

Anwendungen der radioaktiven und stabilen Isotope

Von Prof. Dr. R. FLEISCHMANN, Hamburg, Physikalisches Staatsinstitut*).

Die Gesichtspunkte für die Anwendung radioaktiver und stabiler Isotope werden besprochen, neue Gewinnungsverfahren kurz beschrieben und ein Überblick über sonstige Verwendung kernphysikalischer Tatsachen gegeben. Die Hauptabschnitte behandeln 1.) Strahlenwirkung, 2.) Erkennung eines chemischen Elementes durch eine mit einer Kernumwandlung verknüpfte Erscheinung, 3.) Ausnützung der Unterscheidbarkeit der Isotope, 4.) geologische Zeitbestimmung, 5.) Freiwerden von Energie bei Kernumwandlungsvorgängen.

Allgemeines

Dieser Aufsatz soll einen Überblick über die Anwendungsmöglichkeiten unserer Kenntnisse über die Atomkerne geben, wobei vor allem Wert gelegt werden soll auf eine Darstellung der Gesichtspunkte, die zu einer Anwendung führen und die bei der Anwendung berücksichtigt werden müssen. Für die bereits ausgeführten Anwendungsmöglichkeiten sollen Beispiele genannt werden ohne Vollständigkeit im einzelnen. Die Besprechung der Atombombe gehört nicht in den Rahmen dieser Arbeit. Dagegen sollen die friedlichen Anwendungen des Uran-Problems umrissen werden.

Wir erinnern uns zunächst daran, daß unter den 83 stabilen und langlebig radioaktiven chemischen Elementen, die wir in der Natur finden, 59 Isotopengemische sind und 24 Reinelemente, d. h. solche Stoffe, die nur mit einem einzigen Atomgewicht vorkommen. Die einzelnen Isotope eines Elementes zeigen chemisch vollkommen übereinstimmendes Verhalten, sind aber physikalisch unterscheidbar¹⁾. Wenn Isotope getrennt vorliegen, z. B. $^{35}_{17}\text{Cl}$ und $^{37}_{17}\text{Cl}$, so lassen sie sich zwar durch Atomgewichtsbestimmung oder im Massenspektrographen unterscheiden, sie zeigen aber gleiches analytisches Verhalten und ihr Mischungsverhältnis läßt sich, wenn sie gemischt sind, mit den Mitteln der analytischen Chemie nicht verschieben. Von ganz geringen, mit den heutigen Hilfsmitteln im Einzelprozeß kaum nachweisbaren Unterschieden und Verschiebungen sehen wir in diesem Zusammenhang ab.

Das Mischungsverhältnis der Isotope ist bei den Elementen und bei einfachen anorganischen Verbindungen nach ausgedehnten massenspektroskopischen Erfahrungen stets genau gleich und ist unabhängig vom Fundort und von der chemischen Verarbeitung. Daß es auch in komplizierten organischen Verbindungen dasselbe ist, wurde ausdrücklich geprüft. So ergab sich das Mischungsverhältnis von $\text{N}^{14,15}$ in Aminosäuren und Proteinen²⁾ und das Mischungsverhältnis von Wasserstoff und Deuterium in Honig und Benzol³⁾ durchweg normal.

Die Unterscheidbarkeit der radioaktiven oder der getrennten stabilen Isotope von der natürlichen Isotopenmischung bei gleichzeitiger Nichtverschiedenheit in analytisch-chemischer Hinsicht ist von entscheidender Wichtigkeit und führt zu Anwendungen von größtem Umfang. Wenn wir die Unterscheidbarkeit ausnützen, sprechen wir von einer Verwendung der Isotope als „Indikatoren“ oder auch als „Spurensucher“ (engl. tracers). Beim Element 6 (Kohlenstoff) z. B. kennen wir C^{10} , Halbwertszeit $T = 8,8$ Sekunden, C^{11} ($T = 21$ Minuten), C^{12} (stabil, 99% des natürlichen Kohlenstoffs), C^{13} (stabil, 1% des natürlichen Kohlenstoffs) und C^{14} ($T = 5100$ Jahre). Alle diese Isotope, ausgenommen C^{12} kommen grundsätzlich als Indikatoren in Frage.

Es gibt noch eine ganze Reihe von anderen Gesichtspunkten zur Anwendung unserer kernphysikalischen Kenntnisse. Wir wollen uns aber zunächst mit der Unterscheidbarkeit befassen und fragen: Wie weit reicht das neue Hilfsmittel?

Vorweg ist zu bemerken, daß ganz oder teilweise getrennte stabile Isotope und radioaktive Isotope in gleicher Weise als Indikatoren verwendbar sind, denn sie sind beide unterscheidbar von der natürlichen Isotopenmischung, wenn sie auch nach verschiedenen Verfahren (Massenspektrometer bzw. Zählrohr) nachgewiesen und gemessen werden. Ein radioaktives Isotop verhält sich bis zum Eintritt des Zerfalls genau wie ein stabiles. Auch wenn wir die chemischen Unterschiede der Isotope mit in Betracht ziehen, die bekanntlich ganz außerordentlich gering sind, so können wir auf jeden Fall sagen, daß die radioaktiven und stabilen Isotope eines Elements sich nicht stärker voneinander unterscheiden, als zwei stabile Isotope desselben Elements. Die stabilen und radioaktiven Isotope können daher gemeinsam behandelt werden.

Verwendung radioaktiver Isotope

Radioaktive Isotope sind fast in jedem Fall verwendbar. Sie sind uneingeschränkt zu gebrauchen bei allen nichtbiologischen Untersuchungen. Bei der Anwendung auf Lebewesen muß wegen der Strahlenwirkung eine Beschränkung auf „mäßige“ Intensitäten erfolgen. Das gleiche gilt bei manchen Anwendungen, bei denen photochemische Wirkungen als Störung auftreten können.

Wir fragen: welche Halbwertszeiten sind erwünscht; sind etwa große Halbwertszeiten vorzuziehen? Bei der Beantwortung sind die einfachen Gesetzmäßigkeiten des Zerfalls zu berücksichtigen.

Wir bezeichnen mit N die Zahl der vorhandenen radioaktiven Atome, mit dt ein kleines Zeitintervall (sec), mit dN die Zahl der während der Zeit dt zerfallenden Atome und mit λ die für einen radioaktiven Stoff charakteristische sogenannte Zerfallskonstante. Dann gilt $dN = -\lambda \cdot N \cdot dt$, wo $\lambda = \frac{\ln 2}{T}$ ist. Dabei ist T die Halbwertszeit. Die Anzahl der zerfallenden Atome ist also proportional der Anzahl der vorhandenen Atome und proportional der Beobachtungszeit. Das Verhältnis $\frac{dN}{dt}$, also die Zahl der Atome, die je Zeiteinheit zerfallen oder, was dasselbe ist, die Zahl der Teilchen, die je Zeiteinheit ausgesandt werden, bezeichnet man als „Aktivität“ eines Präparates. Die Aktivität $\frac{dN}{dt} = \frac{\ln 2}{T} \cdot N$, ist also proportional N und umgekehrt proportional T . Um eine gleich große Aktivität zu erhalten, muß bei großem T auch N , die Zahl der radioaktiven Atome, groß sein, dagegen genügt bei kleinem T auch kleines N . Die gebräuchlichste Einheit der Aktivität ist das Curie. Die Aktivität

$$\frac{dN}{dt} = 3,7 \cdot 10^{10} \left\{ \frac{\text{Teilchen}}{\text{sec}} \right\} \text{ heißt 1 Curie}$$

$$3,7 \cdot 10^7 \quad \quad \quad \text{,, 1 mC (milli-Curie)}$$

$$3,7 \cdot 10^4 \quad \quad \quad \text{,, 1 } \mu\text{C (mikro-Curie)}$$

Diese Einheit ist abgeleitet vom Zerfall des Radiums. Von 1 g Radium zerfallen $3,7 \cdot 10^{10} \frac{\text{Atome}}{\text{sec}}$, ebenso von jedem der damit im Gleichgewicht befindlichen radioaktiven Zerfallsprodukte. Die Mengen radioaktiver Stoffe werden im allgemeinen durch ihre Aktivität gemessen.

*) Vorgetragen auf der Isotopentagung in Straßburg am 11. und 12. Februar 1944; ergänzt im Oktober 1948.

¹⁾ Vgl. diese Ztschr. 59, 42, 105 [1947].

²⁾ R. Schoenheimer und D. Rittenberg, J. biol. Chemistry 127, 282—290 [1939].

³⁾ M. Dole, J. Amer. Chem. Soc. 58, 580, 2552 [1936].

Wir schätzen noch ab, wieviel Gewicht die Menge 1 mC $^{24}_{11}\text{Na}$ ($T = 14,8 \text{ h}$) besitzt. Zur Berechnung wird die obige Beziehung zwischen Aktivität, Halbwertszeit und Zahl der vorhandenen Atome N verwendet und der Umstand, daß 24 g $^{24}_{11}\text{Na}$ aus $6,02 \cdot 10^{23}$ Atomen bestehen. Für das Gewicht von 1 mC $^{24}_{11}\text{Na}$ ergibt sich dann $1,13 \cdot 10^{-10} \text{ g} \approx 10^{-4} \mu\text{g}$. Eine Substanz von gleicher Aktivität, aber kleinerer Halbwertszeit T hat proportional zu T kleineres Gewicht.

N ist die Anzahl der Atome, die bei der Gewinnung des radioaktiven Isotops durch Umwandlung erzeugt werden müssen. Erwünscht ist daher eine Halbwertszeit, die vergleichbar ist mit der Versuchsdauer, damit bei der verfügbaren Anzahl N der radioaktiven Atome die Aktivität möglichst groß wird. T darf nicht zu klein sein, da die Aktivität nach 10 Halbwertszeiten bereits auf $1/1000$ absinkt. Sehr großes T ist unerwünscht, weil viel mehr Atome durch Umwandlung erzeugt werden müssen, um eine Aktivität ähnlicher Größenordnung zu erhalten, wie bei kleinerem T .

Zur Auswahl der Halbwertszeit – wenn eine solche möglich ist – und zur Festlegung der benötigten Anfangsaktivität muß man fragen:

1. Wie lange dauert der Versuch (Synthese einer Ausgangsverbindung, Einbringen, Herauspräparieren) und

2. Welcher Bruchteil der Anfangsaktivität muß gegen Ende des Versuchs noch vorhanden sein, um eine Messung zu ermöglichen? Manchmal existiert keine geeignete Halbwertszeit, so sind z. B. $^{16}_7\text{N}$ ($T = 8 \text{ sec.}$) und $^{13}_7\text{N}$ ($T = 9,93 \text{ min}$) für Untersuchungen über den intermediären Proteinstoffwechsel unbrauchbar. In diesem Fall muß man stabiles $^{15}_7\text{N}$ verwenden.

Wir befassen uns mit der Frage, welche Verdünnung der radioaktiven Ausgangskonzentration zulässig ist, um eine Messung noch zu ermöglichen. Wenn wir z. B. von 1 mC $^{24}_{11}\text{Na}$ ausgehen, so werden davon $3,7 \cdot 10^7$ Elektronen je sec. ausgesandt. Wenn infolge der Versuchsbedingungen hinterher nur mehr 1 Hundertmilliontel erfaßt wird, so gehen von dieser Probe 0,37 Teilchen/sec oder etwa 23 Teilchen/min aus. Das ist noch nachweisbar. Wenn man die Möglichkeit hat, von 100 mC auszugehen, so ist eine Verdünnung 1 zu 10^9 noch zulässig. Es kann dann also das Eindringen der Substanz auch an Stellen mit sehrgeringem Stoffwechsel verfolgt werden (z. B. Knochen, Zahn).

