aufnahme schneller Kinetiken bzw. physiologischer Prozesse.

Moderne Entwicklungen verknüpfen kleine neutrale ^{99m}Tc -Chelate mit biochemischen oder pharmakologischen Funktionen. Beispiele sind die kürzlich entwickelten 3+1 und 4+1 Konzepte oder die Verwendung von ^{99m}Tc -Tricarbonyl-Resten, wobei der organische Funktionsteil gegenüber älteren (symmetrischen) Komplexen nur einen Teil der Ligandensphäre ausmacht. Neben diesem Anhänger-(pending)-Ansatz wird auch – bisher wenig erfolgreich – versucht, die ^{99m}Tc -Komplexstruktur in die Molekülstruktur zu integrieren. Das “Anhängen” eines ^{99m}Tc -Komplexes führt dabei zu größeren Störungen, je kleiner das Biomolekül ist; d.h. es ist besonders einfach bei Strukturen wie Proteinen, z.B. Antikörpern. Ein erster Durchbruch für solche ^{99m}Tc -Tracer, die neuronale Funktionen im Hirn bestimmen, wurde mit ^{99m}Tc -Technepine und ^{99m}Tc -Trodat erzielt, die als Derivate des Kokains die Konzentration des Dopamintransportes anzeigen und in ersten klinischen Studien getestet werden. Diese Verbindungsklasse stellt ein Beispiel für die erfolgreiche Markierung sowohl mit den Positronenstrahlern ^{11}C und ^{18}F wie mit ^{99m}Tc und

^{123}I dar und demonstriert die Übertragbarkeit von SPECT- zu PET-Tracern und *vice versa*. Insbesondere kann hier auch die Analogie von [^{18}F]Fluor- und Radioiod-markierten Verbindungen eine große Hilfe sein (vergl. unten).

Im Vergleich zur Komplex-Markierung mit $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ist es prinzipiell einfacher, Radioiodierungen ohne gravierende Änderung der physiologischen oder pharmakologischen Eigenschaften durchzuführen. Auch aufbauend auf den *in vitro* genutzten, ^{125}I -markierten Rezeptorliganden werden daher z.Z. eine Vielzahl von ^{123}I -Radioliganden für Anwendungen in der ZNS-Forschung und Diagnose entwickelt, wie ^{123}I -Iomazenil (Benzodiazepin-Rezeptor), ^{123}I -Eticlopid und ^{123}I -IBZM (D_2 -Rezeptor) oder ^{123}I -QNB (muskarinisch-cholinergischer Rezeptor).

Wenn Positronenstrahler- oder $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -markierte Analoge verfügbar sind, stehen ^{123}I -Tracer trotz der im Vergleich zu PET mehr verbreiteten SPECT-Methode zurück. Neben den relativ hohen Nuklidkosten liegt dies gegenüber PET in der schlechteren zeitlichen und räumlichen Auflösung, gegenüber $^{99\text{m}}\text{Tc}$ in der Logistik (Verfügbarkeit) begründet. So spielten [^{123}I]Iodhippuran als Nierentracer, oder [^{123}I]Iodamphetamine als Hirnperfusionsmarker nur bis zur Entwicklung geeigneter $^{99\text{m}}\text{Tc}$ -Radiopharmaka eine Rolle. Für [^{123}I]Iodmethyltyrosin zur Tumordiagnose, [^{123}I]Iodfettsäuren für den Herzstoffwechsel, [^{123}I]Iodbenzamide als Melanomindikatoren oder [^{123}I]MIBG für Tumor-, Herz- und Nierenszintigraphie existiert dagegen weiterhin klinisches Interesse.

Komplexe auf Basis von $^{99\text{m}}\text{Tc}$ haben in den vergangenen Jahren eine Fülle von Einblicken in Funktion und Morphologie von Organen ermöglicht. Sie sind heute unverzichtbarer Bestandteil der medizinischen Diagnostik, deren Bedarf sie z.Z. zu ca. 75% abdecken. Für die gezielte Entwicklung sind Strukturinformationen (z.B. ^{99}Tc -NMR, Röntgenstrukturanalyse, Massenspektroskopie etc.) erforderlich und die Bereitstellung entsprechender Arbeitsmöglichkeiten unabdingbare Voraussetzung. Zusätzliche Chancen liegen in der Erforschung von rezeptorbindenden Liganden für *in vivo* Anwendungen, markiert mit ^{123}I . Diese Untersuchungen haben z.Z. eine enorme Entwicklung, die zu ersten klinischen Einführungen geführt hat.

4.2.2 Entwicklung von Radiopharmaka für die Positronen-Emissions-Tomographie (PET)

Das Messprinzip der Positronen-Emissions-Tomographie beruht auf der Annihilation der Positronen nach Verlust ihrer kinetischen Energie. Die im Winkel von 180° abgestrahlten γ -Quanten von 511 keV tragen eine Ortsinformation, die man nach der Strahlungsmessung mit ringförmig angeordneten, gegenüberliegend in Koinzidenz geschalteten Szintillationsdetektoren dazu benutzt, um durch Rückprojektion oder iterative Verfahren die dreidimensionale Aktivitätsverteilung im Organismus in Form von Schnittbildern zu konstruieren. Die zeitliche Verfolgung derartiger Verteilungen gestattet ortsabhängige makrokinetische Studien am jeweiligen Anreicherungsort. Da jeweils das gesamte Objekt zwischen zwei Detektoren durchstrahlt wird, kann man Absorptions- und Streuverluste durch eine unabhängige Untersuchung absolut erfassen und damit die Emissionsmessung korrigieren. PET ist dadurch prinzipiell in der Lage, die Aktivitätsverteilung im Gewebe des intakten lebenden Organismus in zeitlicher und örtlicher Auflösung quantitativ zu erfassen. Die Quantifizierung physiologischer Parameter aus tomographischen Meßdaten erfordert die Verfügbarkeit geeigneter biochemisch/physiologisch begründeter mathematischer Modelle, d.h. die genaue Kenntnis des Metabolismus des verwendeten Radiotracers. Nachteilig im Vergleich zur MR-Tomographie ist die relativ geringe Ortsauflösung von PET und die unvermeidliche Strahlenbelastung.

Für die PET stehen mit ^{11}C , ^{13}N und ^{15}O Radioisotope der wichtigsten Elemente der Biosphäre zur Verfügung, die eine "authentische" Markierung von Biomolekülen oder Pharmaka ermöglichen. Die kurze Halbwertszeit der am Menschen eingesetzten Radioisotope bedingt eine geringe Strahlendosis; im allgemeinen im Bereich der einer Röntgenuntersuchung. Bei der Radiosynthese unter weitgehendem Ausschluß stabiler Isotope erhält man die Radiotracer mit hoher spezifischer Aktivität. Dies bedeutet, daß die applizierten Stoffmengen nicht zu Störungen der biochemischen Vorgänge im patho- oder physiologischen Zustand führen und sogar solche, "trägerarm"-markierte Verbindungen zum Einsatz gelangen, die in makroskopischer Dosis hochwirksam oder toxisch sind.

Da bei ^{11}C die Möglichkeit idealer isotoper Markierungen besteht, gehört es zu den bevorzugten Tracernukliden. Daraus resultiert nicht nur die exakte Wiedergabe der verfolgten Verteilungen bzw. Prozesse von Biomolekülen oder Pharmaka, sondern auch die Möglichkeit, als

Referenzstandard für andere emissionstomographische Methoden zu dienen. Neben ^{11}C ($T_{1/2} = 20,4 \text{ min}$) und ^{18}F ($T_{1/2} = 109,7 \text{ min}$) als wichtigsten Nukliden für die PET finden andere Positronenstrahler wie ^{76}Br ($T_{1/2} = 16,0 \text{ h}$) oder ^{120}I ($T_{1/2} = 1,35 \text{ h}$) und ^{124}I ($T_{1/2} = 4,15 \text{ d}$) zunehmend Interesse. Insbesondere die Iodisotope ^{120}I und ^{124}I sowie $^{94\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 53 \text{ min}$) erlauben eine Übertragung oder Bewertung von ^{123}I bzw. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ markierten SPECT-Tracern mittels PET. In analoger Weise erlaubt die Verwendung der metallischen Nuklide ^{86}Y ($T_{1/2} = 14,7 \text{ h}$) oder ^{51}Mn ($T_{1/2} = 46,2 \text{ min}$) quantitative Verteilungs-(Dosimetrie-)Studien von Radiotherapeutika bzw. Magnetopharmaka am Menschen.

Eine Schlüsselstellung bei der PET-Methode kommt der Nuklearchemie zu, da die Nuklidherstellung (Targeting) und die trägerfreie Radiosynthese in direkter Beziehung stehen. Im Hinblick auf die Subnanogrammengen der eingesetzten Isotope steht das "Downsealing" der Synthesen sowie deren Fernbedienung bzw. Automatisierung im Mittelpunkt der chemischen und verfahrens-technischen Entwicklungsarbeiten. Aufgrund dieser speziellen Erfordernisse müssen die pharmazeutische Präparation und Qualitätskontrolle als integraler Bestandteil in den gesamten Herstellungs- und Applikationsprozeß eingegliedert werden.

Der Hauptvorteil der PET-Methode in diagnostischer Hinsicht ist die nicht-invasive Messung der zeitlichen Änderung minimaler Stoffmengen, und daraus abgeleitet, die Bestimmung quantitativer physiologischer Parameter. Auch für die Anwendung in der Pharmakologie ist entscheidend, daß mit PET extrem kleine Mengen erfaßt werden können. Zentral wirksame Substanzen können daher ohne pharmakodynamische Wirkung appliziert und die Messungen ggf. in kurzen Intervallen wiederholt werden. Gegenwärtig zielen neuere Ansätze der Anwendung insbesondere auf

- die Erforschung grundlegender biochemischer und physiologischer Funktionen *in vivo* am Menschen; dabei sind Rezeptor- und Enzymsysteme aufgrund ihrer geringen Konzentration eine besondere Domäne,
- die Verwendung von Radiopharmaka für diagnostische Zwecke in der Nuklearmedizin, insbesondere auch für die Therapiekontrolle nach operativer oder medikamentöser Behandlung (vorwiegend in Onkologie, Kardiologie und Neurologie) und
- die Bewertung von neuen oder etablierten (Radio-)Pharmaka in der Pharmakologie/Arzneimittelforschung entweder mittels deren Markierung (Verteilung am Wirkort) oder ebenfalls in Form einer Therapiekontrolle.

Die Haupteinsatzgebiete in der klinischen Diagnostik liegen zur Zeit in der Charakterisierung von Stoffwechselfparametern, wie z.B. der Messung der Sauerstoffutilisation mit [^{15}O]O₂ und des Glukoseumsatzes mit [^{18}F]Fluordesoxyglucose (FDG), sowie der Erfassung physiologischer Funktionen, wie z.B. des regionalen Blutflusses mit [^{15}O]H₂O im Hirn oder [^{13}N]NH₃ im Myokard. Diese Parameter werden auch unter der Wirkung neuer Pharmaka bestimmt, um deren Potenz und Wirkspektrum zu prüfen und zu charakterisieren (Therapiekontrolle).

Die Messung des regionalen Glucoseverbrauchs mit Hilfe von FDG stellt das klinische "Arbeitspferd" der PET in der Kardiologie, der Neurologie und der Onkologie dar, da es wertvolle Informationen über den Energiestoffwechsel entsprechender Gewebe liefert. In der Tumordiagnostik werden neben [^{18}F]FDG auch [^{18}F]Fluoruracil, [^{18}F]Fluorid, [^{11}C]Thymidin und [^{11}C]Methionin routinemäßig eingesetzt. Neuere Entwicklungen wie [^{18}F]Fluormisonidazol als Marker hypoxischer Zellen oder 2-[^{18}F]Fluortyrosin als Indikator der Proteinsyntheserate werden z. Z. auf ihre klinische Eignung geprüft.

Für markierte Rezeptorliganden bestehen derzeit nur wenige klinische Indikationen, jedoch finden sie zunehmend Verwendung in pathophysiologischen und pharmakologischen Studien. PET spielt daher im Bereich der klinischen Forschung bei der Untersuchung von peripheren und zentralen Rezeptorsystemen eine große Rolle. Es existieren schon für eine Vielzahl von Rezeptorsystemen geeignete markierte Liganden. Zu nennen sind hier [^{18}F]Altanserin, [^{11}C]Flumazenil, [^{18}F]Xanthine, [^{11}C]Carfentanil als Beispiele von Radioliganden für Serotonin-, Diazepin-, Adenosin- oder Opiat-Rezeptoren sowie [^{11}C]-, [^{18}F]Spiperone und [^{11}C]Racloprid für dopaminerge Rezeptoren.

Besonders intensiv wurde das dopaminerge System untersucht. Dopaminerge Neuronen, die vorzugsweise im Striatum lokalisiert sind, sind vermutlich bei verschiedenen neurologischen Erkrankungen, wie z. B. Parkinsonismus, Schizophrenie und Chorea Huntington, beteiligt. PET-Studien haben hier einen hohen diagnostischen Nutzen; auch für die Therapieplanung. Die Dopaminrezeptoren im Striatum sind der Wirkort verschiedener zentralwirksamer Pharmaka. Neuroleptika z.B. blockieren sie antagonistisch. Markiert mit einem Positronenemitter eignen sie sich, Informationen über die Rezeptordichte zu erhalten bzw. umgekehrt die Wirkeigenschaften und Pharmakokinetik dieser Substanzen am Wirkort im pathologischen Zustand zu studieren. Mit

[¹⁸F]Fluordopa, einem Substrat der DOPA-Decarboxylase, gelingt es dagegen, die präsynaptische Integrität zu erfassen.

Neben der Wirkung von Pharmaka auf Rezeptoren ist die Beeinflussung von Enzymreaktionen durch Enzyminhibitoren von großer pharmakologischer Bedeutung. Antidepressiva hemmen z.B. die Monoaminoxidase (MAO), die die Konzentration diverser Neurotransmitter niedrig hält. Von diesem System ausgehende pathologische Zustände bzw. die Wirkung dazu antagonistischer Pharmaka können durch PET-Studien mit ¹¹C-markierten MAO-Inhibitoren (z.B. [¹¹C]-L-Deprenil) studiert und charakterisiert werden; die PET-Methode gestattet auf diese Weise auch die Bestimmung von regionalen Enzymumsatzraten.

Das Potential derartiger Studien von Rezeptorsystemen im Hirn wird der PET-Methode einen festen Platz in der Pharmakologie von Psychopharmaka (Arzneimittelentwicklung) bzw. in der klinischen Erforschung von neurologischen und psychiatrischen Erkrankungen einbringen. Neben dem beschriebenen Ansatz, die Komplexität der Neurotransmissionsprozesse durch Vielfach-Traceranwendungen zu erfassen, zielen neuere Untersuchungen insbesondere auf die Erfassung der Interaktion verschiedener Rezeptorsysteme.

Die PET-Methode ist prinzipiell in der Lage, die regionale Makrokinetik der chemischen Kommunikationssysteme innerhalb und zwischen den einzelnen Organen zu charakterisieren und primäre pathologische Veränderungen zu erkennen. Durch den Einsatz Positronenstrahler-markierter Pharmaka können Korrelationen zwischen Plasmaspiegel und Konzentration *in vivo* am Wirkort ermittelt werden, die völlig neuartige Erkenntnisse liefern und verbesserte Therapiekonzepte und Dosierungen abzuleiten gestatten. Die PET-Methode wird sich daher unter zentraler Beteiligung der Nuklearchemie zu einer bedeutenden Methode für die dynamische Biochemie und Pharmakologie sowie für die klinische Forschung entwickeln.

Im rein klinischen Bereich ist sie anderen tomographischen Methoden allein wegen der aufwendigen Logistik unterlegen. Hier wird sie auf breiter Front weiter Fuß fassen, je mehr als Instrument der Therapiekontrolle und Diagnostik geeignete pathophysiologische Fragestellungen quantitativ beantwortet werden müssen. Im Hinblick auf die klinische Anwendung der PET sollte jedoch auf die ökonomischen Vorteile hingewiesen werden, die z.Z. in zahlreichen Kosten-Nutzen Studien evaluiert werden. Hier ergeben sich enorme Möglichkeiten in allen Fällen, wo

eine Entscheidung für eine kostenintensive Behandlung nur aufgrund der Kenntnis (quantitativer) biochemischer Funktionen getroffen werden kann. Dafür sind die Bestimmung des Blutfluß/Stoffwechsel-Mismatches vor Herzoperationen oder die Bestimmung der Wirksamkeit einer Chemo- oder Strahlentherapie bei der Tumorbehandlung nur zwei prominente Beispiele. Obwohl insbesondere die PET-Methode zunächst von den Anschaffungs- und Betriebskosten als aufwendig und teuer einzustufen ist, eröffnet sie einzigartige Möglichkeiten in der physiologischen wie pharmakologischen Forschung und in der diagnostischen Anwendung. Die Vermeidung unnützer Therapien durch die Bestimmung physiologischer Funktionsparameter trägt dazu bei, Kosten im Gesundheitswesen zu reduzieren.

4.3 Nuklearchemische Grundlagen für die Tumorthherapie

Im Bereich der Therapie werden zunehmend systemisch verabreichte Radioisotope zur Zerstörung krankhafter Zellen genutzt (systemische oder Endo-Therapie). Für diese Anwendungen werden eine ganze Reihe von Nukliden diskutiert bzw. verwendet, die α - oder β^- -Strahler (hoher LET-Wert) mit bestimmten Zerfallseigenschaften sein sollen. Wichtige Therapienuklide sind ^{90}Y , ^{67}Cu , ^{131}I , $^{186,188}\text{Re}$, ^{32}P ; auch erste Patientenanwendungen mit ^{211}At wurden inzwischen berichtet. Hier können grundsätzlich die gleichen Ansätze wie zur Entwicklung von diagnostischen Tracern verfolgt werden, wobei meist das Tumorgewebe das "Zielorgan" darstellt. Jedoch sind die Anforderungen an die selektive Anreicherung der Radiotherapeutika zur Vermeidung von Strahlendosen für gesundes Gewebe noch rigorosier. Klassische Beispiele sind die Schilddrüsentherapie mit ^{131}I mit nahezu spezifischer Anreicherung, die Behandlung von Tumoren und Metastasen der Nebennieren (Neuroblastoma) mit [^{131}I]meta-Iodbenzylguanidin oder die Schmerzbehandlung rheumatischer Gelenke mittels lokaler Applikation von [^{90}Y]Kolloiden (Synovectomy) bzw. von Knochenmetastasen mit ^{186}Re -HEDP und ^{153}Sm -EDTMP.

Für die Zukunft sieht man ein besonders großes Entwicklungspotential in der Kombination von zellspezifischen Erkennungsstrukturen, immunologischen bzw. Rezeptor-Komponenten und klassischen nuklearchemischen Therapiebausteinen. Man erwartet dabei auch für die Radioimmuntherapie völlig neuartige Therapiekonzepte, z.B. durch die Kombination von tumorspezifischen monoklonalen Antikörpern mit geeigneten Nukliden. Wichtig ist, daß in dieser Kombination durch Zellapoptose die für die Schädigung der Tumorzellen entscheidende irreparable DNA-Bruchrate deutlich über der rein radiolytisch zu erwartenden liegt.

Für das Design derartiger Radiopharmaka sind drei Komponenten besonders wichtig: die Struktur zur Erkennung der Tumorzellenoberfläche, das Radiotherapiepaket (Therapienuklid – Chelatkomplex) und die Verknüpfungsstruktur.

Als Erkennungsstrukturen werden insbesondere monoklonale Antikörper, aber auch spezielle Rezeptorliganden diskutiert. Geeignete Strukturen werden z.Z. in großer Zahl untersucht. Das Radiotherapiepaket enthält das α - bzw. β -emittierte Radionuklid in einer unter *in vivo*-Bedingungen festen Komplexbindung. Geeignete Liganden sind z.B. im Bereich offenkettiger Azaethylencarbonsäuren (EDTA, DTPA) bzw. makrozyklischer Tetraazaethylencarbonsäuren (DOTA, NOTA, Cyclam) gefunden worden. Die Verknüpfungsstruktur muß die feste Verknüpfung der beiden o.a. Funktionskomponenten unter *in vivo* Bedingungen gewährleisten.

Bestechend an diesem Konzept ist die außerordentlich große Variabilität. Sie eröffnet im Therapiebereich nicht nur der Radiotherapie und der Chemotherapie neuartige, schonendere und selektivere Wege, sondern gestattet auch die Verknüpfung mit neuartigen tomographischen Diagnosekonzepten. Nach einer fieberhaften Aktivität Ende der 80er Jahre, Antikörpervermittelte Endotherapie zu entwickeln, wurde dieser Ansatz Anfang der 90er Jahre fast aufgegeben. Insbesondere die Herstellung rekombinanter (humaner) Antikörper, deren Fragmente und chemische Stabilisierung, dem Auffinden bindungsspezifischer und rezeptorbindender Peptide, haben jedoch in den letzten Jahren zu einer Vielzahl von neuen Anwendungen an Patienten und sogar zu arzneimittelrechtlichen Zulassungen geführt. Auch unterstützt durch die kombinatorische Chemie verläuft hier eine stürmische Entwicklung in den radiochemischen Laboratorien, deren Ergebnisse neuartige Behandlungsmethoden für Erkrankte sein werden.

Entsprechende Realisierungen setzen interdisziplinär angelegte grundlagenorientierte Entwicklungsarbeiten auf den Gebieten der Nuklearchemie, der Immunologie und der Biochemie voraus. Diese müssen sehr breit angelegt sein, da signifikante Struktur-Wirkungs-Beziehungen bisher fehlen und bereits kleine strukturelle Variationen zu grundlegenden Änderungen des Verteilungs- und Wirkverhaltens führen können.

4.4 Bewertung und Perspektiven

Radiotracermethoden werden an vielen deutschen Hochschulen in speziell eingerichteten Kontrollbereichen angewendet. Hinzu kommen alle größeren und mittleren Unternehmen der

forschenden Chemischen Industrie, vor allem im pharmazeutischen und Pflanzenschutzbereich, sowie zahlreiche eigenständige Auftragsinstitute, die entsprechende Untersuchungen für spezielle Fragestellungen durchführen. In den neuen Bundesländern sind wichtige Zentren, die auf einigen Gebieten des Radiotracerinsatzes internationalen Ruf hatten, im Rahmen der sicherheitstechnischen Überprüfungen und der Neustrukturierung ganz oder teilweise geschlossen worden, so daß das Forschungspotential und damit das verfügbare Know-how drastisch reduziert wurden.

Die besondere Bedeutung der Radiotracertechnik wird durch die Tatsache unterstrichen, daß aufgrund behördlicher Forderungen für die Zulassung von Pharmaka auch Studien mit Radionukliden am Menschen durchgeführt werden müssen. Neuartige, vielversprechende Ansätze für die Entwicklung von Radiopharmaka der Zukunft müssen nachhaltig stimuliert werden, um die Untersuchung und Aufklärung physiologischer Funktionen in der klinischen Praxis zu sichern und weiter zu verbessern. Nicht radioaktive Methoden gleicher Aussagekraft stehen nicht zur Verfügung. Die Weiterentwicklung und Anwendung von PET erfordert neben anspruchsvoller Logistik interdisziplinär arbeitende Teams aus Physikern, Chemikern, Pharmakologen, Physiologen und Medizinern. Zumindest für moderne Universitätskliniken erscheint ein PET-Zentrum, d.h. ein PET-Gerät plus Zyklotron und Radiochemie an einem Ort, unerlässlich.

