

# Spektroskopische Speziation von Actiniden mittels Synchrotronstrahlung

Tobias Reich  
Institut für Radiochemie  
Forschungszentrum Rossendorf

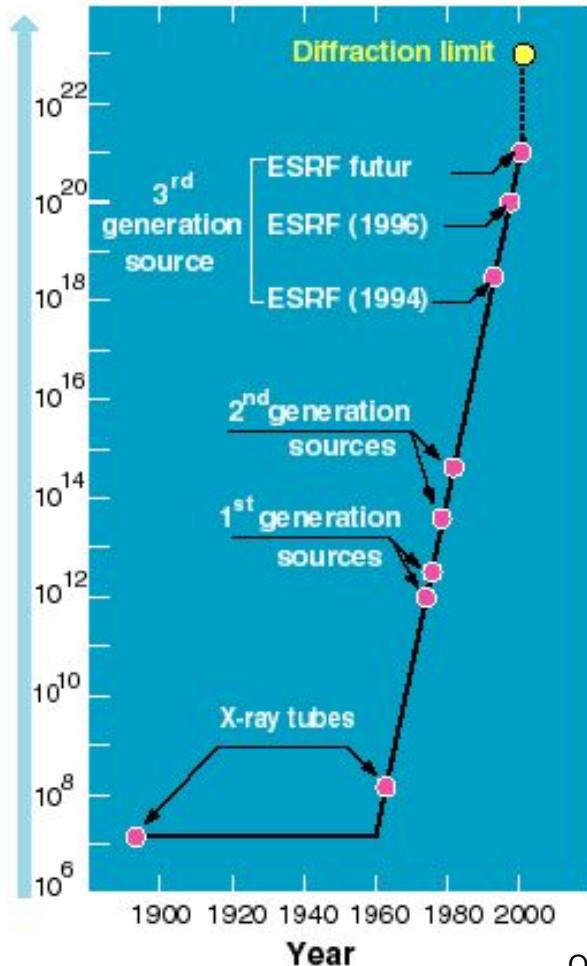
Wissenschaftliches Symposium der GDCh-Fachgruppe Nuklearchemie  
Veranstaltung zum 100. Geburtstag von Fritz Straßmann  
22. Februar 2002  
Mainz

# Gliederung

- Röntgenabsorptionsspektroskopie mit Synchrotronstrahlung
- Spektroskopische Speziation von Actiniden
  - Aquoionen
  - Hydrolyse
  - Komplexierung mit
    - $F^-$ ,  $Cl^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $CO_3^{2-}$
    - 2,3-Di-hydroxy-benzoesäure
  - Wechselwirkung mit Huminsäuren
  - Sorption an Mineraloberflächen
- Schlussfolgerungen und Ausblick

# Entwicklung der Synchrotronstrahlung im 20. Jh.

Brilliance of the X-ray beams  
( photons / s / mm<sup>2</sup> / mrad<sup>2</sup> / 0.1% BW )



Quelle: ESRF

1895 G. C. Röntgen entdeckt X-Strahlen

1913 W. D. Coolidge entwickelt Röntgenröhre

1947 Bei General Electric wird erstmalig Synchrotronstrahlung beobachtet

60iger Hervorragende Eigenschaften der Synchrotronstrahlung werden erkannt

Ab 1970 Synchrotronzentren für akademische Forschung entstehen

90iger Neue Generation von Synchrotronquellen

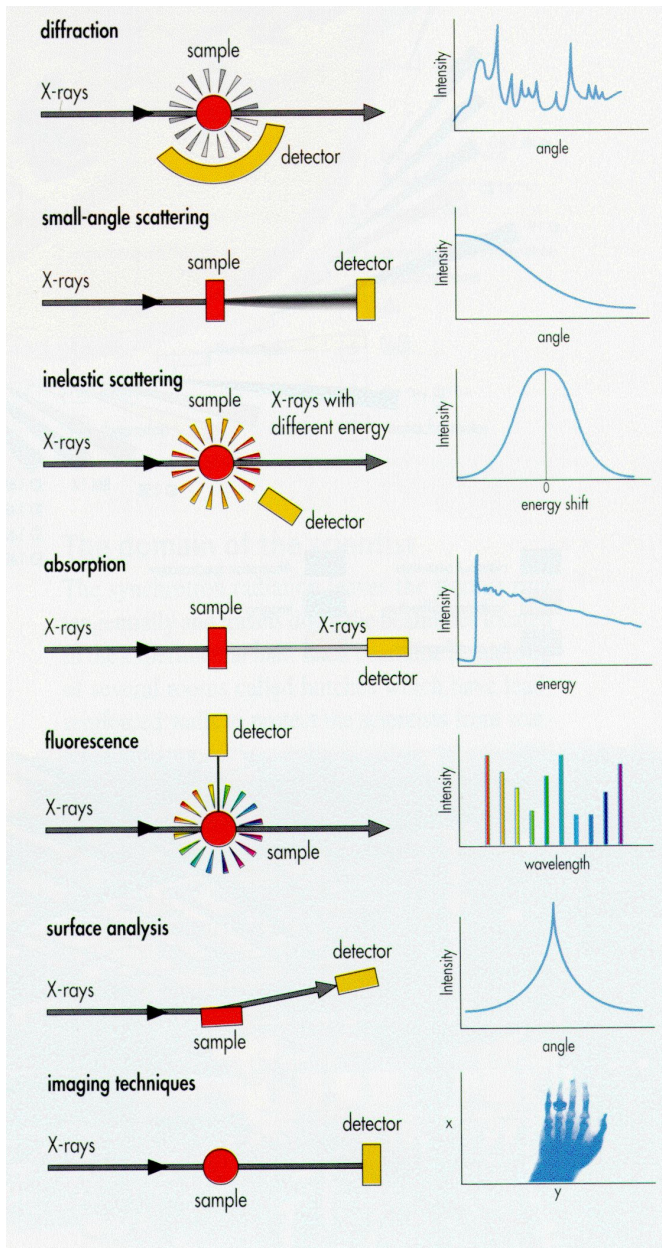
# Synchrotronspeicherring der ESRF am Zusammenfluß von Drac und Isere in Grenoble



Foto: ESRF

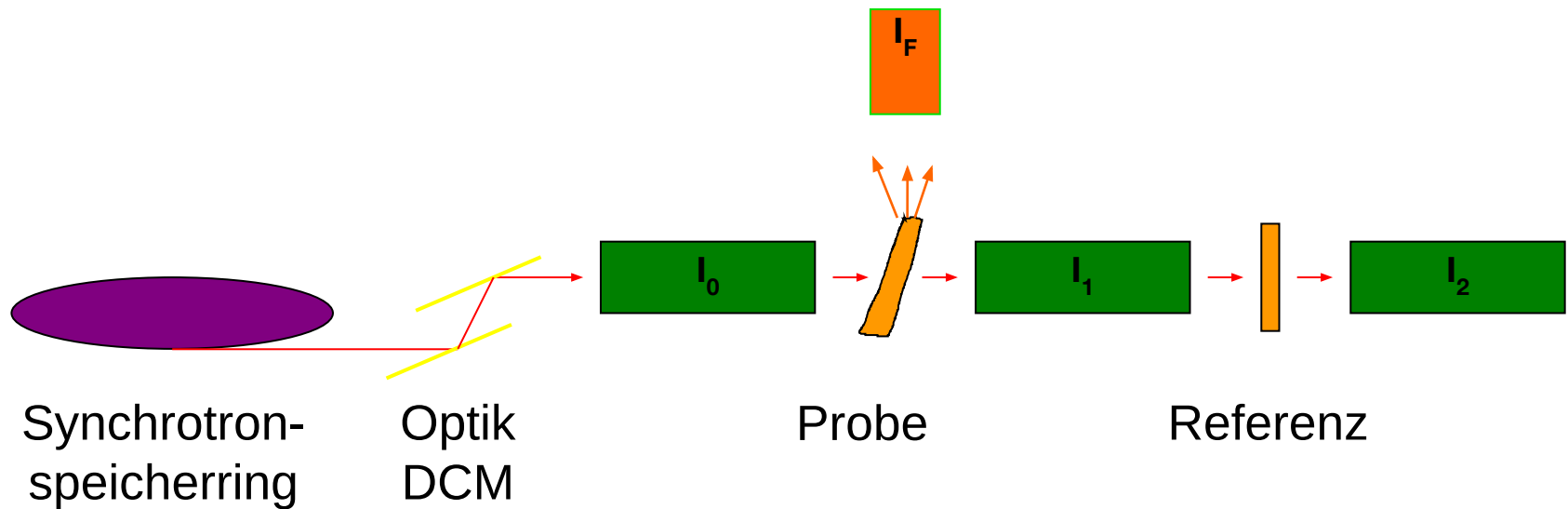
# Wichtigste Anwendungen der Synchrotronstrahlung im harten Röntgenbereich

- Röntgenbeugung
- Kleinwinkelstreuung
- Elastische Streuung
- Röntgenabsorption**
- Röntgenfluoreszenz
- Oberflächenanalyse
- Tomographie