Soweit eine Auswahl möglich ist, wird man dasjenige Isotop wählen, dessen Elektronen die größere kinetische Energie besitzen. Wenn nämlich die Elektronen geringes Durchdringungsvermögen besitzen, werden sie in der zu untersuchenden Probe selbst schon beträchtlich absorbiert. Die Probe muß dann vor der Messung der Aktivität chemisch aufgearbeitet und der radioaktive Stoff abgetrennt werden. Damit auch bei etwas größerer Schichtdicke eine Aufarbeitung nicht erforderlich ist, sind möglichst durchdringende β -Teilchen erwünscht. Je energiereicher die β -Teilchen sind, um so durchdringender sind sie. Wir bezeichnen mit β_{Gr} die höchste im β -Kontinuum auftretende kinetische Energie („Grenzenergie“). Sie ist unten in Tab. 1 jeweils mit angegeben. Die Energie der β -Teilchen wird üblicherweise in Millionen Volt-Elektron angegeben (Abkürzung eMV oder MeV). $1 \text{ eMV} = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Ampsec} \cdot 10^6 \text{ V} = 1,6 \cdot 10^{-13} \text{ Wattsec} = 0,38 \cdot 10^{-13} \text{ cal}$. Diese Energie ist für alle atomaren (elementaren) Teilchen besonders geeignet.

Wenn der radioaktive Stoff auch γ -Strahlen, d. h. vom Kern ausgehende elektromagnetische Wellenstrahlung aussendet, so ist das wertvoll, da γ -Strahlen auch aus einer dickeren Probe noch praktisch ungeschwächt austreten. Es ist aber zu bedenken, daß β -Strahlen 100prozentig gezählt werden können, γ -Strahlen dagegen nur mit einer Ausbeute von etwa 0,5–2%. Die γ -Ausbeute für Zählrohre verschiedener Bauart in Abhängigkeit von der Quantenenergie der γ -Strahlung wurde von *H. Maier-Leibnitz*⁴⁾ nach einer besonders zuverlässigen Methode bestimmt.

Für die Anwendung kommen viele unter den über 400 heute bekannten künstlich radioaktiven Isotopen in Frage. In Tabelle 1 wurden vor allem solche zusammengestellt, die bereits als Indikatoren verwendet worden sind^{4a)}.

Wann sind nun die radioaktiven und wann die getrennten stabilen Isotope als Indikatoren vorzuziehen? Für die Ver-

Radioaktives Isotop	Halbwertszeit T	Strahlenart	Grenzenergie β_{Gr} in eMV	γ -Strahlen
^3_1H	12 a	β^-	0,015	—
$^{11}_6\text{C}$	21 min	β^+	0,98	—
$^{14}_6\text{C}$	5100 a	β^-	0,14	—
$^{13}_7\text{N}$	9,9 min	β^+	1,22	—
$^{18}_9\text{F}$	1,9 h	β^+	0,7	—
$^{22}_{11}\text{Na}$	3 a	β^+	0,58	—
$^{24}_{11}\text{Na}$	14,8 h	β^-	1,4	γ
$^{27}_{12}\text{Mg}$	10 min	β^-	1,8	γ
$^{31}_{14}\text{Si}$	2,6 h	β^-	1,8	—
$^{32}_{15}\text{P}$	14,3 d	β^-	1,7	—
$^{35}_{16}\text{S}$	(88 \pm 5) d	β^-	0,11	—
$^{34}_{17}\text{Cl}$	33 min	β^+	4,13	—
$^{38}_{17}\text{Cl}$	37 min	β^-	5,0	γ
$^{42}_{19}\text{K}$	12,4 h	β^-	3,5	—
$^{45}_{20}\text{Ca}$	180 d	β^-	0,19 (95%) 0,91 (5%)	γ
$^{49}_{20}\text{Ca}$	2,5 h	β^-	2,3	—
$^{52}_{25}\text{Mn}$	6,5 d	—	—	γ
$^{54}_{25}\text{Mn}$	310 d	—	0,85	γ
$^{56}_{25}\text{Mn}$	2,59 h	β^-	2,9	γ
$^{55}_{25}\text{Mn}$	4 a	K, β^+	—	—
$^{59}_{26}\text{Fe}$	44 d	β^-	0,9	γ
$^{57}_{27}\text{Co}$	18,2 h	β^+	1,5	γ
$^{64}_{29}\text{Cu}$	12,8 h	$\beta^+, \beta^-, \text{K}$	0,64	—
$^{76}_{33}\text{As}$	26,8 h	β^+, β^-	3,2	γ
$^{82}_{35}\text{Br}$	34 h	β^-	0,47	γ
$^{83}_{35}\text{Br}$	140 min	β^-	1,05	—
$^{89}_{38}\text{Sr}$	55 d	β^-	1,5	—
$^{128}_{53}\text{I}$	25 min	β^-	2,4	γ
$^{130}_{53}\text{I}$	12,6 h	β^-	0,83	γ
$^{131}_{53}\text{I}$	8 d	β^-	0,69	γ
$^{212}_{82}\text{ThB}$	10,6 h	β^-	0,36	—
$^{210}_{83}\text{RaD}$	22 a	β^-	0,026	—
$^{210}_{83}\text{RaE}$	5,0 d	β^-	1,17	—
$^{224}_{88}\text{ThX}$	3,64 d	—	—	—
$^{234}_{90}\text{UX}_1$	24,1 d	β^-	—	—
$^{234}_{91}\text{UX}_2$	1,14 min	β^-	2,3	—

Eine (beim Erscheinen) wohl vollständige Liste mit künstlich radioaktiven Isotopen findet sich bei *J. J. Livingood* und *G. T. Seaborg*, *Rev. Mod. Physics* 12, 30 [1940]. In Kürze erscheint ein neuer Isotopenbericht von *J. Mattauoh* u. *A. Flammersfeld*, *Z. Naturforsch.*

Tabelle 1

wendung der radioaktiven Isotope sind zwei Gesichtspunkte wichtig:

1. Die leichte Nachweisbarkeit⁵⁾. Zum Nachweis des Stoffes genügen schon geringe Bruchteile der eingeführten Substanz und diese läßt sich nachweisen und meist ohne Vorbearbeitung messen, indem man die zu untersuchende Probe neben ein Zählrohr legt.

2. Ein zweiter wohl noch wichtigerer Vorzug der radioaktiven Isotope liegt darin, daß man mit einer sehr geringen einzuführenden Absolutmenge (Bruchteile eines μg) auskommt. Die Menge kann im Vergleich zu den nicht aktiven Isotopen des gleichen Elements klein gehalten werden, auch wenn dieses nur als Spurenelement vorhanden ist.

Viele künstlich radioaktive Atomarten lassen sich in unwägbarer Menge gewinnen⁶⁾, d. h. in einer so hohen Reinheit, daß die beigemengten inaktiven Atome gewichtsmäßig keine Rolle spielen. Die Gewinnung radioaktiver Isotope in gewichtsloser Menge ist möglich, wenn sie aus einem anderen Element durch Kernumwandlung erzeugt und von diesem nach den üblichen analytischen Methoden abgetrennt werden. Es ist aber auch möglich, vom Ausgangselement ein (z. B. durch Neutronen-anlagerung entstehendes) radioaktives Isotop abzutrennen, wenn das Ausgangselement in einer chemischen Bindung verwendet wird, in der es nicht die üblichen Ionenreaktionen zeigt. (Verfahren von *Szillard* und *Chalmers*). So läßt sich nach geeigneter Bestrahlung z. B. radioaktives Jod aus Methyljodid oder radioaktives As aus Kakodylsäure hochkonzentriert abtrennen⁷⁾.

Die geringe einzuführende Absolutmenge ist ein sehr wichtiger Vorzug der radioaktiven Indikatoren, besonders auch für viele biologische Untersuchungen. Z. B. dürfte man einem kleinen Tier, das normalerweise nur 10 g Kochsalz im Körper hat, nicht 10 g aktives Kochsalz, d. h. Bruchteile eines μg von radioaktivem Kochsalz verteilt über 10 g gewöhnliches Kochsalz,

⁴⁾ *H. Maier-Leibnitz*, *Z. Naturforsch.* 1, 243 [1946].

^{4a)} Vgl. auch diese Ztschr. 60, 337 [1948].

⁵⁾ Vgl. dazu *W. Riezler*, diese Ztschr. 59, 113 [1947].

⁶⁾ Vgl. diese Ztschr. 59, 2, 6 [1947].

⁷⁾ Vgl. dazu z. B. *H. Starke*, *Physikal. Z.* 42, 184 [1941].

einspritzen. Spritzt man dagegen die gleiche Aktivität hochkonzentriert in „unwägbarer“ Menge ein, so entsteht keine Störung chemischer Art im Stoffwechsel.

Die radioaktiven Isotope haben, vor allem bei biologischen Versuchen, auch Nachteile, vor allem den, daß eine Störung durch Strahlenwirkung zu befürchten ist. Dadurch ist eine Grenze gegeben für die zulässige Anfangshöchstaktivität bzw. für das Produkt aus Aktivität und Wirkungsdauer. Mit der Beschränkung der anwendbaren Höchstaktivität ist auch die Höchstverdünnung beschränkt. Dies Letztere bedeutet jedoch kaum eine Einschränkung, da in den allermeisten Fällen auch bei sehr hoher Verdünnung die Aktivität der zu messenden Probe noch zum Nachweis ausreicht. Über die zulässige Grenze der Strahlendosis mag folgendes Beispiel einen Anhalt geben: Spritzt man einer Maus $36\ \mu\text{C}\ \text{P}^{32}$ ein, so findet man hinterher im Hirn keine sichtbare Wirkung. Spritzt man $16\ \mu\text{C}$ ein, so findet man im Blut und im Muskel noch keine sichtbare Wirkung. Bei $8\ \mu\text{C}$ findet man in der Leber noch keine sichtbare Wirkung. Es werden dabei aber bereits 30% Chromosomenbrüche beobachtet.

Verwendung stabiler Isotope

Die getrennten oder angereicherten stabilen Isotope⁸⁾ sind grundsätzlich in der gleichen Weise verwendbar wie die radioaktiven. Ihr Hauptvorteil besteht darin, daß ihre Anwendung nicht durch Abklingung und Halbwertszeit beschränkt ist. Sie eignen sich daher auch für Versuche, die sich über lange Zeiträume erstrecken. Ein weiterer Vorteil, besonders bei biologischen Versuchen, ist die Strahlungslosigkeit, so daß die Isotope in Form ungiftiger Verbindungen auch bei jedem gesunden oder kranken Menschen ohne jegliche Gefahr angewendet werden können.

Bei den stabilen und bei den radioaktiven Isotopen konnten wir durchweg genau die gleichen physikalischen und chemischen Eigenschaften wie bei den gewöhnlichen, chemischen Elementen annehmen. Ein kleiner Vorbehalt ist nur beim schweren Wasserstoff zu machen wegen der verschiedenen Reaktionsgeschwindigkeit und wegen kleiner Unterschiede in physikalischen und chemischen Eigenschaften. Eine biologisch schädliche Wirkung, die kurz nach der Entdeckung des schweren Wasserstoffs behauptet worden war, ist nicht bestätigt worden.

Ein bedeutender Nachteil besteht darin, daß die zur Kennzeichnung des Elements hinzuzusetzende Menge nicht gewichtsmäßig klein gehalten werden kann.

Ein weiterer Nachteil der stabilen Isotope besteht darin, daß für die Verdünnung eine viel engere Grenze eingehalten werden muß, als bei radioaktiven, wenn der qualitative oder quantitative Nachweis noch möglich sein soll. Die zulässige Verdünnung beträgt bei

H^2	C^{13}	N^{15}
bis 1 : 100 000	1 : 10 000	1 : 30 000

Seit rund zwei Jahrzehnten wird schwerer Wasserstoff durch Elektrolyse abgetrennt und seit einem Jahrzehnt werden eine Reihe von stabilen Isotopen im Laboratoriumsmaßstab gewonnen. Im Trennrohr von *Clusius* und *Dickel*⁹⁾ können gasförmige Isotope und Isotopenverbindungen gewonnen werden. Damit gelang z. B. die erste vollständige Trennung, nämlich die von ^{35}Cl ,³⁷ als HCl . Nach dem von *Urey*¹⁰⁾ entwickelten Trennverfahren gelingt es insbesondere ^{13}C , ^{14}N , ^{17}O ,¹⁸ ^{33}S ,³⁴,³⁶ herzustellen. In Amerika sind heute die folgenden Isotopen in größerem Umfang erhältlich¹¹⁾ $^1\text{H}^2$, $^5\text{B}^{10}$, ^{13}C , ^{14}N , ^{15}N , ^{18}O . (Vgl. Tab. 2).