Wie die Beispiele gezeigt haben, besitzt die Nuklearchemie in den Lebenswissenschaften bedeutendes, innovationsträchtiges Entwicklungspotential. Dies gilt sowohl für die Fortentwicklung klassischer Leitisotopenstrategien im Radioanalytikbereich, für die durch erweiterte arbeitsmedizinische, toxikologische und ökotoxikologische Fragestellungen über das bisherige Ausmaß hinausgehender Bedarf entsteht, wie auch für Entwicklungen mit diagnostischer und therapeutischer Zielsetzung. Dies wird gewährleistet durch das hohe Ausbildungsniveau der Mitarbeiter, ihre jahrzehntelangen Erfahrungen beim Umgang mit radioaktiven Stoffen im jeweiligen Arbeitsgebiet, durch technologisch hochentwickelte Einrichtungen sowie Fortbildung, Belehrung und unabhängige Überwachung.

Entsprechende Arbeiten setzen aber zum Teil ein Umdenken der Wissenschaftler in der Nuklearchemie voraus, weg von klassischen, anorganisch orientierten Forschungsrichtungen zu komplexchemisch und organisch orientierten Arbeiten mit enger Verknüpfung von Biochemie, Im-

munologie, Pharmazie und Medizin. In Deutschland besteht nicht nur großer Nachholbedarf in allen aufgeführten Bereichen, an verschiedenen Hochschulen werden sogar darüber hinaus zunehmend Kontrollbereiche aus Kostengründen geschlossen oder nur in geringerem Umfang genutzt. Dies bedeutet langfristig einen Rückgang in der Pflege und Fortentwicklung des Fachs Nuklearchemie und ein Austrocknen des Personal- und Innovationsreservoirs, aus dem Industrie und Behörden ihren Nachwuchs rekrutieren.

Aufgrund behördlicher Auflagen, durch verschärfte bzw. vermehrte Vorschriften sowie z.T. wegen der schwierigen Entsorgungslage langlebiger Radioisotope werden die Anwendungen der Radiotracer-technik in den Lebenswissenschaften trotz steigenden Bedarfs zunehmend erschwert. Dies kann in Deutschland mittel- und langfristig einen graduellen Rückgang in der Anwendung dieser Methodik mit entsprechenden Rücknahmen an Forschungskapazität bewirken, da Alternativen nicht zur Verfügung stehen und auch nicht erkennbar sind.

Zielorientierte, auf die Bedürfnisse der Lebenswissenschaften ausgerichtete Forschungsarbeiten einzelner Gruppen aus Hochschulen, Großforschungseinrichtungen bzw. der Industrie sind für sich allein kaum erfolgversprechend. Sinnvoll und wünschenswert ist statt dessen eine breit angelegte innovationsstarke Grundlagenforschung im Verbund mit neuartig organisierten und abgestimmten Aktivitäten von Forschungseinrichtungen, die auch auf die Nutzung von Spinoff-Effekten aus der Grundlagenforschung ausgerichtet sind und sich ihrerseits mit der anwendungsorientierten Industrieforschung ergänzen.

Anlage 5: Geowissenschaften und Kosmochemie

In Geo- und Kosmochemie sowie in Hydrologie und Klimatologie finden nuklearchemische Methoden breite Anwendung. Dabei werden radioanalytische Verfahren, insbesondere die Neutronenaktivierungsanalyse, zur Untersuchung von Elementzusammensetzungen vielfältig angewandt, natürliche und künstliche radioaktive Isotope als Tracer zur Beschreibung von Umweltprozessen benutzt und der radioaktive Zerfall langlebiger Radionuklide zu Datierungen herangezogen. Beim Nachweis langlebiger Radionuklide, der bei den Traceranwendungen und bei den Datierungsverfahren benötigt wird, wird zur Abtrennung der Radionuklide aus den zu untersuchenden Matrices und zur Präparation der gesuchten Kerne die ganze Palette nuklearchemischer Arbeitsmethoden benötigt, sei es in Verbindung mit klassischen Zähl- oder spektroskopischen Methoden, massenspektrometrischen Techniken oder mit modernsten Verfahren wie der Beschleunigermassenspektrometrie.

Die Forschungsthemen, die in Geowissenschaften und Kosmochemie mit nuklearchemischen Methoden bearbeitet werden, zeigen eine ungewöhnliche Vielfalt. Sie sind hervorragende Beispiele interdisziplinärer Forschung, in der die Nuklearchemie einen wesentlichen Beitrag leistet.

5.1 Radioanalytische Elementaranalyse

Radioanalytische Verfahren, insbesondere die instrumentelle (INAA) und radiochemische (RNAA) Neutronenaktivierungsanalyse, sind unverzichtbare Methoden bei der Elementaranalytik extraterrestrischer und terrestrischer Materie.

Bei der Analyse der Mondproben haben INAA und RNAA ihre außergewöhnlichen Möglichkeiten gezeigt. So gelang es bereits zu Beginn der 70er Jahre am Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut)/ Mainz mit einer Kombination instrumenteller und radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse bis zu 57 Elemente in 50 - 100 mg Proben der Mondoberfläche nachzuweisen. Dieses Verfahren wird heute vielfältig auch auf andere Materialien angewandt, so auf Meteorite und terrestrische Mineralien und Gesteine sowie auf Wasser, Aerosole und natürliche und anthropogene Sedimente.

Gerade bei diesen extrem kostbaren Proben hat sich die Aktivierungsanalyse als nahezu einzigartiges Analysenverfahren international durchgesetzt und dominiert auch heute die Analytik extraterrestrischer Materials. Die große Anzahl simultan bestimmbarer Elemente, die teilweise extrem

geringen Nachweisgrenzen, das weitgehende Fehlen von Matrixeffekten, die Blindwertfreiheit und die erreichbare Richtigkeit der Aktivierungsanalyse hat sie in der Kosmochemie zur Methode der Wahl gemacht und sie in den übrigen hier behandelten Gebieten breite Verwendung finden lassen.

5.2 Analytik langlebiger Radionuklide

Die Untersuchung natürlicher und künstlicher Radionuklide in extraterrestrischer und terrestrischer Materie ist ein ureigenes Feld nuklearchemischer Forschung. Ihr Vorkommen und ihr Verhalten in Meteoriten, Mondmaterial, kosmischem Staub sowie in Geo-, Hydro-, Atmos- und Biosphäre ist Thema in der Grundlagenforschung sowie in weiten Bereichen angewandter Forschung. Radionuklide können dabei entweder als Uhren für die Datierung von Ereignissen und Prozessen oder als natürliche und künstliche Tracer in Umweltprozessen genutzt werden. Dabei werden sowohl die Konzentrationen der Radionuklide als auch ihrer radioaktiven oder stabilen Zerfallsprodukte zur Informationsgewinnung genutzt.

Während die stabilen Zerfallsprodukte i.a. über konventionelle Massenspektrometrie nachgewiesen werden (klassische Datierungsmethoden der Geo- und Kosmochemie), können die Radionuklide selbst nur in Ausnahmefällen über nicht-nuklearchemische Methoden bestimmt werden. Da besonders die nicht primordialen, langlebigen Radionuklide mit Halbwertszeiten größer 10^3 a für die Anwendungen interessant sind, kommen klassische spektrometrische und Zählverfahren, selbst nach chemischer Abtrennung, schnell an ihre Grenzen. In Einzelfällen können Low-level Zählmethoden (^{14}C), spezielle Koinzidenztechniken (^{26}Al) oder neutronenaktivierungsanalytische Verfahren (^{53}Mn) den Nachweis ermöglichen.

Für eine Reihe langlebiger Radionuklide hat sich jedoch erst in jüngster Zeit mit der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) eine Möglichkeit zur relativ leichten, extrem empfindlichen und exakten Bestimmung eröffnet, die es heute erlaubt, die Potentiale der langlebigen Radionuklide in den verschiedenen Anwendungsbereichen vollständig zu nutzen. Die AMS ist wegen des Wegfalls von Interferenzen durch Molekülonen und wegen der hohen Selektivität den nuklearen Nachweisverfahren und der klassischen Massenspektrometrie daher weit überlegen. Mit Hilfe der AMS ist es heute z.B. möglich, nach chemischer Abtrennung 10^7 Kerne eines Radionuklids zu detektieren. Dabei können benachbarte Isotope mit Verhältnissen von 10^{-15} nachgewiesen werden. Die Ausschaltung isobarer Interferenzen ist dabei weitgehend Sache der chemischen

Abtrennung.

Wenn auch die AMS heute viele Anwendungen dominiert, haben die klassischen nuklearchemischen Verfahren der α -Spektrometrie und der Kernspurmethode ihre Bedeutung in Geo- und Kosmochemie behalten.

5.3 Vorkommen und Differenzierung der Elemente im Sonnensystem

Die Elementaranalyse bildet die Grundlage zur Bestimmung der solaren Häufigkeiten der Elemente in der Urmaterie unseres Sonnensystems durch die Untersuchung primitiver Meteorite und zur mineralogisch-chemischen Charakterisierung extraterrestrischer Materie von den verschiedenen Klassen primitiver und differenzierter Meteorite bis hin zu interplanetaren Staubteilchen. Diese Untersuchungen erlauben es, die Zusammensetzung und Entwicklung der Meteoriten-Mutterkörper abzuleiten und bilden die experimentelle Datenbasis für die Entwicklung von Modellen über Formation, Kondensation und Entwicklung des Sonnensystems.

Besonders erwähnenswert ist die Untersuchung spezieller Meteorite vom Typ Shergotty, Nakhla und Chassigny, die mit großer Wahrscheinlichkeit ihren Ursprung auf dem Mars haben. Neutronenaktivierungsanalytische Untersuchungen lieferten einen entscheidenden Beitrag dazu, die Herkunft dieser Meteoritenklasse zu belegen, indem die extreme Ähnlichkeit der Elementverteilungsmuster mit den bei amerikanischen und russischen Weltraummissionen mittels nuklearer Methoden, wie z.B. Rutherford-Backscattering, ermittelten Elementhäufigkeiten in der Marsoberfläche demonstriert werden konnte.

Elementaranalysen mit radiochemischen Methoden haben es außerdem erlaubt, den Anteil von aus Meteoriteneinschlägen stammenden Materialien in der Mondoberfläche von 3 -5 % über die Untersuchung der refraktären Elemente Re, Os, Ir zu bestimmen. Die neutronenaktivierungsanalytische Bestimmung dieser Elemente, speziell des Ir, in terrestrischen Materialien von der Kreide-Tertiär-Grenze gab erste Hinweise darauf, daß es sich hierbei um ein globales Ereignis handelt, bei dem extraterrestrisches Material als Quelle positiver Häufigkeitsanomalien dieser refraktären Elemente angesehen werden muß. Dabei handelt es sich hier um ein Ereignis, bei dem ein Meteorit vor 65 Ma im Golf von Mexiko einschlug. Aber nicht nur bei diesem spektakulären Ereignis bietet sich die Radioanalytik an, sie hat allgemein bei der Untersuchung terrestrischer Einschlagkrater zur Identifizierung der extraterrestrischen Herkunft gedient, wie z.B. beim Nörd-

linger-Ries-Krater. Diese Untersuchungen haben dazu geführt, daß heute Kollisionen mit extra-terrestrischen Körpern als wesentlich für die Entwicklung der Erdoberfläche angesehen werden.

Neben diesen spektakulären Anwendungen der Radioanalytik spielt die NAA eine bedeutende Rolle bei geochemischen Untersuchungen. Hier sei lediglich als Beispiel die Untersuchung des Erdmantels mit Hilfe der Elementmuster der Seltenen Erden (REE) in vulkanischen Auswürflingen genannt. Mittels INAA können bis zu 13 Seltene Erden und ihre wesentlichen Differenzierungsmerkmale „zerstörungsfrei“ analysiert werden. Die Differenzierungsmerkmale der REE erlauben es z.B., über sog. Europiumanomalien und Anreicherungen der leichteren oder schwereren REE Rückschlüsse auf die petrogenetische Geschichte der unteren Erdkruste und des oberen Erdmantels zu ziehen.

Neben den Anwendungen der Radioanalytik in der geo- und kosmochemischen Grundlagenforschung hat sie ihren festen Platz in technischen Anwendungen, bei der Prospektion, Exploration und Ausbeutung von Lagerstätten. Diese Anwendungen reichen von nuklearen Methoden bei der Untersuchung von Bohrlöchern zur Bestimmung der physikalischen und chemischen Eigenschaften der anstehenden Gesteinsschichten, über die radiochemische Elementanalytik der prospektierten oder geförderten Materialien bis zur Prozesskontrolle mit Hilfe der Radionuklidtechnik. Als Beispiele des dabei auftretenden fließenden Überganges zwischen allgemeiner Analytik und spezieller nuklearchemischer Methodik seien hier die Aktivierungsanalyse mit schnellen und thermischen Neutronen, die RFA mit Radionuklidanregung, die U-Bestimmung mittels verzögerter Neutronen und die Untersuchung von U-Mikroverteilungen mittels der Fission-Track-Methode zu nennen. Schließlich findet die NAA Anwendung in der Analyse von natürlichen und anthropogenen Aerosolen. Damit stellt sich die Verbindung her von nuklearchemisch-analytischer Forschung in der Geo- und Kosmochemie zur allgemeinen Umwelt-Analytik.

5.4 Radionuklide für Datierungen

In Geo- und Kosmochemie wird quantitative Zeitinformation überwiegend mittels der oben erwähnten klassischen massenspektrometrischen Verfahren aus den radioaktiven Uhren der primordialen Radionuklide gewonnen. Dabei sind neben den primordialen Radionukliden wie ^{40}K , ^{87}Rb , ^{147}Sm , ^{187}Re , ^{232}Th , ^{235}U und ^{238}U , deren Halbwertszeiten hinreichend lang sind, um die Zeit seit Abschluß des Sonnensystems vor 4.55 Ga zu überleben, auch kurzlebige Nuklide von Bedeutung. Sie können entweder als primordial ausgestorbene Radionuklide wie ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{53}Mn

und ^{129}I Auskunft über die Radioaktivität im proto-solaren Nebel und über die Formationszeiträume fester Materie im Sonnensystem geben. Als radiogene Tochternuklide wie ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{231}Pa , ^{230}Th und ^{234}U können kurzlebige Radionuklide zur Datierung auf Zeitskalen bis hinunter zu wenigen Jahrzehnten herangezogen werden.

Grundlage klassischer Datierungen sind die Gegebenheit abgeschlossener Systeme, in denen radioaktives Gleichgewicht herrscht. Besonderes Interesse findet in Geo- und Kosmochemie aber gerade auch radioaktive Ungleichgewichte, die es erlauben, neben Information über der Dauer von Zuständen auch Veränderungen zu datieren. Derartige Datierungen benötigen entweder Low-level α - oder γ -spektrometrische Analyseverfahren oder den Einsatz modernster massenspektrometrischer Verfahren wie der thermionischen Resonanz-Massenspektrometrie. So werden Sedimentations- und Ausfällvorgänge auf den verschiedensten Zeitskalen erfolgreich mit ^{210}Pb und mit U/Th-Ungleichgewichtsdatierungen beschrieben.

Zusätzlich zu primordialen und radiogenen Nukliden finden auch nukleogene, d.h. durch Kernreaktionen erzeugte Radionuklide, vielfältige Anwendungen für Datierungen. Als Beispiel mag hier die Untersuchung der natürlichen Kernreaktoren in Oklo/Gabun dienen. In uranreichen Linsen dieser Lagerstätte, in denen aufgrund besonderer geochemischer Gegebenheiten eine natürliche Kettenreaktion im Umfang eines Jahresabbrands eines modernen Leichtwasserreaktors ablief, konnte mittels massenspektrometrischer Analyse der Zerfallsprodukte der erzeugten Spalt- und Brutprodukte sowohl die Datierung als auch die vollständige Charakterisierung dieses geologisch außergewöhnlichen Ereignisses vorgenommen werden.

5.5 Kosmogene Radionuklide in extraterrestrischer Materie

Besonders weite Anwendung haben nukleogene Nuklide in der Geo- und Kosmochemie in Form sog. kosmogener Nuklide gefunden, die bei der Wechselwirkung der solaren und galaktischen kosmischen Teilchenstrahlung mit Materie erzeugt werden. In Mondproben und Meteoriten sind es neben den wenigen relativ kurzlebigen kosmogenen Radionukliden, wie z.B. ^3H , ^{22}Na und ^{44}Ti die langlebigen Nuklide ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{37}Ar , ^{39}Ar , ^{41}Ca , ^{53}Mn , ^{59}Ni , ^{60}Fe , ^{81}Kr und ^{129}I . Während ^{37}Ar , ^{39}Ar und ^{81}Kr zusammen mit den stabilen kosmogenen Edelgasisotopen massenspektrometrisch nachgewiesen werden, erfordern die übrigen nuklearchemische Analytik zu ihrer Bestimmung.

Kosmogene Nuklide in extraterrestrischer Materie ermöglichen es, die Intensität und spektrale Verteilung der solaren (SCR) und galaktischen (GCR) kosmischen Strahlung über Zeiträume von bis zu 10^9 a zu untersuchen. Aussagen über die Vergangenheit der kosmischen Strahlung und damit der Aktivität unserer Sonne können auf keine andere Art gewonnen werden. Desweiteren können kosmogene Nuklide in Mondproben und Meteoriten zur Aufklärung der Bestrahlungs- und Kollisionsgeschichte dieser Körper im Sonnensystem genutzt werden. Bei Meteoriten, die in der Antarktis und in verschiedenen heißen Wüsten (Sahara, Ténéré, Atakama, Nullarbor Plains) in großer Zahl gefunden werden, können kosmogene Nuklide zur Bestimmung ihrer terrestrischen Alter und zur Aufklärung von Sammelmechanismen, Eisbewegungen und Erosionsprozessen herangezogen werden.

Kosmogene Nuklide werden in Meteoriten seit Anfang der 60er Jahre untersucht. Besonders intensiv wurde die Beschäftigung mit kosmogenen Nukliden, als die amerikanischen Apollo und russischen Luna Missionen Mondmaterial zur Erde brachten. Mitte der 70er Jahre erlebten die Untersuchungen kosmogener Nuklide einen neuen Aufschwung durch die Einführung der Beschleunigermassenspektrometrie.

Heute verfügen wir über umfangreiches Datenmaterial, das die Produktion kosmogener Nuklide in der Mondoberfläche und in lunaren Oberflächengesteinen beschreibt. Für ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{53}Mn sowie für die stabilen kosmogenen Edelgasisotope existieren Tiefenprofile in lunaren Bohrkernen bis zu einer Tiefe von 450 g/cm^2 . Daneben gibt es eine Vielzahl von Einzelmessungen einzelner Mondsteine, die die Bestrahlungsgeschichte dieser individuellen Objekte auf der Mondoberfläche zu entschlüsseln und einzelne Einschlagereignisse zu datieren erlauben.

Für ^{59}Ni gibt es nur wenige Daten in Oberflächengesteinen, die aber von besonderer Bedeutung sind, da ^{59}Ni als einziges Nuklid zur Untersuchung solarer ^4He -Teilchen geeignet ist. Hier werden in der Zukunft bei Weiterentwicklung der Möglichkeiten und der Verfügbarkeit der AMS umfangreiche Untersuchungen erforderlich werden. Auch für ^{60}Fe und ^{129}I stehen die Untersuchungen erst am Anfang. Beim ^{53}Mn ist in jüngster Zeit die neutronenaktivierungsanalytische Bestimmung durch die AMS abgelöst worden. Dies wird wegen der einfacheren experimentellen Durchführung der AMS-Bestimmung auch den Umfang von ^{53}Mn -Untersuchungen erhöhen.

Die Interpretation der beobachteten Häufigkeiten kosmogener Nuklide wurde in den letzten Jah-

ren wesentlich vorangebracht durch Beschleunigerexperimente, bei denen die GCR-Bestrahlung von Meteoroiden, wie man die Meteorite vor ihrem Durchgang durch die Erdatmosphäre bezeichnet, durch die isotrope Bestrahlung künstlicher Meteoroiden erstmals realistisch simuliert wurde. Diese Experimente, bei denen die Elementarproduktionsraten kosmogener Nuklide direkt unter vollständig kontrollierten Bedingungen gemessen wurden, sind ohne nuklearchemische Arbeitsmethoden undenkbar.

Auf der Grundlage der Ergebnisse derartiger Simulationsexperimente konnten Modelle der Erzeugung kosmogener Nuklide durch die kosmische Strahlung entwickelt werden, die die Grundlage zur Interpretation der kosmogener Nuklide in extraterrestrischen Materialien bilden. Dabei ist eine zweite, wesentliche Voraussetzung für die Entwicklung solcher Modelle die Verfügbarkeit zuverlässiger Wirkungsquerschnittsdaten, die wiederum in Beschleunigerexperimenten und anschließenden nuklearchemischen Untersuchungen gemessen werden müssen. Für die Produktion kosmochemisch relevanter Nuklide durch Protonen-induzierte Kernreaktionen steht inzwischen eine umfangreiche Datenbank zur Verfügung, jedoch fehlen die entsprechenden nuklearen Daten nahezu vollständig für die Neutronen-induzierten Kernreaktionen.

Die Analyse der lunaren Tiefenprofile von ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca und ^{53}Mn erlaubt die Bestimmung des mittleren GCR-Spektrums während der letzten 10 Ma. Der Vergleich der fünf Nuklide, deren Halbwertszeiten zwischen 720 ka und 3.6 Ma liegen, belegt, daß die mittleren GCR-Spektren und damit auch die solare Aktivität innerhalb von 10% während der letzten 10 Ma konstant geblieben ist. Die Analyse der ^{14}C - und ^{129}I -Tiefenprofile ist noch nicht befriedigend. Hier muß mit Hilfe der nuklearchemischen Analytik noch intensiv gearbeitet werden. Danach wird es dann möglich sein, auch mittlere Spektren für Zeitskalen zwischen 5 Ka und 50 Ma anzugeben.

Zur Untersuchung der Wechselwirkung der solaren Strahlung mit Oberflächensteinen des Mondes werden wegen der geringen Eindringtiefe solarer Teilchen besondere Anforderungen an die Analytik gestellt. SCR-Wechselwirkungen sind wegen der vergleichsweise geringen Energien solarer Teilchen ($< 300 \text{ MeV/A}$) auf die äußersten 5 cm der Oberflächen beschränkt. Detaillierte Tiefenprofile dieser SCR-produzierten Nuklide erlauben es, die solaren Spektren im Detail zu bestimmen. Hier sind noch umfangreiche Arbeiten zu leisten.

Von besonderem Interesse wäre die Messung von SCR-Effekten in Meteoriten, aus denen Infor-

mationen über die solaren Spektren in anderen Umlaufbahnen um die Sonne gewonnen werden könnten. Jedoch werden SCR-Effekte in Meteoriten durch den Verlust der Oberfläche beim Durchgang durch die Erdatmosphäre meist gelöscht. SCR-Effekte können nur in kleinen Meteoriten und in Oberflächenproben größerer Meteorite, die durch Zufall von der Ablation verschont blieben, gefunden werden. Heute gibt es erste Messungen von SCR-Effekten in Meteoriten, deren Interpretation aber noch weitgehend offen ist. Hier wird sich in der Zukunft ein wichtiges Forschungsgebiet eröffnen.