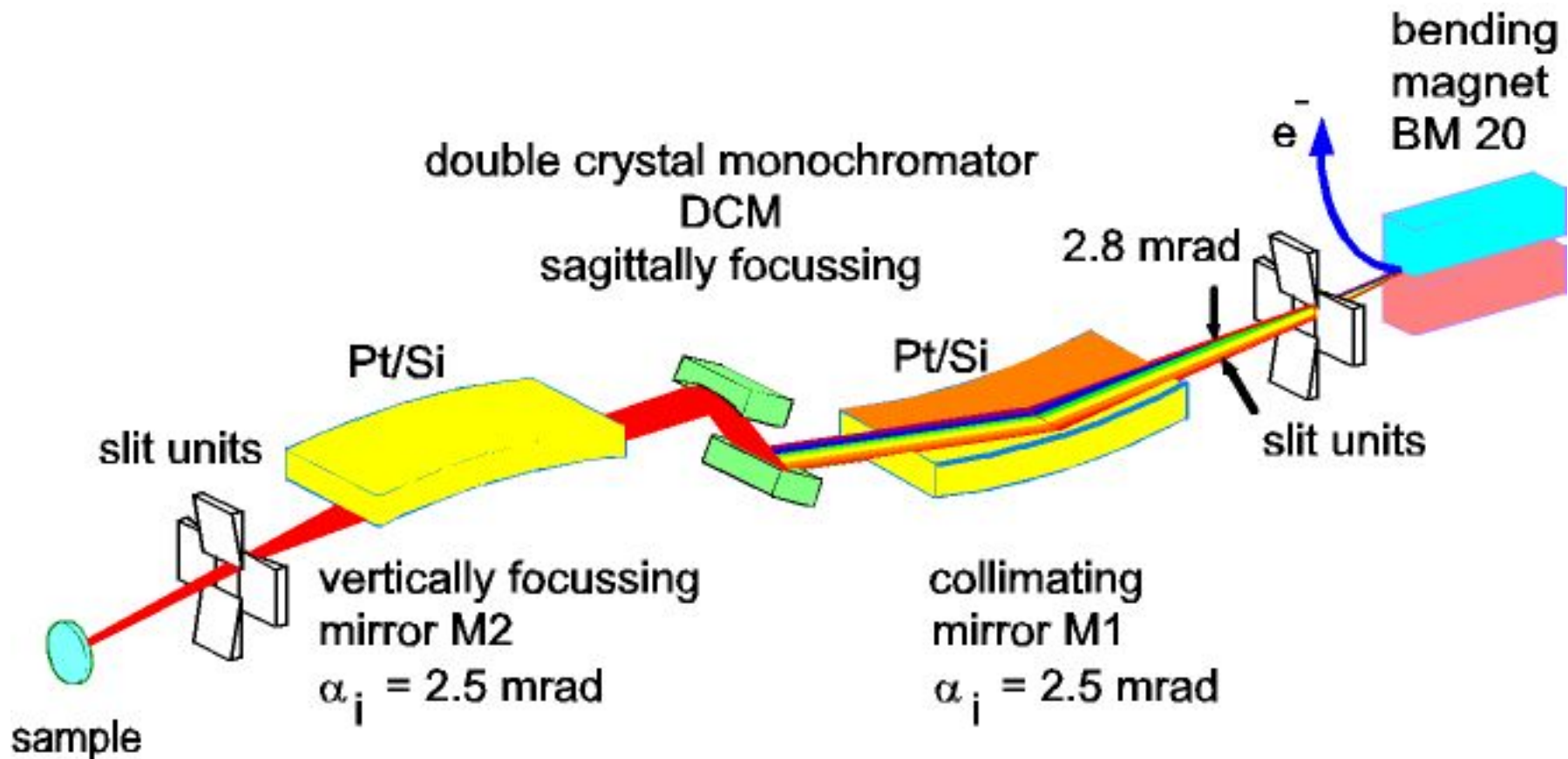
Quelle: ESRF

# Schematische Darstellung des Messprinzips der Röntgenabsorptionsspektroskopie





# Schematische Darstellung der Röntgenoptik



Quelle: W. Matz, FZR

# Eigenschaften des Röntgenstrahls

- Energiebereich: 5 - 35 keV
- Energieauflösung  $\Delta E/E$ : 1,5 - 2,5 x 10<sup>-4</sup> Si(111)  
0,5 - 1,0 x 10<sup>-4</sup> Si(311)
- Photonenfluss am Probenort: 6 x 10<sup>11</sup> ph/s@20 keV, 200 mA
- Strahlabmessung am Probenort: 3 x 20 mm<sup>2</sup> (unfokussiert)  
0,5 x 0,5 mm<sup>2</sup> (fokussiert)

W. Matz et al., J. Synchrotron Rad. 6 (1999) 1076



# Radiochemie-Messplatz am Rossendorfer Synchrotronstrahlrohr ROBL



- Maximale Aktivität der Proben am Messplatz: 185 MBq (5 mCi)
  - Umgangsgenehmigung für:
    - Tc
    - Po, Ra
    - Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm
- Manipulation und Messung der radioaktiven Proben in einer speziellen Handschuhbox
- Radiochemisches Sicherheitssystem (Ventilations-, Filter-, und Luftüberwachungsanlagen)

Lit.: H. Funke et al., Kerntechnik 66 (2001) 195

# Motivation für die XAFS-Untersuchungen

- Eigenschaften der radioaktiven Elemente ganz wesentlich bestimmt durch ihre chemischen Bindungsformen (Elementspeziation)
  - Mobilität
  - Austausch- und Umwandlungsprozesse in der Geo- und Biosphäre
- XAFS ermöglicht eine elementspezifische, direkte und zerstörungsfreie Bestimmung der Elementspeziation in festen, flüssigen und gasförmigen Proben
  - Oxidationszustand, Molekülsymmetrie - XANES
  - Struktur der atomaren Nahordnung - EXAFS

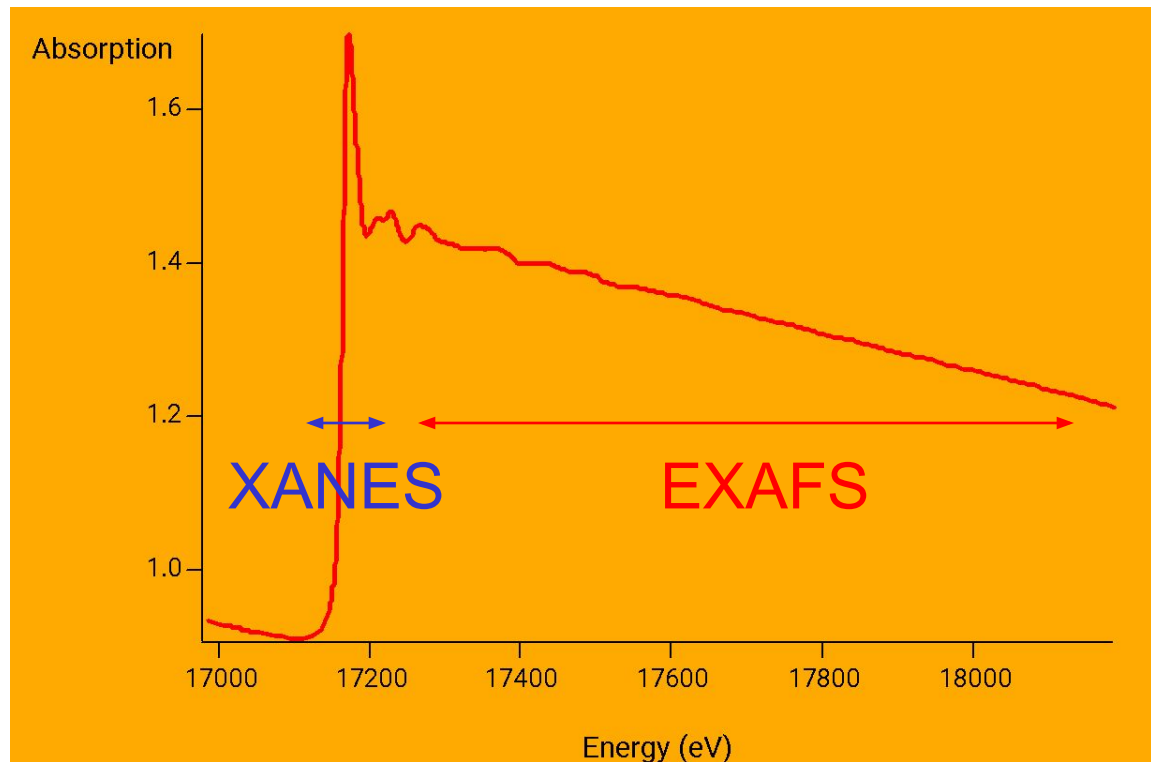
# Röntgenabsorptionsspektroskopie - XAS

X-ray Absorption

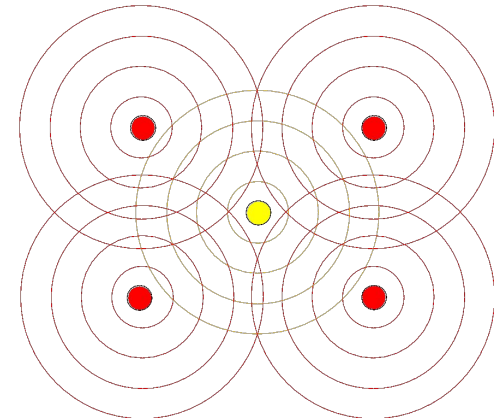
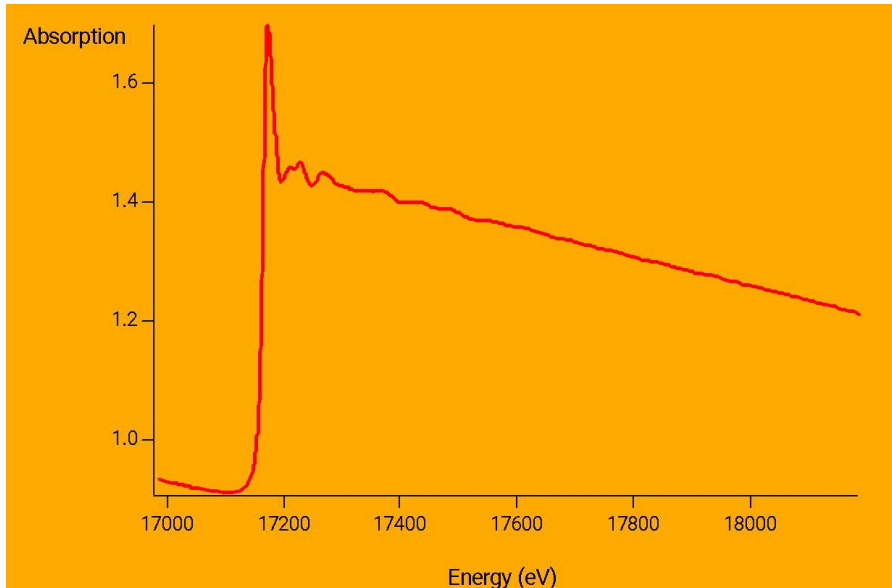
Extended X-ray

Near-Edge Structure

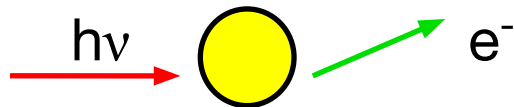
Absorption Fine Structure



# Absorptionsspektrum eines Uranatoms in der Umgebung von rückstreuenden Atomen



- Oszillationen im Absorptionsspektrum oberhalb der Kante
- Streuung der Photoelektronen an den Nachbaratomen
- Interferenz der auslaufenden und zurückgestreuten Elektronenwellen