Neue Wege¹²⁾ zur Gewinnung radioaktiver und stabiler Isotope

Im Sommer 1945 wurde die Welt überrascht durch die Nachrichten über die „Atombombe“. Die in den davor liegenden Jahren in Amerika durchgeführten Arbeiten zum Uranproblem stellen eine wissenschaftliche und technische Leistung von ganz

außerordentlichem Umfang dar. Dadurch ist es möglich geworden, chemische Elemente und manche Isotope gewisser Elemente grammweise oder kilogrammweise künstlich in andere umzuwandeln¹³⁾ und dabei große Mengen künstlich radioaktiver Stoffe zu gewinnen.

An dieser Entwicklung war ein ungewöhnlich großer Bruchteil der hervorragendsten einschlägigen Wissenschaftler der ganzen Welt beteiligt und es wurden riesige finanzielle und industrielle Mittel eingesetzt. Es mag gestattet sein, durch einige Zahlenangaben, die meist aus dem amtlichen Bericht von *Smyth*¹⁴⁾ stammen, das Außerordentliche der wissenschaftlichen Leistung zu kennzeichnen. In USA wurden bis Mitte 1945 für die Uran-Entwicklung 2 Milliarden Dollar ausgegeben. Man weiß heute, daß in Deutschland dafür in der gleichen Zeit um 10 Millionen RM ausgegeben wurden, also — wenn man 1 Dollar = 2,5 RM setzt — etwa $\frac{1}{500}$ des amerikanischen Geldaufwandes. Die erste Atomart, die in gewichtsmäßiger Menge künstlich hergestellt wurde, ist das in einem Typ der Atombomben (Bombe von Nagasaki) verwendete ^{239}Pu . Plutonium (Ordnungszahl 94) ist ein neues chemisches Element mit damals völlig unbekannten analytischen Eigenschaften. Bevor das später beim Bau der Atombombe verwendete langlebige radioaktive ^{239}Pu ($T = 24000$ Jahre) in genügender Menge gewonnen werden konnte, wurde ^{238}Pu erzeugt, das eine Halbwertszeit von etwa 50 Jahren besitzt. Dieses Element wurde hergestellt, indem man unter Benutzung schneller Neutronen aus einem Cyclotron mit dem Prozeß $^{238}\text{U}^{238}(\text{d},2\text{n})$ die Atomart ^{238}Np erzeugte. Dieses Neptunium ist ein β -Strahler ($T = 2,0$ d) und geht in ^{238}Pu einen α -Strahler mit 50 Jahren Halbwertszeit über. Mit dieser Substanz wurden die chemischen Eigenschaften des neuen Elements Plutonium aufgeklärt. Ende 1942 standen davon rund $\frac{1}{2}$ mg zur Verfügung und wurden nach mikrochemischen Methoden untersucht. Damit wurden Verfahren entwickelt, die eine Abtrennung des Plutoniums von Uran, dem es chemisch sehr ähnlich ist, ermöglichen. Auf eine Durchführung von Versuchen im normalen Laboratoriumsmaßstab wurde verzichtet und sofort mit dem Bau einer chemischen Großanlage zur Trennung von Plutonium, und zwar jetzt ^{239}Pu ($T = 24000$ a) aus vielen Tonnen Uran begonnen. Nach Fertigstellung arbeitete die Großanlage noch viel besser als erwartet worden war. ^{239}Pu ist also das erste Element, das künstlich in einer Menge von vielen kg hergestellt wurde.

Wie werden diese Mengen gewonnen? Es ist heute allgemein bekannt, daß ein Uran-Brenner (engl. Uran-pile, in Deutschland auch Uran-Meiler oder „Uranmaschine“ genannt) durch Aufschichten einer genügend großen Menge (mehrere Tonnen) Uran-Metall zusammen mit sehr reinem Kohlenstoff oder mit Deuterium in der Form von schwerem Wasser entsteht. Uran-Atome zerfallen einerseits unter Aussendung von α -Teilchen, sie können andererseits aber auch, mit allerdings viel geringerer Häufigkeit, spontan zerplatzen (1 spontane Spaltung auf rund 1 Million α -Zerfälle) in ganz ähnlicher Weise wie bei der von *O. Hahn* entdeckten künstlichen Uranspaltung, die durch Neutronen ausgelöst wird. Bei der Spaltung (spontan oder künstlich) entstehen im allg. zwei Bruchstücke, deren Massenverhältnis bevorzugt in der Größenordnung 2:3 liegt. Außerdem entstehen Neutronen, und zwar mehr als ein Neutron je Spaltprozeß. Wenn die Uranmenge genügend groß gewählt ist und einige andere Bedingungen berücksichtigt sind, kann man erreichen, daß auch mehr als ein Neutron wieder einen Spaltprozeß in U hervorruft. Dadurch nimmt die Zahl der Spaltprozesse lawinenartig zu und es wird rund 180 eMV Energie für jeden gespaltenen U-Kern frei oder rund $5 \cdot 10^6$ kWh je gespaltenes Mol Uran. Diese Energie tritt als Wärme in Erscheinung (vgl. Abschnitt 5c).

Der zwischen und neben dem Uran aufzustellende Kohlenstoff oder schwere Wasserstoff hat die Aufgabe, die bei der Spaltung des Urankerns entstehenden schnellen Neutronen zu verlangsamen und zurückzustreuen, so daß sie schließlich zu einem möglichst hohen Bruchteil im Uran absorbiert werden und nur zu einem möglichst geringen Teil ungenutzt nach außen

⁸⁾ Vgl. dazu *J. Matthauch*, diese Ztschr. 59, 37 [1947].

⁹⁾ *K. Clusius* u. *G. Dickel*, Z. physikal. Chem. (B) 44, 397, 451 [1939].

¹⁰⁾ *H. C. Urey*, J. Chem. Physics 6, 172 [1938], 7, 138 [1939].

¹¹⁾ Vgl. Chem. Engng. News 25, 2515 [1947] od. Nucleonics, 1948, 281; *Hondry Process Corporation*, *Marcus Hook, Pa.* liefert ^{13}C ; *Eastman Kodak Company*, *Rochester, NY*, liefert ^{13}C und ^{15}N .

¹²⁾ Über die bisher bekannten Wege vgl. *W. Bothe*, diese Ztschr. 59, 108 [1947].

¹³⁾ Vgl. *Otto Hahn*; Künstliche neue Elemente; Verlag Chemie 1948, Weinheim/Bergstr.

¹⁴⁾ *H. D. Smyth*, Atomic Energy for Military Purposes, Princeton University Press 1945. Vgl. diese Ztschr. 60, 342 [1948].

entweichen. An dem geschilderten Spaltprozeß sind nur die Kerne ${}_{92}\text{U}^{235}$ beteiligt. Abgesehen von der großen Wärmeenergie, die im Uran-Brenner entsteht, werden in früher undenkbar großer Menge Neutronen ausgelöst, die zur künstlichen Erzeugung anderer Kerne benutzt werden können. Weiter entstehen auch durch die Spaltung der Uran-Kerne im Uran-Brenner mit der Zeit radioaktive und stabile Spaltprodukte in gewichtsmäßiger Menge. In einer neuen Zusammenstellung¹⁵⁾ der Spaltprodukte werden 296 verschiedene Kerne aufgeführt samt Angaben über ihre Eigenschaften.

Durch die Neutronen eines Uran-Brenners wird in diesem selbst vor allem der Prozeß ${}_{92}\text{U}^{238} (n, \gamma) {}_{92}\text{U}^{239}$ ausgelöst. Durch Betazerfall geht ${}_{92}\text{U}^{239}$ in ${}_{93}\text{Np}^{239}$ über und durch einen nochmaligen Betazerfall entsteht ${}_{94}\text{Pu}^{239}$. Dieses Isotop kann wie erwähnt zum Bau von Atombomben verwendet werden, aber ebenso gut zur Gewinnung von Wärmeenergie in einem Uran-Brenner, da er gerade so wie U^{235} schon durch langsame Neutronen gespalten wird. Wenn das Plutonium nicht abgetrennt wird, bleibt die Betriebsfähigkeit des Brenners auch dann noch aufrecht erhalten, wenn das ursprünglich vorhandene U^{235} verbraucht ist. Der Vorgang ist dann so: Der Brenner wird mit Hilfe der Spaltung von U^{235} in Gang gesetzt, dabei entstehen Neutronen, die in U^{238} eingefangen werden unter Bildung von U^{239} . Dieses verwandelt sich fortlaufend innerhalb weniger Tage in Pu^{239} , das wieder durch langsame Neutronen spaltbar ist. Zunächst „verbrennt“ also U^{235} und gleichzeitig wird U^{238} , das durch langsame Neutronen nicht gespalten wird, verwandelt. Später, wenn das U^{235} praktisch aufgebraucht ist, „verbrennt“ das inzwischen gebildete Pu^{239} unter gleichzeitiger Umwandlung von weiterem U^{238} in weiteres Pu^{239} . Der Betrieb des „Brenners“ würde erst nach dem Verbrauch des U^{238} endigen, wenn nicht die „Asche“, nämlich die durch die Spaltung entstehenden Kerne ein vorzeitiges Ende herbeiführen würden. Manche dieser Kerne fangen nämlich langsame Neutronen ein, die so für die Produktion von Pu^{239} aus U^{238} verloren gehen.

Man kann nun in den Uran-Brenner andere Elemente einschleiben und sie so einer starken Neutronenbestrahlung aussetzen. Kerne, die langsame Neutronen einfangen, werden dabei in das um eine Atomgewichtseinheit schwerere Isotop umgewandelt. Es entstehen also Elemente, deren Isotopenzusammensetzung durch künstliche Umwandlung verändert ist. Man kann sie für Indikatorversuche verwenden. Z. B. wurden bereits Cadmium-Proben gewonnen, bei denen das stabile Isotop Cd^{113} auf $1/8$ seines ursprünglichen Gehaltes herabgesetzt war, unter genau entsprechender Vermehrung des Gehaltes an dem ebenfalls stabilen Cd^{114} . Über die Untersuchung einer solchen Probe berichtet A. J. Dempster¹⁶⁾. Die Probe war eine dünne Oberflächenschicht, die von Cadmium abgeschabt war, das sich lange Zeit in einem Uran-Brenner befunden hatte. Cadmium ist ein Gemisch aus 8 stabilen Isotopen. Das Isotop 113 macht im gewöhnlichen Cadmium 12,3% aus, betrug in der Probe jedoch nur $1,6 \pm 0,2\%$. Dagegen war das Isotop 114, das normal 28% ausmacht, auf $39,5 \pm 1,5\%$ vermehrt. Die Zunahme von Cd^{114} und die Abnahme von Cd^{113} sind also innerhalb der Meßgenauigkeit gleich. Keines der übrigen Isotope hatte eine meßbare Verschiebung erlitten. Der hohe Einfangquerschnitt des Cadmium für langsame Neutronen rührt also vom Isotop 113 her.

Auch die meisten sonst bekannten Umwandlungsprozesse mit Neutronen können so durchgeführt werden, mit Ausnahme der $(n, 2n)$ -Prozesse, für die meist schnellere Neutronen benötigt werden als sie bei der Uran-Spaltung auftreten. Unter den radioaktiven Kernen, die man durch Umwandlung erzeugen kann, ist von besonderer Wichtigkeit für die Biologie der langlebige radioaktive Kohlenstoff ${}^{14}\text{C}$ mit einer Halbwertszeit von 5100 Jahren.