In Meteoriten lassen sich analoge Schlüsse für die GCR-Spektren in den Meteoritenorbits ziehen. Auch hier zeigt sich für die Nuklide ^{10}Be , ^{26}Al und ^{53}Mn die an Mondproben beobachtete Konstanz, wobei allerdings im Mittel ein weicheres GCR-Spektrum als Folge geringerer Abschirmung durch das solare Magnetfeld in den Meteoritenorbits zu verzeichnen ist. Eine umfassende, befriedigende Modellierung aller Radionuklide steht noch aus.

Erst in jüngster Zeit wurden erstmalig die kosmogenen Kerne ^{10}Be und ^{26}Al in interstellarem Staub und Mikrometeoriten untersucht. Dabei wurden mit Hilfe der Beschleunigermassenspektrometrie Aktivitäten von 10 - 100 dpm/kg in 0,1 mg-Objekten nachgewiesen, ein überzeugender Nachweis für die Leistungsfähigkeit dieses Analysenverfahrens. Eine erste Analyse der Ergebnisse zeigt, daß diese Teilchen äußerst komplexe Bestrahlungsbedingungen erfahren haben. Die Bestrahlungsszenarios, die zur Erklärung der beobachteten Häufigkeiten und Nuklidverhältnisse herangezogen werden müssen, reichen von der überwiegenden Bestrahlung durch die solare Strahlung als Mikrometer-große Teilchen bis hin zu GCR-Bestrahlungsbedingungen in Oberflächenschichten von Meteoriten und Asteroiden, aus denen sie durch Kollisions- und Erosionsprozesse freigesetzt wurden.

5.6 Kosmogene Radionuklide in terrestrischer Materie

In der Geochemie finden kosmogene Nuklide ebenfalls verbreitete Anwendungen. Da die überwiegenden Wechselwirkungen der solaren und galaktischen kosmischen Strahlung mit der Erdatmosphäre und damit mit nur wenigen Targetelementen geschieht, ist die Anzahl relevanter kosmogener Nuklide kleiner als in extraterrestrischen Materialien. Die wichtigsten Nuklide sind ^3H , ^7Be , ^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl und ^{129}I und eventuell in der Zukunft ^{32}Si und ^{135}Cs . Die überwiegend in der Stratosphäre erzeugten Nuklide werden im Falle von ^3H , ^{14}C und ^{36}Cl über die natürlichen Kreisprozesse des Wasserstoffs, Kohlenstoffs und Chlors, die Be-Isotope überwiegend durch

Sedimentation und Fall- und Wash-out in Hydrosphäre, Biosphäre und Geosphäre als natürliche Tracer eingetragen. Sie können zu Untersuchungen vielfältiger natürlicher Prozesse genutzt werden.

Jedoch werden kosmogene Nuklide auch in Oberflächengesteinen erzeugt und zur Datierung von Freilegungsaltern, Erosionsraten und Gebirgshebungen in der Geochemie (speziell in der Antarktisforschung) genutzt. Hier finden die kosmogenen Radionuklide ^{10}Be , ^{26}Al und ^{36}Cl , in der Zukunft eventuell ^{41}Ca , sowie die stabilen Nuklide ^3He und ^{21}Ne Anwendung.

Die Modellierung von Produktionsraten kosmogener Nuklide in der Atmosphäre und in terrestrischen Oberflächengesteinen ist noch weitgehend empirisch und erfordert zum physikalischen und chemischen Verständnis noch in großem Umfang nuklearchemische Grundlagenforschung bei der Messung der entsprechenden Wirkungsquerschnitte und der Durchführung von Simulationsexperimenten. Obwohl die Modellierung der Nukleonenspektren in der Atmosphäre und der Oberfläche der Lithospäre durch neueste Arbeiten weitgehend gelöst ist, werden zuverlässige Modellrechnungen der Produktionsraten der kosmogenen Nuklide noch durch einen extremen Mangel geeigneter Wirkungsquerschnitte behindert. Dabei werden vor allem Wirkungsquerschnitte neutroneninduzierter Reaktionen bis 200 MeV und allgemein von Spallationsreaktionen an Krypton, Argon und Xenon benötigt.

Unter den Anwendungen kosmogener Nuklide ist die von Libby entwickelte ^{14}C -Datierungsmethode sicherlich die bekannteste. Auch bei ihr wurden die tradierten Zählverfahren weitgehend durch AMS abgelöst. Spektakuläre Anwendungen der jüngsten Zeit sind die Datierung des Turiner Leichentuchs, der Kumran-Schriftrollen und des „Ötzi“, des Ötztaler Gletscherleichenams. Alle diese Datierungen, bei denen nur geringste Probenmengen zur Verfügung standen, wurden mittels AMS durchgeführt. Heutige ^{14}C -Datierungen erfordern eine Genauigkeit der ^{14}C -Bestimmung von 5×10^{-3} , die nur die AMS bietet. Um diese Genauigkeit ausnutzen zu können, wird aber die Frage nach den notwendigen Korrekturen der ^{14}C -Daten bzgl. der Variabilität der Produktionsrate als Folge der Schwankungen der solaren Aktivität wichtig. Hier haben AMS-Messungen inzwischen einen entscheidenden Beitrag geliefert, indem die ^{14}C -Produktionsraten in datierten Baumringen bis 9000 v. Chr. bestimmt wurden. Gegenwärtig wird daran gearbeitet, die Korrekturen weiter zurück zu vervollständigen, indem ^{14}C -Analysen in Grönland-Eisbohrkernen und an organischen Materialien aus datierbaren Sedimentschichten spe-

zieller Binnenseen durchgeführt werden. Weitere Versuche zur Kalibrierung der ^{14}C -Methode kombinieren U/Th-Ungleichgewichtsdatierungen mit ^{14}C - Analysen von Korallen.

In der Geochemie kann ^{36}Cl zur Datierung und Bestimmung von Bildungsraten von sedimentären Formationen herangezogen werden. Der Eintrag von ^{36}Cl -freiem Chlor aus vulkanischen Emissionen und sein Austausch mit atmosphärischem ^{36}Cl -markiertem Chlor wird in der Geochemie zur Festlegung von Zeitskalen bei der Bildung vulkanischer Ejekta genutzt. Auch bei der Untersuchung von Erdöllagerstätten findet ^{36}Cl Anwendung zur Datierung von Brynes.

^{36}Cl ist von besonderer Bedeutung in Hydrologie und Klimatologie. Dabei können je nach Problemstellung anthropogenes oder kosmogenes ^{36}Cl mit den jeweiligen unterschiedlichen zeitlichen Verteilungsmustern genutzt werden. Es wird als Tracer für langsame Prozesse genutzt, wie z.B. das Fließverhalten und die Datierung von Grund- und Tiefenwässern, Infiltrationsraten von Wasser in trockene Böden und die Bildung von Grundwasserreservoirs. Es ermöglicht realistische Modellierung des Wassertransports von Schadstoffen in der Umgebung von Deponien für radioaktive und stabile Abfallstoffe.

In der Klimatologie wird kosmogenes ^{36}Cl zusammen mit ^{10}Be und ^{14}C bei der Untersuchung von Eisbohrkernen, Tiefseesedimenten, Lössschichten und sedimentären Gesteinen zur Beschreibung des solaren Einflusses auf Klimaschwankungen herangezogen. ^{36}Cl entsteht in der Atmosphäre als Spallationsprodukt aus Argon, während es in der Oberfläche der Lithosphäre zur Abschätzung des thermischen Neutronenflusses und damit der Intensität der galaktischen kosmischen Strahlung dienen kann.

^{129}I kann eine ähnliche Rolle wie ^{36}Cl spielen, für viele Untersuchungen ist es wegen der längeren Halbwertszeit sogar dem ^{36}Cl vorzuziehen. Bisher war jedoch die Analyse von ^{129}I über RNAA zu aufwendig, um dieses Isotop in großem Umfang einzusetzen. Die sich derzeit stürmisch entwickelnden Möglichkeiten der AMS, die die ^{129}I -Analytik durch geringere Kosten, größere Schnelligkeit und den Wegfall der Handhabung hochradioaktiver Proben in radiochemischen Speziallaboratorien wesentlich erleichtern werden, machen ^{129}I zu einem der wichtigsten radioaktiven Umwelttracer der näheren Zukunft. Nuklearchemische Verfahren zur Abtrennung des ^{129}I aus den Probenmaterialien werden aber weiterhin die unabdingbare Grundlage dieser Analytik darstellen.

5.7 Radionuklide als Tracer für Umweltprozesse

Die kosmogenen Radionuklide ^{10}Be , ^{14}C und ^{36}Cl haben umfangreiche Anwendungen bei der Untersuchung von Tiefseesedimenten und Eisbohrkernen gefunden. Diese Untersuchungen sind von höchstem Interesse für die gegenwärtige Klimadiskussion, da derartige Bohrkerne in den Isotopenverhältnissen verschiedener Elemente eine Dokumentation des Klimas der Vergangenheit enthalten. Den kosmogenen Radionukliden kommt dabei die besondere Rolle zu, die Aktivität der solaren und galaktischen Strahlung wiederzugeben. Wenn die Aktivitäten dieser Nuklide in einer Probe auch durch die Umsetzung in den verschiedenen Kompartimenten unserer Umwelt beeinflusst worden sind, so lassen sie doch Rückschlüsse auf die solare Aktivität in der Vergangenheit zu.

In der terrestrischen Anwendung langlebiger Radionuklide für Datierungen und als Tracer für natürliche Prozesse gibt es neben den kosmogenen Nukliden weitere anthropogene Quellen von Radioaktivität. Spalt- und Aktivierungsprodukte wurden in großem Umfang durch die oberirdischen Kernwaffenversuche der 50er und 60er Jahre freigesetzt. Seit der zweiten Hälfte der 60er Jahre kamen hierzu lediglich Radionuklide aus vereinzelt atmosphärischen Kernwaffenexplosionen und in begrenztem Umfang aus unterirdischen Kernwaffentests, so daß man in Bezug auf die überwiegende Menge der freigesetzten Radionuklide von einem zeitlich relativ wohldefinierten Tracer-Peak sprechen kann. Die Nuklide ^3H , ^{10}Be , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{90}Sr , ^{137}Cs und ^{129}I sind hier zu nennen. Sie können in der Natur zu Datierungen von Eisbildung und Sedimentationsprozessen sowie als natürliche Tracer genutzt werden.

Der Unfall in der Reaktoranlage von Tschernobyl hat einen weiteren kurzzeitigen Emissionspeak erzeugt, der großflächig überwiegend die nördliche Hemisphäre betrifft. Dabei sind bei den Radionukliden aus oberirdischen Kernwaffenversuchen und aus dem Tschernobyl-Unfall unterschiedliche Freisetzungs- und Verbreitungsmechanismen zu unterscheiden. Bei den Testexplosionen wurden Radionuklide über stratosphärischen Transport und anschließenden Fall-out global verteilt, während im Falle von Tschernobyl turbulenter atmosphärischer Transport mit lokal extrem unterschiedlichen Fall- und Wash-out-Bedingungen zu starken Inhomogenitäten des Nuklideintrags führten. Diese Effekte müssen bei der Interpretation der Nukliddaten und ihrer Anwendungen berücksichtigt werden.

Letztlich müssen als Quellen anthropogener Radionuklide Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen und als Folge unsachgemäßer Entsorgung nuklearer Abfälle in der Hydrosphäre genannt werden.

Kosmogenes ^{14}C und anthropogene Radionuklide in Meerwasser werden als Tracer für Meeresströmungen, für Stofftransport und zur Bestimmung von Austauschzeiten zwischen den verschiedenen maritimen Kompartimenten genutzt. Ein großer Teil der heutigen Kenntnis über großräumige Mischprozesse in den Ozeanen stammt aus der Untersuchung kosmogenen ^{14}C (Datierung von Tiefenwässern) und aus der Beobachtung radiogeochemischer Ungleichgewichte zwischen Zerfallsprodukten der Uran- und Thorium-Zerfallsreihen. Bomben- ^3H wurde vor allem auf der nördlichen Hemisphäre in der Form von HTO den Ozeanen als anthropogener Träger beigegeben. Es wurde genutzt, um die Geschwindigkeit des Eintrags von Oberflächenwässern und darin gelösten Schadstoffen in die Tiefsee quantitativ zu erfassen. Heute, nachdem das Bomben- ^3H weitgehend zerfallen ist, wird versucht, diesen Tracer weiter über sein stabiles Zerfallsprodukt ^3He zu nutzen. Weitere Kandidaten, die als Tracer derartiger Prozesse dienen können, sind ^{81}Kr zur Untersuchung von Austauschprozessen zwischen Luft und See, sowie ^{129}I und ^{237}Np .

Zur Beurteilung des Schadstoffeintrages in die Meere ist es notwendig, Meeressedimente zu datieren, und so den Vergleich vorindustrieller und heutiger Elementbilanzierungen durchführen zu können. Hier können Datierungen mit ^{210}Pb ($T = 22.4$ a) genutzt werden, um die Geschichte der anthropogenen Meeresbelastung zu untersuchen. Da der Waffenfallout einen zeitlich eng begrenzten Aktivitäts-Peak bildet, kann mit ^{137}Cs aus den Kernwaffenversuchen in diesem Zusammenhang eine Bestätigung der ^{210}Pb -Datierungen gewonnen werden, da der ^{137}Cs -Peak es erlaubt, die bio-organischen Störungen der Sedimentationsschichten zu beschreiben.

Neben den langlebigen Tracern werden kurzlebige Radionuklide in gezieltem Einsatz benutzt, um den Eintrag von Schadstoffen in küstennahe Meeresregionen zu erfassen. Beispiele hierfür sind ^{198}Au zur Messung des Materialeintrages aus Kläranlagen. Hier nutzt man aus, daß anionisches Gold sich in Lösung irreversibel in metallisches Gold umwandelt und feste Schwebstoffe damit unabhängig von der Teilchengröße markiert. Mit dieser Methode können wassergetragene Schadstoffe von der Emission über bis zu einer Woche bis zum Ort ihrer Deposition am Meeresboden verfolgt werden. Andere Methoden nutzen ^{192}Ir , um Sandkörner zu markieren und den küstennahen Stofftransport zu untersuchen.

5.8 Seltene nukleare Prozesse

Bei der Untersuchung seltener Zerfallsprozesse können nuklearchemische Methoden - bisweilen in Verbindung mit geochemischen Methoden - zur Charakterisierung der nuklearen Eigenschaften herangezogen werden. Hier sei die heute aktuelle Methodik der Halbwertszeitbestimmung langlebiger Radionuklide mit Hilfe der AMS in erster Linie erwähnt. Aber auch beim Nachweis seltener Zerfallsarten, wie dem doppelten β -Zerfall und der spontanen Emission schwerer Kerne (z.B. ^{14}C) konnten nuklearchemische Untersuchungen erste Nachweise liefern. Sie stellen unabhängige Nachweisverfahren parallel zu den kernphysikalisch instrumentellen Methoden dar.

5.9 Bewertung und Perspektiven

Nuklearchemische Arbeitsmethoden sind grundlegende Techniken in Geowissenschaften und Kosmochemie, deren Einsatz auch in der absehbaren Zukunft unverzichtbar sein wird. Die Nuklearchemie kann hier in einer Vielfalt von Forschungsthemen aus der Grundlagen- und angewandten Forschung ihren Beitrag leisten. Für den Nuklearchemiker bedeutet dies, daß er die Bereitschaft zu interdisziplinärer Zusammenarbeit sowie fächerübergreifende wissenschaftliche Interessen besitzen muß.

Die Förderung wissenschaftlicher Arbeit erfolgt hier nicht im Sinne von spezieller Förderung der Nuklearchemie, sondern aus der jeweiligen Anwendung heraus. So haben in der Vergangenheit nuklearchemische Arbeiten vielfältige Förderung durch die DFG sowohl im Normalverfahren als auch in Schwerpunktprogrammen und in der Einrichtung von Graduierten-Kollegs erhalten. Wegen der Vielfalt der Anwendungen eröffnet sich darüber hinaus ein breites Spektrum der Fördermöglichkeiten, sofern der Nuklearchemiker bereit ist, über die Grenzen seines Faches hinaus sich interdisziplinär zu engagieren.

Methodische Innovationen in Geo- und Kosmochemie kamen vielfach aus dem Bereich der Nuklearchemie. Sie wurden nach erfolgreicher Demonstration und ersten Anwendungen durch Nuklearchemiker zum festen Bestandteil dieser Anwendungsfächer.

Anlage 6: Radioindikatoren in der Technik

Die verschiedensten radioanalytischen Verfahren haben als Radioindikatoren in der Technik vielfältige Anwendungen gefunden. Da sie in Anlage 3 ausführlich besprochen wurden, sollen hier nur einige Technik-spezifische Punkte kurz angesprochen, aber eine eingehendere Bewertung der Vor- und Nachteile der Anwendung von Radioindikatoren in der Technik gegeben werden.

Radioindikatoren in der herkömmlichen Definition sind Radioisotope, die zur Untersuchung von Materialverhalten bzw. zur Überwachung und Steuerung von technischen Prozessen eingesetzt und durch ihre Strahlenemission nachgewiesen werden. Hierzu werden sie in eine geeignete Form, z.B. eine bestimmte chemische Verbindung, überführt. Klassische Anwendungsbeispiele sind die Bestimmung der Löslichkeit schwerlöslicher Verbindungen durch Hevesy und Paneth sowie das Studium der Veränderung von Festkörpereigenschaften mit der Emaniermethode nach Hahn und Mitarbeitern.

Zu den Radioindikatoren im erweiterten Sinn sind auch andere Strahlenquellen wie Röntgenröhren und Teilchenbeschleuniger sowie inaktive Elemente zu zählen, die im Verlauf oder nach Beendigung des Experiments aktiviert werden („aktivierbare Tracer“).

Für die frühen Anwendungen standen nur natürliche Strahlenquellen wie Radiokalium oder Uran und Thorium und deren Zerfallsprodukte zur Verfügung. Auch waren die Leistungsdaten der Strahlungsmeßgeräte vergleichsweise bescheiden. Später, etwa ab den fünfziger Jahren waren zunehmend künstlich erzeugte Radionuklide verfügbar. Die Radioisotope wurden in Kernreaktoren, Beschleunigeranlagen oder Nuklidgeneratoren hergestellt. Heute steht ein weites Spektrum an Strahlenquellen mit unterschiedlichen Strahlenarten und -energien und chemischen Eigenschaften sowie Halbwertszeiten von Sekunden bis zu vielen Jahren in nahezu beliebigen Aktivitäten zur Verfügung. Parallel dazu wurde die Strahlungsmeßtechnik erheblich verfeinert und verbessert, so daß heute mit vergleichsweise wenig Aufwand auch sehr geringe Radioaktivitäten sicher erfaßt werden können. Mit dieser Entwicklung hat in den sechziger Jahren der Einsatz von Radionukliden zur Verfolgung und Optimierung technischer Prozesse eine schnelle Aufwärtsentwicklung erlebt. Mit den damals an vielen Stellen durchgeführten Untersuchungen und Anwendungen wurde demonstriert, daß Radioindikatoren ein für viele Aufgaben wertvolles und auch ökonomisch vorteilhaftes Hilfsmittel darstellen.

Radioindikatoren können als externe Strahlenquellen wie bei der Röntgenradiografie oder materialintern, z.B. als inhärente oder additive Tracernuklide eingesetzt werden. Radioindikatoren können Materialstrukturen im Makro- und Mikrobereich bis hin zum molekularen bzw. atomaren Maßstab erfassen. Beispiele sind für den Makrobereich die Fehlererkennung durch Röntgenradiografie, für den Mikrobereich die hochauflösende Mikrotomografie, während bei der Radioanalytik atomare Bereiche erfaßt werden.

Bei der Anwendung von Radioindikatoren können drei Wechselwirkungsmechanismen der Strahlung mit Materie zur Signalebewertung genutzt werden: Primäre und sekundäre Strahlenemission, -absorption und -streuung.

Zwei besonders überzeugende Argumente für die Verwendung von Radioindikatoren sind folgende:

- sie ermöglichen häufig eine nicht-invasive („zerstörungsfreie“) Untersuchung, und
- sie sind meist in Echtzeit, also im laufenden Betrieb oder Experiment einsetzbar.

Die Verwendung eines gammastrahlenden Radiotracers ermöglicht eine berührungsfreie Messung auch unter aggressiven Randbedingungen (z.B. extreme Temperaturen), wobei die Meßdaten sofort zur Aggregatsteuerung zur Verfügung stehen.

Das Anwendungsspektrum der Radioindikatoren kann in die drei Bereiche systemorientierter, objektorientierter und materialorientierter Anwendungen unterteilt werden, die nachstehend kurz diskutiert werden.

6.1 Systemorientierte Anwendungen

Hier werden beispielsweise industrielle Produktions- oder Verarbeitungsprozesse mit Hilfe von Radioindikatoren verfolgt bzw. gesteuert. Dies kann durch radioaktive Tracernuklide geschehen, die in geeigneter Form in den Prozess eingebracht werden und ihn teilweise oder ganz in der Art der entsprechenden Prozesskomponenten begleiten. Der Vorgang kann durch Strahlungsmessung verfolgt werden. Wenn das in Echtzeit während des normalen Betriebs geschieht, können die Meßdaten in günstigen Fällen zur Prozesssteuerung verwendet werden.

Als Anwendungsbeispiele wären hier hauptsächlich Untersuchung von bewegten Systemen (Pro-

zesskinetik) zu nennen: Untersuchung von Transportprozessen und Mischungsvorgängen, Korrosions- und Verschleißvorgängen, Bestimmung von Durchflußmengen und Stömungsgeschwindigkeiten. Auf medizinische Anwendungen sei außerdem verwiesen.

6.2 Objektorientierte Anwendungen

In der objektorientierten Anwendung werden vorwiegend statische Eigenschaften untersucht. Das Spektrum der Objekte erstreckt sich von elektronischen Bauteilen über Halbzeuge wie Bleche, Profile, Drähte, Folien etc. und alltägliche Gegenstände wie Haushaltsfolien oder Zigaretten bis zu Flüssigkeitstanks und Reaktorgefäßen.

Die angewandten Verfahren sind hier die verschiedenen Varianten der Radiografie, Computertomografie sowie Durchstrahlungs- und Rückstreumessungen. Die Prüfziele sind unter anderem: Untersuchung von Objektgeometrien, Oberflächeneigenschaften wie Topografie, Dichtheitsprüfung, Messung von mechanischen Größen wie Wanddicken oder Hohlraumtiefen, Untersuchung der Materialhomogenität sowie Fehlererkennung, wie z.B. Ungänzen in Schweißnähten.