# XAFS - Elementspezifische Methode

## Bindungsenergie des $2p_{3/2}$ -Niveaus ( $L_3$ -Kante)

Thorium	16 300
Uran	17 166
Neptunium	17 610
Plutonium	18 057
Americium	18 510
Curium	18 970

# Für die XAFS-Spektroskopie notwendige Menge an Actiniden

XANES-Spektroskopie  
 $10^{-5}$  mol/L

EXAFS-Spektroskopie  
 $5 \times 10^{-4}$  mol/L  
200 - 500 ppm

# Ziel der EXAFS-Untersuchung

Bestimmung der Strukturparameter der nächsten Nachbarn

- Koordinationszahlen  $N$  ( $\pm 20\%$ )
- Bindungsabstände  $R$  ( $\pm 0,02 \text{ \AA}$ )
- Debye-Waller-Faktoren  $\sigma^2$  ( $\pm 0,005 \text{ \AA}^2$ )
- Art der Nachbaratome  $Z$  ( $\pm 4$ )

Voraussetzung für die Interpretation:  
der Probe  $> 80\%$

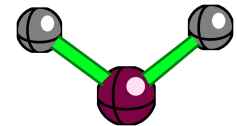
Anteil der jeweiligen Spezies in



# Sauerstoff K-Kante EXAFS von Wasser

## Wasserstoff als Rückstreuer

- Wasserdampf, 20 mtorr
- EXAFS-Signal ist 1% des atomaren Absorptionskoeffizienten /1/
- Ergebnis  $R(\text{O-H}) = 0,958 \text{ \AA}$     $\sigma^2 = 0,003 \text{ \AA}^2$
- Flüssiges Wasser, erneute Auswertung der Messung /2/
- Ergebnis  $R(\text{O-H}) = 0,95 \pm 0,03 \text{ \AA}$     $\sigma^2 = 0,017 \pm 0,001 \text{ \AA}^2$   
 $R(\text{O-O}) = 2,6 \text{ \AA}$



/1/ K.R. Wilson et al., PRL 85 (2000) 4289

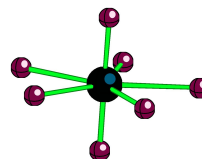
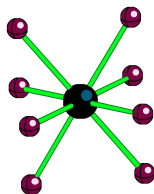
/2/ B.X. Yang and J. Kirz, PRB 36 (1987) 1361

# EXAFS-Ergebnisse für Actinidenhydrate

## Bindungsabstände in Å und Koordinationszahlen

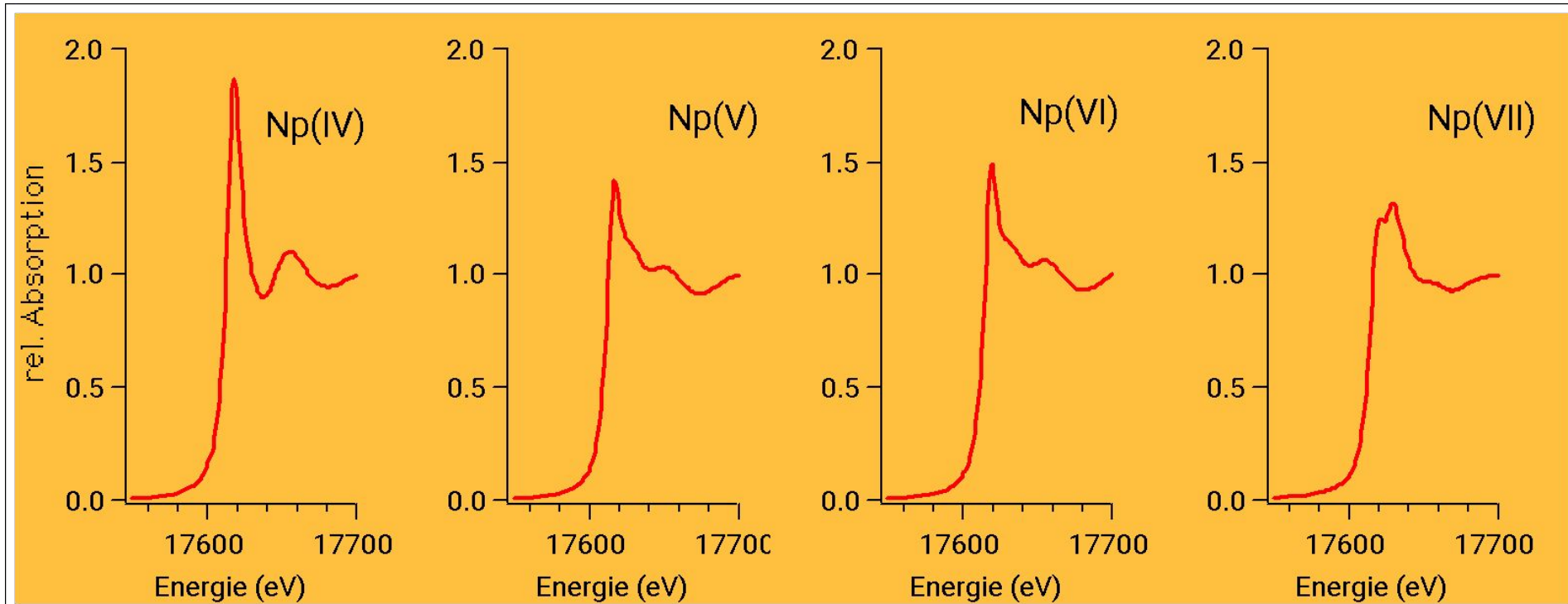
Th	U	Np	Pu	Am	Cm	Cf
		$\text{Np}(\text{H}_2\text{O})_9^{3+}$ 2,48 <sup>b</sup>	$\text{Pu}(\text{H}_2\text{O})_8^{3+}$ 2,48	$\text{Am}(\text{H}_2\text{O})_8^{3+}$ 2,48	$\text{Cm}(\text{H}_2\text{O})_9^{3+}$ 2,46	$\text{Cf}(\text{H}_2\text{O})_{8,5}^{3+}$ 2,42 <sup>d</sup>
$\text{Th}(\text{H}_2\text{O})_{11}^{4+}$ 2,45	$\text{U}(\text{H}_2\text{O})_{11}^{4+}$ 2,41 <sup>a</sup>	$\text{Np}(\text{H}_2\text{O})_{11}^{4+}$ 2,39	$\text{Pu}(\text{H}_2\text{O})_8^{4+}$ 2,39 <sup>c</sup>			
		$\text{NpO}_2(\text{H}_2\text{O})_4^+$ 1,82 2,49	$\text{PuO}_2(\text{H}_2\text{O})_4^+$ 1,81 <sup>c</sup> 2,47 <sup>c</sup>			
	$\text{UO}_2(\text{H}_2\text{O})_5^{2+}$ 1,76 2,41	$\text{NpO}_2(\text{H}_2\text{O})_5^{2+}$ 1,75 2,42	$\text{PuO}_2(\text{H}_2\text{O})_{4-5}^{2+}$ 1,74 2,42			

a) Moll et al. 1999, b) Antonio et al. 2001, c) Conradson et al. 1998, d) Den Auwer et al. 1999



# Np L<sub>III</sub>-Kante XANES Spektren

## Energie des Wendepunktes (Kantenlage)



$\text{Np}(\text{OH}_2)_{11}^{4+}$   
17 614 eV

$\text{NpO}_2(\text{OH}_2)_4^+$   
17 613 eV

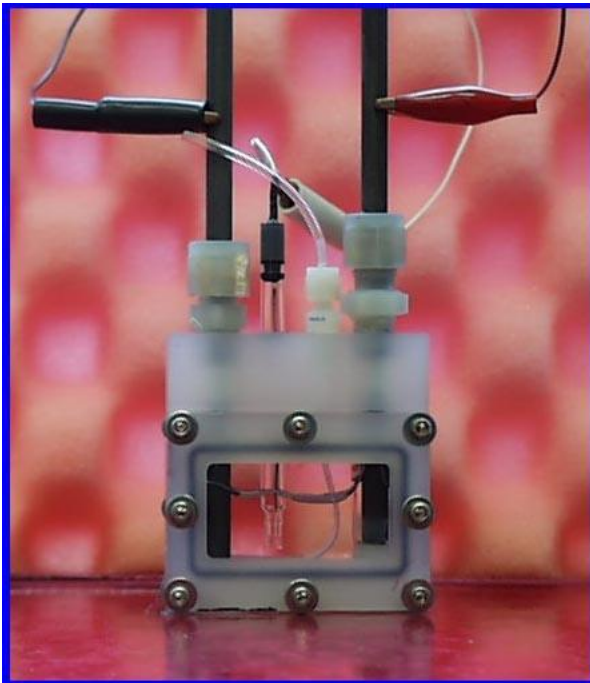
$\text{NpO}_2(\text{OH}_2)_5^{2+}$   
17 616 eV

$\text{NpO}_4(\text{OH})_2^{3-}$   
17 616 eV

# *In Situ* XAFS-Messungen von Actinidenspezies

## **Design einer elektrochemischen Zelle**

M.R. Antonio et al., J. Appl. Electrochem. 27 (1997) 784



## **Bestimmung der Redoxpotentiale**

Np Oxidationszustände III, IV, V, und VI

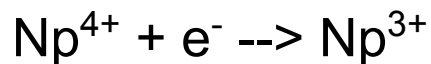
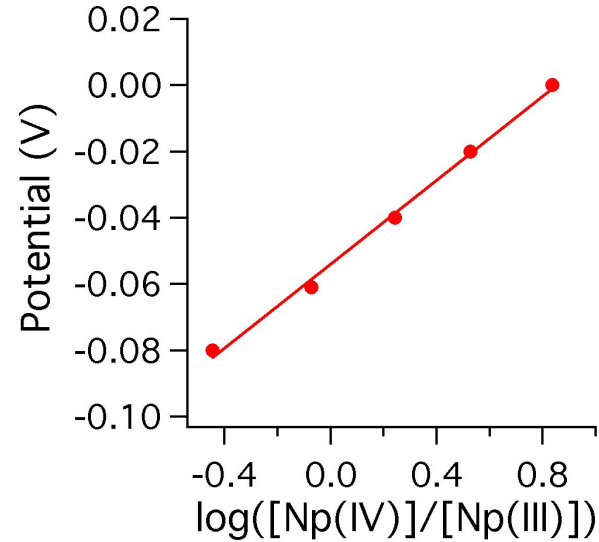
L. Soderholm et al., Anal. Chem. 71  
(1999) 4622