Im Rahmen der amerikanischen Uran-Arbeiten wurde aber auch ein fabrikmäßiges Verfahren zur massenspektrographischen Isotopentrennung¹⁷⁾ entwickelt. In dieser „Atomfabrik“ in Oak Ridge (Tenn.) wurde ein Teil des U^{235} gewonnen, das zum Bau der ersten beiden Atombomben (New Mexiko und Hiroshima) diente. Die Trennspektrographen wer-

den mit dem Namen „Calutron“ bezeichnet (Zusammenziehung aus California University cyclotron). Das Außergewöhnliche dieser „elektromagnetischen“ Trennfabrik sei durch folgende Angaben gekennzeichnet: Die zu trennenden Ionen durchlaufen eine feste elektrische Beschleunigungsspannung und ein großes konstantes magnetisches Ablenkfeld, das durch riesige Elektromagnete ähnlich den Cyclotronmagneten erzeugt wird. Nach Angaben der Baufirma (du Pont Company) sind die in Oak Ridge verwendeten Elektromagneten um ein hohes Vielfaches größer als der größte damals existierende Cyclotronmagnet. Die Stromwicklungen wurden, um Kupfer zu sparen, aus Silber hergestellt und dabei über 12000 t Silber aus dem amerikanischen Staatsschatz verwendet. Die Gewinnung von U^{235} geschieht heute in einer anderen Fabrik in Oak Ridge nach einem Gasdiffusionsverfahren. Daher wird die elektromagnetische Fabrik jetzt zur Trennung von anderen Isotopen verwendet. Tab. 2 gibt eine Zusammenstellung der so gewonnenen getrennten Isotope*). Der Vorrat an diesen Isotoppräparaten liegt vorerst zwischen 1 Milligramm und 1 Gramm. Die Präparate werden von der Isotopes Division, Atomic Energy Commission, Oak Ridge Tenn. nur leihweise gegen eine Gebühr von 50 Dollar je Probe abgegeben.

Isotop	natürlicher Anteil %	erzielter Anteil %	Isotop	natürlicher Anteil %	erzielter Anteil %
${}^3\text{Li}^6$	7,5	93,91	${}^{42}\text{Mo}^{97}$	9,65	77,97
${}^3\text{Li}^7$	92,5	99,91	${}^{42}\text{Mo}^{98}$	24,1	95,0
${}^{14}\text{Si}^{28}$	89,6	99,40	${}^{42}\text{Mo}^{100}$	9,25	90,20
${}^{14}\text{Si}^{29}$	6,2	68,60	${}^{47}\text{Ag}^{107}$	51,9	90,26
${}^{14}\text{Si}^{30}$	4,2	63,90	${}^{47}\text{Ag}^{109}$	48,1	95,88
${}^{19}\text{K}^{39}$	93,38	99,93	${}^{48}\text{Cd}^{106}$	1,4	19,94
${}^{19}\text{K}^{40}$	0,012	0,16	${}^{48}\text{Cd}^{108}$	1,0	14,20
${}^{19}\text{K}^{41}$	6,61	88,36	${}^{48}\text{Cd}^{110}$	12,8	55,80
${}^{24}\text{Cr}^{52}$	83,78	98,80	${}^{48}\text{Cd}^{111}$	13,0	53,30
${}^{26}\text{Fe}^{54}$	6,04	87,90	${}^{48}\text{Cd}^{112}$	24,2	79,30
${}^{26}\text{Fe}^{56}$	91,57	99,00	${}^{48}\text{Cd}^{113}$	12,3	25,50
${}^{26}\text{Fe}^{57}$	2,11	77,60	${}^{48}\text{Cd}^{114}$	28,0	79,52
${}^{27}\text{Ni}^{58}$	47,4	98,51	${}^{48}\text{Cd}^{116}$	7,3	24,01
${}^{27}\text{Ni}^{60}$	26,7	94,40	${}^{50}\text{Sn}^{—}$	—	—
${}^{27}\text{Ni}^{61}$	1,2	78,83	${}^{50}\text{Sn}^{116}$	15,5	76,30
${}^{27}\text{Ni}^{62}$	3,8	94,25	${}^{50}\text{Sn}^{117}$	9,1	69,80
${}^{27}\text{Ni}^{64}$	0,88	97,40	${}^{50}\text{Sn}^{118}$	22,5	69,30
${}^{29}\text{Cu}^{63}$	70,13	99,35	${}^{50}\text{Sn}^{119}$	9,8	?
${}^{29}\text{Cu}^{65}$	29,87	93,81	${}^{50}\text{Sn}^{120}$	28,5	?
${}^{30}\text{Zn}^{64}$	50,9	83,80	${}^{50}\text{Sn}^{122}$	5,5	45,80
${}^{30}\text{Zn}^{66}$	27,3	78,40	${}^{50}\text{Sn}^{124}$	6,8	52,00
${}^{30}\text{Zn}^{67}$	3,9	56,00	${}^{51}\text{Sb}^{121}$	56,00	99,40
${}^{30}\text{Zn}^{68}$	17,4	93,90	${}^{51}\text{Sb}^{123}$	44,00	96,70
${}^{30}\text{Zn}^{70}$	0,5	32,90	${}^{52}\text{Te}^{—}$	—	—
${}^{34}\text{Se}^{74}$	0,9	6,50	${}^{52}\text{Te}^{125}$	6,0	81,10
${}^{34}\text{Se}^{76}$	9,5	43,50	${}^{52}\text{Te}^{126}$	19,0	93,20
${}^{34}\text{Se}^{77}$	8,3	50,10	${}^{52}\text{Te}^{128}$	32,8	93,50
${}^{34}\text{Se}^{78}$	24,0	79,30	${}^{52}\text{Te}^{130}$	33,1	93,00
${}^{34}\text{Se}^{80}$	48,0	—	${}^{81}\text{Tl}^{203}$	29,1	75,60
${}^{34}\text{Se}^{82}$	9,3	49,60	${}^{81}\text{Tl}^{205}$	70,9	89,50
${}^{35}\text{Br}^{81}$	49,4	91,41	${}^{82}\text{Pb}^{204}$	1,5	16,69
${}^{42}\text{Mo}^{92}$	14,9	92,07	${}^{82}\text{Pb}^{206}$	23,6	75,67
${}^{42}\text{Mo}^{94}$	9,4	74,68	${}^{82}\text{Pb}^{207}$	22,6	61,55
${}^{42}\text{Mo}^{95}$	16,1	80,75	${}^{82}\text{Pb}^{208}$	52,3	92,10
${}^{42}\text{Mo}^{96}$	16,6	88,20			

Tabelle 2

Mit Calutron angereicherte stabile Isotope (Auswahl*)

*) Es sind hier nur diejenigen Isotope aufgeführt, bei denen der erzielte Anteil zahlenmäßig angegeben ist. Weitere findet man in Nucleonics 2, 82, 1948.

Im folgenden wird ein Überblick über die Anwendungen gegeben. Es soll versucht werden, sie nach den Grundgedanken, die in den Methoden enthalten sind, zu ordnen¹⁸⁾. Dabei wird Vollständigkeit in den Hauptgesichtspunkten angestrebt, dagegen sollen für ausgeführte Anwendungen nur Beispiele gegeben werden.

Anwendungen unserer Kenntnisse über die Eigenschaften der Atomkerne

1. Strahlenwirkung.

a) Ausnützung der Durchdringungsfähigkeit von β - γ - und Neutronenstrahlen. Stichwort „Schattenwurf“

Ebenso wie man vom menschlichen Körper mit Röntgenstrahlen ein Schattenbild der Knochen entwerfen kann, so kann man auch eiserne Gußstücke, Schweißstellen und dergleichen

¹⁸⁾ Diese Einteilung wurde gemeinsam mit F. Weygand aufgestellt.

¹⁵⁾ Rev. Mod. Physics, 18, 513 [1946].

¹⁶⁾ Physic. Rev. 71, 829 (L) [1947].

¹⁷⁾ Vgl. J. Mattauch, diese Ztschr. 59, 37 [1947].

durchstrahlen. Einer gewissen Wandstärke von einheitlichem Material entspricht eine bestimmte Durchlässigkeit für γ -Strahlen. Man kann daher z. B. die Wandstärke von Stahlflaschen leicht überwachen, insbesondere von solchen, in denen aggressive Gase aufbewahrt werden. In diesem letzteren Fall kann man folgendermaßen vorgehen¹⁹⁾.

Ein schmales Bündel von Gammastrahlen durchsetzt die Flasche von der Seite her und trifft dann auf ein Zählrohr. Das Rohr wird nach Art einer Spirale gedreht, d. h. es wird gedreht und gleichzeitig in der Achse langsam weitergehoben. Falls die Wandstärke durchweg gleichmäßig ist, zeigt das Zählrohr über einen geeigneten Verstärker und Zeigerinstrument konstante Intensität an. Angefressene Stellen machen sich durch eine Zunahme der durchgehenden Intensität bemerkbar und die Verminderung der Wandstärke läßt sich bestimmen. Als Strahlenquelle kann man radioaktive Präparate verwenden. Dies hat den Vorzug 1.) daß keine Zuleitungen erforderlich sind, wie bei einer Röntgenröhre, 2.) schwankt die Intensität nicht und 3.) senden viele radioaktive Kerne härtere γ -Strahlen aus, als die größten heute verfügbaren Röntgenanlagen. Als Strahlenquelle kommt außer Ra und RdTh das künstlich radioaktive $^{99}\text{Y}^{86}$ mit der Halbwertszeit 105 Tage in Frage. Es sendet außer einer ziemlich weichen Röntgen-K-Strahlung, die keine Rolle spielt, nur Gammastrahlen der einheitlichen Quantenenergie 1,87 eMV aus. Dies Isotop läßt sich mit einem Cyclotron in beträchtlicher Intensität herstellen.

b) Rückstreuung.

Zur Überwachung der Dichte einer Flüssigkeit im technischen Betrieb kann folgendes Verfahren verwendet werden²⁰⁾: Eine γ -Strahlquelle befindet sich in einem Blei-Behälter, der durch zwei Blenden ein schmales gerichtetes Bündel austreten läßt. Dieses läßt man unter einem von 90° wenig verschiedenen Winkel auf die zu prüfende Flüssigkeit treffen und beobachtet die unter dem gleichen Winkel zurückgestreute γ -Strahlung mit einem Zählrohr, das sich in einem zweiten Bleibehälter hinter zwei Blenden befindet. Die zurückgestreute Intensität ist proportional der Dichte der Lösung. Durch das Zählrohr kann eine Vorrichtung gesteuert werden, die den Zustrom von Chemikalien zur überwachten Flüssigkeit beeinflußt. Es wird angegeben, daß die Anordnung zur Überwachung von Dichten zwischen 0,7 g/cm³ bis 1 g/cm³ erfolgreich verwendet wurde.

c) Neutronenstreuung in ferromagnetischen Substanzen.

Das Neutron besitzt, obwohl es elektrisch ungeladen ist, ein magnetisches Moment von $-1,93$ Kernmagnetonen. Es besitzt außerdem einen mechanischen Spin von $\frac{1}{2} \cdot \frac{h}{2\pi}$. Das negative Vorzeichen bedeutet, daß die Richtung des magnetischen und des mechanischen Moments entgegengesetzt gerichtet sind. Die Neutronen werden in den meisten Stoffen nur beim Zusammenstoß mit Atomkernen aus ihrer Richtung abgelenkt (Kernstreuung). In ferromagnetischen Substanzen können sie aber auch, vermöge ihres magnetischen Moments, gestreut werden an den ausgerichteten Elektronen, welche in diesen im magnetisierten Zustand vorhanden sind²¹⁾.

Diese magnetische Streuung ist nur ausgeprägt bei möglichst vollständiger magnetischer Sättigung und hängt stark von der Geschwindigkeit der langsamen Neutronen ab. Sie ist verschieden für Neutronen, deren magnetisches Moment parallel bzw. antiparallel zur magnetischen Feldrichtung steht. Neutronen werden daher durch magnetische Streuung teilweise „polarisiert“.

Durch diese Vorgänge wird die Durchlässigkeit für Neutronen u. U. merklich beeinflußt. Versuche mit Eisen von 1,32 cm Dicke ergaben für Neutronen mit einer einheitlichen Geschwindigkeit von etwa 1200 m/sec (d. h. Energie 0,0075 eV) den stärksten Einfluß der Magnetisierung, und zwar gehen bei Sättigungsmagnetisierung etwa 40% mehr Neutronen hindurch als im unmagnetischen Zustand²²⁾.