6.3 Materialorientierte Anwendungen

Bei den materialorientierten Anwendungen der Radioindikatoren dominiert die Radioanalytik, allem voran die Aktivierungsanalyse. Obwohl alle Versionen der Aktivierungsanalyse etwa gleichzeitig entwickelt wurden, steht bis heute die Aktivierung mit Reaktorneutronen im Vordergrund. Die Neutronenaktivierungsanalyse ist trotz einer dramatischen Entwicklung nichtnuklearer Analysemethoden in jüngerer Zeit eine der empfindlichsten Methoden, soweit es um den Nachweis von Elementen geht. Heutzutage stehen neben Kernreaktoren noch Neutronengeneratoren und Isotopenquellen für die Neutronenaktivierungsanalyse zur Verfügung, darüber hinaus verschiedene Teilchenbeschleunigertypen für die Aktivierungsanalyse mit Photonen und geladenen Teilchen. Mit Hilfe dieser Aktivierungsquellen kann nahezu das gesamte Periodensystem der Elemente im Makro- und Spurenbereich analytisch erfaßt werden. Ein besonderer Vorteil dieser Methode ist die Freiheit von Blindwerten in den meisten Anwendungsfällen. Überdies können Analysen häufig zerstörungsfrei ausgeführt werden.

Neben der Radioanalyse können mit Hilfe von Radioindikatoren noch andere materialbezogene Untersuchungen ausgeführt werden, z.B. Dichtemessungen durch Strahlenabsorption, Bestimmung von chemischen Zuständen in Festkörpern durch Mössbauerspektroskopie, Untersuchun-

gen von Selbstdiffusionsvorgängen in Festkörpern sowie Untersuchungen der Elektronen- oder Kristallstruktur in Festkörpern durch Spektroskopie der Positronenvernichtungsstrahlung. Einen wichtigen Beitrag leisten Radioindikatoren bei der Untersuchung von Oberflächeneigenschaften bei Dekontaminations- und Reinigungsprozessen sowie beim Studium chemischer Reaktionskinetik.

Schließlich seien noch weitere Anwendungen von ionisierender Strahlung erwähnt, bei denen die Strahlung nicht zur Indikation, sondern als funktionelle Prozesskomponente verwendet wird, nämlich die strahlenchemischen (radiolytischen) Methoden wie Strahlensterilisation, Radiopolymerisation, strahleninduzierte Genmodifikation.

6.4 Bewertung und Perspektiven

Vor dem Hintergrund der Vielzahl der verfügbaren Strahlenquellen einerseits und der hochentwickelten Strahlenmeßtechnik andererseits sind die sachlichen Voraussetzungen zum vielfältigen Einsatz der Radioindikatoren heute besser denn je. Mit Hilfe moderner rechnergestützter Auswertemethoden können zeit- und orts aufgelöste Messungen mit hoher Leistung bei relativ geringem Aufwand an Gerätschaft und Kosten ausgeführt werden.

Anhand dieses und vieler anderer Beispiele können die speziellen Vorteile der Verwendung von Radioindikatoren wie folgt zusammengefaßt werden:

- In den meisten Anwendungsfällen ersparen Radioindikatoren in bedeutendem Maß Zeit und Arbeitsaufwand im Vergleich zu konventionellen Meßmethoden. Das ist besonders bei der Prozessüberwachung und -kontrolle ersichtlich, sowie bei Strahlenverfahren innerhalb der zerstörungsfreien Prüfung, wie z.B. der Gammadefektoskopie.
- In vielen Fällen erzielen radioindikatorgestützte Verfahren deutlich höhere Empfindlichkeiten und Ergebnisqualitäten (Richtigkeit, Reproduzierbarkeit) als herkömmliche Verfahren. Das wird z.B. besonders bei Abrieb- und Verschleißuntersuchungen an Oberflächen mit Hilfe von Tracernukliden deutlich. Hier muß allerdings angemerkt werden, daß in einigen Fällen (z.B. Abriebmessungen an Automobilkomponenten) nichtaktive optische Verfahren wohl konkurrieren können.

- Im analytischen Bereich gehören aktivitätsgestützte Verfahren zu denen mit den niedrigsten Erfassungsgrenzen und der besten Selektivität. Wohl sind diesbezüglich in neuerer Zeit auch andere Methoden konkurrenzfähig (z.B. induktiv gekoppelte Plasma-Emissionsspektrometrie), jedoch hat die Radioanalytik in Form der Aktivierungsanalyse diesen gegenüber den Vorteil, daß sie meist ohne chemische Vor- und Nachbereitung des Analysenguts durchführbar ist und so bei gleicher oder größerer Empfindlichkeit weniger störungsanfällig ist.
- Strahlengestützte Untersuchungen können häufig nicht-invasiv, in günstigen Fällen zerstörungsfrei oder sogar berührungsfrei durchgeführt werden, was eines der überzeugendsten Argumente für deren Anwendung ist. Das trifft besonders bei objektorientierten Anwendungen zu, wie zerstörungsfreie Prüfung durch Röntgen- oder Gammadiagnostik, Computertomografie, Positronenvernichtungsstudien und mit gewissen Einschränkungen auch analytische Anwendungen wie Röntgenfluoreszenz- und Aktivierungsanalyse. In günstigen Fällen können die untersuchten Objekte weiterhin verwendet werden, oder sie stehen zu weiteren Untersuchungen zur Verfügung.
- Radionuklide können gezielt ausgewählt werden, so daß die Meßaufgabe und die spätere Entsorgung günstig (Lebensdauer, Art und Energie der Strahlenemission, Aktivität, chemische Form etc.) durchgeführt werden können. Beispielhaft ist hier der ^{99m}Tc - Generator; er vereinigt den Vorteil einer längeren Verfügbarkeit mit einer vergleichsweise kurzen Lebensdauer des im Feldversuch eingesetzten Radioisotops, so daß keine sonderliche Kontaminationsgefahr besteht. Es ist durchweg bei allen Anwendungen von Radioisotopen empfehlenswert, solche zu verwenden, die eine für die Durchführung des Experiments genügend lange Lebensdauer besitzt, die andererseits so kurz ist, daß die Indikatorsubstanz nach angemessen kurzer Zeit wie normaler Abfallstoff behandelt werden kann.

Es sind an dieser Stelle jedoch auch unbestreitbare Nachteile der Radioindikatoren zu erwähnen. Die Arbeit mit radioaktiver Strahlung erfordert ein hohes Maß an Sicherheitsvorkehrungen, die sich zuweilen als Hindernis erweisen. Ob diese nun im einzelnen sachlich in ihrer restriktiven Form gerechtfertigt sind, sei an dieser Stelle dahingestellt; kurz ausgedrückt: sie müssen eingehalten und mithin in die Gesamtplanung des Experiments einbezogen werden. Das bedeutet in manchen Fällen erhöhte Kosten aufgrund der notwendigen Strahlenschutzmaßnahmen wie Ab-

schirmung, eingeschränkter Arbeitsbereich durch Abstandshaltung und anderes. Höhere langlebige Aktivitäten dürfen im allgemeinen ohnehin nur in radiochemischen Laboratorien verwendet werden, die vergleichsweise hohe Anschaffungs- und Betriebskosten verursachen. Alle diese und weitere Faktoren müssen in die Kosten - Nutzen - Kalkulation einbezogen werden, und man wird Radioindikatoren nur dann anwenden, wenn die oben angeführten Vorteile überwiegen.

Die Anwendung der Radioindikatoren sollte nicht isoliert erfolgen; eine Anwendung im Kontext mit anderen, auch nichtnuklearen Methoden ist anzustreben. Ein sehr anschauliches Beispiel ist folgendes: Bei der zerstörungsfreien Bauteilprüfung sind häufig Materialrisse nachzuweisen, deren Geometrie sehr unterschiedlich sein kann. Durch den unterschiedlichen Detektionsmechanismus können nun Risse, die parallel zur Oberfläche verlaufen, leicht durch Röntgenradiografie, dagegen solche mit senkrechtem Verlauf eher mit Ultraschallmessung lokalisiert werden. So wird eine vollständige Fehlerfindung - wenn überhaupt - nur mit Hilfe beider Methoden möglich sein.

Ein wichtiger Unterschied zwischen den herkömmlichen Meßverfahren wie der genannten Ultraschallprüfung und den radioindikatorgestützten ist, daß die letzteren im ganzen erheblich höheren Einschränkungen unterworfen sind. Das ist ausschließlich auf das unzweifelhaft höhere Gefahrenpotential der Strahlung zurückzuführen. Diesen Nachteil kann man relativ leicht mit den oben erwähnten Versuchsstrategien vermeiden, d.h. durch Verwendung relativ kurzlebiger Nuklide. Zudem kann man in zahlreichen Fällen - wahrscheinlich mehr als bislang praktiziert - auf Freigrenzenaktivitäten zurückgreifen, was durch die hohe Ansprechempfindlichkeit der modernen Strahlenmeßgeräte möglich ist, allerdings zu längeren Meßzeiten führen kann.

Die Einschränkungen und Schwierigkeiten, die die Anwendung von Radioindikatoren im besonderen und der Kerntechnik im allgemeinen gegenwärtig mit sich bringt, haben oft eher genehmigungsrechtliche Ursachen und sind überdies teilweise emotional begründet. Sie gewinnen dadurch eine andere, politische Dimension, und dem ist weitaus schwieriger entgegenzuwirken als dem Risiko der langlebigen Kontamination eines Mischbehälters im Zementwerk. Die Verunsicherung des nicht einschlägig vorgebildeten Teils der Bevölkerung setzt zwangsläufig politische Mechanismen bis in die höchsten Entscheidungsebenen in Gang, die auf dem Wege des „Vollzugsausstiegs“ die Anwendung und Weiterentwicklung der Radioindikatortechnik zuweilen vor unüberwindbare Hürden stellt und so oft vielversprechende Ideen und Ansätze zunichte macht. Die Strategie wird daher hauptsächlich aus beharrlicher Aufklärungsarbeit bestehen müssen.

Dennoch stehen der breiten Anwendung von Radioindikatoren vielfach unzutreffende Vorstellungen über Leistungsfähigkeit und Kosten sowie, besonders beim Einsatz in technischen Anlagen, zeit- und kostenaufwendige Genehmigungsprozeduren entgegen.

- Hauptziel ist die Erhöhung der allgemeinen Akzeptanz eines vernünftigen Umgangs mit Radioaktivität. Das wird dadurch erschwert, daß einem Großteil der Bevölkerung das Gebiet wegen der sinnlichen Unzugänglichkeit der Strahlung zumindest als suspekt erscheint. Hier aufklärerisch anzusetzen, dürfte wohl die größten Probleme aufwerfen. Nichtsdestoweniger ist dies die wichtigste Aufgabe, da hier auch der Hauptansatzpunkt für politische Interessen mit all ihren weitreichenden Folgen liegt.
- Potentielle Anwender sollten verstärkt zum Einsatz der Radioindikatortechnik ermutigt und fachlich beraten werden. Im Vorfeld dessen ist eine verstärkte Aufklärung und Informationstätigkeit über die Möglichkeiten und Vorteile der Radionuklidtechnik nötig; vielfach werden Radioindikatoren an durchaus geeigneter Stelle nur deshalb nicht verwendet, weil die Möglichkeiten dort nicht bekannt sind.

Anlage 7: Nuklearenergie-Technologie

Die Erzeugung von Kernenergie ist unvermeidlich mit der Bildung von Radionukliden verbunden, deren unkontrollierte Freisetzung eine Gefährdung sowohl der in den Anlagen Beschäftigten wie auch der Bevölkerung außerhalb der Anlagen bedeuten würde. Die oberste Forderung bei der Nutzung der Kernenergie ist daher der sichere Einschluß der Radioaktivität unter allen denkbaren Umständen, sowohl im bestimmungsgemäßen Betrieb wie auch unter Störfall- und Unfallbedingungen. Da Radioaktivität eine Eigenschaft der Materie ist, wird ihr Verhalten von dem der betreffenden chemischen Elemente und Verbindungen diktiert, wobei bei radiologisch bedeutsamen Nukliden (wie z.B. ^{131}I) chemische Reaktionen eine wichtige Rolle spielen können. Daraus folgt, daß radiochemische Fragen bei der Planung und Auslegung von kerntechnischen Anlagen wie auch bei der Überwachung ihres Betriebes von wesentlicher Bedeutung sind.

Aber die in Deutschland in Betrieb befindlichen 19 Kernkraftwerke (weltweit etwa 440), die etwa 35 % zur öffentlichen Stromerzeugung beisteuern, leisten auch einen wichtigen Beitrag zur Reduzierung der CO_2 -Emission; die Erzeugung des von ihnen gelieferten Stromes in fossil gefeuerten Kraftwerken hätte allein 1997 eine zusätzliche Emission von 150 Millionen Tonnen CO_2 zur Folge gehabt. Die heute in Deutschland befindlichen Kernkraftwerke haben technisch-wirtschaftlich noch eine Betriebszeit von jeweils 20 - 30 Jahren vor sich, in der auch weiterhin eine störungsfreie und gefahrlose Stromerzeugung gefordert ist.

7.1 Fertigung von Kernbrennstoffen für Leichtwasserreaktoren

Nach der Einstellung der nationalen Wiederaufarbeitung abgebrannter Kernbrennstoffe beschränkt sich der in Deutschland kommerziell ausgeübte Teil des Kernbrennstoff-Kreislaufes im wesentlichen auf die Bereiche Brennelement-Herstellung und Entsorgung der radioaktiven Abfälle; der letztgenannte Komplex wird in Anlage 8 behandelt. Bedingt durch die Radioaktivität des Urans und des in Mischoxid-Brennstoffen einzusetzenden Plutoniums sind weite Bereiche der Brennelement-Herstellung unter den Begriff der angewandten Radiochemie einzuordnen. Das betrifft sowohl die bei der Fertigung anzuwendenden Arbeitsverfahren wie auch die notwendigen Strahlenschutzvorkehrungen und die analytische Kontrolle der Produkte und der Reststoffe. Die gesamte Technik hat in Deutschland einen hohen Stand erreicht, was sich in den sehr guten Betriebserfahrungen mit den gefertigten Brennelementen bis hin zu Abbränden über 50 GWd/Mg U niederschlägt; das gilt sowohl für die reinen Uran- wie auch für die Mischoxid-

Brennstoffe.

In Deutschland werden nur noch Uran- und keine Mischoxid-Brennstoffe mehr gefertigt. Während für die MOX-Fertigung das „Aus“ wesentlich politisch bedingt war, ist die Uran-Brennelementfertigung, bedingt durch die weltweite Überkapazität, naturgemäß einem steten wirtschaftlichen Kosten- und Preisdruck ausgesetzt. Die Aufrechterhaltung des Fertigungsstandortes Deutschland kann - abgesehen von politischen Randbedingungen - nur bei anhaltend hoher Produktqualität, innovativer Weiterentwicklung und wettbewerbsfähigen Preisen erreicht werden.

7.2 Kernkraftwerke im bestimmungsgemäßen Betrieb

Im Mittelpunkt der radiochemischen Aktivitäten beim Betrieb der Kernkraftwerke steht das Primärkühlmittel (beim Siedewasserreaktor das Reaktorwasser), dessen primäre Aufgabe die Abführung der durch die Kernspaltung erzeugten Wärme aus dem Reaktorkern ist, das aber auch Transportmittel für Radionuklide ist. Aus den hier gemessenen Konzentrationen an Spaltprodukten kann nicht nur in allgemeiner Weise auf den aktuellen Zustand des Reaktorkernes geschlossen werden, bei entsprechender Erfahrung kann daraus auch direkt die vorliegende Zahl undichter Brennstäbe ermittelt werden, eine im Hinblick auf den nächsten Brennelementwechsel wichtige Information. Daneben sind radioaktive Korrosionsprodukte, vor allem ^{60}Co , im Primärkühlmittel von wesentlichem Interesse, da sie zu einer Kontamination der Kreisläufe führen, was eine Dosisexposition des Betriebspersonals zur Folge hat. Durch intensive Messungen, Auswertungen und theoretische Überlegungen konnte der Mechanismus des Kontaminationsaufbaues weitgehend geklärt und damit die Voraussetzung für eine beträchtliche Reduktion der Ortsdosisleistungen geschaffen werden. Zu erwähnen ist hier u.a. die in den letzten Jahren zur Anwendung gebrachte sog. Zn-Dotierung. Hierbei erfolgt durch Zugabe von ^{64}Zn -abgereichertem Zink eine Verdrängung von ^{60}Co aus den Korrosions- und Schutzschichten in den Primärsystemkreisläufen und damit die erwünschte Reduktion der Ortsdosisleistungen.

Ein weitere Beispiel ist der Einsatz von angereichertem ^{10}B (anstelle von natürlichem Bor) als Borsäure im Kühlmittel von Druckwasserreaktoren zur Reaktivitätskontrolle. Damit wird eine konstante pH-Fahrweise erleichtert, die Korrosionsraten vermindert, es werden höhere Anreicherungen im Brennstoff und damit längere Zyklen ermöglicht und damit eine Erhöhung der Wirtschaftlichkeit erreicht.

Daneben ist die Funktionsfähigkeit der Reinigungs- und Rückhalteanlagen durch radiochemische Untersuchungen zu überwachen. Außer den während des Betriebes regelmäßig durchgeführten Kontrollen der Ionenaustauscherbetten der Primärkreisreinigung sind hier die Aktivkohlebetten für die Spaltgasverzögerung sowie für die Iodfilterung der Abluft zu nennen, für deren in regelmäßigen Abständen durchzuführende Prüfungen größere Aktivitätsmengen an Spaltedelgasen bzw. an Methyljodid zu präparieren und einzusetzen sind.

Wesentliche Voraussetzung für die Ermittlung der Daten zum Radionuklidverhalten ist die radiochemische Analytik der Betriebsmedien, insbes. des Primärkühlmittels. Automatisierte, nicht invasive Verfahren (z.B. on-line- γ -Spektrometrie) sind hierzu bisher nur mit Einschränkungen anwendbar. Sowohl bei der Bestimmung kleiner Konzentrationen an reinen β - und α -Strahlern wie auch bei der Analyse von Radionuklidgemischen komplexer Zusammensetzung ist der Einsatz radiochemischer Analyseverfahren unabdingbar.

Das Verhalten der Radionuklide im Kernbrennstoff, in den Hauptkreisläufen sowie in den Hilfs- und Nebenanlagen während des Normalbetriebes ist mit ausreichender Detaillierung bekannt. Revisionen der IAEA haben bei einer Reihe von Inspektionen an deutschen KKW-Anlagen auch dem chemisch und radiochemisch tätigen Betriebspersonal eine gute Fachkunde attestiert.

Hohe Ansprüche werden auch an die radiochemische Analytik bei der Bestimmung des Brennstoffabbrandes und des Aufbaues von Transuranen in bestrahlten Brennstoffen gestellt, beides notwendige Arbeiten bei der Weiterentwicklung der Kernbrennstoffe. Auch Untersuchungen wie die Bestimmung des Neutronenflusses in bestrahlten metallischen Werkstoffen sind hier zu erwähnen. Das Besondere bei derartigen Aufgaben ist die Umsetzung der gestellten Frage in eine analytische Handlungsanweisung, wozu nicht nur radioanalytische Sachkunde, sondern auch profunde Kenntnisse der allgemeinen Radiochemie notwendig sind.

Die stark gestiegenen Anforderungen an die Charakterisierung radioaktiver Betriebsabfälle (bes. schwachaktiver Rohabfälle) stellen wegen der sehr niedrigen Deklarationsgrenzwerte und der ebenfalls oft inhomogenen Zusammensetzung der Abfallchargen hohe Ansprüche an die radioanalytische Analysendurchführung. Zwar können in manchen Fällen zerstörungsfreie Messungen zur Bestimmung der Aktivitätsinventare der Abfallchargen eingesetzt werden (γ -spektrometrische Methoden, auch ortsauflösende), die Ermittlung reiner β - und α -Strahler erfordert jedoch radio-

chemische Analytik, wobei die Forderung nach repräsentativer Probenahme meist eine nicht zu unterschätzende Erschwernis darstellt.

7.3 Stör- und Unfälle in Kernkraftwerken

Neben den thermodynamischen und thermohydraulischen Phänomenen ist das Verhalten der Radionuklide unter Unfallbedingungen von wesentlicher Bedeutung. In den letzten Jahren wurde der Kenntnisstand über das Radionuklidverhalten unter Unfallbedingungen beträchtlich weiterentwickelt.

Die umfangreichen Untersuchungen haben gezeigt, daß chemische Reaktionen der Spaltprodukte beträchtliche Veränderungen des Transport- und Freisetzungsverhaltens gegenüber den früheren Annahmen bewirken. Diese Reaktionen im Reaktordruckbehälter, im Primärkreislauf und im Sicherheitsbehälter laufen bei höheren Temperaturen und Drücken ab, also unter für normale chemische Untersuchungen eher ungewöhnlichen Bedingungen. Die niedrigen Konzentrationen der Spaltprodukte, sowohl in der flüssigen wie auch in der Gasphase, deren Reaktionen an Oberflächen sowie die Auswirkungen der intensiven ionisierenden Strahlung sind weitere, die Reaktionsabläufe komplizierende Parameter. Die Beurteilung des Gesamtverhaltens der Radionuklide auf der Basis der einzelnen Labor- und Technikumsergebnisse ist daher komplex und nur mit Hilfe von Modellen und entsprechenden Computerprogrammen möglich.

Der Entwicklungsstand dieser Computerprogramme (Codes) ist derzeit auf einem guten Standard, wiewohl auch noch einige Fragen offen sind und in den laufenden bzw. anlaufenden Vorhaben bearbeitet werden.

In diesem Zusammenhang soll darauf hingewiesen werden, daß auf diesem Arbeitsgebiet die internationale Zusammenarbeit seit Jahren sehr intensiv und erfolgreich verläuft. Erwähnt seien auch die bereits abgeschlossenen Vorhaben wie LOFT (Loss of Fluid Tests) und ACE (Advanced Containment Experiments), die in den USA durchgeführt wurden, sowie das derzeit in Frankreich noch bis etwa 2003 laufende PHEBUS-Projekt.

Bei LOFT wurde in einem Testreaktor – neben einer Reihe von thermohydraulischen Experimenten – das Austrittsverhalten von Spaltprodukten aus Brennstäben unter den Bedingungen von Auslegungsstörfällen untersucht. ACE beschäftigte sich, unter den Randbedingungen von Kern-

schmelz Szenarien, mit den Themen a) Iodchemie im Containment, b) Wirksamkeit von Containment-Venting-Filter Systemen und c) Kühlung von Kernschmelzen. Im Projekt PHEBUS – es wird im französischen Kernforschungszentrum Cadarache durchgeführt – wird in einem Testreaktor das Austrittsverhalten von Spaltprodukten aus einer vorbestrahlten Brennelementanordnung, das Ablagerungsverhalten im Primärkreis sowie Verhalten und Chemie im Containment, unter möglichst „realitätsnahen“ Bedingungen untersucht.

7.4 Fortgeschrittene Leichtwasserreaktoren

Ziel ist die Entwicklung von Reaktoren für die der quantitative Nachweis erbracht werden kann, daß auch bei schwersten Unfällen die Auswirkungen auf das Innere der Anlage begrenzt bleiben. Konkrete Beispiele hierfür sind die deutsch/französische Gemeinschaftsentwicklung EPR (European Pressurized Water Reactor) sowie die Entwicklung des Siedewasserreaktors SWR 1000.