## **Bestimmung der Struktur der Hydrate**

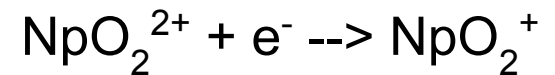
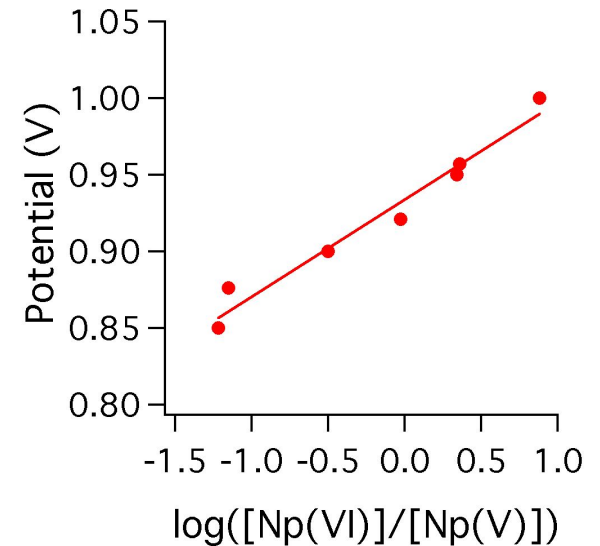
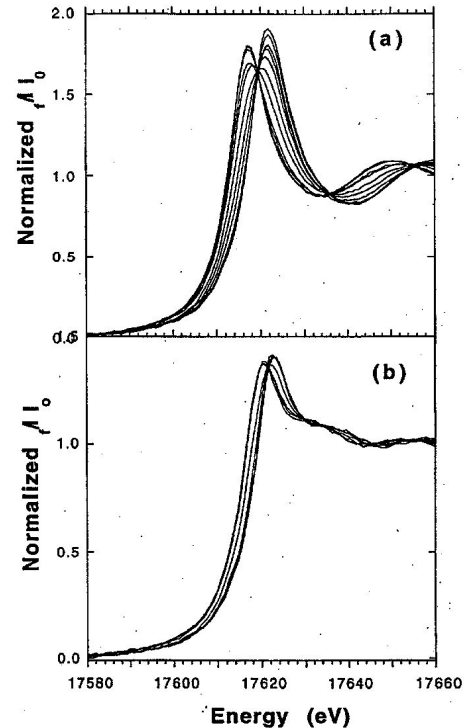
Np Oxidationszustände III, IV, V, und VI

M. Antonio et al., Radiochim. Acta 89 (2001) 17

# XANES-spektroskopische Bestimmung der Redoxpotentiale des Neptuniums in 1 M HClO<sub>4</sub>



$$\varepsilon = -0,053 \pm 0,01 \text{ V}$$



$$\varepsilon = 0,931 \pm 0,015 \text{ V}$$

Lit.: L. Soderholm et al., Anal. Chem. 71 (1999) 4622

# U(VI) Hydrolyse-Spezies

## Probenpräparation

### Probe A

0,05 M U(VI), 0,05 M TMA-OH, pH 4,1

Aus thermodynamischen Daten berechnete Speziation

10%  $\text{UO}_2^{2+}$

30%  $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$

60%  $(\text{UO}_2)_3(\text{OH})_5^+$

### Probe B

0,05 M U(VI), 0,5 M TMA-OH, pH 13,7

Aus thermodynamischen Daten berechnete Speziation

100%  $\text{UO}_2(\text{OH})_4^{2-}$

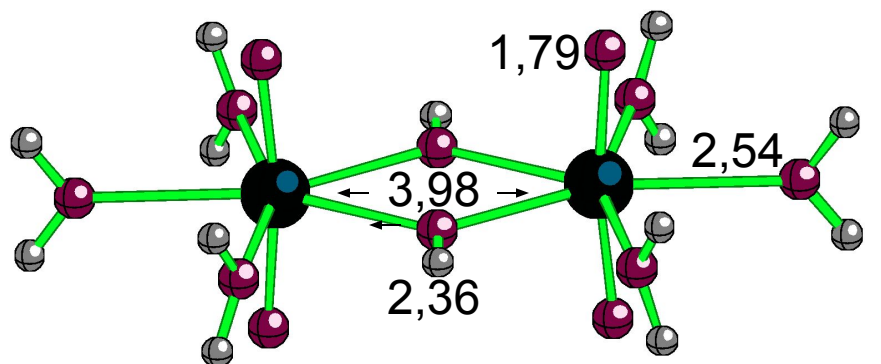
Lit.: H. Moll et al., Radiochim. Acta 88 (2000) 411

# U(VI) Hydrolyse-Spezies

## EXAFS Ergebnisse

Probe	Schale	R ± 0,02 (Å)	N
A pH 4,1	Oax	1,79	2,2 ± 0,3
10% UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup>	Oäq1	2,27	1,4 ± 0,5
30% (UO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> (OH) <sub>2</sub> <sup>2+</sup>	Oäq2	2,43	4,9 ± 0,8
60% (UO <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> (OH) <sub>5</sub> <sup>+</sup>	U	3,80	1,3 ± 0,4
B pH 13,7	Oax	1,83	1,8 ± 0,3
100% UO <sub>2</sub> (OH) <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Oäq	2,26	4,2 ± 0,6

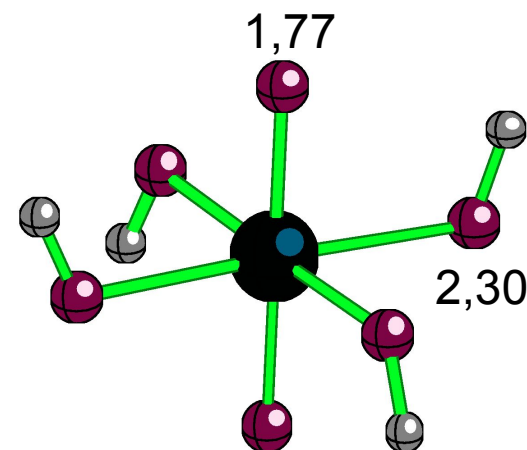
Lit.: H. Moll et al., Radiochim. Acta 88 (2000) 411



$$\angle(\text{O}=\text{U}=\text{O}) = 170^\circ$$

Theorie: DFT

S.Tsushima, T. Reich, Chem. Phys. Lett. 347 (2001) 127



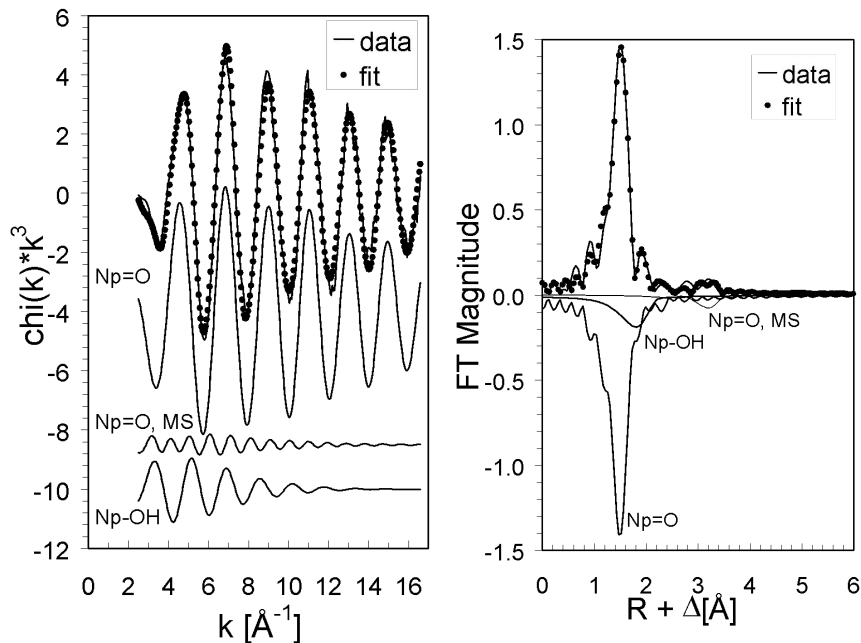
Theorie: SCF + CPCM

V.Vallet et al., Inorg. Chem. 40 (2001) 3516



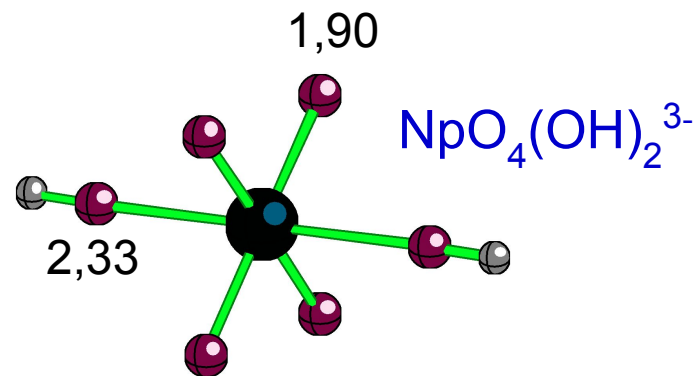
# Struktur der Np(VII) Spezies in alkalischer Lösung

## EXAFS und quantenchemische Untersuchungen



Schale	N	R (Å)
Np=O	3,6±0,3	1,89
Np-O	3,3±1,3	2,32

0,015 M Np(VII) in 2,5 M NaOH



Theorie: SCF + CPCM

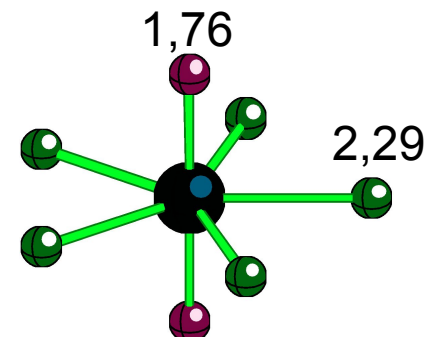
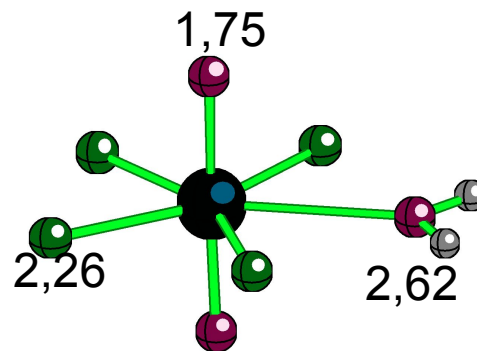
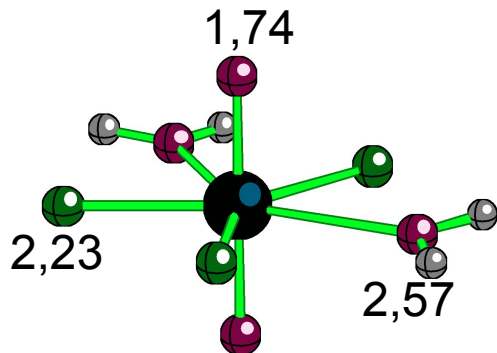
Lit.: H. Bolvin et al., J. Phys. Chem. A 105 (2001) 11441