Legierungen zeigen ähnlich untersucht je nach ihrer Zusammensetzung verschiedene Neutronendurchlässigkeit²³⁾. Der Effekt gestattet Aussagen über die Ordnung der an der Magnetisierung beteiligten Atome im Kristallgefüge.

d) Entstehen von Veränderungen in Zellen durch α -, β -, γ -, n-, p-, d-Strahlen (Stichwort: „Röntgenverbrennung“).

Die biologische Strahlenwirkung der Röntgenstrahlen und der Gammastrahlen von Ra, RdTh usw. ist seit Jahrzehnten unter-

sucht. Sie beruht auf der Ionisierung durch Sekundärelektronen der Gammastrahlung. In Atomen mit hohem Atomgewicht (hoher Ordnungszahl) werden mehr Sekundärelektronen ausgelöst. Die ionisierende Wirkung der β -Strahlen ist analog, die von α -Strahlen, Protonen und Deuteronen ist ähnlich. Den Hauptunterschied gegenüber Gammastrahlen bildet die geringere Eindringtiefe und die größere Ionisierungsdichte dieser Strahlenarten.

Besonderes Interesse besitzt die biologische Wirkung von Neutronenstrahlen. Neutronen ionisieren nicht durch Auslösung von Elektronen, sondern hauptsächlich, indem sie auf andere Atomkerne durch Stoß einen Teil ihrer kinetischen Energie übertragen. Nur wenn der Stoß auf Atome mit niedrigem Atomgewicht trifft, vor allem auf Wasserstoff-Kerne, wird ein großer Bruchteil übertragen. Dadurch werden in wasserhaltigem Gewebe, verteilt über das Volumen, stark ionisierende Protonenstrahlen erzeugt. Als Wirkung der Neutronenbestrahlung hat man Wachstumshemmung (z. B. bei keimenden Samen), Abtötung von Zellen (Krebsbekämpfung, Drosophila-Eier), Mutationsauslösung und Chromosomenbrüche beobachtet²⁴⁾.

Bei Neutronen bedarf die Messung der „Strahlintensität“ noch weiterer Klärung. Für die Röntgendosis besitzt man die Einheit 1 r („Röntgen“). 1 r erzeugt in einer Ionisationskammer bei Ausschaltung von Wandeinflüssen in 1 cm³ eine Ladungsmenge von 1 elektrostatischen Einheit = $\frac{1}{3} \cdot 10^{-9}$ Ampsec. Röntgendosen lassen sich leicht bestimmen^{24,25)} mit kleinen Ionisationskammern aus Aerion, einem Material, dessen Zusammensetzung $\text{C}_6\text{H}_{4,4}\text{O}_{1,5}$ entspricht und das im Sinne der Röntgendosimetrie luftäquivalent ist. Da das Material wasserstoffhaltig ist, werden in ihm durch Neutronenstoß Rückstoßprotonen ausgelöst. Diese ionisieren in der Kammer und man kann damit auch Neutronendosen messen.

In Amerika wird als vorläufige willkürliche Einheit für Neutronen 1 n gebraucht²⁶⁾. Darunter wird diejenige Neutronenstrahlung verstanden, die in einem Victoreen Röntgendosimeter für den Meßbereich 100 r und 0,5 cm³ Meßkammervolumen denselben Ausschlag erzeugt wie 1 r Röntgenstrahlen. Das Wirkungsverhältnis für Neutronen: Röntgenstrahlen auf vergleichbare Dosismessung bezogen hat Werte²⁴⁾ zwischen 10:1 und 1:2,5 je nach der Strahlenreaktion, die der Messung zugrunde gelegt wird. Es beträgt für Erzeugung eines Hauterythems und auch für die Abtötung von Tumorzellen 2,5:1.

Bis jetzt besprachen wir nur Wirkungen, die denen der Röntgenstrahlen ähnlich sind. Man kann aber auch an einen neuen Weg zur Geschwulsthemmung denken. Man könnte Gewebe mit Bor- oder Lithium-Verbindungen tränken und dann mit langsamen Neutronen bestrahlen. Da Bor und Lithium einen besonders großen Einfangquerschnitt für solche Neutronen besitzen, während Kohlenstoff, Wasserstoff, Sauerstoff, Stickstoff, Schwefel, Calcium, also die Hauptelemente des lebenden Gewebes, langsame Neutronen kaum einfangen, würden die Neutronen vor allem im Bor und Lithium absorbiert werden. Bor und Lithium sind die einzigen Elemente, die bei der Absorption langsamer Neutronen α -Strahlen aussenden. Es würde daher durch langsame Neutronen eine Strahlenwirkung im Gewebe nur am Ort des Li oder B entstehen. Voraussetzung ist allerdings, daß die Chemie ungiftige, im Körper nicht schnell auswaschbare Bor- und Lithium-Verbindungen zur Verfügung stellt. Versuche mit Lithium-Salzen von Pontaminhimmelblau GB, Trypanblau und Carminsäure sind in Amerika mit Mäusen bereits ausgeführt worden²⁷⁾. Azo-Farbstoffe, meist Natriumsalze des Disulfonsäurekomplexes lokalisieren sich im Tumorgewebe nach 4–7 h und sind nach 24–28 h völlig ausgewaschen. Die erreichte Höchstkonzentration ist allerdings nur doppelt so groß, wie die in der Leber oder Niere.

Eine neue Art der Geschwulsthemmung ist bei generalisierten Tumoren mit Hilfe radioaktiver Isotope möglich, insbesondere bei der Leukämie. Statt der sonst üblichen Röntgenbestrahlung hat man ^{32}P eingespritzt und in verschiedenen Fällen sehr gute Erfolge erzielt. Die Art der Behandlung sei durch ein Beispiel beschrieben. Ein Patient bekam am 28. 11. 298 mC ^{32}P , am 15. 1. weitere 291 mC, schließlich am 15. 6. 488 mC. Die

¹⁹⁾ A. Trost, Stahl u. Eisen 58, 668 [1938].

²⁰⁾ D. G. C. Hare, USPat. 2304910, nach Nucleonics 2, 36 [1948].

²¹⁾ F. Bloch, Physic. Rev. 50, 461 [1936] u. 51, 994 [1937].

²²⁾ D. J. Hughes, J. R. Wallace u. R. H. Holtzman, Physic. Rev. 73, 1277 [1948].

²³⁾ F. C. Nix, H. G. Beyer u. J. R. Dunning, J. appl. Physics, 12, 305 [1941].

²⁴⁾ K. G. Zimmer, Strahlentherapie 63, 517, 528 [1938]; L. X. Gray, J. Read, J. C. Mottram, Nature [London] 144, 479 [1939].

²⁵⁾ L. H. Gray, J. Read, Nature [London] 144, 439 [1939].

²⁶⁾ P. C. Aebersold, J. appl. Physics 12, 345 [1941].

²⁷⁾ P. A. Zahl, F. S. Cope, J. appl. Physics 12, 336 [1941].

Zahl der weißen Blutkörperchen wurde dadurch von 200 000 auf den normalen Wert von 10 000 gesenkt. Starker Abfall trat nach der zweiten Gabe ein. Die dritte Gabe wurde durch einen Wiederanstieg veranlaßt. Zwei Jahre nach der Behandlung war der Patient noch gesund.

Man weiß, daß Jod selektiv in der Schilddrüse angereichert wird. Durch Eingeben von künstlich radioaktivem Jod kann eine selektive Bestrahlung der Schilddrüse erzielt werden. Man muß damit rechnen, daß vielleicht andere Elemente an anderen Stellen des Körpers selektiv abgelagert werden und so Selektivbestrahlungen ermöglichen.

e) Anregung von Fluoreszenz.

Leuchtfarben werden üblicherweise durch α -Strahlen von RdTh oder Ra zum Leuchten angeregt. Mit genügend starken β -Strahlern läßt sich die gleiche Wirkung erzielen. Man kann künstlich radioaktive Stoffe verwenden wie sie im Uran-Brenner in großer Menge entstehen.

f) Abbau elektrischer Felder durch Ionenerzeugung.

Es ist bekannt, daß man mit radioaktiven Sonden elektrische Potentialmessungen ausführen kann. Es kommt in diesem Fall darauf an, die durch die Sonde hereingebrachte Störung des elektrischen Feldes abzubauen und dabei die Sonde auf dasjenige Potential zu bringen, das vor ihrer Einbringung an ihrem Platz geherrscht hat.

Zur Beseitigung elektrischer Oberflächenladungen auf Gaswaagen und auf Mikrowaagen kann ebenfalls radioaktive Strahlung, z. B. die γ -Strahlung eines beliebigen Thorium-Salzes verwendet werden.

2. Erkennung eines chemischen Elements durch eine mit einer Kernumwandlung verknüpfte Erscheinung

Die übliche chemische Analyse macht Gebrauch von der Verschiedenheit der Elektronenhüllen bei verschiedenen Elementen. Statt dessen kann man die Verschiedenheit in den Eigenschaften der Atomkerne zum Nachweis des chemischen Elements ausnützen.

Der Bau der Elektronenhülle und damit die chemischen Eigenschaften hängen nur von der Ordnungszahl (Kernladung) ab. Isotope, d. h. Atome mit gleicher Ordnungszahl, aber verschiedenem Atomgewicht verhalten sich in analytisch-chemischer Hinsicht gleich, in ihren Kerneigenschaften sind sie aber verschieden. Die jetzt zu nennenden Verfahren eignen sich daher, im Unterschied zu den analytisch-chemischen, auch zur Isotopenanalyse. Es ist zu vermuten, daß sie sich wegen des empfindlichen Nachweises radioaktiver Kerne besonders gut zum Nachweis von Spuren eignen. Die Verfahren werden voraussichtlich auch zu einem quantitativen Nachweis verwendet werden können. Es handelt sich um drei Gruppen von Anwendungen:

a) Nachweis eines natürlich radioaktiven Elements auf Grund seiner Strahlung.

Als Beispiel ist vor allem das K zu nennen, dessen Isotop mit dem Atomgewicht 40 (Häufigkeit 0,012%) β - und γ -Strahlen aussendet.

b) Künstliche Aktivierung durch γ -, n-, p-, d-, α -Strahlen.

Bei Bestrahlung der meisten Elemente tritt Kernumwandlung ein. Dabei entstehen in vielen Fällen radioaktive Kerne. Aus deren Strahlungseigenschaften kann man auf die Ausgangselemente zurückschließen. Man bestimmt die entstehenden Halbwertszeiten, wenn nötig, auch die Härte (Energieverteilung) der β -Teilchen, das Ladungsvorzeichen (Elektronen, Positronen), das Vorhandensein und die Art der γ -Strahlen.

Verwendet man nur die Bestrahlung mit einer einzigen unter den eine Radioaktivität hervorrufenden Teilchenarten, z. B. nur mit Neutronen, so genügt der Befund möglicherweise noch nicht für eine eindeutige Zuordnung. Durch Mithieranziehen einer zweiten oder dritten Teilchenart gelingt dies aber meist.

c) Resonanzabsorption langsamer Neutronen.

Gewisse Atomkerne besitzen schmale intensive Absorptionsbanden im Geschwindigkeitsspektrum langsamer Neutronen. So absorbiert z. B. Silber, und zwar nur das Isotop $^{107}_{47}\text{Ag}$ ein schmales Gebiet um 5,1 eV Neutronenenergie unter Entstehen des radioaktiven $^{108}_{47}\text{Ag}$ mit der Halbwertszeit $T = 22$ sec. Verwendet man zum Nachweis der selektiv absorbierbaren Resonanzneutronen dieselbe Substanz, deren Absorptionsvermögen nachgewiesen werden soll, z. B. wieder Silber, so läßt sich das Vorhandensein der absorbierenden Kerne besonders empfindlich nachweisen. Die Lage der Resonanzabsorptionsmaxima einiger als Beispiele ausgewählter Elemente gibt Tabelle 3²⁸⁾.