Beim SWR 1000 wird durch passiv (d.h. rein naturgesetzlich) wirkende Komponenten erreicht, daß Eintreten von Kernschmelzen praktisch auszuschließen bzw. die Kernschmelze innerhalb des Reaktordruckbehälters sicher zu kühlen ist.

Beim EPR wird die Wirkung eines hypothetisch unterstellten Kernschmelzunfalls durch Einsatz eines Corecatchers auf den Reaktorsicherheitsbehälter (Containment) begrenzt. In den Entwicklungsarbeiten und Nachweisen spielen Arbeiten auf den Gebieten der Hochtemperatur- und der Radiochemie eine wichtige Rolle. Das physikalisch-chemische Verhalten der Kernschmelze in Temperaturbereichen bis nahe 3000 °C, das Materialwechselwirkungsverhalten, die Kühlbarkeit und die Auswahl und Qualifizierung des „richtigen“ Core-Catcher-Materials sowie das Verhalten (Verflüchtigung) der Spaltprodukte und Transurane muß quantitativ beschrieben werden.

Die Entwicklung bei den Reaktorbaulinien ist soweit fortgeschritten, daß bei Bedarf in eine detaillierte standortbezogene Auftragsplanung eingetreten werden könnte.

7.5 Sonstige Reaktortypen

In Deutschland wurden neben den Leichtwasserreaktoren DWR und SWR in der Vergangenheit der gasgekühlte Hochtemperaturreaktor sowie der flüssigmetallgekühlte Schnelle Brutreaktor entwickelt und gebaut, doch nicht in Betrieb genommen. Beide Reaktortypen unterscheiden sich

hinsichtlich der in ihnen vorliegenden chemischen Bedingungen, die das Verhalten der radioaktiven Spalt- und Aktivierungsprodukte bestimmen, grundlegend voneinander und vom vorher angesprochenen Leichtwasserreaktor. Beim Hochtemperaturreaktor ergeben sich aus der Art des Brennstoffes, graphitumhüllte coated particles, andere Bedingungen für das Migrationsverhalten der Spaltprodukte im Brennstoff sowie für ihren Austritt aus beschädigten Partikeln. Das Kühlgas Helium ist ein an sich inerter Träger von Radionukliden im Primärkreislauf, allerdings können durch vorliegende Verunreinigungen auch hier chemische Reaktionen der Spaltprodukte induziert werden. Die Radionuklide liegen teils im gasförmigen Zustand vor (Iod, Cäsium), ein anderer Teil wird als Aerosolpartikel transportiert; beide Spezies können innerhalb des Kreislaufes abgelagert werden und hier zu einem Kontaminationsaufbau führen. Beim Schnellen Brutreaktor dagegen ist der Aufbau der Brennelemente ähnlich denen im Leichtwasserreaktor (keramischer Brennstoff, metallisches Hüllrohr), die unterschiedlichen Betriebsbedingungen (höhere Stableistungen und höhere Brennstofftemperatur) bewirken jedoch signifikante Unterschiede im Migrations- und Austrittsverhalten von Spaltprodukten. Das Kühlmittel flüssiges Natrium ist ein stark reduzierendes Medium, in dem Spalt- und Aktivierungsprodukte teilweise elementar gelöst sind, teilweise als Partikel vorliegen. Das hat zur Folge, daß verschiedene Prozesse, wie der Aufbau der Kreislaufkontamination oder die Reinigung des Natriums von Verunreinigungen, nach anderen Mechanismen ablaufen als beim Leichtwasserreaktor.

Für beide Reaktortypen erfolgte nach langjähriger Entwicklung, Betrieb von Prototypanlagen (AVR, KNK) und Bau je einer Anlage das politisch motivierte „Aus“ nach Errichtung (THTR, SNR) kurz vor dem kommerziellen Betrieb.

7.6 Bewertung und Perspektiven

Trotz der im Augenblick in Deutschland sehr ungünstigen Situation besteht kein vernünftiger Zweifel daran, daß die Kernenergie eine im Vergleich zu den fossilen und auch den regenerativen Energiequellen wirtschaftliche Technik darstellt, deren Nutzung unter ökologischen Gesichtspunkten vorteilhaft ist und die auch hinsichtlich der Sicherheit zu verantworten ist.

Auf mittlere Sicht wird daher die Kernenergie einen wichtigen Beitrag zur Energieversorgung zu leisten haben; dabei wird in Deutschland die Anwendung auf Leichtwasserreaktoren begrenzt bleiben. Die Fertigungsentwicklung der fortgeschrittenen LWR-Typen wie EPR und SWR 1000 ist dringend geboten, ist aber aufgrund der politischen Randbedingungen derzeit nicht gesichert. Die

Anwendung von Hochtemperaturreaktoren und Schnellen Brutreaktoren findet in Deutschland in absehbarer Zeit nicht statt.

Eine wichtige Rolle bei der Nutzung dieser Techniken spielt das Verhalten der Radionuklide unter allen denkbaren Anlagenzuständen, und dieses Verhalten ist überwiegend durch chemische Reaktionen bestimmt. Der derzeitige, mit großem Aufwand erarbeitete Kenntnisstand ist sehr umfangreich und gibt bei den Kernspaltungsreaktoren ein ziemlich vollständiges Bild des Radionuklidverhalten unter den unterschiedlichsten Bedingungen wieder. In einigen Bereichen sind jedoch noch Ergänzungen und Verfeinerungen notwendig, so daß neben dem Erhalt nuklearchemischer Expertise im wissenschaftlichen und technologischen Know-How in der Nuklearenergie-Technologie auch innovative Arbeitsfelder für den Nuklearchemiker weiterhin existieren.

Daraus folgt, daß eine stetige nationale Weiterarbeit auf dem Gebiet der Radiochemie der Kernkraftwerke in Deutschland notwendig ist. Zur Sicherung der Weiterarbeit muß das Verständnis für die Bedeutung dieser Fragen bei der Industrie, den Kernkraftwerksbetreibern und bei Ministerien, Behörden und Forschungszentren erhalten bleiben.

Bei der vorhanden internationale Verflechtung von Wissenschaft, Technik und Wirtschaft ist es unabdingbar notwendig, zur Aufrechterhaltung der Wettbewerbsfähigkeit auch auf diesen Gebieten aktiv tätig zu bleiben.

Der Schwerpunkt aller Anstrengungen auf dem Gebiet der Kerntechnik muß in nächster Zeit allerdings nicht nur auf rein technischem Gebiet liegen, sondern es ist dafür zu sorgen, daß die politischen Randbedingungen zu einer weiteren Nutzung dieser Technik erhalten bleiben. An der dazu notwendigen öffentlichen Diskussion muß die Fachgruppe Nuklearchemie intensiv teilhaben.

Anlage 8: Nukleare Entsorgung

In Deutschland wird gegenwärtig ein Drittel der elektrischen Energie in 19 Kernkraftwerken mit einer installierten Leistung von rund 22 GWe produziert. Der jährliche Anfall an abgebranntem Brennstoff liegt je nach Anfangsanreicherung und Abbrand bei 400 bis 500 t Schwermetall. Bis zum Jahr 2005 wird die in Deutschland erzeugte akkumulierte Menge an abgebranntem Brennstoff etwa 10 000 Tonnen betragen. Darin enthalten sind rund 100 t Plutonium, über 300 t Spaltprodukte und maximal 20 t Neptunium, Americium und andere Actinide. Als Entsorgungswege werden zur Zeit sowohl die Wiederaufarbeitung und Endlagerung der verglasten Abfallstoffe als auch die direkte Endlagerung verfolgt. Mögliche zukünftige Optionen, wie die Abtrennung und Transmutation langlebiger Radionuklide und damit verbunden eine deutliche Reduzierung der Anforderungen an die Dauer des sicheren Einschlusses im Endlager werden ebenfalls untersucht. Im Kernbrennstoff sind nur 5 % des Abfallvolumens der Kernkraftwerke enthalten, aber 99 % der Radioaktivität des Abfalls. Die mittel- und schwachaktiven 6000 m³ Betriebsabfälle pro Jahr machen daher 95 % des Abfallvolumens mit nur 1 % der erzeugten Gesamtradioaktivität aus. Diese Abfälle werden je nach Konditionierung um mehr als 50 % ihres Volumens reduziert. Unabhängig von der Entsorgungsstrategie für die verschiedenartigen radioaktiven Abfälle ist jedoch ein Endlager in tiefen geologischen Formationen erforderlich.

Die Zeithorizonte, über die ein Endlager die Isolation der Radionuklide gewährleisten muß, ergeben sich aus den Halbwertszeiten und den relativen Toxizitätsindizes der eingelagerten Radionuklide. Mit den Grenzwerten für die jährliche Radioaktivitätsaufnahme auf der Grundlage der Empfehlung 61 der International Commission on Radiological Protection (ICRP-61) wird deutlich, daß die Radiotoxizität zunächst von den Elementen Americium und Plutonium bestimmt wird. Nach etwa 1000 Jahren sind die ursprünglichen Am-Isotope soweit zerfallen, daß die Pu-Isotope die Radiotoxizität dominieren. Diese wiederum werden nach 200 000 Jahren durch das Neptunium abgelöst. Die oft diskutierten langlebigen Spaltprodukte ⁹⁹Tc und ¹²⁹I sind bezüglich ihrer Radiotoxizität weniger bedeutend, sollten jedoch wegen ihrer hohen Mobilität bei Langzeitbetrachtungen ebenfalls berücksichtigt werden.

Langfristige Voraussagen über eine Freisetzung der Radionuklide aus der Endlagerstätte, ihre Ausbreitung bis in die Biosphäre und eine mögliche Exposition zukünftiger Generationen basieren im Wesentlichen auf den chemischen Eigenschaften der Radionuklide im geochemischen Milieu der Endlagerumgebung. Ein Verständnis der im natürlichen aquatischen System ablaufenden

den geochemischen Prozesse und die Quantifizierung der dominierenden mobilisierenden und immobilisierenden Reaktionen bilden die Basis für eine modellmäßige Beschreibung der Radionuklidausbreitung. In den letzten Jahren sind von Seiten der Nuklearchemie weltweit verstärkte Anstrengungen unternommen worden, um experimentell und theoretisch die Voraussetzungen für eine wissenschaftlich fundierte Analyse der Langzeitsicherheit der Endlagerung radioaktiver Stoffe zu schaffen. Einen Hauptschwerpunkt bildet dabei das geochemische Verhalten der Actinide, auf das in Anlage 2 näher eingegangen worden ist.

8.1 Radionuklidrückhaltung im Multibarrieren-System

Die verfolgten Konzepte zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen gehen von einer Isolation bzw. Immobilisierung der Radionuklide durch ein Multibarrieren-System in einer tiefen geologischen Formation aus. Unabhängig von der Natur der geologischen Formation ist der Transport über das wäßrige Medium als Hauptausbreitungspfad für die Radionuklide aus dem Endlager in die Biosphäre anzusehen. Die Funktion der einzelnen Barrieren besteht zum einen darin, den Zutritt von Wasser zu den Abfällen zu unterbinden (hydrogeologische Barriere) und, falls dies nicht gelingt, die Mobilisierung der Radionuklide zu verhindern bzw. zu verzögern (geochemische Barriere). Das Multibarrierenkonzept geht von drei Hauptbarrieren aus: der technischen, der geotechnischen und der geologischen Barriere. Als technische Barriere fungieren die Abfallformen (Glasmatrix, Brennelementmatrix) und die zum Einschluß verwendeten Behälter. Als geotechnische Barrieren dienen Versatzmaterialien sowie Dämme und andere Hohlraumverschlüsse zum Einschluß der Abfälle, Puffermaterialien (z.B. Bentonit) dienen zusätzlich als geochemische Radionuklidbarriere. Die geologische Barriere umfaßt die geologische Formation selbst, in der das Endlager errichtet wird, sowie die lange Wegstrecke in Deck- und Nebenformationen bis hin zur Biosphäre.

Je nach Endlagerformation (z.B. Salzgestein oder Hartgestein) kommen den einzelnen Barrieren unterschiedliche Funktionen zu. Bei der Endlagerung im Hartgestein (z.B. Granit) tragen die technische und die geotechnische Barriere in Form einer Umschließung der Behälter mit einem Puffermaterial, wie z.B. Bentonit, die Hauptlast bei der Isolation gegen eindringendes Grundwasser bzw. bei der Radionuklidrückhaltung. Demgegenüber zeigt das Wirtsgestein aufgrund seiner Wasserdurchlässigkeit eine geringere Barrierenwirkung. Im Gegensatz dazu spielt bei Endlagerung in einer Salzformation die geologische Barriere eine wesentlich größere Rolle, weil sie sowohl den Wasserzutritt (kompaktes Salz) als auch die Radionuklidmigration (Rückhaltung im

sedimentären Deckgebirge) wirksam unterbinden kann.

8.2 Technische Barriere

Das Atomgesetz fordert für radioaktive Reststoffe die geordnete Beseitigung durch Endlagerung. Für die Endlagerung müssen die radioaktiven Abfälle konditioniert, d.h. verfestigt und/oder verpackt werden.

Die durch Endlagerbedingungen festgelegten sicherheitstechnischen Anforderungen an Abfallgebinde beziehen sich auf das Aktivitätsinventar, auf chemische, physikalische und biologische Eigenschaften der Abfallprodukte sowie auf die Verpackung der Abfälle. Die Einhaltung von Anforderungen kann durch Konditionierungsmaßnahmen, wie Schmelzen, Kompaktieren, Fixieren und Trocknen, oder durch die Art der Vorbehandlung der Abfälle (z. B. Zerkleinern oder Verbrennen) erfüllt werden.

Die zu konditionierenden Abfälle sind durch die Angabe der Herkunft, der Abfallart, der charakteristischen Zusammensetzung und der für die Endlagerung und die vorgesehene Konditionierung relevanten Eigenschaften zu beschreiben. Die Ermittlung der Eigenschaften ist in der Regel nur durch Nuklidrelationen und/oder durch Charakterisierung am Rohabfall bzw. am Abfallgebinde möglich.

Für die Charakterisierung sind neben den meßtechnischen Einrichtungen und Meßgeräten zur Ermittlung von α -, β -, γ - und n-emittierenden Nukliden, radiochemische Labors für den Probenaufschluß und für Elementtrennungen notwendig und die Entwicklung moderner, zuverlässiger und schneller Routineanalysen unumgänglich, die national und international anerkannt und zertifiziert werden können.

Neue Entsorgungskonzepte, z. B. für die Volumenreduktion bei Abfällen oder die Beseitigung langlebiger Radionuklide, besonders im Zusammenhang mit der Stilllegung kerntechnischer Einrichtungen oder bei einem Übergang auf andere Endlagerformationen, erfordern neue Ansätze für die Charakterisierung, Behandlung und Konditionierung radioaktiver Abfälle.

Für die wärmeproduzierenden hochradioaktiven Abfälle aus Kernkraftwerken werden in Deutschland zwei Entsorgungsstrategien verfolgt. Zum einen werden die abgebrannten Bren-

nelemente in Frankreich und Großbritannien wiederaufgearbeitet und der dabei entstehende wärmeproduzierende radioaktive Abfall (HAW) durch Verglasung in einer Borosilikat-Matrix immobilisiert. Alternativ zur Wiederaufarbeitung wird die Entsorgung teilweise über die direkte Endlagerung der abgebrannten Brennelemente erfolgen. Für die Bewertung der Langzeitsicherheit müssen daher sowohl die Glasmatrix als auch abgebrannte Brennelemente als Abfallformen untersucht werden.

Die Forschungsarbeiten umfassen Korrosionsuntersuchungen an hochaktivem COGEMA-typischem Glas und an abgebranntem LWR-Kernbrennstoff in endlagerrelevanten Tiefenwässern (Salzlösungen und Granitwässer) bei erhöhten Temperaturen bis 200 °C. Da bei der Korrosion ein Teil der in der Abfallproduktmatrix gebunden Radionuklide in Lösung geht, während ein anderer Teil in mineralischen Phasenumwandlungsprodukten immobilisiert bleibt, werden nicht nur Korrosionsraten ermittelt, sondern vor allem die Gesetzmäßigkeiten dieser Neuverteilung der Radionuklide quantifiziert. Untersuchungen zur Korrosion von Behälterwerkstoffen haben zum einen das Ziel, Behälterstandzeiten zu ermitteln, zum anderen soll der Einfluß der Korrosionsprodukte auf die Immobilisierung von Radionukliden untersucht werden. Ferner wird die Beeinflussung des geochemischen Milieus (pH, Redoxpotential) und der Mobilität der Radionuklide durch radioaktive Strahlung (strahlenchemische Effekte) untersucht.

Die experimentellen Ergebnisse weisen darauf hin, daß die Abfallprodukte Borosilikatglas und abgebrannter Kernbrennstoff in Verbindung mit ihren Behältermaterialien einen wesentlichen Beitrag zur Rückhaltung von Radionukliden im Nahfeld leisten. Es liegt sowohl für Glas wie für Brennstoff bereits eine große Datenbasis für eine vorläufige Quantifizierung eines konservativen Quellterms in Salzlösungen vor. Sorptions-, Löslichkeits- und Mitfällungsphänomene für Radionuklide sind jedoch nur unzureichend bekannt.

8.3 Geotechnische und geologische Barriere

Während der geotechnischen Barriere in Hartgestein-Endlagerformationen eine dominierende Rolle für die Radionuklidrückhaltung zukommt, ist beim bisherigen Konzept für die Endlagerung im Salz durch die Verfüllung mit Salzgrus keine Rückhaltewirkung zu erwarten. Zukünftig besteht aber auch hier Forschungsbedarf, geeignete Versatzmaterialien bzw. Zuschlagstoffe, wie z.B. Zement, Apatit und Bentonit, zu untersuchen, die im Bereich der geotechnischen Barrieren eines Salzendlagers eine Rückhaltewirkung für Radionuklide haben können („intelligentes“ Bar-

rierenkonzept).

Die Forschungsarbeiten zur geologischen Barriere erstrecken sich auf die Quantifizierung der mobilen Spezies der Actinide und der langlebigen Spaltprodukte im Aquifersystem. Insbesondere die im Aquifersystem enthaltenen Huminstoffe und Kolloide können die Radionuklide in Lösung stabilisieren und deren weiträumigen Transport ermöglichen. Zur Aufklärung der Reaktionsmechanismen der ablaufenden Einzelprozesse werden an Modellsystemen grundlegende Untersuchungen zu Redoxreaktionen, Komplexbildungs- und Sorptionsgleichgewichten durchgeführt. Daneben wird an standortspezifischen realen Aquifersystemen die Wechselwirkung der Radionuklide mit Grundwasserkolloiden sowie der Radionuklidtransport in Säulenversuchen untersucht.

Eine thermodynamisch fundierte Beschreibung der Wechselwirkung der gelösten Radionuklidspezies mit der Geomatrix ist zur Zeit nicht verfügbar und wird aufgrund der Komplexität der Prozesse auch in universaler Form nicht realisierbar sein. Die Retention der Radionuklide an der Geomatrix wird häufig über den reversiblen Sorptionskoeffizienten K_d quantifiziert. Allerdings wird dabei die Gleichgewichtseinstellung von Sorption und Desorption und die Reversibilität unterstellt. Modelle der Sorptionsmechanismen, die auf der Mikrochemie des Sorptionsprozesses an der Oberfläche basieren, wie Oberflächenkomplexbildungsmodelle sind bislang nur für einfache Systeme aufgestellt worden.

8.4 Aquatische Chemie der Radionuklide

Generell sind die Radionuklidinventare eines Endlagers ebenso wie alle anderen chemischen Elemente in globale und lokale geochemische Stoffkreisläufe eingebunden, die Grundwasser- und Gesteinszusammensetzungen regulieren. Die vielfältigen, miteinander gekoppelten geochemischen Reaktionen, die für die Mobilisierung bzw. Immobilisierung der einzelnen Radionuklide verantwortlich sind, sind im Detail außerordentlich komplex. Dennoch lassen sich die ablaufenden Prozesse auf Basis chemischer Gesetzmäßigkeiten auf einige grundlegende Prinzipien zurückführen.

Die primär im Endlager in fester Form, z.B. gebunden in der Abfallmatrix, vorliegenden Radionuklide sind bei Wasserzutritt thermodynamisch nicht stabil, d.h. sie werden mehr oder weniger schnell in eine thermodynamisch stabile Form umgewandelt werden. In Abhängigkeit vom geochemischen Milieu laufen verschiedene geochemische Reaktionen ab, sowohl an der Grenz-

fläche fest/flüssig als auch in der homogenen wäßrigen Phase. Die Auflösung der Abfallmatrix ist begleitet bzw. überlagert durch Redox-, Hydrolyse- und Komplexierungsreaktionen. Darüber hinaus können sich Kolloide bilden, die gelösten Radionuklidspezies an Feststoffoberflächen adsorbiert werden oder im Falle von Übersättigung neue feste Phasen bilden bzw. in sich bildende neue feste Phasen eingebaut werden. Das Zusammenwirken der Prozesse von Auflösung und Remineralisierung spielt eine wichtige Rolle in der Regulation der Löslichkeit der mobilen Radionuklidspezies. In der Nettobilanz wandelt sich die ursprüngliche Festphase unter Freisetzung von gelösten Spezies und Aufnahme geeigneter Grundwasserinhaltsstoffe in thermodynamisch stabilere Sekundärphasen um.

Im Laborsystem sind die bei der Auflösung erreichten Sättigungskonzentrationen der Radionuklide thermodynamisch durch das Löslichkeitsprodukt und die vorliegenden Komplexierungsgleichgewichte bestimmt. Die in komplexen natürlichen aquatischen Systemen tatsächlich beobachtete Löslichkeit kann von den thermodynamischen Sättigungskonzentrationen der reinen kristallinen Phase aufgrund verschiedener Ursachen, wie Bildung von Kolloiden, Bildung von Mischphasen, Radiolyseeffekte etc., deutlich abweichen. Diese Effekte sind bei der Ableitung eines Radionuklid-Quellterms zu berücksichtigen.

Die entscheidende Frage nach der Mobilität eines Radionuklids in einem gegebenen Aquifersystem hängt zum einen von der chemischen Natur des Radionuklids und zum anderen von den vorliegenden geochemischen Bedingungen ab. Mobile Spezies können durch Komplexierung oder durch Bildung von Kolloiden entstehen, eine Immobilisierung erfolgt durch Ausfällung und durch Sorption an mineralische Oberflächen. Diese geochemischen Reaktionen korrelieren in erster Näherung mit der Oxidationsstufe des Radionuklids im gegebenen aquatischen Milieu. In tiefen geologischen Formationen liegen überwiegend reduzierende Bedingungen vor, bzw. es ergeben sich solche im Endlagernahbereich durch Behältermaterialien wie Eisen. Daraus folgt, daß die für die Migration relevanten Actiniden sowie Technetium unter den reduzierenden Bedingungen des Endlagernah- und Fernfelds in tri- bzw. tetravalenter Form vorliegen.