# Uran(VI) Fluorid-Komplexe

## EXAFS und quantenchemische Berechnungen (SCF + CPCM)

Probe	Schale	R ± 0,02 (Å)	N
0,05 U(VI) pH 5,0	Oax	1,80	2,0
0,21 M F <sup>-</sup>	F	2,25	3,5 ± 0,7
50% $\text{UO}_2\text{F}_3^-$ , 50% $\text{UO}_2\text{F}_4^{2-}$	Oäq	2,47	1,5
0,05 U(VI) pH 5,3	Oax	1,80	2,0
0,45 M F <sup>-</sup> , 80% $\text{UO}_2\text{F}_4^{2-}$	F	2,26	4,1 ± 0,7
10% $\text{UO}_2\text{F}_5^{3-}$ , 10% $\text{UO}_2\text{F}_3^-$	Oäq	2,48	1,0
0,05 M U(VI), 5 M TMA-F	Oax	1,80	2,0
100% $\text{UO}_2\text{F}_5^{3-}$	F	2,26	4,4 ± 0,6

Lit.: V. Vallet et al., Inorg. Chem. 40 (2001) 3516



# Actiniden-Speziation in konzentrierten Chloridlösungen

An		N	R(Å)	Lit.
U(VI)	12 M LiCl	2,2	2,73	/1/
Np(V)	10 M LiCl	1,0	2,84	/1/
Np(IV)	10 M HCl	2,0	2,69	/1/
Pu(III)	12 M LiCl	0	-	/1,2/
Am(III)	12 M LiCl	1,8	2,81	/2/
Cm(III)	12 M LiCl	2,4	2,76	/2/

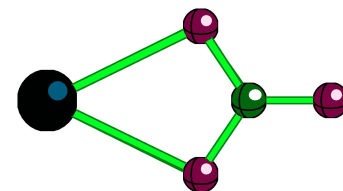
/1/ P.G. Allen et al., Inorg. Chem. 36 (1997) 4676  
/2/ P.G. Allen et al., Inorg. Chem. 39 (2000) 595

Pu(III) bildet keinen Chlorokomplex

Zunahme der Chloridkomplexierung von Pu(III) zu Cm(III)

# Carbonat- und Nitratkomplexe vierwertiger Actiniden

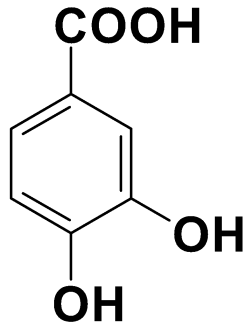
An(IV)	Bedingungen	Schale	EXAFS-Ergebnis	Spezies
Th	0,11 – 0,1 M Th	O	9,9 ± 2,6 @ 2,49 Å	$\text{Th}(\text{CO}_3)_5^{6-}$
/1/	0,1 – 2 M $\text{Na}_2\text{CO}_3$	C	3,4 ± 1,1 @ 3,00 Å	
		O <sub>d</sub>	5,1 ± 1,6 @ 4,26 Å	
Pu	2,5 M $\text{Na}_2\text{CO}_3$	O	10,0 ± 1,2 @ 2,42 Å	$\text{Pu}(\text{CO}_3)_5^{6-}$
/2/		C	5,0 ± 0,6 @ 2,88 Å	
		O <sub>d</sub>	5,0 ± 0,6 @ 4,16 Å	
Pu	0,05 M Pu	O	11,1 ± 1,7 @ 2,41 Å	$\text{Pu}(\text{NO}_3)_6^{2-}$
/3,4/	3 – 13 M $\text{HNO}_3$	N	6,0 ± 0,9 @ 2,97 Å	
		O <sub>d</sub>	6,0 ± 0,9 @ 4,16 Å	



/1/ N.J. Hess et al., Mat. Res. Soc. Symp. Proc. **465** (1997) 729; /2/ D.L. Clark et al., Inorg. Chem. **37** (1998) 2893; /3/ D.K. Veirs et al., J. Alloys Comp. **213/214** (1994) 328; /4/ P.G. Allen et al., Inorg. Chem. **35** (1996) 2841

# U(VI) Komplexierung mit Protocatechusäure

## Experimentelles

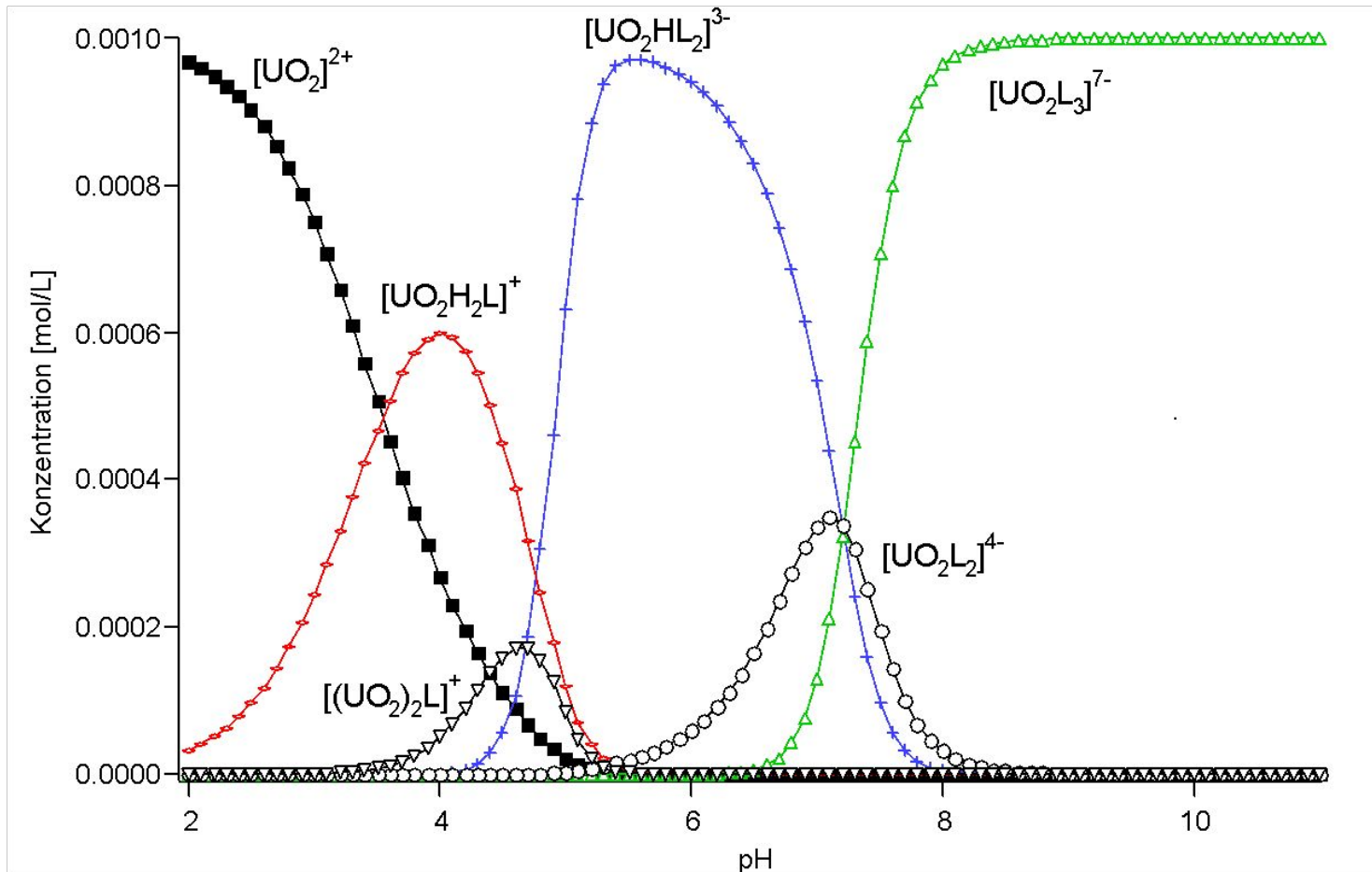


Protocatechu-  
säure (PCS)

Bedingungen der Probenpräparation:

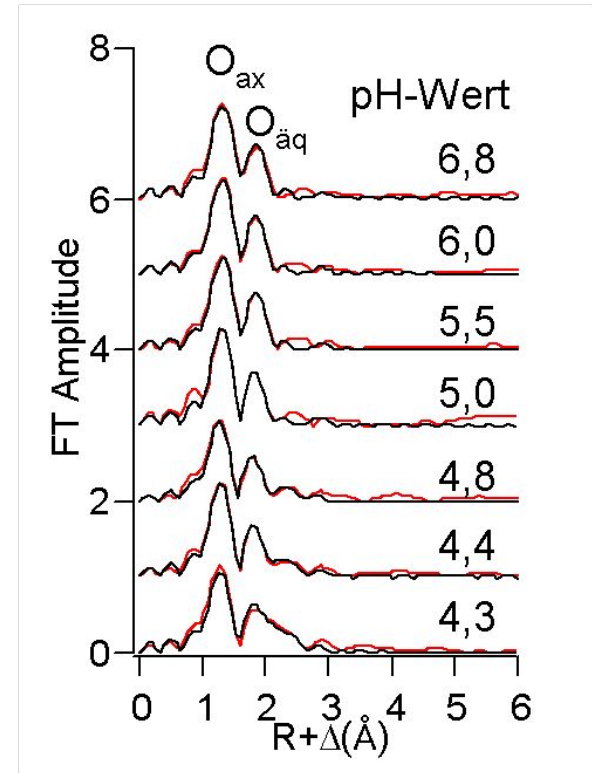
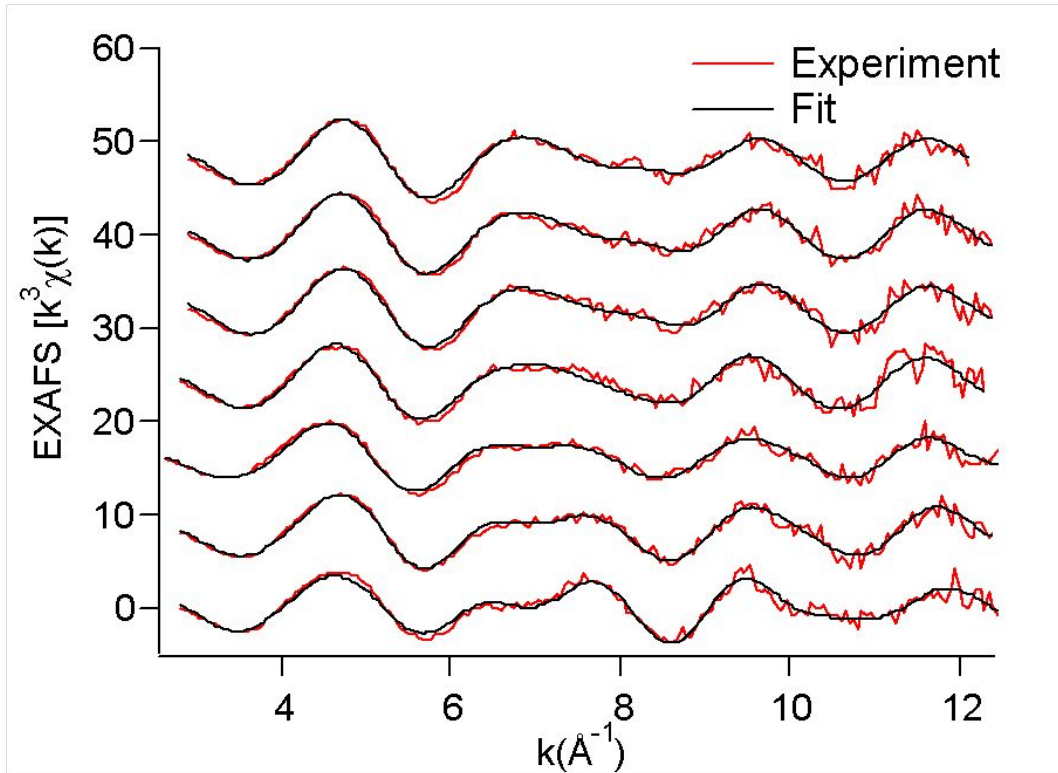
- 1 mM U(VI)
- 50 mM PCS
- I = 0,1 M NaClO<sub>4</sub>
- CO<sub>2</sub>-frei
- pH 4,3 - 6,8

# Berechnete Uranspeziation für 1 mM Uran(VI), 50 mM Protocatechusäure, CO<sub>2</sub>-frei



# EXAFS-Spektren und Fouriertransformierte

## 1 mM U(VI), 50 mM PCS, pH 4,3 - 6,8



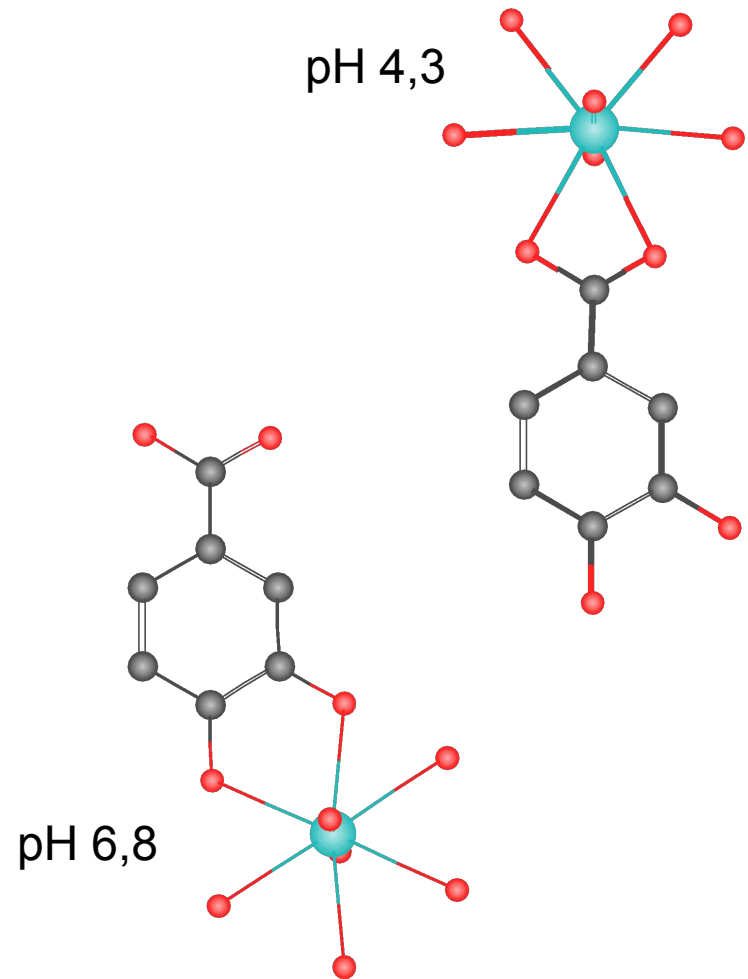


# U(VI) Komplexierung mit Protocatechusäure

## EXAFS-Strukturparameter

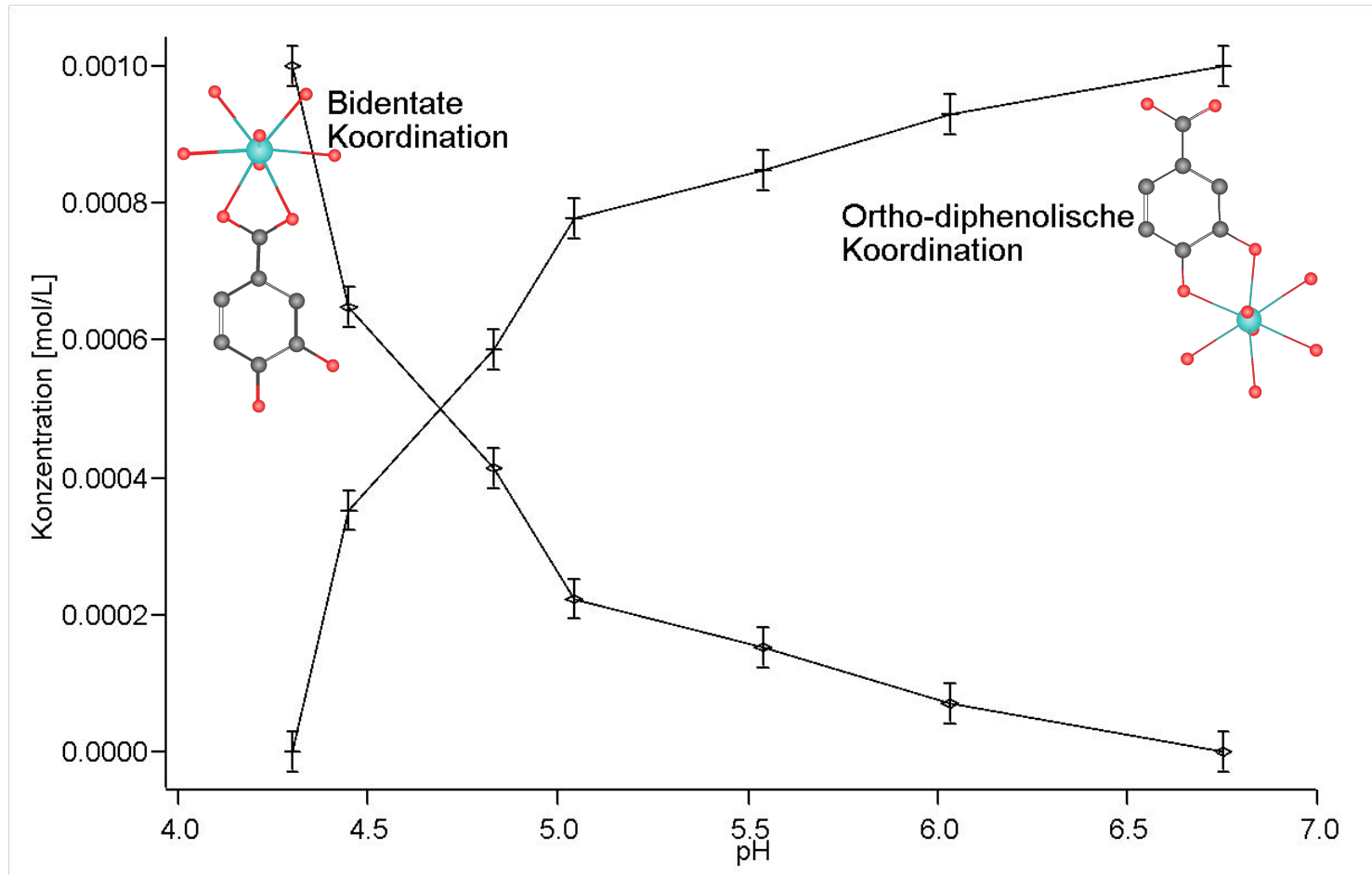
pH	U-O äq			U-X		
	R (Å)	N	$\sigma^2$ (Å <sup>2</sup> )	Atom	R (Å)	N
4,3	2,45	6	0,008	C	2,88	2
4,4	2,40	7	0,012			
4,8	2,37	7	0,013			
5,0	2,38	6	0,010			
5,5	2,37	6	0,008			
6,0	2,36	6	0,009			
6,8	2,36	7	0,010			