Dabei ist E_r die kinetische Energie der Resonanzneutronen in eV (Lage des Maximums), σ_0 der Wirkungsquerschnitt im Maximum der Resonanzstelle in Einheiten 10^{-24} cm², Γ die Breite des Resonanzmaximums gemessen auf halber Höhe. Das Maximum von Cd liegt mitten im Gebiet der thermischen Neutronen, in dem alle Stoffe, die ein Resonanzgebiet besitzen, auch absorbieren.

d) Chemische Eigenschaften von Elementen, die in stabiler Form unbekannt sind.

In radioaktiver Form lassen sich die Elemente 43, 61, 85, 87, 93, 94, 95, 96 gewinnen. Man kann damit chemische Umsetzungen durchführen und das analytisch-chemische Verhalten dieser Elemente feststellen. Falls nur unwägbar Mengen vorliegen, dient die radioaktive Strahlung, nicht die Wägung, zum Nachweis.

3. Ausnützung der Unterscheidbarkeit unnormal zusammengesetzter (radioaktiver oder stabiler) Isotopenmischungen von normalen Mischungen oder Reinelementen

a) Feststellung des Aufenthaltsortes.

Wir besprechen zwei geophysikalische Beispiele. Zum Auffinden und zur Lokalisierung stratigraphischer Störungsstellen wird die Messung der γ -Strahlintensität im Gestein im Innern von Bohrlöchern in Abhängigkeit von der Tiefe verwendet. Dazu wird ein Zählrohr in das Bohrloch versenkt. Die Messung beruht auf dem wechselnden Gehalt an U, Ra und Th in verschiedenen Gesteinen³⁴⁾.

Wird in ein Bohrloch ein Rohr eingeschoben, so interessiert, ob hinter dem eingeschobenen Rohr Hohlräume entstanden sind, etwa durch ausgebrochenes Gestein an Schichtgrenzen. Um diese nachzuweisen preßt man hinter das Rohr des Bohrloches Zement ein, dem etwas radioaktives Gestein (z. B. Carnotit) beigelegt ist und kann dann die Verteilung des Zements in den verschiedenen Tiefen durch Versenken eines Zählrohres messen³⁵⁾.

b) Verfolgung des Transportweges.

Man läßt eine Versuchsperson radioaktives Kochsalz in wässriger Lösung schlucken. Dieses wird im Magen resorbiert. Die vom radioaktiven Natrium ausgehende γ -Strahlung läßt sich mit einem Zählrohr nachweisen. Man findet, daß Strahlung bereits nach etwa 2 Minuten aus der Hand austritt³⁶⁾. Nach etwa 3 h ist das Maximum der Intensität erreicht, dann ist im Körper so weit möglich Gleichverteilung eingetreten.

Man kann das radioaktive Kochsalz auch eingeben eingeschlossen in eine gehärtete Kapsel, die vom Magensaft nicht angegriffen und erst im Darm aufgelöst wird. Durch Annähern eines Zählrohres von außen an die Speiseröhre, den Magen usw.

²⁸⁾ Vgl. auch die Zusammenfassung von H. H. Goldsmith, H. W. Ibsen u. B. T. Feld, Rev. Mod. Phys. 19, 259 [1947].

²⁹⁾ W. J. Sturm, Physic. Rev. 71, 757 [1947].

³⁰⁾ W. N. Havens jr. u. L. J. Rainwater, ebenda 70, 154 [1946].

³¹⁾ L. J. Rainwater, W. W. Havens jr., C. S. Wu u. J. R. Dunning, ebenda 71, 165 71, 65 [1947].

³²⁾ B. D. McDaniel, ebenda 70, 832 [1946].

³³⁾ W. W. Havens jr., C. S. Wu, L. J. Rainwater u. C. L. Meaker, ebenda [1947].

³⁴⁾ B. Rajewski, Z. Physik 120, 627 [1943].

³⁵⁾ L. G. Howell, J. appl. Physics 12, 301 [1941].

³⁶⁾ K. Lark-Horowitz, ebenda, 12, 317 [1941].

Element	⁴⁵ Rh	⁴⁷ Ag	⁴⁸ Cl	⁴⁹ In	⁷⁷ Ir	⁷⁹ Au
E_r in eV	1,28	5,1 \pm 0,2	0,176 \pm 0,002	1,44 \pm 0,03	0,64 \pm 0,015 1,27 \pm 0,04	4,8 \pm 0,1
Γ in eV	—	—	0,115 \pm 0,002	0,085 \pm 0,01	\geq 0,07 \geq 0,07	—
σ_0 in 10^{-24} cm ²	> 1600	~ 500	7200 \pm 200	26400	~ 4000 ~ 3000	~ 2800
Zitat	²⁹⁾	³⁰⁾	³¹⁾	³²⁾	³¹⁾	³³⁾

Tabelle 3

läßt sich der augenblickliche Aufenthaltsort der Kapsel feststellen. Wenn sich die Kapsel öffnet, wird das Kochsalz im Darm resorbiert. Dies kann man (z. B. mit einem zweiten Zählrohr) kurze Zeit später durch das Auftreten von Gammastrahlung aus der Hand nachweisen³⁷⁾.

c) Diffusion.

Die Selbstdiffusion läßt sich grundsätzlich nur mit radioaktiven oder getrennten Isotopen messen. Die Verwendung von Isotopen ist vor allem wichtig zur Untersuchung der Selbstdiffusion in festen Körpern.

Beim Beginn des Versuches³⁸⁾ muß eine dünne Schicht mit unterscheidbarer Isotopenzusammensetzung aufgebracht werden. Das kann geschehen durch Elektrolyse, durch Aufdampfen oder durch Abscheidung aus der Gasphase. Es ist ein großer Nachteil, daß dabei die genauen Oberflächenbedingungen (adsorbierte Verunreinigungen und dergl.) nicht bekannt sind.

Ein anderes Verfahren bei dem ein definierter Ausgangszustand erzielt wird, besteht darin, durch Beschießen der Oberfläche mit Protonen, Deuteronen, α -Teilchen die radioaktiven Stoffe in der Schicht selbst zu erzeugen. Dazu ist zu bemerken, daß eine Bestrahlung mit Neutronen oder γ -Strahlen nicht in Frage kommt, da deren Wirkung sich nicht auf eine dünne Oberflächenschicht beschränken würde und weiter, daß nur durch einen (d, p) Prozeß, also beim Eintritt eines Deuterons in den Kern unter Wegfliegen eines Protons ein Isotop des bestrahlten Elements entsteht.

Bei der Auswertung solcher Diffusionsversuche ist folgendes von Bedeutung: Wir bezeichnen mit D die Diffusionskonstante und mit t die Zeit. Wenn $D \cdot t > 10^{-5} \text{ cm}^2$ ist, kann die Probe nach erfolgter Diffusion in dünne Schichten von 40μ zerlegt und jede für sich gemessen werden.

Wenn $D \cdot t > 10^{-10} \text{ cm}^2$ ist, verwendet man Isotope, die eine leicht absorbierbare Strahlung, z. B. α -Teilchen aussenden. Durch das Eindiffundieren nimmt die Strahlenintensität ab. Die Methode krankt daran, daß geringe Meßfehler in der Aktivität große Fehler in D zur Folge haben. Sie ist außerdem auf die wenigen Elemente beschränkt, die α -strahlende Isotope besitzen.

Wenn $D \cdot t > 10^{-13} \text{ cm}^2$ ist und falls natürlich radioaktive α -Strahler verwendbar sind, kann man die Rückstoßkerne sammeln und deren Aktivität messen.

Selbstdiffusionsmessungen in festen Stoffen sind, soweit bekannt, durchgeführt bei Au, Cu, Zn, Ag.

d) Emaniermethode.

Eine besonders wichtige und interessante Abart der Diffusionsuntersuchungen stellt die Emaniermethode von O. Hahn³⁹⁾ dar. Bei dieser wird die Diffusion eines fremden gasförmigen Elements meist Th Em und dessen Austritt aus der Oberfläche zu Aussagen über die innere Struktur verwendet. Ein radioaktives Material, z. B. ThX ($_{88}\text{Ra}^{224}$) wird dem zu untersuchenden in geringer Menge zugesetzt, und zwar durch Zusammenschmelzen, Diffusion oder Elektrolyse. Dann diffundiert Thorium-Emanation heraus. Wenn nun eine Strukturumwandlung in Abhängigkeit von der Temperatur oder Zeit eintritt, etwa durch Rekristallisation, Verschweißen von gepreßten Pulvern, Modifikationsänderung und dergl., dann ergibt sich eine plötzliche Änderung des Emanationsaustrittes. Diese dient als Kriterium für die inneren Umlagerungen.

e) Verdünnungsanalyse.

Falls die quantitative chemische Abtrennung eines Stoffes nicht möglich ist, jedoch eine qualitative durchgeführt werden kann, sei es auch nur mit beliebig geringer Ausbeute (z. B. bei Aminosäuren), dann kann man ein Verfahren einschlagen, das in der einfachsten schematischen Form zunächst für den Nachweis eines chemischen Elementes geschildert werden soll.

Von einem chemischen Element seien y Gramm mit normaler natürlicher Isotopenzusammensetzung gegeben. Weiter seien vorhanden x Gramm des gleichen Elements, in dem aber eines der Isotope (Überschußisotop) einen %-Satz ausmacht, der um $C_0\%$ höher liegt als bei der natürlichen Isotopenmischung. Mischt man die beiden Mengen zusammen, so erhält man $(x + y)$ Gramm Gemisch. Die Konzentration des Überschußisotops darin bezeichnen wir mit C %. Dann gilt die Beziehung

$$(x + y) \cdot C = x \cdot C_0 \text{ oder } y = \left[\frac{C_0}{C} - 1 \right] \cdot x$$

³⁷⁾ K. Lark-Horowitz u. H. R. Leng, Nature [London] 147, 580 [1941].

³⁸⁾ P. H. Miller, jr., J. appl. Physics 12, 303 [1941].

³⁹⁾ O. Hahn, Naturwiss. 12, 1140 [1924] und 17, 295 [1929]; vgl. auch K. E. Ziemens, Z. physikal. Chem. A 191, 1 [1942].

Genau genommen muß rechts noch mit dem Verhältnis der Molekulargewichte von x und y multipliziert werden⁴⁰⁾.

Wenn eine bekannte Menge x zugesetzt wird und C_0 und C bekannt sind, kann man y ausrechnen, auch wenn noch viele andere Stoffe gleichzeitig anwesend sind. Da bei diesem Verfahren ein Isotopenüberschuß ($C_0\%$) verdünnt wird (auf C %), so spricht man von „Verdünnungsanalyse“. Die maßgebende Messung ist die von C. Zu deren Durchführung genügt aber im Unterschied zu jeder normalen chemischen Analyse, die zu einer Bestimmung von y führen soll, ein beliebig kleiner Bruchteil des Gemisches.

Das chemische Element, von dem wir bisher gesprochen haben, kann in eine beliebige Verbindung eingebaut sein und es können beliebig viele andere Verbindungen gleichzeitig anwesend sein, ohne zu stören.

Beispiel: Wenn zufällig mengenmäßig ebensoviel von der durch einen Isotopenüberschuß gekennzeichneten Verbindung zugesetzt worden ist, wie in dem zu analysierenden Gemisch enthalten ist, dann wird $y:x = 1:1$. War für die zugesetzte Verbindung bzw. für das isotopisch gekennzeichnete Element $C_0 = 10\%$, so findet man $C = 5\%$, war $C_0 = 20\%$, so findet man 10% , oder bei 2% 1% . Wenn beispielsweise $y:x = 9:1$ war, also eine geringere Menge zugesetzt worden ist, dann ergibt sich bei $C_0 = 10\%$ $C = 1\%$ ⁴⁰⁾.

f) Erscheinungen in Phasengrenzen.