8.5 Kolloidbildung

Auf das Migrationsverhalten der Radionuklide hat die Bildung von Kolloiden bzw. die Wechselwirkung mit natürlich vorkommenden Kolloiden einen bedeutenden, bislang nur unzureichend untersuchten Einfluß. Kolloide sind in allen natürlichen Wässern ubiquitär. Die chemische Zu-

sammensetzung, die Struktur, der Teilchendurchmesser und die Menge dieser Kolloide variieren, je nach der geochemischen Natur des gegebenen Aquifersystems, in einem weiten Bereich. Neben den natürlichen Kolloiden bilden höherwertig geladene Radionuklide durch Aggregation von hydrolysierten Spezies sog. Eigenkolloide. Durch Sorption von Radionuklidionen, bzw. deren Hydrolyseprodukten an natürlichen Kolloiden kommt es zur Bildung von Pseudokolloiden.

Zur Beschreibung des Einflusses der Kolloide auf die Migration ist zunächst eine Quantifizierung der natürlichen Kolloide und eine Bestimmung der Größenverteilung notwendig. Da der überwiegende Teil der Kolloidteilchen Durchmesser kleiner 100 nm aufweist, sind Methoden wie die der klassischen Lichtstreuung, nur begrenzt einsetzbar. Zum hochempfindlichen Nachweis (sub-ppt-Bereich) von sehr kleinen Kolloidteilchen (bis herab zu 10 nm) wurde die Laser-induzierte Breakdown Detektion (LIBD) entwickelt und zur Kolloidquantifizierung in verschiedenen natürlichen Grundwässern sowie zur Untersuchung der hydrolytischen Bildung von Actinid-Eigenkolloiden eingesetzt.

In den untersuchten Aquifersystemen bei Gorleben haben die natürlich vorkommenden Grundwasserkolloide überwiegend organischen Charakter. Es handelt sich dabei um sog. Huminkolloide, die aus Schwermetall-beladenen Huminstoffen bestehen. Diese wirken auf höherwertig geladene Radionuklidionen wie Ionenaustauscher und führen zur Bildung von Pseudokolloiden.

Die Frage, welche Rolle die natürlichen Kolloide als Transportträger für die Radionuklide spielen, ist noch weitgehend ungeklärt. Neben der Kolloidmenge spielen die Stabilität der Kolloide bezüglich Agglomeration und Wechselwirkung mit Mineraloberflächen, die Transporteigenschaften sowie die Reversibilität der Wechselwirkung der Radionuklide mit den Kolloiden eine wesentliche Rolle. Diese Eigenschaften hängen wesentlich von der chemischen Form der Kolloide und dem geochemischen Milieu ab und müssen spezifisch für ein gegebenes Aquifersystem untersucht werden.

8.6 Modellierung der Migration im natürlichen aquatischen System

Die quantitative Beschreibung der Rückhaltung der Radionuklide durch die technische, die geotechnische und die geologische Barriere und damit die Sicherheitsanalyse einer Endlagerstätte ist nur möglich durch numerische Modelle, die die oben aufgeführten geochemischen Wechselwirkungen und die Transporteigenschaften berücksichtigen. Als Eingangsdaten für geochemische

Modelle dienen thermodynamische Daten der relevanten Gleichgewichte, wie Hydrolyse, Komplexierungs-, Redox- und fest/flüssig-Gleichgewichte. Weiter gehen in die Modelle Größen ein, die nicht thermodynamisch faßbar sind, wie kinetische Prozesse und Sorptionsdaten, die bei dem derzeitigen Kenntnisstand nur phänomenologisch beschreibbar sind und spezifisch für das betreffende Aquifersystem bestimmt werden müssen. Basierend auf den physiko-chemischen Randbedingungen des Aquifer-Systems (pH, Eh, analytische Zusammensetzung, Mineralogie) prognostizieren die geochemischen Modelle die Speziation und damit die Löslichkeiten der Radionuklide. Die Ausbreitung der Radionuklide läßt sich schließlich durch Kopplung der geochemischen Modelle mit Transportmodellen für die geologischen und hydrologischen Kenndaten des Aquifersystems berechnen.

Es existieren bereits eine Anzahl numerischer Codes, die zumindest Teilaspekte des gestellten Problems lösen. Entscheidend ist, daß die den Modellen zugrunde liegende Datenbasis alle relevanten Wechselwirkungen erfaßt und richtig wiedergibt. Die bislang verwendeten Modelle ignorieren häufig Phänomene, für die keine Daten verfügbar sind oder die sich nicht anhand klassischer thermodynamischer Algorithmen beschreiben lassen. Dies gilt z.B. für die Komplexierung mit Huminstoffen oder den Einfluß der Kolloidbildung auf die Migration. Ausgangspunkt für die Modellierung der Migration der Radionuklide im natürlichen System muß daher die umfassende chemische Untersuchung der zugrunde liegenden Reaktionsmechanismen sein.

8.7 Validierung der Modelle und Übertragbarkeit der Labordaten auf natürliche Systeme

Es stellt sich nun die für die Bewertung der Langzeitsicherheitsanalyse entscheidende Frage, inwieweit die Voraussagen der Modellierung tatsächlich die zukünftige Entwicklung des Endlagersystems und die Radionuklidfreisetzung beschreiben, d.h. die Frage nach der Validierbarkeit. Voraussetzung für die Gültigkeit der Voraussagen ist die Verifizierung des verwendeten Computer-Codes, die Übertragbarkeit der im „geschlossenen“ Laborsystem erhaltenen Daten auf das natürliche „offene“ System und die Richtigkeit und Vollständigkeit der verwendeten Modelle. Dabei stellt die Verifizierung der Codes das kleinere Problem dar, hingegen wird die Möglichkeit der Validierung geowissenschaftlicher Modelle für offene Systeme generell in Frage gestellt. Hingegen ist eine Validierung von Subsystemen möglich, die unter bestimmten Bedingungen als geschlossen betrachtet werden können.

Wenn auch eine Validierung des Gesamtsystems im strengen Wortsinn nicht möglich ist, so ist es immerhin möglich und erforderlich, Vertrauen in die Aussagefähigkeit der Modelle zu schaffen, indem man für einzelne Subsysteme den Übergang vom Laborsystem zum natürlichen System schrittweise vollzieht; d.h. die Untersuchungen gehen von idealen Laborsystemen zu natürlichen Grundwasser-/Sediment-Systemen unter naturnahen Bedingungen, zu *in-situ*-Feldversuchen bis zu natürlichen Analoga. Gleichzeitig kann mit diesem Übergang die Skalierung der Modelle in Raum (1d-Säulenversuche im m-Bereich \Rightarrow 3d-Deckgebirge mit km-Ausdehnung) und Zeit (Laborexperimente in Jahren \Rightarrow Langzeitsicherheit über 10^6 Jahre; entsprechendes gilt für die Fließgeschwindigkeiten) überprüft werden.

Zur Untersuchung der Übertragbarkeit wurde die Speziation der Radionuklide in natürlichen Grundwässern bzw. Sediment/Grundwasser-Systemen, die im Labor unter möglichst naturnahen Bedingungen gelagert und gehandhabt wurden, am Beispiel von Am(III), Cm(III) und Np(V) direkt spektroskopisch bestimmt. Der Vergleich der Ergebnisse mit den Prognosen der geochemischen Modellierung erlaubt Rückschlüsse auf die Vollständigkeit der verwendeten Datenbasis und die Gültigkeit der Modelle.

Der Einfluß der Reaktionskinetik auf den Radionuklidtransport kann experimentell durch eindimensionale dynamische Migrationsversuche (Säulenexperimente) untersucht und durch gekoppelte Geochemie/Transportmodelle beschrieben werden. Die Übertragbarkeit dieser Modelle läßt sich durch *in-situ* Feldversuche, wie sie derzeit in Untertagelaboratorien in ÄSPÖ (Schweden) und Grimsel (Schweiz) geplant sind, überprüfen.

Ferner werden seit längerer Zeit natürliche analoge Systeme zur Absicherung geochemischer Modelle herangezogen. So wurde z. B. die in geologischen Zeiträumen erfolgte Migration von Uran und Thorium und deren radioaktiven Zerfallsprodukten im Umfeld natürlicher Lagerstätten untersucht. Auch die unter speziellen geochemischen Bedingungen in Uranlagerstätten abgelauften Kettenreaktionen in sog. natürlichen Kernreaktoren, wie sie in Oklo/Gabun entdeckt wurden, stellen wichtige natürliche analoge Systeme dar, die es erlauben, Migration über geologische Zeiträume zu studieren. Allerdings ist die Übertragbarkeit der Ergebnisse aufgrund der unterschiedlichen geologischen Bedingungen bzw. der unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der verschiedenen Radionuklide nur begrenzt möglich.

8.8 Bewertung und Perspektiven

Für die Charakterisierung der radioaktiven Abfälle und die Untersuchung der Langzeitsicherheit von nuklearen Endlagern nimmt die Nuklearchemie eine zentrale Rolle ein. Im Multibarrierensystem eines Endlagers liegen die sich stellenden Aufgaben im Bereich der Materialforschung, der Korrosionsuntersuchungen von Immobilisationsmatrices und abgebrannten Brennelementen sowie der aquatischen Chemie der langlebigen Spaltprodukte und Actinide. Neben den klassischen radiochemischen Methoden sind dazu Arbeiten im Bereich der Thermodynamik der wäßrigen, festen und fest/flüssig-Grenzphasen, der Kolloidchemie sowie der Spektroskopie erforderlich.

Zukünftig wird dabei mehr und mehr im Vordergrund stehen, die grundlegenden Mechanismen aufzuklären, auf denen die Radionuklidrückhaltung bzw. -migration im Multibarrierensystem eines Endlagers beruhen. Nur so werden fundierte Vorhersagen der Langzeitsicherheit eines Endlagers möglich.

Aufgrund der Komplexität der Fragestellung der Charakterisierung der radioaktiven Abfälle und der Langzeitsicherheitsforschung ist fachübergreifend die Zusammenarbeit mit anderen wissenschaftlichen Disziplinen wie Materialforschung, Geochemie, Hydrologie notwendig. Mit der Bearbeitung der Probleme befassen sich neben verschiedenen Hochschulinstituten die DBE und die Forschungszentren FZJ, FZK, FZR und GSF. Gemäß der gesetzlich der Bundesregierung auferlegten Verantwortung für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung erfolgt die Finanzierung der Forschungsprojekte durch das BMBF, das BMWi, das BMU und das BfS. Aufgrund des internationalen Charakters der Problematik der nuklearen Endlagerung unterhält auch die EU eigene Forschungsprojekte.

Angesichts der Bedeutung der Zeithorizonte, die für den sicheren Einschluß radioaktiver Abfälle erforderlich sind, und der potentiellen Möglichkeiten zur Verkürzung dieser Zeitanforderungen, die durch Abtrennung und Transmutation von Problemnukliden theoretisch zu erzielen sind, sollte auch Deutschland sich in den gegenwärtig international laufenden Anstrengungen, diese Entsorgungsoption vorurteilsfrei auf ihre Realisierbarkeit zu prüfen, stärker engagieren. Ein beträchtlicher Anteil der dabei zu klärenden Probleme können nur durch die Nuklearchemie geklärt werden.

Ganz allgemein aber stellt die Chemie der Radionuklide unter natürlichen geochemischen Bedin-

gungen ein komplexes Gebiet dar, das nur durch den Einsatz vielfältiger radiochemischer Methoden, analytischer und spektroskopischer Verfahren zu bearbeiten ist. Diese Arbeiten vermitteln Erkenntnisse für die Ausbreitung von Radionukliden in der Geosphäre, die nicht nur für die Endlagerung nuklearer Schadstoffe relevant sind, sondern auch auf die Migration konventioneller Schadstoffe in der Umwelt übertragbar sind.

Anlage 9: Tritiumchemie in der Fusionstechnologie

Die begrenzte Verfügbarkeit fossiler und regenerativer Energieträger sowie die mit ihrer Nutzung verbundenen Umweltbeeinflussungen haben weltweit zur Forschung und Entwicklung auf dem Gebiet der kontrollierten thermonuklearen Kernverschmelzung (Fusion) geführt. Die Energiefreisetzung bei der Kernfusion beruht auf der Verschmelzung (Fusion) leichter Atomkerne. Diese Kerne müssen gegen die abstoßende elektrische Kraft ihrer beiden gleichen Kernladungen so dicht zusammengebracht werden, daß sie auch verschmelzen können. Die hierzu erforderliche Energie erhalten die Teilchen durch Erhöhung der kinetischen Energie oder damit gleichbedeutend der Temperatur auf typisch einhundert Millionen Grad.

Bei derart hohen Temperaturen sind die Atome eines Gases in ihre Bestandteile - Elektronen und Kerne - zerlegt und bilden einen als Plasma bezeichneten Aggregatzustand, in dem sich die Kerne sozusagen in einer Wolke freier Elektronen bewegen. Ein solches Plasma kann über starke Magnetfelder in einem ringförmig geschlossenem System (einem Torus) eingeschlossen werden. Das Plasma wird dadurch von der Gefäßwand ferngehalten. Aus prinzipiellen Gründen verbessert sich der Einschluß mit der Größe der „magnetischen Flasche“. Das erklärt, warum ein Fusionskraftwerk unter einer bestimmten Größe nicht funktioniert. Bis zu diesem Punkt gleichen sich vom Prinzip her Tokamak, der aussichtsreichste Kandidat für einen kommerziellen Fusionsreaktor, und der Stellarator. Beide sind geschlossene Systeme mit einem starken achsenparallelen Magnetfeld. Der Unterschied liegt im wesentlichen in dem verfolgten Lösungsweg für das Problem, das sich daraus ergibt, daß das Magnetfeld inhomogen ist, weil an der inneren Peripherie des Torus die Feldlinien dichter liegen als an der äußeren. Das Tokamak-Experiment JET (Joint European Torus) im englischen Culham bei Oxford, das bereits 1983 in Betrieb genommen wurde, ist das weltweit größte Fusionsexperiment, an dem alle europäischen Fusionslaboratorien beteiligt sind. Ein sogenannter Stellarator, Wendelstein 7X, mit einer neuartigen Anordnung aus 70 speziell geformten und supraleitenden Magnetspulen wird derzeit in Greifswald gebaut. Als nächster Schritt im Entwicklungskonzept steht der Bau der großen Versuchsanlage vom Tokamak-Typ ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) an.

Während die Fusion unterschiedlicher leichter Atomkerne denkbar ist, hat sich die Fusionsforschung aus plasmaphysikalischen Gründen (alle anderen denkbaren Reaktionen würden noch viel extremere Temperaturen erfordern) fast ausschließlich auf die Fusion der Wasserstoffisotope Deuterium und Tritium konzentriert. Aus diesem Grunde kommt der Entwicklung einer zuverlässigen

sigen und sicheren Tritiumtechnologie eine hohe Bedeutung zu.

Mit der Reaktion $D(T,n)^4\text{He}$ werden pro Fusionsprozeß etwa 17.6 MeV freigesetzt. Aus den unterschiedlich schweren Wasserstoffkernen entstehen demnach Heliumkerne und sehr energiereiche Neutronen, welche elektrisch neutral sind und deshalb aus dem magnetischen Einschluß entweichen können. Diese Neutronen können ihre Energie an Kühlmittel, wie z.B. Wasser oder Helium, abgeben und somit zur Energiegewinnung genutzt werden. Unter diesen Voraussetzungen ist es möglich, aus nur einem kg Deuterium/Tritium etwa 30 Millionen kWh elektrische Energie zu gewinnen. Im Gegensatz dazu würden für die Erzeugung der gleichen Elektrizitätsmenge etwa 3.5 Millionen kg Steinkohle oder 2,5 Millionen Liter Heizöl benötigt.

In einer Fusionsanlage wird der Abbrand an Deuterium aus natürlichen Vorkommen (Meerwasser) ersetzt und der durch Fusionsreaktionen umgesetzte Tritiumanteil in einer hinter der „ersten Wand“ der Plasmakammer liegenden Zone selbst erzeugt. Die ablaufenden Fusionsreaktionen bedürfen der ständigen Zufuhr neuen Brennstoffs und der gleichzeitigen Abfuhr des bei der Deuterium-Tritium-Reaktion entstehenden Heliums. Außerdem müssen die durch Wechselwirkungen zwischen dem Plasma und der Ersten Wand entstehenden Fremdgase laufend entfernt werden, um die für das Brennen erforderliche hohe Reinheit des Plasmas aufrecht zu erhalten. In einer Fusionsanlage gilt eine Leistungsexkursion als ausgeschlossen, da eine Unterbrechung der Brennstoffzufuhr, kleine Mengen an Verunreinigungen im Plasma oder sonstige Störungen das Plasma praktisch sofort zum Erlöschen bringen.

Im folgenden wird auf verschiedene Themenkreise der Fusionsforschung eingegangen, die auf der Tritiumchemie oder der Tritiumtechnologie beruhen bzw. eng mit diesen Forschungsgebieten verbunden sind.

9.1 Entwicklung von Werkstoffen

Im Rahmen der Fusionsforschung spielen Werkstofffragen eine wichtige Rolle. So müssen z.B. für die Plasma-belastete Erste Wand Werkstoffe gefunden werden, die einer hohen thermischen Belastung, der Schädigung und Aktivierung durch die bei den Fusionsreaktionen frei werdenden Neutronen und einer chemischen Erosion stand halten können. Die aus dem Magnetfeld ausbrechenden Wasserstoffionen reagieren mit der Wand, wodurch sich die erste Wand mit Wasserstoff (Deuterium und Tritium) belädt. Der Austritt von hydrierten (Kohlenwasserstoffen) bzw. oxi-

dierten (Kohlenstoffoxiden) Atomen aus der ersten Wand führt zu unerwünschten Verunreinigungen im Plasma.

Die Entwicklung und Untersuchung von Strukturwerkstoffen und hochbelastbaren Komponenten für Fusionsanlagen werden unter typischen Betriebsbedingungen durchgeführt. Zu diesen Werkstoffen gehören beispielsweise niedrig aktivierende ferritisch/martensitische Stähle. Der Einfluß starker thermischer und mechanischer Belastungen unter zyklischen Bedingungen, sowie das Auftreten von Bestrahlungsversprödungen und Radioaktivierungen sind die wesentlichen Einflußgrößen, die durch metallkundliche Charakterisierung, Bestrahlungen sowie durch die Bereitstellung nuklearer Daten- und Aktivierungsrechnungen untersucht werden. Hinzu kommen Modellierungen und Tests an Erste-Wand-Strukturen unter normalen und außergewöhnlichen Betriebszuständen, wie z.B. Plasmazusammenbrüche. Die Abhängigkeit der Tritiumaufnahme durch Wandschutzmaterialien von der Neutronendosis ist ein weiteres Problem, an dem noch gearbeitet werden muß.

Werkstoffe auf Graphitbasis weisen nur mäßige Resistenz gegenüber Neutronenbestrahlung und chemische Erosion auf. Eine Verbesserung der Eigenschaften konnte durch Beschichtung derselben mit Beryllium erzielt werden. Durch das Beryllium gelangen auch weniger Verunreinigungen in das Plasma. Allerdings muß auch ein kontinuierlich zunehmendes Tritiuminventar in der Ersten Wand in Kauf genommen werden, welches nur bei sehr hohen Temperaturen wieder ausgetrieben werden kann. Im Vergleich zu Graphit und faserverstärktem Graphit (CFC) ist die Aufnahme von Tritium durch Beryllium um den Faktor 10 - 100 höher.

9.2 Plasma/Erste Wand-Wechselwirkungen

Eine wichtige Rolle im Rahmen der Fusionsforschung spielt die Entwicklung und Erprobung von Materialien, welche im Bereich der ersten Wand den extremen Wärmeflüssen standhalten und die auch bei hohen Betriebstemperaturen vom Plasma nicht zu stark erodiert werden. In diesem Zusammenhang wurden Graphit, faserverstärkter Graphit (CFC), Wolfram und Beryllium als geeignete Materialien zum Schutz der Ersten Wand identifiziert. Die vorgeschlagenen Materialien mit niedriger Ordnungszahl tragen der Tatsache Rechnung, daß die Strahlungsverluste von Verunreinigungsatomen, die möglicherweise von der Wand in das Plasma gelangen, proportional zum Quadrat der Ordnungszahl sind. Sowohl Helium, die Asche der Fusionsreaktion, als auch Verunreinigungen, die in das Plasma gelangen, müssen laufend entfernt werden, um zu verhindern, daß durch Strahlungsverluste das Plasma zu stark abkühlt wird. Während des Betriebes des Fusions-

reaktors wird deshalb laufend ca. 99 % des zugeführten Brennstoffs wieder abgepumpt und einer Plasma-Abgasreinigungsanlage zur Prozessierung zugeführt.

Außerdem können neutrale und geladene Teilchen durch Implantation in die Erste Wand eindringen und dort festgehalten werden. Erhebliche Mengen an Tritium werden an der Oberfläche von Graphitziegeln in Form einer kodeponierten Schicht gebunden, was zu einer kontinuierlichen Zunahme des Tritiuminventars in der Maschine führt. Werden gewisse Grenzwerte erreicht, müssen Maßnahmen getroffen werden, um das Tritiuminventar zu reduzieren. Bei Lufteinbruch werden erhöhte Tritiumkonzentrationen in der ersten Wand als Sicherheitsfaktor betrachtet. Ferner wird durch die erhöhten Tritiumkonzentrationen die Entsorgung dieser Materialien zusätzlich erschwert.

Während der letzten Betriebskampagnen der JET-Maschine ist die Bildung von Flocken und Staub beobachtet worden, welche erhebliche Tritiumkonzentrationen aufwiesen. Über den Entstehungsmechanismus und die Möglichkeiten, ihre Bildung zu verhindern, ist bislang nur wenig bekannt. Dringend müssen daher Techniken entwickelt werden, die es ermöglichen, das in der Ersten Wand bzw. an Flocken oder Staub gebundene Tritium noch im Reaktor selbst unter möglichst milden Bedingungen wieder freizusetzen.

9.3 Plasmaabgasreinigung

Anlagen wie der in Planung befindliche Fusionsreaktor ITER müssen aus ökologischen und ökonomischen Gründen einen geschlossenen Brennstoffkreislauf erhalten. Während der Brenndauer des Plasmas wird nur ein geringer Prozentsatz des Deuteriums und des Tritiums zu Helium und Neutronen umgesetzt, der Rest muß mit einem Kryopumpsystem abgesaugt und nach einem Reinigungsprozeß wieder in die Maschine zurückgeführt werden. Bei den Prozessen zur Brennstoffrückgewinnung und Abgasreinigung des aus der Brennkammer kommenden Gasgemisches ist es wichtig, einen effektiven Einschluß des Tritiums sicherzustellen. Dies ist keine leichte Forderung, weil dieses Gas die Eigenschaft hat, bei hohen Temperaturen durch Metalle, bzw. metallische Wände schnell durchzudiffundieren. Die zu entwickelnden Prozesse müssen - wenn möglich - bei moderaten Temperaturen und niedrigen Drücken ablaufen, möglichst geringe Inventare aufweisen und minimale Abfallströme erzeugen. Wegen der praktisch gleichen chemischen Eigenschaften von Tritium und leichtem Wasserstoff kann bei der Entwicklung von Verfahren auf die umfassenden Erfahrungen auf dem Gebiet der Wasserstofftechnologie zurückgegriffen wer-

den. Eine Minimierung der Tritium-Freisetzung wird durch ein robustes Barrierenkonzept verwirklicht.