Mittelwert für U-O axial: N=2, R=1,79 Å



# U(VI) Komplexierung mit Protocatechusäure

## Ergebnis der Faktorenanalyse (ITFA) der EXAFS-Spektren

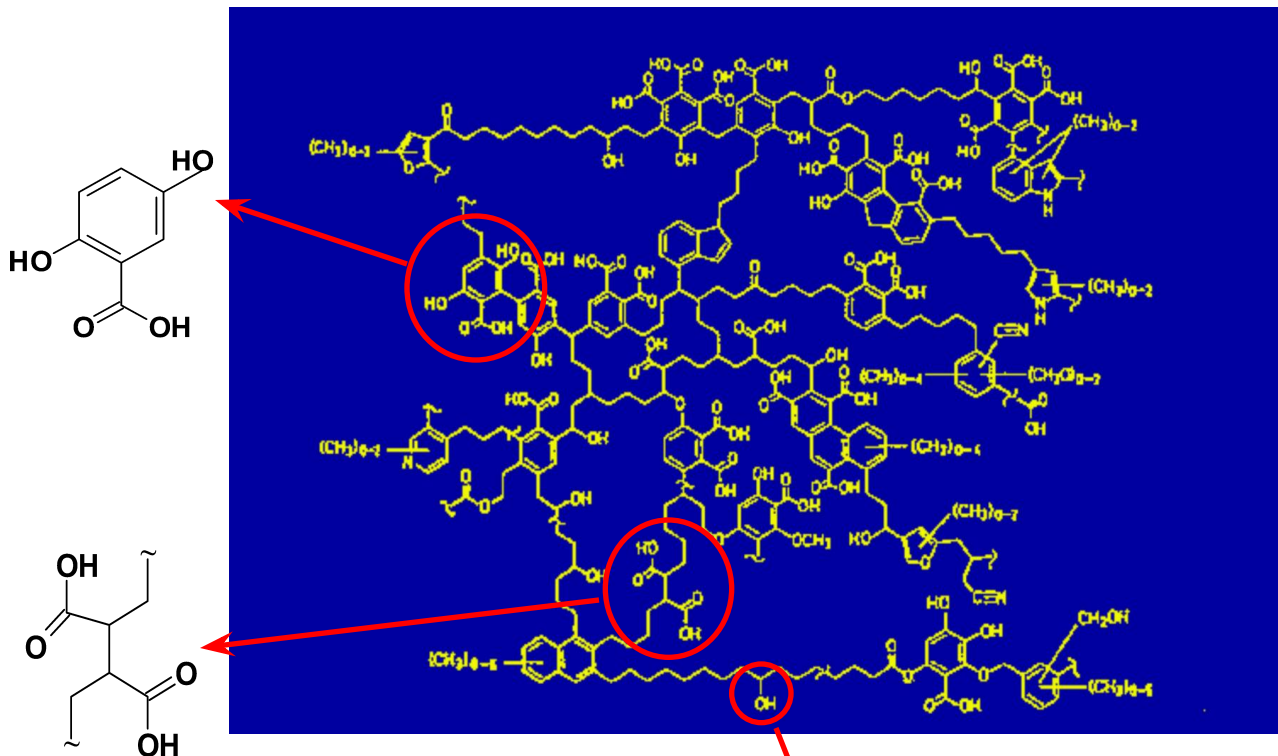


A. Roßberg, Dissertation 2001

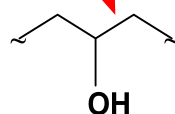
# Strukturbild der Huminsäuren

Phenolische Hydroxyl- und aromatische Carboxylgruppen

nach: H.R. Schulten, M. Schnitzer, Naturwissenschaften 80 (1993), 29.



Aliphatische Carboxylgruppen



Alkoholische Hydroxylgruppen

# Wechselwirkung von Actiniden mit Huminstoffen

## Eigenschaften der Huminstoffe

meq/g	Natürlich /1/			Synthetisch /2/		Referenz Bio-Rex70
	KFA	KHA KHA-PB	AHA AHA-PB	M1 M1-PB	M42 M42-PB	
Phenolisch OH <sub>1</sub> )	4,8	3,9 1,6	3,1 1,1	2,4 0,9	20 0,5	-
COOH 2)	6,0	4,2 2,8	4,5 3,2	1,3 1,2	3,8 3,1	10
OH / COOH	0,8	0,9 0,6	0,7 0,3	1,8 0,8	0,5 0,2	-
PEC 3)	5,6	4,8 3,1	4,6 3,6	1,7 1,4	3,5 3,2	10

KFA – Kranichsee Fulvinsäure, KHA – Kranichsee Huminsäure

AHA – Aldrich Huminsäure, PB – Blockierung phenolischer Hydroxylgruppen

1) Radiometrisch bestimmt, 2) Calciumacetat-Austausch, 3) Direkte Titration

/1/ S. Pompe et al., Radiochim. Acta 88 (2000) 553

/2/ S. Pompe et al., Radiochim. Acta 82 (1998) 89

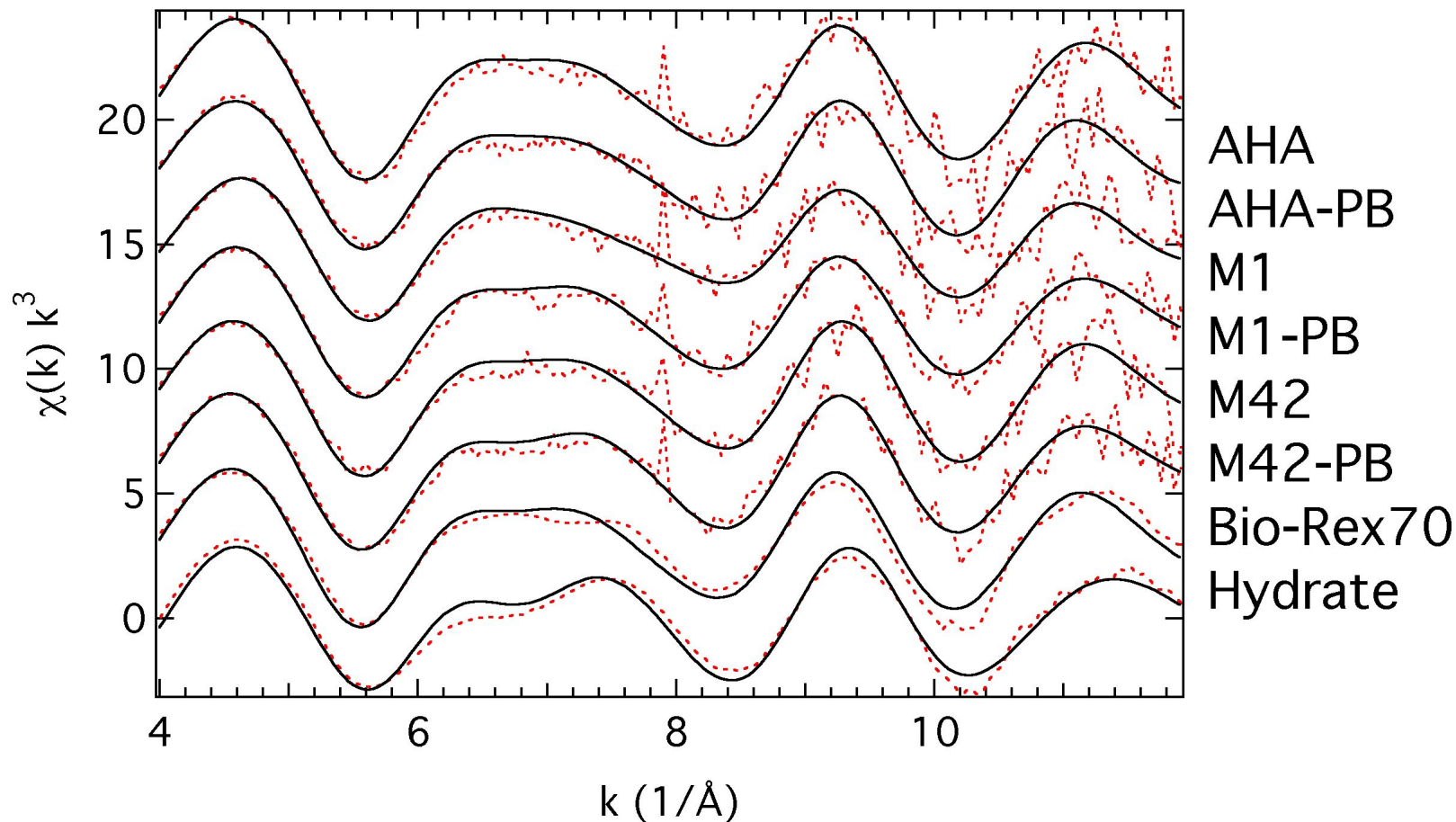
# Präparation der Np(V) Humatlösungen

- Huminsäure (HS)
  - Natürliche Aldrich HS (AHA) 8,1 g/L
  - Modifizierte AHA mit blockierten phenolischen OH-Gruppen (AHA-PB) /1/ 10,8 g/L
  - Synthetische HS vom Typ M42 /2/ 10,6 g/L
  - Modifizierte M42 mit blockierten phenolischen OH-Gruppen(M42-PB) 10,9 g/L
- Lösungen
  - 1 mM Np(V), pH = 7, I = 0,1 mol/L NaClO<sub>4</sub>
  - Np(V) Beladung 2,3 - 2,8 % PEC
  - 100 % NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>
- Präparation unter N<sub>2</sub> Atmosphäre

/1/ S. Pompe et al., Radiochim. Acta 88 (2000) 553

/2/ S. Pompe et al., Radiochim. Acta 82 (1998) 89

# Np L<sub>III</sub>-Kante EXAFS Spektren



# Vergleich der mittleren Np-O Bindungslängen in Å

## Np(V) Carboxylate - XRD an Einkristallen

- Axialer Sauerstoff  $1,84 \pm 0,02$
- COOH monodentat  $2,44 \pm 0,02$
- COOH monodentat/brückend  $2,46 \pm 0,04$
- COOH bidentat  $2,59 \pm 0,08$

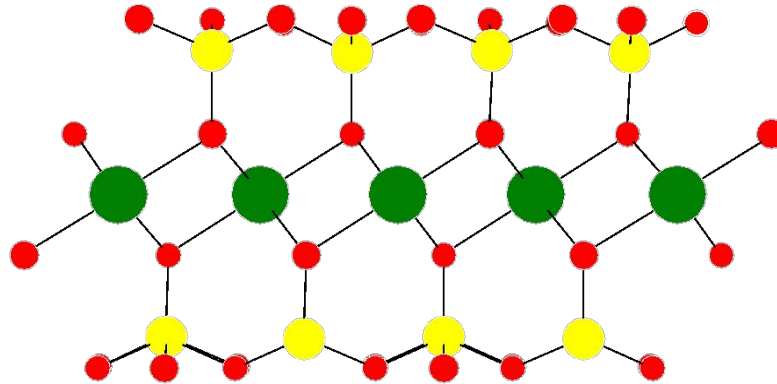
## Np(V) Humate (AHA, M42, AHA-PB, M42-PB) - EXAFS