1. Schwerlösliche Stoffe. Thoriumpyrophosphat ist ein Salz mit 2 tetravalenten Ionen und ist sehr schwer löslich. Es ist wichtig für die Lösungstheorie den Einfluß anderer Salze auf die Löslichkeit eines Salzes dieser Art zu kennen. Zur Untersuchung der Löslichkeit hat man⁴¹⁾ Wasser über das Salz so langsam strömen lassen, bis Sättigung eintrat. Dann wurde der Inhalt einer bekannten Menge der Lösung eingedampft und die Aktivität des Rückstandes gemessen. Es ergab sich daraus eine Löslichkeit $6,1 \cdot 10^{-5} \text{ g/l}$ bei 25° . Bei Gegenwart von $13,5 \text{ g/l}$ Cu-Chlorid wurde die Löslichkeit 100mal größer gefunden.

2. Geringe Dampfdrucke. Thoriumacetylacetonat sublimiert bei 160° bei 1 mm Hg Druck. Der Dampfdruck bei 100° sollte gemessen werden⁴¹⁾. Dazu wurde ein Stickstoff-Strom durch ein Rohr, das die Substanz enthielt, bei 100° geleitet zur Sättigung mit dem Dampf und dieser dann in Salzsäure eingeleitet. Dadurch entsteht Thoriumchlorid. Aus dem Niederschlag und dessen Radioaktivität ist der Dampfdruck für 100° ableitbar. Es wurde $(3,2 \pm 0,3) \cdot 10^{-4} \text{ mm}$ gefunden.

3. Adsorption, Katalyse. Adsorption kann geschehen durch Anlagerung infolge elektrostatischer Anziehung zwischen einem gelösten Atom und der adsorbierenden Oberfläche oder indem ein Oberflächenion durch ein Ion mit gleichem Vorzeichen aus der Lösung ausgetauscht wird. Zur Klärung dieser Frage⁴²⁾ kann man vor dem Adsorptionsversuch in die Oberfläche radioaktive Atome einbauen. Im zweiten Fall müssen radioaktive Atome in der Lösung auftreten, im ersten Fall nicht.

g) Chemische Austausch- und Umwandlungsreaktionen.

Mit Hilfe radioaktiver oder getrennter Isotope läßt sich feststellen, ob und wie schnell ein Atom, das sich in einem Komplex befindet, mit anderen Atomen austauscht. Einige anorganische Beispiele gibt Tabelle 4.

Fe	Fe ⁽²⁺⁾	gegen	Fe ⁽³⁺⁾	6 n HCl bei 20°	rascher Austausch
Hg	Hg ⁺	„	Hg ⁽²⁺⁾	in H ₂ O „ 20°	„
Mn	MnO ₄ ⁽²⁻⁾	„	MnO ₄ ⁻	in alkal. Lösung	„
Fe	Fe ⁽³⁺⁾	„	[(Fe(CN) ₆) ₄] ⁽³⁻⁾		kein Austausch
	Fe ⁽³⁺⁾	„	[(Fe(CN) ₆) ₄] ⁽⁴⁻⁾		„
	Fe ⁽²⁺⁾	„	[(Fe(CN) ₆) ₄] ⁽³⁻⁾		„
	[Fe(CN) ₆] ⁽³⁻⁾	„	[(Fe(CN) ₆) ₄] ⁽⁴⁻⁾		„
P	[PO ₄] ⁻	„	[H ₂ PO ₂] ⁻		„
Mg	Mg ⁽²⁺⁾	„	Chlorophyll-Mg		„
O ¹⁸	in Wasser mit		KNO ₃		
			NaNO ₃		
			K ₃ PO ₄		„ ⁴³⁾
			NaClO ₃		
			NaClO ₄		
			NaJO ₃		langsamer Aust.
			Na ₂ B ₄ O ₇		
			Na ₂ SiO ₃		rascher Austausch

Tabelle 4

⁴⁰⁾ Vgl. die folgende Arbeit von F. Weygand, S. 285.

⁴¹⁾ R. C. Young, J. appl. Physics 12, 306 [1941].

⁴²⁾ K. Fajans, ebenda 12, 306 [1941].

⁴³⁾ R. Bentley, Nucleonics 2, 18 [1948].

Man sieht, daß ein Ion leicht seinen Ladungszustand ändert, daß aber in keinem der untersuchten Fälle ein Austausch mit einem Komplex gefunden wurde⁴⁰⁾.

h) Radiographie.

Man kann darüber streiten, ob die Radiographie aus systematischen Gründen in den Abschnitt a) Feststellung des Aufenthaltsortes gehört. Wegen ihrer besonderen Versuchsmethodik soll sie getrennt aufgeführt werden. Wir geben einige Beispiele⁴⁴⁾:

Zum Nachweis von Entmischungsvorgängen in Metallschmelzen (Gußmetallen) werden z. B. 10^{-6} Gewichtsprozent von aktivem Material dem Schmelzfluß zugesetzt. Das erkaltete Material wird poliert und die glatte Fläche auf eine photographische Platte gelegt. Nach einer Belichtung von Stunden oder Tagen erhält man ein Bild aus dessen Schwärzungsmuster sich die Entmischung oder eine dendritische Struktur oder dergl. erkennen läßt.

Um kleine Oberflächenrisse in Metallen zu finden, wird radioaktives Material mit Fett gemischt und unter hohem Druck eingepreßt. Dann wird das Fett abgewischt und eine photographische Platte aufgelegt. Die Rißstellen zeichnen sich ab. Die Methode ist besonders für unmagnetisches Material wertvoll, für magnetisches gibt es handlichere Verfahren.

An Pflanzen, die in radioaktiven Nährlösungen gewachsen sind, kann man durch ein Radiogramm leicht die Verteilung des radioaktiven Stoffes, z. B. des Phosphors feststellen⁴⁵⁾. Analoge Versuche sind auch bei Tieren ausgeführt worden und haben Radiogramme von Schliffen der Zähne geliefert.

i) Monochromatische Strahlungsquelle.

Bereits vor etwa 10 Jahren war es gelungen, mit dem Cyclotron aus Gold eine solche Menge Hg^{196} herzustellen, daß sie ausreicht zur Füllung einer spektroskopischen Lichtquelle⁴⁶⁾. Größere Mengen können heute im Uranbrenner erzeugt werden. Man erhält dadurch die Linien des Einzelisotops und nicht die, wenn auch nur sehr wenig verschiedenen dicht benachbarten Linien des gewöhnlichen Quecksilbers und hat so für Meßzwecke eine Hg-Lichtquelle mit wirklich monochromatischer Strahlung.

4. Zeitbestimmung aus umgewandeltem Bruchteil und Zerfallskonstante eines radioaktiven Isotops

Das Verfahren wird vor allem zur Altersbestimmung von Gesteinen und Mineralien verwendet. Es sind z. Zt. fünf unabhängige Verfahren in Gebrauch:

a) Uran besteht zu über 99% aus ^{238}U (U1). Dieses besitzt eine Halbwertszeit $T_{\text{U1}} = 4,56 \cdot 10^9 \text{a}$. Es zerfällt über die sogenannte Uran-Radiumreihe über radioaktive Zwischenprodukte mit wesentlich kleineren Halbwertszeiten schließlich in RaG , also ^{206}Pb . Falls Uran 10^9 Jahre lagert, ist das Mischungsverhältnis $\text{Pb}^{206} : \text{U}^{238} = 0,14:1$ (vgl. Tab. 5).

b) Thorium ist ein Reinelement und zerfällt über mehrere radioaktive Zwischenprodukte mit durchweg wesentlich kleineren Halbwertszeiten in Th D , also Pb^{208} . Halbwertszeit und Mischungsverhältnis sind in Tab. 5 enthalten.

c) Die Ausgangssubstanz der Aktinium-Reihe ist ^{235}U (Ac U), das 0,7% des Urans ausmacht. Es zerfällt über mehrere radioaktive Stoffe, die wesentlich kleinere Halbwertszeiten besitzen in AcD , also ^{207}Pb . In einem Uranmineral entsteht also gleichzeitig stets Pb^{206} aus U^{238} und Pb^{207} aus U^{235} . Das heute vorliegende Uran sendet auf 1000 α -Teilchen, die aus U^{238} stammen, 46 α -Teilchen aus, die von U^{235} ausgehen. Da die Halbwertszeit von U^{238} und U^{235} beträchtlich verschieden ist, hat in früheren Erdperioden U^{235} einen höheren Prozentsatz des Urans ausgemacht. Bezogen auf gleiche Mengen Pb^{206} (= Ra G) entstand daher in früheren Erdperioden relativ mehr Pb^{207} (= AcD) als heute. Das Isotopenverhältnis $\text{Pb}^{207} : \text{Pb}^{206}$ im radiogenen Blei hängt daher vom Alter des Minerals merklich ab und kann zur Altersbestimmung benützt werden⁴⁷⁾.

d) Das Rubidium-Isotop ^{87}Rb sendet β -Strahlen aus und verwandelt sich in ^{87}Sr . Die Menge des gebildeten Sr^{87} dient ebenfalls zur Altersbestimmung⁴⁸⁾.

⁴⁴⁾ W. A. Johnson, J. appl. Physics 12, 304 [1941].

⁴⁵⁾ Z. B. O. Erbacher, Z. angew. Photogr. Wiss. Techn. 1, 141 [1939].

⁴⁶⁾ J. Wiens u. L. W. Alvarez, Physic. Rev. 58, 1005 [1940].

⁴⁷⁾ A. O. Nier, ebenda, 55, 153 [1939].

⁴⁸⁾ O. Hahn, F. Straßmann, E. Walling, Naturwiss. 25, 189 [1937].

Verhältnis der Kerne	Halbwertszeit des Anfangskerns	Bei Alter von	Mischungsverhältnis
a) $^{238}\text{U} : ^{206}\text{Pb}$	$T_{\text{U1}} = 4,56 \cdot 10^9 \text{a}$	10^9a	1 : 0,14
b) $^{232}\text{Th} : ^{208}\text{Pb}$	$T_{\text{Th}} = 13,9 \cdot 10^9 \text{a}$	10^9a	1 : 0,045
c) $^{238}\text{U} : ^{207}\text{Pb}$	$T_{\text{AcU}} = 0,73 \cdot 10^9 \text{a}$ (effektiv $0,84 \cdot 10^9 \text{a}$)	0 a	1 : 0,046
d) $^{87}\text{Rb} : ^{87}\text{Sr}$	$T_{\text{Rb}} = 63 \cdot 10^9 \text{a}$	10^9a	1 : 0,073
			1 : 0,011

Tabelle 5

e) Beim Zerfall der natürlich radioaktiven Stoffe werden α -Strahlen ausgesandt, also Helium-Kerne. Der Helium-Gehalt kann zur Altersbestimmung herangezogen werden⁴⁹⁾, wenn ein Gestein das so gebildete Helium festhält. Die Brauchbarkeit eines Gesteins muß sorgfältig geprüft werden. Der Heliumgehalt in verschiedenen Teilstücken muß proportional der natürlichen Radioaktivität dieser Teilstücke sein. Man darf nur Gesteinsstücke verwenden, die dieser Bedingung genügen. Metamorphose-Gesteine sind unverwendbar. Man bestimmt den Gehalt des Gesteins an α -Strahlern, und zwar getrennt für die U-Reihe und für die Th-Reihe und vergleicht damit den Gehalt an He. Magnetit und Pyroxen hält das meiste He zurück (Ergebnis für das Alter in einem Beispiel 103 und $104 \cdot 10^6 \text{a}$). Feldspat läßt einen Teil des He entweichen (Ergebnis für das Alter bei gleicher Herkunft $36 \cdot 10^6 \text{a}$). Der Gehalt an Radium und das Verhältnis von α -Strahlern der Thoriumreihe zu denen der Uranreihe ist in Tab. 6 angegeben.

Art des Gesteins	Ra-Gehalt	Verhältnis Th : U
Saure Gesteine	$(1,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-12} \frac{\text{g Ra}}{\text{g Gestein}}$	4,3
mittlere „	$(0,51 \pm 0,05) „$	2,6
basische „	$(0,34 \pm 0,03) „$	4,0

Tabelle 6

Die Uran-Radium-Reihe enthält 8 α -Strahler, die Thorium-Reihe 6, die Aktinium-Reihe 7. Das Verhältnis der Aktivität von $\text{Ra} : \text{Ac} = 1 : 0,046$.