Da eine funktionsfähige Tritiumtechnologie für ITER nur unter Anwendung relevanter Tritiummengen und Stoffströme entwickelt und demonstriert werden kann, wurde im Forschungszentrum Karlsruhe ein komplettes Tritiumlabor für den sicheren Umgang mit Tritium im Grammbereich gebaut und in Betrieb genommen. Hier werden seit Jahren experimentelle Arbeiten zur Tritiumverfahrenstechnik unter Anwendung von Modellgasen durchgeführt. Bei den Arbeiten zum Brennstoffkreislauf wurde ein Prozeß für die vollständige Rückgewinnung der Brenngase entwickelt. Mit dem Verfahren werden bei vorzugsweise geringem Tritium-Inventar und hoher Verfügbarkeit in einfacher Form nicht nur die molekularen, sondern auch die chemisch in Form von Wasser oder Kohlenwasserstoffen gebundenen Brenngase Deuterium und Tritium möglichst direkt zurückgewonnen. Der Prozeß beruht auf der Abtrennung chemisch reinen Wasserstoffs mittels sogenannter Permeatoren, im wesentlichen ein Rohrbündel aus einer den Wasserstoff selektiv durchlassenden Palladium-Silber Legierung, gefolgt von einer katalytischen Spaltung bzw. Umwandlung der wasserstoffhaltigen Verbindungen zu Wasserstoff und anderen unschädlichen Abfallprodukten. Der katalytisch freigesetzte Wasserstoff wird ebenfalls mit einem Permeator abgetrennt und in den Reaktor zurückgeführt.

Die verschärfte Forderung von ITER, die auf den Gesamtdurchsatz bezogene Tritiumanreicherung nun auf 10^8 zu erhöhen (Tritiumkonzentration am Eintritt der Brennstoffreinigung hundert Millionen Mal höher als am Austritt des Systems) hat zu der Erkenntnis geführt, daß hierzu weitere Reinigungsstufen erforderlich sind. Aus dem Forschungszentrum Karlsruhe kam daher der Vorschlag, drei hintereinander geschaltete kontinuierlich betriebene Prozeßschritte zu nutzen. Mit dem erweiterten, CAPER genannten Verfahren soll demnächst die sichere, den gestiegenen Anforderungen von ITER gerecht werdende integrale Plasma-Abgas-Reinigung unter realistischen Bedingungen auf technisch relevanter Skala demonstriert werden.

Im Rahmen der oben aufgeführten technologischen Entwicklungen fallen eine Vielzahl von Fragen an, die experimentell angegangen werden müssen. So müssen z.B. Pumpen, die für den Einsatz in tritiumführenden Systemen bestimmt sind und die eine Abhängigkeit von der Gasart zeigen, mit allen Gasen, also auch den Isotopen Wasserstoffen charakterisiert werden. Nur so ist es möglich, bei der Zusammenstellung von einer Pumpenkombination die richtige Auswahl zu tref-

fen, um gewisse Vakua zu erzielen. In gleicher Weise ist es erforderlich, Permeatoren mit allen isotopen Wasserstoffen zu untersuchen, um bei der Auslegung von Anlagen die richtige Dimensionierung der Komponenten zu ermitteln. Ferner ist es wichtig, den Reaktionsmechanismus und die Kinetik aller möglichen strahleninduzierten radiochemischen Reaktionen zu untersuchen. Dies kann von großer Bedeutung sein für die Analytik und Bilanzierung des Tritiums bzw. für die Prozeßführung, wenn z.B. Reaktionsprodukte einen Katalysator vergiften. Ein weiteres Forschungsthema betrifft die Bestimmung der an Katalysatoren haftenden Tritiuminventare.

9.4 Tritiumspeicherung und -handhabung

Eine besonders sichere Methode für die Lagerung isotoper Wasserstoffe beruht auf der Bildung von Metallhydriden, welche bei Zimmertemperatur einen sehr geringen Dissoziationsdruck aufweisen und bei niedrigen Temperaturen das gebundene Gas wieder freisetzen. Als Referenzgetter galt bis vor kurzem Uran. Wegen der Kontrollen, denen spaltbares Material unterliegt, ist man jedoch von diesem Getter wieder abgekommen. Der gegenwärtige Lösungsvorschlag sieht vor, anstelle von Uran eine Legierung aus Zirkon und Kobalt zu verwenden. Zwar hat das Hydrid dieses Getters bei Umgebungstemperatur einen um etwa zwei Größenordnungen höheren Dissoziationsdruck als Uranhydrid, der Druck ist jedoch noch hinreichend niedrig, um eine sichere Lagerung des Tritiums zu gewährleisten. Zu den günstigen Eigenschaften von ZrCo zählt u.a., daß dieses Getter deutlich weniger pyrophor ist als Uranpulver. Obwohl inzwischen bereits langjährige Erfahrungen im Umgang von ZrCo mit Tritium vorliegen, ist es noch erforderlich, alle einschlägigen physikochemischen Eigenschaften dieses Gettermaterials eingehend zu untersuchen, um es endgültig für den Einsatz im Betrieb mit Tritium zu qualifizieren.

9.5 Tritiumanalytik

Zur Aufklärung der chemischen Zusammensetzung eines Gasgemisches, welches aus Verbindungen mit mehreren isotopen Wasserstoffen besteht, ist in der Regel der Einsatz mehrerer analytischer Methoden erforderlich. Auf einige der gebräuchlichsten analytischen Methoden, die weltweit in Tritium-Laboratorien zum Einsatz kommen, wird im Folgenden kurz eingegangen.

Die am meisten verbreitete analytische Methode für die qualitative und quantitative Erfassung von Isotop-substituiertem, molekularem Wasserstoff ist die Massenspektrometrie. Als besonders praktisch und wirtschaftlich hat sich die Verwendung eines zentralen Gerätes, welches über bis zu 150 m lange Kapillarleitungen Proben aus verschiedenen Anlagen sequentiell entnimmt und

analysiert, erwiesen. Diese Verfahrensweise ist besonders wirkungsvoll, wenn das zu analysierende Gas vornehmlich aus molekularen isotopen Wasserstoffen und Helium besteht.

Wenn die Gasgemische neben isotopen Wasserstoffen noch andere Verbindungen enthalten, deren Protium ebenfalls Isotopen-substituiert ist, dann ist die Massenspektrometrie allein nicht mehr ausreichend. Unter diesen Umständen müssen weitere analytische Methoden herangezogen werden, wie z.B. die Gaschromatographie eventuell in Kombination mit einer Ionisationskammer. Mit einer entsprechend geeigneten Ionisationskammer ist diese Methode zwar äußerst empfindlich, sie hat aber auch den Nachteil, daß in der Regel eine Trennung von polytritierten Verbindungen höheren Molekulargewichts nicht möglich ist. Ferner ist wegen der Selbststradiolyse polytritiert organischer Verbindungen die Synthese von Referenzsubstanzen in den meisten Fällen sehr schwer durchführbar und in der Praxis wenig sinnvoll.

Eine besonders zukunftssträchtige Methode ist die Laser-Raman-Spektrometrie. Sie ermöglicht die zerstörungsfreie Analyse einer Vielzahl von Verbindungen und erlaubt eine quantitative Datenauswertung auf der Basis von „first principles“. An der Entwicklung eines kommerzielles Gerätes wird noch gearbeitet. Auch müssen die Nachweisgrenzen noch verbessert werden und metallische optische Zellen gebaut werden, die den sicheren Einschluß von radioaktiven Gasen auch bei mehreren optischen Fenstern gewährleisten.

Für die quantitative Ermittlung der Tritiummenge in einem Behältnis stellt die Kalorimetrie eine sehr zuverlässige Methode dar. Die Methode, die auf der genauen Messung der Zerfallswärme des Tritiums beruht, gestattet eine zerstörungsfreie Bestimmung von Tritium im Bereich von einigen wenigen Mikrogramm bis hin in den Grammbereich. Dabei ist keine chemische oder physikochemische Behandlung oder Handhabung der Probe vonnöten, was als großer Vorteil anzusehen ist. Dem gegenüber steht, daß Aussagen über die chemische Form und die isotopische Reinheit des Tritiums nicht geliefert werden können. Bei der Auswertung der Daten ist ferner zu beachten, daß andere radioaktive Nuklide oder Phasenänderungen des Tritium-Gettermaterials bzw. chemische Vorgänge im Behältnis die Messung beeinflussen können.

Eine Vielzahl tritierter Gase sowie nicht-tritierter Gase in einer Tritiumatmosphäre können auch mit der Infrarotspektroskopie quantitativ analysiert werden. Mit Interferenzfiltern auf einer rotierenden Scheibe ist es möglich, sequentiell den Lichtstrahl durch einen Referenz bzw. einen Meß-

filter zu leiten und dadurch die Extinktion weitgehend unabhängig von Änderungen an der Lichtquelle oder der Transmission durch die Küvette zu machen. Mit der Fourier-Transform Infrarotspektroskopie können außerdem Isotopen-substituierte Verbindungen identifiziert und - unter Vorbehalt wegen der Druckabhängigkeit der Messung - auch quantitativ nachgewiesen werden.

Sehr effektiv läßt sich Tritium in Graphit und anderen brennbaren Materialien durch vollständige Verbrennung in einem feuchten Luftstrom mit nachgeschaltetem CuO-Bett bei Temperaturen über 800 °C quantitativ ermitteln. Das freigesetzte Tritium wird als Wasser in einer Gasflasche aufgefangen und durch Flüssigszintillation bestimmt.

Grundsätzlich besteht weiterhin Bedarf an der Entwicklung zusätzlicher analytischer Methoden. Zu den besonderen Merkmalen einer guten Tritiumanalytik zählen das Auskommen mit einer geringen Probenmenge (möglichst kleines Tritiuminventar), die Analyse ohne Veränderung oder Zerstörung der Probe, die Vermeidung der Zugabe von neuen Reagenzien und die Kompatibilität der Methode mit ionisierenden Strahlen. Zuverlässige Methoden für den quantitativen Nachweis von tritiiertem Wasser im Routinebetrieb müssen noch entwickelt werden. Ein weiteres Problem stellt die Bestimmung sehr geringer Tritium-Konzentrationen dar, wo es wegen der sogenannten „memory“ Effekte leicht zu fehlerhaften Ergebnissen kommt.

9.6 Tritiumgewinnung und -extraktion aus dem Blanket

Das in der Fusionsanlage in der DT-Reaktion verbrannte Tritium soll im Blanket wieder ersetzt werden. Dazu müssen die in dieser Reaktion freigesetzten Neutronen in Lithium aufgefangen werden. Die Energie der Neutronen, die ca. 80 % der pro Fusionsprozeß freigesetzten Energie tragen, soll außerdem zur Stromerzeugung genutzt werden. Dazu wird in dem das Plasma allseitig umgebenden Mantel die durch schnelle Neutronen deponierte Energie über Wärmetauscher abgeführt und in konventioneller Weise zur Erzeugung elektrischer Leistung verwendet. Die Umsetzung der Bewegungsenergie der Neutronen in Wärmeenergie erfolgt durch Stöße der Neutronen mit den Atomkernen des Materials, aus dem der Brutmantel aufgebaut ist. Im Zuge der Aufrechterhaltung des Brennstoffkreislaufs wird es darauf ankommen, mehr Tritium im Fusionsreaktor zu erbrüten als in der Fusion verbraucht wird. Dies ist zu verstehen, wenn man bedenkt, daß bei der Extraktion des Tritiums aus dem Blanket, wie auch bei der Reinigung des Brennstoffs und bei der Rückgewinnung des Tritiums aus den tritiierten Verbindungen aus dem Plasmaabgas zwangsläufig Verluste entstehen werden. In die Betrachtung müssen außerdem noch die Zerfalls-

verluste des im Reaktor vorhandenen Tritiuminventars einbezogen werden.

Nur mit einem Blanket aus flüssigem Lithium kann auf einen Neutronenmultiplikator verzichtet werden. In allen Feststoff-Blanketkonzepten hingegen ist Beryllium oder Blei als Multiplikator zwingend erforderlich, um einen Tritiumbrutfaktor von über eins zu erzielen. Ein Feststoff-Blanket muß aufgrund von Strahlenschäden, die im Laufe der Zeit auftreten, nach einer gewissen, längeren Betriebszeit ausgewechselt werden. Um dies zu erleichtern, ist das Blanket in einem Tokamak-Reaktor in Segmenten aufgeteilt, die einzeln herausgenommen werden können.

In einer 1995 im europäischen Rahmen durchgeführten Blanketauswahlverfahren sind a) ein heliumgekühltes Keramikblanket mit tritiumbrütenden Lithiumorthosilikat - Kügelchen als Brutstoff und Beryllium - Kügelchen als Neutronenmultiplikator und b) ein wassergekühltes Pb-⁷Li-Flüssigmetall-Blanket zur weiteren Bearbeitung selektiert worden. Alle künftigen Europäischen Forschungsarbeiten sind demnach nur noch auf diese beiden Konzepte ausgerichtet.

Das in Deutschland entwickelte Konzept für den zwischen dem Plasma und den Magnetspulen angeordneten Tritium - Brutmantel sieht eine Kombination aus Kugelschüttungen aus dem keramischen Brutmaterial Lithiumorthosilikat und dem Neutronenmultiplikator Beryllium vor. Das durch Neutroneneinfang in Lithium entstehende Tritium diffundiert durch den Festkörper an die Oberfläche, wo es von einem vorbeiströmendem Spülgas (Helium mit 1 % Wasserstoff) mitgenommen wird. Über den Freisetzungsmechanismus des erbrüteten Tritiums sind noch viele offene Fragen zu klären, die nur unter realistischen Bedingungen, d.h. mit Tritium, erforscht werden können. Konkret sind zu erforschen, welche Gas/Festkörper Reaktionen mit dem Spülgas, insbesondere dem Wasserstoff, und der Brutkeramik stattfinden und wie sich diese auf die Freisetzungsgeschwindigkeit des Tritiums auswirken. Die Auswirkungen des Feuchtegehalts im Spülgas auf die Tritiumextraktion aus dem Blanket sind ebenfalls noch nicht hinreichend geklärt. Im technischen Bereich ist darüber hinaus ein Verfahren zur Extraktion des Tritiums aus dem Blanket zu entwickeln und zu demonstrieren. Eine besondere Herausforderungen an die Verfahrensentwickler stellen hier die sehr hohen Gasdurchsätze bei vergleichsweise niedrigen Tritiumkonzentrationen im Spülgas dar. Im allgemeinen ist noch zu vermerken, daß eine schnelle Austreibung des Tritiums aus dem Brutstoff sehr wünschenswert ist, damit das Tritiuminventar im Blanket möglichst gering bleibt.

Die Tritiumfreisetzung aus der Brutkeramik ist ein komplizierter Prozeß, der abhängig ist von der Gaszusammensetzung des Spülgases und den Verunreinigungen in demselben, der Temperatur, der Oberfläche und der Oberflächenbeschaffenheit der Brutkeramik, dem Herstellungsverfahren und der Keramikdichte, der Nutzungszeit der Keramik, usw. In einem sehr umfangreichen, international abgestimmten Forschungsprogramm werden gegenwärtig die optimalen Brutstoffe ermittelt. Zu den in die engere Auswahl genommenen Tritium-brütenden Keramiken gehören Li_2O , Li_2ZrO_3 , Li_4SiO_4 , LiAlO_2 , Li_2TiO_3 . Für die Auswahl einer geeigneten Blanketkeramik werden Eigenschaften verglichen, wie z. B. die spezifische Lithiumdichte, die chemische und thermische Beständigkeit, die Tritium-Freisetzungseigenschaften, die Bruchfestigkeit bzw. das mechanische Verhalten von Schüttungen auch in Abhängigkeit vom Abbrand, das thermodynamische Verhalten auch im Mehrkomponentensystem, die Verfügbarkeit eines kommerziellen Herstellungsverfahrens, der Wärmedehnungskoeffizienten, die Wärmeleitfähigkeit, usw. Wegen der Vielzahl an Entscheidungskriterien ist es bislang noch nicht gelungen, sich auf eine einzelne Keramik festzulegen.

Zu den Vorteilen eines flüssigen Blankets gehören die Strahlenbeständigkeit, die Möglichkeit der *in situ* Reinigung mit einem Getter und die Tatsache, daß die Tritiumextraktion außerhalb des Blankets erfolgen kann. In Kauf genommen werden müssen allerdings mögliche Wechselwirkungen mit magnetischen Feldern, die Notwendigkeit das Blanket ununterbrochen flüssig halten zu müssen und das wegen potentieller Leckagen höhere Sicherheitsrisiko. Obwohl flüssiges Lithium das naheliegendste Blanket wäre, wird es wegen seiner hohen Reaktivität mit Luft, Wasser und Beton nicht in Betracht gezogen. Favorisiert wird gegenwärtig die flüssige, eutektische Mischung $\text{Pb-}^7\text{Li}$, die eine sehr viel geringere chemische Reaktivität als Lithium aufweist. Im Vergleich zu Lithium hat $\text{Pb-}^7\text{Li}$ die Nachteile der höheren Dichte sowie der Gefahr der Aktivierung von Bismut in der Legierung zu Polonium. Tritium, daß sehr geringe Löslichkeit in $\text{Pb-}^7\text{Li}$ ausweist, kann aus dem flüssigen Metall mit einem fest installierten Getter extrahiert werden. Ein anderes Tritiumextraktionskonzept sieht vor, das Tritium durch Permeation vom $\text{Pb-}^7\text{Li}$ Blanket in einen flüssigen KNa-Kreislauf zu transferieren und hier mit einer Kaltfalle das Tritium als Kaliumtritid zu fällen. Um das Tritium freizusetzen, wird die Kaltfalle periodisch aufgewärmt.

Aus dem Blanketkühlmittel, das stets Tritium enthalten wird, muß das Tritium entfernt werden, um die Permeation im Wärmetauscher zum Turbinenkreislauf so gering zu halten, daß die maximal zulässige Tritiumkonzentration im Wasser nicht überschritten wird. Auch hierzu müssen

Konzepte entwickelt und entsprechende Untersuchungen durchgeführt werden.

Die Europäer starteten bereits 1958 im Rahmen des EURATOM Vertrages ein gemeinsames Forschungsprogramm, das die thematisch spezialisierten Forschungsarbeiten in den nationalen Fusionslaboratorien der Mitgliedstaaten, den Aktivitäten in den Gemeinsamen Forschungsstellen und den Betrieb sowie Nutzung des Großexperimentes JET, in Großbritannien koordiniert. Mit Weltrekordwerten im September 1997 von mehr als 16 MW Fusionsleistung unter Einsatz eines Deuterium/Tritium-Gemisches hat JET bereits die in dieses Experiment gesetzten Erwartungen erreicht bzw. übertroffen. Ein wichtiger Maßstab für diesen Erfolg ist auch das Verhältnis von erzeugter Fusionsleistung zur aufgewendeten Heizleistung, die 50 % betrug, d.h. mehr als das Doppelte des bisher erreichten.

Die Fusionsforschung in Deutschland ist Bestandteil des europäischen Technologieprogramms. Ein wesentlicher Teil der Arbeiten ist im Forschungsverbund Fusion der Helmholtz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren zusammengefaßt. Mitglieder des Forschungsverbundes sind das Forschungszentrum Karlsruhe (FZK), die Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) Darmstadt, das Max-Planck-Institut für Plasmaphysik (IPP) und das Forschungszentrum Jülich (FZJ).

Zu den programmatisch zwischen den Mitgliedern koordinierten Schwerpunkten zählen die Supraleitungsmagnete, die Plasma-Wand-Wechselwirkungen, das Plasma-Heizverfahren, der Tritium-Brennstoffkreislauf, mehrere Blanketkonzepte und die Entwicklung strahlenbeständiger Materialien. Das Experimentvorhaben Wendelstein 7-X, das in Greifswald entsteht, hat die Finanzierungszusage der Europäischen Kommission erhalten.

Die Forschungsanlage Jülich hat sich auf das Teilgebiet der Plasma/Wand konzentriert. Der Tokamak TEXTOR wurde eigens für diese Versuche konzipiert. Ziele der Arbeiten sind einerseits die Untersuchung der Eigenschaften des Plasmarandes und andererseits die Entwicklung eines Wandsystems, welches den hohen Wärme- und Teilchenflüssen langfristig standhält und mit den plasmaphysikalischen Anforderungen verträglich ist. Für die Entwicklung und Erprobung von technischen Anlagen mit Tritium steht in Karlsruhe ein Tritiumlabor (TLK) zur Verfügung, welches 1995 mit Tritium in Betrieb genommen wurde. Das in erster Linie für technische Forschungsarbeiten ausgelegte TLK ist in Europa das derzeit alleinige im zivilen Bereich.

Erst die Verfügbarkeit einer umfangreichen Infrastruktur, die u.a. eine Isotopentrennanlage, ein Tritiumlager, eine Tritium Transfer Station, eine gut ausgerüstete Tritiummeßtechnik umfaßt, ermöglicht die Durchführung von technischen Experimenten. Im TLK werden z.Z. Verfahren zur Plasma-Abgas-Reinigung, Tritium Gewinnung aus dem Brutmantel und Detritierung von Erste Wand Materialien entwickelt. In Bezug auf Gaszusammensetzung sind Verfahren zu entwickeln, die weitgehend von der Auslegung jeweiliger Fusionsanlagen unabhängig sind. Die Verfahren müssen flexibel sein, sie werden mit Tritium demonstriert und im Hinblick Tritiuminventar bei möglichst hohem Durchsatz minimiert. Parallel dazu wird Grundlagenforschung auf den Gebieten der Tritiumspeicherung in intermetallischen Legierungen, Laser-Raman-Spektrometrie, Tritium im Erste Wand Material, usw. betrieben.

Das Fusionsprogramm in USA wird vornehmlich in Großforschungseinrichtungen, aber auch in zahlreichen Universitäten durchgeführt. Für die Forschung stand bis vor kurzem ein mit JET in der Größe vergleichbarer Tokamak-Reaktor in Princeton zur Verfügung. Als Alternativkonzept wird noch - unter dem Einfluß militärischer Interessen - das Prinzip des Trägheitseinschlusses verfolgt.

Die Fusionsforschung in Japan wird von verschiedenen Ministerien und einem nationalen Fusionsrat koordiniert. Wichtiger Bestandteil des Programms ist der von JAERI konzipierte und erfolgreich betriebene Tokamak JT 60. Neben diesen Arbeiten wird auch von Universitäten in beträchtlichem Umfang Fusionsforschung betrieben. Tritiumarbeiten werden vor allem im Tritium Process Laboratory in Naka durchgeführt. Hervorzuheben ist die starke Beteiligung der japanischen Industrie an der Entwicklung wichtiger Komponenten.

Die Arbeiten in der GUS werden fast ausschließlich in staatlichen Instituten durchgeführt. Traditionsgemäß liegt ein Schwerpunkt der Arbeiten auf dem Gebiet der Plasmaphysik. Tritiumarbeiten werden hauptsächlich in ehemaligen militärischen Anlagen vorgenommen.

Unter anderem aufgrund der angespannten Weltwirtschaftslage wird derzeit erwogen, anstelle des ursprünglich geplanten ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) Reaktors, die Vorstufe zum kommerziellen Reaktor DEMO, eine in der Dimension kleinere, weniger kostenintensive Maschine mit reduzierter Ausgangsleistung zu bauen. Ferner ist in Europa beschlossen

worden, die sehr erfolgreiche, weltweit größte Experimentieranlage JET auch über das Jahr 2000 hinaus, allerdings unter einer anderen organisatorischen Struktur, weiter zu betreiben.