- Axialer Sauerstoff  $1,84 \pm 0,02$
- Äquatorialer Sauerstoff  $2,49 \pm 0,02$

Die Carboxylgruppen der HS fungieren überwiegend als monodentate und/oder brückende Liganden



# Struktur von Na-Montmorillonit



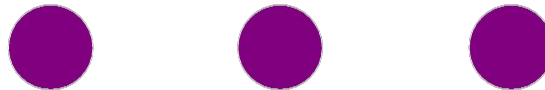
Mögliche Sorptionsmechanismen

Innersphärisch

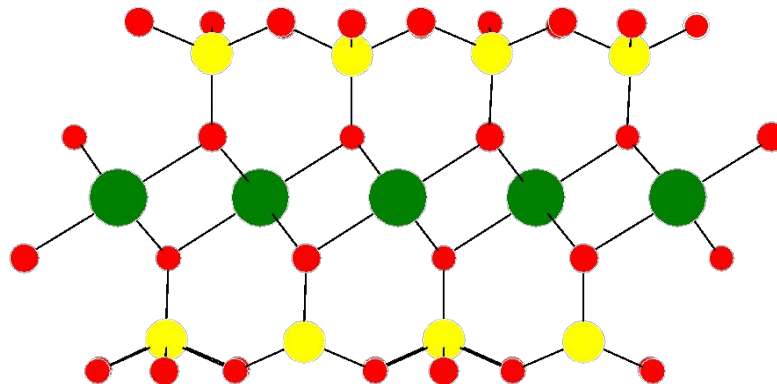
Außersphärisch

Ausfällungen

Na<sup>+</sup>

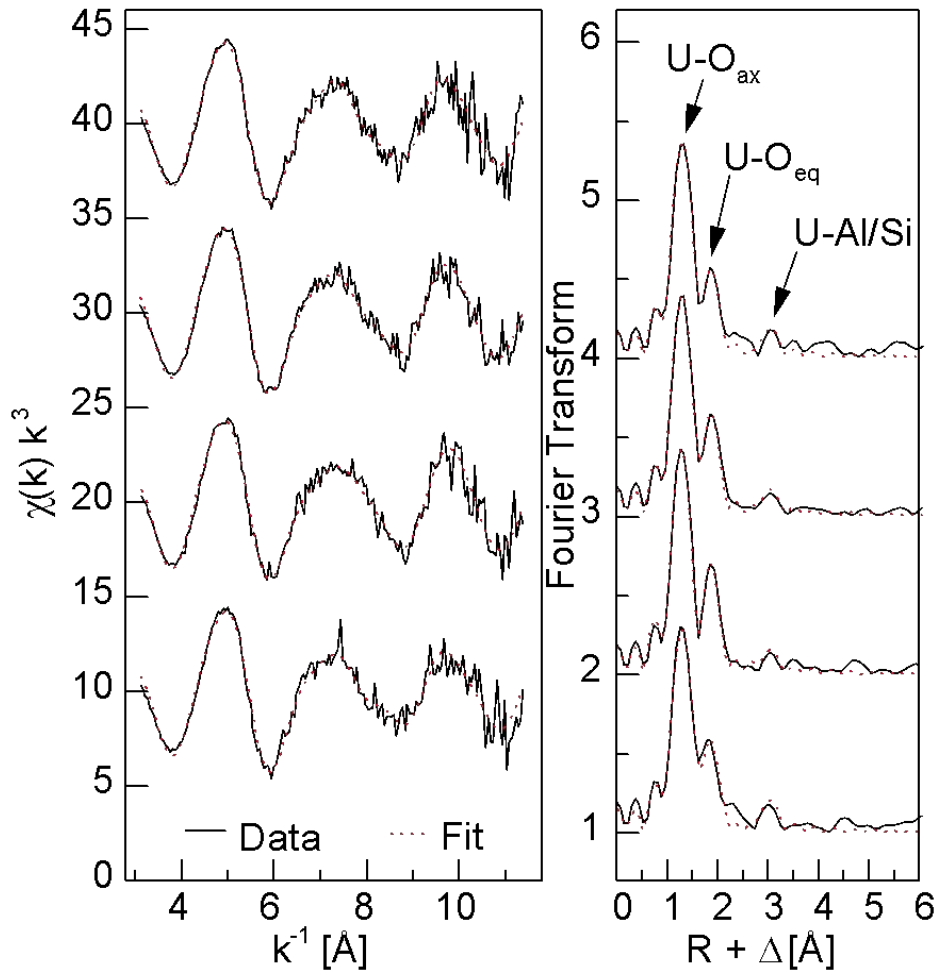


[SiO<sub>4</sub>]



[Al(O/OH)<sub>6</sub>]

# Uranyl sorption an Montmorillonit



## Na-Montmorillonit

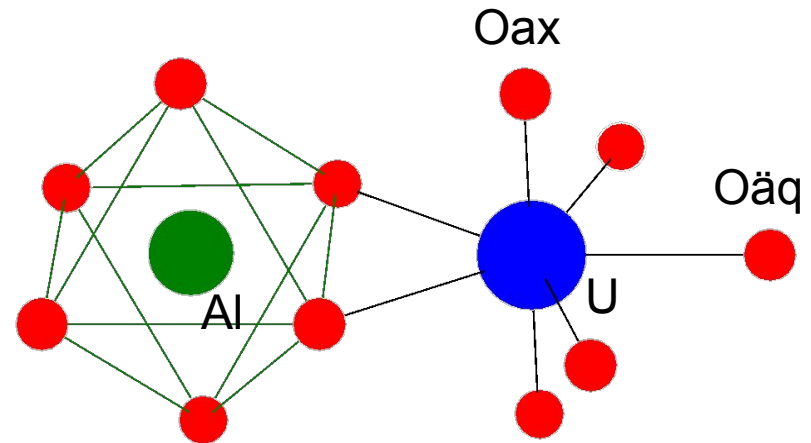
(STx-1, <0,5  $\mu\text{m}$ ) reagierte 24 h unter  $\text{N}_2$  Atmosphäre

- Feststoff zu Lösung: 2g/L
- I = 0,01 und 0,1 M  $\text{NaClO}_4$
- $5 \times 10^{-5}$ ,  $8 \times 10^{-5}$  M U(VI)
- pH 5 und 6
- Uranaufnahme 49 - 87 %

# Strukturparameter von $\text{UO}_2^{2+}$ sorbiert an Montmorillonit

## Ergebnisse der EXAFS-Analyse

Schale	N	R(Å)	$\sigma^2(\text{Å}^2)$
U-O(ax)	2,0(2)	1,78	0,002
U-O(äq)	6,1(8)	2,36	0,015
U-Al/Si	0,5(2)	3,43	0,003



Bildung eines innersphärischen, einkernigen, bidentaten Komplexes mit den Aluminolgruppen

C. Hennig et al., Radiochim. Acta (angenommen)

# Schlussfolgerungen und Ausblick

Die Röntgenabsorptionsspektroskopie (EXAFS und XANES) mit Synchrotronstrahlung ermöglicht die elementspezifische Untersuchung der Speziation von Actiniden in festen, flüssigen und gasförmigen Proben.

Die EXAFS-Spektroskopie ist zwar eine teure und anspruchsvolle Methode, aber sie liefert Ergebnisse, die mit keiner anderen Methode erhältlich sind.

# Schlussfolgerungen und Ausblick

Die EXAFS- und XANES-Spektroskopie finden immer stärkere Anwendung auf vielen Gebieten der Actinidenchemie, z.B. Untersuchung der

- Aquoionen
- Hydrolyse
- Komplexierung
- Kolloidbildung
- Wechselwirkung mit Organika, Pflanzen und Mikroorganismen
- Sorptionsprozesse an Mineraloberflächen
- Speziationsbestimmung in Umweltproben
- Materialforschung

# Schlussfolgerungen und Ausblick

Die Ergebnisse der spektroskopischen Speziation mit Synchrotronstrahlung sind wichtig für andere Untersuchungen, z.B.:

- Validierung von Modellen zur Bestimmung thermodynamischer Konstanten
  - Komplexgleichgewichte in aquatischen Lösungen
  - Oberflächenkomplexierungsreaktionen
- Quantenchemische Berechnungen

# Schlussfolgerungen und Ausblick

Durch die Entwicklung und Anpassung entsprechender Sicherheitskonzepte für den Umgang mit radioaktiven Proben sind die vorhandenen Synchrotronstrahlungstechniken in zunehmenden Maße für Untersuchungen von Actiniden verfügbar:

- Röntgenbeugung, Röntgenfluoreszenz, Tomographie, Mikroskopie
- In begrenztem Umfange können die allgemein zugänglichen Strahlrohre an den Synchrotronspeicherringen genutzt werden.

# Schlussfolgerungen und Ausblick

- Spezielle Radiochemiemessplätze entstanden bzw. sind in der Planung
  - Radiochemiemessplatz am Rossendorfer Synchrotronstrahlrohr ROBL an der ESRF
    - Nutzerbetrieb seit 1998
    - ca. 25 Tage/Jahr (600 Stunden) Strahlzeit für externe Nutzer
  - Micro-XAS Strahlrohr an der Swiss Light Source
    - Umgangsgenehmigung bis 100 GBq
    - Nutzerbetrieb ab 2004
  - XAS-Strahlrohr des Instituts für Nukleare Entsorgung, FZK, an der ANKA Synchrotronquelle
    - Umgangsgenehmigung bis zum  $10^6$ -fachen der Freigrenze
    - Inbetriebnahme 2003/2004



# Danksagung

## Hydrate der Actiniden

G. Bernhard, V. Brendler, T. Fanghänel, H. Funke, G. Geipel,  
G. Grambole, H. Moll, T. Stumpf

## Sorption am Montmorillonit

B. Baeyens, M. Bradbury, G. Grambole, C. Hennig

## Komplexierung mit PCS

L. Baraniak, H. Neubert, A. Roßberg

## Komplexierung mit Huminstoffen

M. Bubner, K.-H. Heise, R. Jander, M. Meyer, S. Sachs, K.  
Schmeide, W. Wiesener

## Projektgruppe "ESRF-Beam-Line"

S. Dienel, W. Matz, W. Oehme, N. Schell, U. Strauch