5. Freiwerden von Kernenergie

a) Wärmeerzeugung im Erdinnern.

Man weiß, daß geochemisch die Häufigkeit des Kaliums proportional ist zur Dichte des Gesteins und weiter, daß die Häufigkeit von Thorium und Uran parallel zu der von Kalium geht. Daraus läßt sich abschätzen, wieviel Th und U in der Erdkruste enthalten ist und wieviel Wärme durch den radioaktiven Zerfall von Kalium, von Thorium mit Zerfallsprodukten und von Uran mit Zerfallsprodukten entsteht. Man findet⁵⁰⁾, daß die Wärmeabgabe der Erde völlig gedeckt wird durch die radioaktive Wärmeentstehung. Man gelangt sogar auf eine etwas zu hohe Wärmeentstehung und muß daher annehmen, daß die natürlichen radioaktiven Elemente im Erdinnern seltener sind, als an der Erdoberfläche.

b) Wärmeerzeugung auf der Sonne und auf Sternen.

Bei den sehr hohen Temperaturen im Innern der Sonne und der Sterne reicht die Temperaturbewegung der Wasserstoffatome aus, um beim Stoß gegen gewisse leichte Atomkerne eine Umwandlung herbeizuführen. Die nähere Untersuchung der in Frage kommenden Umwandlungsprozesse zeigt, daß als Hauptenergiequelle der Sonne die fortlaufende Umwandlung von Wasserstoff in Helium anzunehmen ist⁵¹⁾. Dabei werden durch eine Kette aus 4 Umwandlungsprozessen (Stoß von Kernen) und 2 radioaktiven Zerfällen jeweils 4 Wasserstoff-Kerne in einen Helium-Kern umgesetzt. Hierdurch wird etwa die 5millionenfache Energie frei gegenüber der Verbrennung der gleichen Atomzahl Wasserstoff mit Sauerstoff zu Wasser. Dieser Prozeß und ähnliche liefern die Energie zur Aufrechterhaltung der dauernden Ausstrahlung der Sonne und der Sterne.

c) Ausnützung der Kernspaltungsenergie.

Unter dem Einfluß des amerikanischen Wortgebrauchs spricht man von „Atom“-Bombe und „Atom“-Energie. Dabei

⁴⁹⁾ R. D. Evans, C. Goodman, N. B. Kevill, A. C. Lane u. W. D. Urry, Physic. Rev. 55, 931 [1939]; P. M. Hucley u. C. Goodman, Bull. Geol. Soc. America 52, April 1941.

⁵⁰⁾ L. B. Stichter, J. appl. Physics 12, 301 [1941]. Bull. Geol. Soc. America 52, April 1941.

⁵¹⁾ H. A. Bethe, Physic. Rev. 55, 434 [1939].

ist aber die auf der Umwandlung von Atomkernen beruhende Bombe und die aus den Kernen stammende Energie gemeint. Im Abschnitt: „Neue Wege zur Gewinnung radioaktiver und stabiler Atome“ ist bereits gesagt, wie im Uran-Brenner Wärme entsteht. Es ist jetzt nur noch zu besprechen, wie diese Wärmeenergie nutzbar gemacht werden kann und worin die vorher zu überwindenden Hauptschwierigkeiten bestehen. Die in Aussicht genommenen Anlagen sehen folgendes Verfahren vor⁵²⁾. Ein Uran-Brenner gibt seine Wärme an eine Kühlflüssigkeit (Kühlgas) ab. Die Kühlflüssigkeit führt sie weiter zu einem Austauscher, in dem ein Betriebsgas (Wasserdampf oder Quecksilberdampf) für eine Gasturbine oder eine andere Wärmekraftmaschine erhitzt wird. Das Kühlgas, das den Brenner durchläuft, wird radioaktiv, das Betriebsgas der Wärmekraftmaschine nicht.

⁵²⁾ J. D. Cockroft, Nature [London] v. 4. 10. 1947; J. D. Wheeler, Power (März 1946).

Damit die Maschine einen hohen Nutzeffekt hat, muß der Uran-Brenner, die Kühlflüssigkeit und das Betriebsgas der Wärmekraftmaschine bei möglichst hoher Temperatur betrieben werden. Bisher gelingt es noch nicht, den Uran-Brenner bei höheren Temperaturen sicher zu steuern und es macht Schwierigkeiten als Baumaterial Stoffe zu finden, die einerseits langsame Neutronen nicht absorbieren und andererseits zugleich genügend temperaturbeständig sind. Aluminium, das bei niedrigen Temperaturen verwendbar ist, muß bei höheren ersetzt werden. „Wenn die Natur freundlich ist“ (wie Cockroft sagt), könnte ein Uran-Brenner, der 100 t normales Uran enthält, 100000 kW auf die Dauer von 20 Jahren liefern ohne die Zufuhr von neuem Brennstoffmaterial. Wahrscheinlich wird aber vorher wegen der Neutronenabsorption in den Spaltprodukten deren chemische Abtrennung erforderlich sein.

Eingeg. am 8. November 1948.

[A 163]

Anwendungen der stabilen und radioaktiven Isotope in der Biochemie

Von Prof. Dr. FRIEDRICH WEYGAND, Chemisches Institut der Universität Heidelberg

Stabile und radioaktive Isotope haben sich als äußerst wertvolle Hilfsmittel der biochemischen Forschung erwiesen. Die Anwendungsmöglichkeiten werden besprochen und über zahlreiche, bisher erzielte Ergebnisse wird berichtet.

Allgemeiner Teil

- A) Verdünnungsanalyse
- B) Verfolgung des Weges und des Aufenthaltsortes einer Verbindung
- C) Verfolgung von chemischen Umwandlungsreaktionen, insbes. Stoffwechseluntersuchungen und Biosynthesen
- D) Wahl des geeigneten Isotops

Spezieller Teil

- Na, K, Zn, Co, Mn, Ca, Sr, Fe, Cu, P, As, F, Cl, Br, J, S, N, H², C
- Herstellung indizierter organischer Verbindungen
- Auswahl indizierter organischer Verbindungen
- Literatur

Zum ersten Male wurde ein radioaktives Isotop zur Lösung einer biochemischen Frage 1923 von G. Hevesy¹⁾ herangezogen, als er mit Th B, einem Blei-Isotop (Pb²¹²), den Blei-Stoffwechsel bei Pflanzen untersuchte. Da der Nachweis des radioaktiven Bleis etwa 10⁶ mal empfindlicher ist als der beste chemische Nachweis, konnten die Untersuchungen mit nichttoxischen Dosen durchgeführt werden. Arbeiten über den Blei- und Wismut-Stoffwechsel im tierischen Organismus folgten. Nach der Entdeckung des schweren Wasserstoffs (1932) zog ihn als einer der ersten K. F. Borchgrevink außer zu physikalisch-chemischen auch zu biochemischen Untersuchungen heran. In Amerika begannen dann Schoenheimer und Rittenberg ihre umfangreichen Untersuchungen mit schwerem Wasserstoff und auch mit schwerem Stickstoff, als dieser durch Ureys Arbeiten verfügbar geworden war.

Inzwischen waren die künstlich radioaktiven Elemente bekannt und durch die Erfindung des Cyclotrons in Amerika leicht zugänglich geworden. Als bald setzte dort eine wahre Flut biochemischer Arbeiten mit diesen neuen Hilfsmitteln ein, nachdem Hevesy in Dänemark 1935 mit dem radioaktiven Phosphor den Anfang gemacht hatte. Einen besonderen Aufschwung hat die Verwendung der radioaktiven Isotope zur Lösung chemischer und biochemischer Fragen neuerdings genommen, da durch die Uran-Piles die Radio-Isotope zu ziemlich niedrigen Preisen in beträchtlichem Umfange zugänglich geworden sind²⁾.

Allgemeiner Teil

Bei dem folgenden Überblick über die Anwendungsmöglichkeiten der Isotope können die Strahlenwirkungen beiseite gelassen werden, da diese verabredungsgemäß von R. Fleischmann³⁾ behandelt worden sind.

Für die chemische und biochemische Anwendung der Isotope ist die Allgemeingültigkeit zweier Voraussetzungen wichtig.

1. Die Isotope eines Elementes zeigen gleiches chemisches Verhalten, können aber mit physikalischen Methoden nebeneinander bestimmt werden. Die einzige Ausnahme machen Wasserstoff (H¹), Deuterium (H²) und Tritium (H³). Z. B. ist die C-H¹-Bindung schwächer als die C-H² oder die C-H³-Bindung wegen der höheren Nullpunktsenergie des leichteren Isotops.

2. Die Häufigkeitsverteilung der Isotope eines Elements in der Natur ist konstant, jedenfalls liegt die Schwankungsbreite

bei der üblicherweise angewandten Methodik unterhalb der Meßgenauigkeit. Genauere Messungen zeigten eine gewisse, allerdings sehr kleine Anreicherung von C¹² gegenüber C¹³ durch Pflanzen und Tiere⁴⁾. Es erscheint daher nicht sinnvoll für die Anwendung die Empfindlichkeit der physikalischen Nachweismethoden zu steigern.

Diese Voraussetzungen erlauben die sehr wichtigen Anwendungen, die man unter dem Begriff der „Indicatormethoden“ zusammenfassen kann.

A) Verdünnungsanalyse

Einem Gemisch verschiedener Verbindungen wird die zu analysierende, charakterisiert durch eine anomale Isotopenzusammensetzung, zugesetzt. Die vorher vorhandene und die zugesetzte Verbindung sind durch die üblichen chemischen Verfahren dann nicht mehr zu trennen. Nunmehr wird ein für die Isotopenanalyse ausreichender Teil der Verbindung in reiner Form isoliert und auf seine isotopische Zusammensetzung hin analysiert. Aus der beobachteten Veränderung wird die ursprünglich in dem Gemisch vorhandene Gesamtmenge der Verbindung errechnet. Da man von einer gegenüber der normalen erhöhten Konzentration eines Isotops ausgeht, die dann durch Verdünnung mit der normal vorliegenden Isotopenmischung erniedrigt wird, bezeichnet man diese Analysenmethode am besten als Verdünnungsanalyse. Man kann mit stabilen oder radioaktiven Isotopen arbeiten; die Wahl richtet sich nach der Verfügbarkeit, nach den Konstanten des Isotops, wie Halbwertszeit und Härte der ausgesandten Strahlung, und schließlich nach dem zu erwartenden Verdünnungsgrad. Damit richtige Analysenwerte erhalten werden, darf die indizierte Verbindung natürlich mit keinem anderen Bestandteil der Mischung eine Isotopenaustauschreaktion eingehen.

Angewandt wurde die Verdünnungsanalyse mit großem Erfolg von Rittenberg⁵⁾ bei der Analyse von Aminosäuren in Eiweißhydrolysaten und von Fettsäuren in tierischen Fetten.

Bei der Aminosäure-Analyse arbeitet man bisher mit schwerem Stickstoff, 5–20 mg Substanz reichen aus. Bei den Fettsäuren wurde Deuterium zur Indizierung benutzt. In beiden Fällen kann man genau so gut den schweren Kohlenstoff (C¹³) oder den langlebigen radioaktiven Kohlenstoff (C¹⁴) heranziehen.

¹⁾ G. Hevesy, Biochemic. J. 17, 439 [1923].

²⁾ Availability of Radioactive Isotopes. Science [New York] 103, 697–706 [1946].

³⁾ R. Fleischmann, diese Ztschr. 61, 277 [1949] vgl. auch G. Schubert, Kernphysik und Medizin, Göttingen 1947.

⁴⁾ A. O. Nier u. F. A. Gulbransen, J. Amer. chem. Soc. 61, 697 [1939]; vgl. auch J. biol. Chemistry 142, 47 [1942]; L. O. Krametz, A. G. Wood u. C. H. Werkman, ebenda 147, 243 [1943].

⁵⁾ D. Rittenberg u. G. L. Foster, J. biol. Chemistry 133, 737 [1940].