Die wichtigsten tritiumtechnologischen Fragen, die noch gelöst werden müssen, sind die Begrenzung des Tritiuminventars in der ersten Wand und den Flocken in der Fusionsanlage, die Erzeugung bzw. Abtrennung der Brennstoffkomponente Tritium aus Lithiumverbindungen im Blanket und die Demonstration im Langzeitbetrieb der Rückführung des unverbrannten Brennstoffs bei gleichzeitig extrem hohen Dekontaminationsfaktor.

Von entscheidender Bedeutung für die Effizienz und Zuverlässigkeit von Verfahren im Fusionsbrennstoffkreislauf ist der Einsatz geeigneter Prozeßanalytik. Vorgesehen sind in-line und on-line Techniken auf der Basis von Massenspektrometrie, Radiogaschromatographie, Ion-Zyklotron-Resonanz Massenspektrometrie, Laser-Raman-Spektrometrie, d.h. Meßmethoden, die sich besonders für die quantitative und qualitative Bestimmung kleiner Mengen von isotopen Wasserstoffen und deuterierten/tritierten Verunreinigungen eignen.

Neuere Entwicklungen befassen sich auch mit der Laser-induzierten Fusion. Mit Hilfe von zahlreichen sehr leistungsstarken Laser kann man einem System sehr rasch hohe Energiebeträge zuführen und den Fusionsbrennstoff zünden.

9.7 Bewertung und Perspektiven

Die kontrollierte Kernfusion stellt eine der wenigen Optionen für eine nahezu unbegrenzte Energieversorgung dar. Hauptvorteile der Nutzung der Kernfusion sind die unbegrenzt verfügbaren Brennstoffvorräte (Deuterium und Lithium), die sehr hohe Energieausbeute (1 g Brennstoff entspricht derjenigen von 10000 l Heizöl), sowie die Tatsachen, daß eine Fusionsanlage nicht durch einen Leistungsanstieg zerstört werden kann und klimaschädliche Abgase nicht gebildet werden.

Es besteht kein Zweifel, daß zur langfristigen Energieversorgung die Option Kernfusion offengehalten werden muß. Als wesentlicher Entwicklungsbereich ist die Bildung und das Verhalten von Radionukliden zu werten, und auch hier spielen radiochemische Fragen eine wichtige Rolle. Als Beispiele seien nur genannt der Brennstoffkreislauf im Reaktor, der den Umgang mit hochspezifischem Tritium-Gas und die Behandlung der Brutmedien einschließt, die Blanket-Chemie (sowohl Flüssigmetall- wie auch Feststoff-Blankets), die Chemie und die Radionuklid-Bildung in

der ersten Wand, die Reinigung der Plasmaabgase einschließlich der ^3H -Rückgewinnung und die ^3H -Entfernung aus dem Kühlmittel Wasser. Weitere Themen ergeben sich aus der notwendigen Minimierung einer ^3H -Abgabe nach außen, z.B. während des Reaktorbetriebes, wozu entsprechende Rückhalteinrichtungen zu qualifizieren sind; schließlich stellen sich noch Fragen wie die Dekontamination ^3H -kontaminierter Oberflächen und die geeignete Behandlung ^3H -haltiger Abfälle. Der zufriedenstellenden Lösung dieser und anderer Fragen wird bei der Entwicklung dieser Technologie zu einer kommerziell nutzbaren Energietechnik eine entscheidende Bedeutung zukommen, vor allem im Hinblick auf die Begrenzung von Radionuklid-Freisetzungen auf extrem niedrige Werte, sowohl im bestimmungsgemäßen Betrieb wie auch in Unfallsituationen. Chemische Reaktionen und stoffliches Verhalten spielen dabei eine entscheidende Rolle und sind oft von spezifisch radiochemischen Problemstellungen geprägt; eine aktive Betätigung von Nuklearchemikern auf diesem Gebiet ist daher Voraussetzung für eine erfolgreiche Bearbeitung.

Anlage 10: Strahlenschutz und Radioökologie

Strahlenschutz und Radioökologie können auf eine jahrzehntelange erfolgreiche wissenschaftliche und technische Tätigkeit zurückblicken. Darüber hinaus ist in den letzten Jahren ein steigendes Interesse an weiterführenden Forschungsarbeiten zu verzeichnen, deren Themen vielfach nuklearchemischer Natur sind. Dies ist nicht nur durch ein gestiegenes Umweltbewußtsein zu erklären, sondern hängt mit einer Fülle neuer Problemstellungen zusammen, die erst in jüngster Zeit aktuell geworden sind. Es handelt sich dabei um Probleme, die aufgrund von Unfällen sowie militärischen und zivilen radioaktiven Altlasten, bei der Entwicklung neuer Technologien zur Sanierung solcher Altlasten, aufgrund vermehrter Anwendung von radioaktiven Stoffen in Medizin und Radiopharmazie, bei steigenden Anforderungen an Bewertung der Sicherheit nuklearer Endlager und die Berücksichtigung erhöhter natürlicher Radioaktivität im Strahlenschutz auftreten. Auch Probleme in anderen Forschungsdisziplinen, bei denen radioökologische Verfahren mit Erfolg eingesetzt werden, haben zu dieser Entwicklung beigetragen.

Angesichts der Vielzahl der aktuellen Problemstellungen wird im folgenden eine grobe Übersicht über die für nuklearchemische Forschungsarbeiten wesentlichen Themen aus Strahlenschutz und Radioökologie gegeben.

Die möglichen Ziele nuklearchemischer Forschung im Strahlenschutz und in der Radioökologie können beschrieben werden als die Vertiefung der Kenntnisse über das Verhalten und den Verbleib radioaktiver Substanzen in Atmosphäre, Hydrosphäre, Geosphäre und Biosphäre. Untersuchung von Transportprozessen und des Verbleibs radioaktiver Stoffe in der Umwelt und die Anwendung radioaktiver Isotope sowie die Entwicklung radioanalytischer und radiometrischer Verfahren zur Untersuchung des Stofftransports in der Umwelt. Dies betrifft nicht nur radioaktive Stoffe, sondern die allgemeine Untersuchung von Schadstoffen in der Umwelt. Entwicklung und Anwendung neuer Meß- und Analyseverfahren und Tracertechniken in der Schadstoffökologie.

10.1 Analytik der Radionuklide

Für die Radioökologie, die das Verhalten radioaktiver Stoffe in der Umwelt sowie Ausbreitungswege und Expositionspfade (Nahrungskette) bis hin zum Menschen erforscht, stellt die Radioanalytik die methodische Grundlage zur Erfassung von Radionukliden in allen natürlichen und künstlichen Kompartimenten dar. Aus der großen Anzahl der zu untersuchenden Radionukli-

de seien hier als Schlüsselnuklide ^3H , ^{14}C , ^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{129}I , $^{135,137}\text{Cs}$, ^{237}Np , ^{241}Am sowie die Th-, U- und Pu-Isotope mit ihren Zerfallsprodukten genannt. Alle diese Nuklide sind sowohl von der Durchführung der Analytik als auch von der Beschreibung ihrer Vorkommen, lokalen Ablagerungen, Transportwege und Transferfaktoren thematisch nach wie vor hochaktuell. Von besonderem Interesse ist die Entwicklung kostengünstiger Schnellverfahren zur Bestimmung von Radionukliden aus dem Brennstoffkreislauf. Bei den extrem langlebigen Nukliden besteht weiterhin ein Bedarf für die Entwicklung von Meßverfahren mittels kernchemischer, massenspektrometrischer und atomphysikalischer Techniken. Dieser Themenbereich umfaßt die Entwicklung von Methoden, die Weitergabe des Know-How's und systematische Untersuchungen von Umweltmaterialien. Die Analytik muß dabei auch auf die Beschreibung der Speziation und des biochemischen Verhaltens der Radionuklide in den natürlichen Stoff-Kreisläufen abzielen.

10.2 Entsorgung, Decommissioning und Endlagerung

Für den sicheren Abbau kerntechnischer Anlagen und die Entsorgung radioaktiver Abfälle bis hin zur Endlagerung sind in großem Umfang nuklearchemische Forschungsarbeiten zur Entwicklung und Optimierung von Rückhalteverfahren bei Abbau, Transport und Lagerung kontaminierter und aktivierter Materialien erforderlich. Zur Festlegung von Randbedingungen für eine sichere Endlagerung und zur Quantifizierung der damit verbundenen Risiken müssen Speziation, Retentionsverhalten und Migration von Radionukliden im Endlager unter der Annahme verschiedenster Ereignispfade für eine Vielzahl von chemischen Umweltbedingungen quantitativ und zeitlich extrapolierbar beschrieben werden.

Im Hinblick auf die Wiederverwendung von Reststoffen aus dem Abbau kerntechnischen Anlagen bildet die Entwicklung der Analytik zur Erfassung der radioaktiven Belastung dieser Materialien und damit zur Erarbeitung von Kriterien zur Freigabe für die Wiederverwendung einen weiteren Schwerpunkt nuklearchemischer Forschung. Hier sind insbesondere auch Fragen der Qualitätssicherung der Strahlungsmeßtechnik und der statistischen Bewertung der Meßergebnisse (Erkennungs- und Nachweisgrenzen sowie Vertrauensbereiche) von ausschlaggebender Bedeutung.

10.3 Uranbergbau und radioaktive Altlasten

Die Problematik der Folgen des Uranbergbaus hat der Strahlenexposition durch natürliche radioaktive Stoffe aus den Zerfallsreihen einen völlig neuen und hohen Stellenwert gegeben. Unauf-

schiebbar und in großem Umfang müssen Altlasten aus dem Uranbergbau und anderen bergmännischen Aktivitäten erfaßt, Gefährdungen beschrieben und bewertet und Sanierungskonzepte entwickelt werden. Dies erfordert die Erforschung von Transportphänomenen der verschiedenen Radionuklide der Zerfallsreihen, ihr Verhalten in der Umwelt und ihre Wege zum Menschen. Migration und Differenzierung von ^{226}Ra in natürlichen Transportprozessen und die Ausbildung von Ungleichgewichten seien als Beispiel angeführt. Hier können nuklearchemische Methoden, z. B. die Alpha-Spektrometrie, wesentliche Beiträge zur Lösung der anstehenden Probleme leisten.

Auch die Frage der Strahlenexposition durch Radon hat in den Bundesländern Sachsen und Thüringen aufgrund der geologischen Gegebenheiten und der bergbaulichen Vergangenheit ein besonderes Gewicht. Die Verbesserung der Analytik von Radonisotopen und ihren Folgeprodukten sowie generell die Entwicklung von Nachweisverfahren und -methoden des Umweltmonitorings sollte daher in der Nuklearchemie ein Schwerpunkt aktueller Forschung sein.

10.4 Unfallfolgen und militärische Altlasten

Die Beschreibung der Folgen des Reaktorunfalles von Tschernobyl und die Entwicklung von Methoden zum sicheren Einschluß des Unglücksreaktors und zur Behebung oder Minimierung schädigender Auswirkungen der durch den Unfall bedingten großflächigen Kontaminationen in seiner Umgebung sind auch mittelfristig von höchster Aktualität. Beträchtliche Anstrengungen erfordern zudem die teilweise erst in jüngster Zeit bekannt gewordenen Altlasten aus der Waffenproduktion, die sowohl durch mangelnden Umweltschutz im Routinebetrieb, unsachgemäße Entsorgung nuklearer Komponenten als auch durch Unfälle mit Radioaktivitätsfreisetzung verursacht wurden. Auch die Reduzierung der Kernwaffenarsenale erfordert umfangreiche Forschungs- und Entwicklungsarbeiten, um die waffenfähigen Materialien für die militärische Nutzung unbrauchbar zu machen, zu verwerten und/oder zu entsorgen. Nicht zuletzt sind allgemeine Fragen der Erhöhung der Sicherheit bei der nuklearen Energiegewinnung, z.B. der Beherrschbarkeit von Kernschmelzen, aktuell. Untersuchungen zur Beurteilung und Behebung von Unfallfolgen und militärischer Altlasten sowie zur Sicherheit der nuklearen Energiegewinnung werden überwiegend in Form interdisziplinärer internationaler Kooperationen durchgeführt, zu denen die Nuklearchemie wesentliche Beiträge leisten kann.

Aktuelle Themen sind die Aerosolbildung unter Unfallbedingungen und die Bildung und Chemie

heißer Teilchen. Bei großflächigen Kontaminationen und Fall-Out-Bedingungen sind radioökologische und radioanalytische Fragestellungen nach Resuspension, Migration und Speziation, hier insbesondere von Transuranen, von Bedeutung. Andere langlebige Nuklide gewinnen als Langzeitindikatoren zunehmende Bedeutung bei der quantitativen Erfassung von Emissionen und zur retrospektiven Dosimetrie bei Unfällen und im Normalbetrieb (^{99g}Tc , ^{129}I) und als Aktivierungsprodukte bei Kernexplosionen (^{36}Cl , ^{41}Ca)

10.5 Radioökologische Probleme der Fusionsenergie

Die Forschungsarbeiten zur Entwicklung der Fusionsenergie benötigen in beträchtlichem Maße nuklearchemische Expertise. Es fehlen heute noch in großem Umfang Kernreaktionsdaten, insbesondere für sekundäre Reaktionen an Strukturmaterialien von Fusionsreaktoren, die es erlauben, die Produktion von langlebigen Aktivierungsprodukten quantitativ zu beschreiben und ihr Verhalten in der Umwelt bei unfallbedingten Freisetzungen und im Normalbetrieb von Fusionsreaktoren abzuschätzen. Hauptthema ist aber die Emission von ^3H unter Normalbedingungen und Unfallbedingungen und das Verhalten von ^3H in der Umwelt. Hier ist z. B. die ^3H -Wiederverfügbarkeit nach Deposition zu nennen. Die Erfahrungen der jüngsten Zeit haben gezeigt, daß eine qualitativ hochwertige und zuverlässige ^3H -Analytik nur durch kontinuierliche Forschungsaktivitäten auf diesem Gebiet unter Erhalt und Weitergabe des benötigten Know-hows verfügbar gemacht werden kann.

10.6 Metabolismus von Radionukliden und Spurenelementen

Die Beschreibung des Weges radioaktiver Stoffe zum Menschen und die quantitative Beschreibung und Bewertung der durch die Aufnahme von Radionukliden verursachten Strahlenexposition erfordert die detaillierte Kenntnis des Metabolismus vieler Elemente des Periodischen Systems in allen in Natur und Technik vorkommenden Verbindungszuständen. Dies setzt u.a. voraus, daß die chemische Zusammensetzung des Organismus vollständig beschrieben ist, und daß zuverlässige Daten über Aufnahme, Verarbeitung und Abgabe aller Elemente zur Verfügung stehen. Derartige Daten erlauben es dann, den sog. „Reference Man“ zu beschreiben und zur Grundlage der Modellierung der Strahlenexposition zu machen.

In der element-analytischen Beschreibung der menschlichen Gewebe und Körperflüssigkeiten spielen nuklearchemische Methoden in Form der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) eine herausragende Rolle. Bei der Analyse biologischer Matrices kommt der Vorteil der hohen Blind-

wertfreiheit dieser Methode voll zum Tragen. Dies wird ihr bei der Revision des „Reference Man“, dessen Spurenelementdaten aufgrund von Blindwertproblemen in den frühen Analysen weitgehend überholt sind, zugute kommen.

Derartige Untersuchungen gehen über die Beschreibung von normalen Elementhäufigkeiten hinaus und erfordern auch die Quantifizierung anthropogener Spurenelement-Expositionen des Organismus und der Umweltkompartimente. Heute müssen sie begleitet sein von Untersuchungen zur Speziation von Radionukliden und Spurenelementen.

Untersuchungen des Spurenelement-Metabolismus und - bezogen auf Unfallfolgen - des Metabolismus heißer Teilchen können nur mit Hilfe von Tracer-Experimenten durchgeführt werden. Eine besondere Rolle werden in diesem Zusammenhang extrem langlebige Nuklide als Tracer spielen, die - wie z.B. ^{26}Al - nach Einsatz geringster Aktivitäten und dadurch bedingt vernachlässigbarer Strahlenexposition zur *in vivo* Untersuchung des Spurenelementmetabolismus eingesetzt werden können. Derartige Fragestellungen der Radioökologie und des Strahlenschutzes können nur in enger Zusammenarbeit mit Radiopharmazie und Nuklearmedizin unter Anwendung nuklearchemischer Methoden bearbeitet werden.

10.7 Bewertung und Perspektiven

Der Strahlenschutz und Radioökologie sind in Deutschland geprägt von der Ausgestaltung des praktischen Strahlenschutzes in Wahrnehmung gesetzlicher Aufgaben (hier z.B. Strahlenschutzvorsorgegesetz und Strahlenschutzverordnung). Dadurch bedingt ergibt sich eine Dominanz behördlicher Organisation. Die existierenden Institutionen sind überwiegend den Tagesaufgaben gewidmet. Die Forschung ist problem- und anwendungsorientiert und meist konzentriert an und/oder koordiniert von Landesämtern, Bundesanstalten oder Großforschungseinrichtungen. Einzelne Institute, die für Gestaltung und Durchführung des praktischen Strahlenschutzes in Großforschungszentren verantwortlich sind, spielen ebenfalls eine dominierende Rolle. Radionuklid-ökologische und radioanalytische Methoden für Überwachungsaufgaben sind entsprechend dem Stand von Wissenschaft und Technik in den Meßanleitungen zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt festgelegt.

Universitäten und Fachhochschulen sind nur von geringer Bedeutung, nicht zuletzt deshalb, weil sie in die behördlichen Aufgabenstellungen nicht eingebunden sind. Dies hat u.a. seinen Grund in

dem möglichen Konflikt zwischen der Freiheit von Forschung und Lehre an den Hochschulen mit dem Primat der politischen Entscheidung an Bundes- und Landesbehörden.

Andererseits bietet sich für Hochschulinstitute die Grundlagenforschung in Strahlenschutz und Radioökologie und die Weiterentwicklung von Wissenschaft und Technik als Betätigungsfeld an, da diese vielfach nicht zum Aufgabenbereich behördlicher Institute gehört. Nuklearchemische Untersuchungen finden in Form von Messungen von Radionukliden als Servicearbeiten für die Überwachung kerntechnischer Anlagen (z.B. als „unabhängige Meßstelle“) oder als Auftragsforschung im Rahmen von Meßprogrammen des Bundes oder der Länder (siehe dazu Ausschreibungen des BfS in der Tagespresse) ein breites Anwendungsfeld.

Förderungsmöglichkeiten für Forschungsvorhaben im Bereich des Strahlenschutzes und der Radioökologie bestehen beim Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), bei der Europäischen Gemeinschaft und in beschränktem Maße bei den Umweltministerien der Bundesländer. Empfehlungen der SSK für die zukünftige Forschungsförderung durch den BMU liegen in publizierter Form vor. Dabei sind allerdings einige Besonderheiten zu beachten. Der BMU betreibt keine allgemeine Forschungsförderung zu den Themen Strahlenschutz und Radioökologie. Er entscheidet bei Forschungsanträgen als Fachminister nach seiner Interessenlage und unter Setzung von politischen Prioritäten. Er vergibt Forschungsaufträge, die derzeit nach einer Anweisung des Bundesrechnungshofes alle öffentlich ausgeschrieben werden müssen. Forschungsaufträge werden dann durch das Bundesamt für Strahlenschutz nach einem beschränkten Wettbewerb vergeben.

Wegen der Vielfalt der Problemstellungen in Strahlenschutz und Radioökologie und des multidisziplinären Charakters der Fächer ist eine starke Diversifizierung der Verbände und Interessengruppen mit überlappenden Betätigungsfeldern und teilweise konkurrierenden Interessen zu verzeichnen. Um die Zusammenarbeit der verschiedenen Verbände zu verbessern, ist die Fachgruppe Nuklearchemie auf der Grundlage eines anlässlich der Vortragstagung 1998 in Dresden gefaßten Beschlusses dem Gemeinschaftsausschuß Strahlenforschung (GAST) beigetreten, so daß neben der Deutschen Gesellschaft für Biophysik, der Deutschen Gesellschaft für Medizinische Physik, der Deutschen Gesellschaft für Nuklearmedizin, der Deutschen Gesellschaft für Radioonkologie, der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, der Deutschen Röntgengesellschaft, dem Fachverband für Strahlenschutz, der Gesellschaft für Biologische Strahlenforschung und der Ver-

einigung Deutscher Strahlenschutzärzte nun auch die GDCh vertreten ist. Entsprechend der Satzung des GAST soll die gemeinsame Verbandsarbeit die Kommunikation auf dem Gebiet der Strahlenforschung durch gemeinsame Veranstaltungen erleichtern, die Weiterentwicklung der wissenschaftlichen Grundlagen dieses Fachgebietes sowie ihrer physikalischen, chemischen, biologischen, medizinischen und technischen Anwendungen fördern und es in der International Association for Radiation Research und anderen internationalen interdisziplinären wissenschaftlichen Gremien auf dem Gebiet der Strahlenforschung vertreten.

Dabei wird unter Strahlenforschung ein interdisziplinärer Wissenschaftsbereich verstanden, dessen Gesamtspektrum sich mit den biologisch-medizinischen Strahleneffekten, den zellbiologischen und biophysikalischen Grundlagen, dem Verhalten radioaktiver Stoffe in der Umwelt, dem Nachweis von Strahlung und den physikalischen, technischen und organisatorischen Möglichkeiten zur Verminderung des Strahlenrisikos befaßt. Die so definierte Strahlenforschung beinhaltet einen beträchtlichen Teil nuklearchemischer Forschungs- und Anwendungsbereiche. In der Mitarbeit im GAST sieht die Fachgruppe Nuklearchemie eine zusätzliche Möglichkeit an der Gestaltung der Strahlenforschung in Deutschland aktiv teilzunehmen und nuklearchemische Expertise in die Erarbeitung gemeinsamer Stellungnahmen der Mitgliedsverbände zu aktuellen Fragen der Strahlenwirkung und des Strahlenschutzes einzubringen.

In allen diesen Wissenschaftsbereichen fördert die Deutsche Forschungsgemeinschaft Vorhaben in der Grundlagenforschung zu radioökologischen und strahlenschutzrelevanten Themen. Hier bestehen Bestrebungen von Seiten des GAST, die Struktur der Förderung durch Einrichtung eines speziellen Gutachterkreises aus dem Bereich Strahlenforschung unter Einschluß von Strahlenschutz und Radioökologie und die Zuordnung zu einem speziellen Referat zu verbessern.

Angesichts der essentiellen Beiträge, die die Nuklearchemie zu aktuellen Problemen des Strahlenschutzes und der Radioökologie leisten kann, und angesichts des Stellenwerts, den Strahlenschutz und Radioökologie in der Umweltforschung und im Umweltschutz besitzen, kann hier ein wesentliches Wachstumspotential für die absehbare Zukunft gesehen werden.

*Die Fachgruppe Nuklearchemie dankt dem Forschungszentrum Jülich
für die Unterstützung beim Druck des Positionspapiers.*