

## 138. Otto Hahn:

Über eine neue radioaktive Substanz im Uran<sup>1)</sup>.

(Eingegangen am 14. März 1921.)

Seit der Auffindung des Protaktiniums, der Muttersubstanz des Aktiniums, sind in den drei großen Reihen radioaktiver Stoffe keine Lücken mehr vorhanden, und es kann als ausgeschlossen gelten, daß man noch neue aktive Stoffe finden wird, die sich in direkter Folge in eine der obigen Reihen einfügen lassen. Trotzdem sind auch hier unsere Kenntnisse nicht vollständig, und mancherlei Fragen bleiben ungelöst. So ist die Stellung der Aktiniumreihe zur Uranreihe noch nicht geklärt, und es ist sogar bezweifelt worden, ob die Aktiniumprodukte überhaupt durch einen seitlichen Zerfall sich aus der gewöhnlichen Uranreihe abspalten oder aber, ob man für den Ursprung des Aktiniums ein neues Uran-Isotop, etwa Aktino-uran, annehmen soll<sup>2)</sup>. Letztere Hypothese wurde aufgestellt, um die Diskrepanz zwischen dem Atomgewicht des Urans (238.2) und dem des Radiums (226.0), die sich ja um  $3 \times 4 = 12$ , nicht aber um 12.2 Einheiten unterscheiden sollten, aufzuklären. Dem Aktino-uran müßte man dann ein Atomgewicht von etwa 240 zuschreiben und dem Endprodukt der Aktiniumreihe, dem Aktinium D, rund 212. Da dieser Wert im Widerspruch steht zu dem experimentell ermittelten Atomgewicht des Uranbleies von 206.05, so ist die obige Annahme, will man keine neuen Hypothesen einführen, nicht sehr wahrscheinlich. In jüngster Zeit wurden auch, bezugnehmend auf die jüngste Rutherford'sche Entdeckung eines Helium-Isotops von der Masse 3, neue Erklärungsversuche für die Entstehung der Aktiniumreihe aus der Uranreihe vorgebracht<sup>3)</sup>.

Um zu einer Erklärung für das hohe Atomgewicht des Urans zu kommen, hat neuerdings K. Hermann (Charlottenburg) gesprächs-

<sup>1)</sup> Eine kurze Mitteilung über diesen Gegenstand wurde bereits in den »Naturwissenschaften« 1921, Heft 5, 84 veröffentlicht.

<sup>2)</sup> z. B. Piccard etc., Arch. Sc. phys. et nat. Genève [4] 44, 161–164 [1917].

<sup>3)</sup> St. Meyer, Ph. Ch. 95, 433 [1920]. — Smekal, Phys. Ztschr. 22, 48 [1921].

weise die Vermutung geäußert, daß unabhängig von der Aktiniumreihe das Uran I doch vielleicht als ein Isotopengemisch aufzufassen wäre. Dieses Gemisch müßte zu etwa 90 % aus dem Uran I vom Atomgewicht 238 und zu 10 % aus einem Uran III vom Atomgewicht 240 bestehen. Uran III würde dann vermutlich eine Reihe aktiver Zerfallsprodukte bilden, die sich als Isotope unter die eigentlichen Radiumprodukte mischen könnten, ohne daß man sie bei ihrer verhältnismäßig geringen Menge bisher hätte entdecken müssen.

Die im Folgenden zu beschreibende Auffindung eines neuen radioaktiven Zerfallsproduktes im Uran rückt diese Hypothese vielleicht in eine entscheidbare Nähe.

#### Auffindung der neuen Substanz.

Den Ausgang für die Untersuchung bildeten eine frühere Arbeit von L. Meitner und dem Verfasser<sup>1)</sup> über das Uran Y und eine kürzlich vorgenommene Bestimmung der Lebensdauer des Protaktiniums<sup>2)</sup> aus dessen Gehalt in alten Uransalzen. Bei beiden Untersuchungen hatten sich gelegentlich kleine Unstimmigkeiten in den elektroskopischen Messungen der abgeschiedenen Produkte gezeigt. Da die Erscheinungen äußerst geringfügig waren und auch nicht regelmäßig auftraten, wurden sie damals für Infektionen mit Spuren von ThB gehalten und nicht weiter verfolgt.

Durch die schnelle Entwicklung unserer Kenntnisse über die Isotopie vieler chemischer Elemente und die Vermutung von Hrn. Hermann angeregt, wurden in der letzten Zeit die ersten Umwandlungsprodukte des Urans genauer untersucht und bei dieser Gelegenheit auch die oben erwähnten Erscheinungen zu reproduzieren gesucht. Beim Uran Y ließ sich nichts Sicheres erkennen, was auf die Anwesenheit einer neuen Substanz hätte schließen lassen; anders war es beim Protaktinium. Wurden Uransalze mit der flußsauren Lösung kleiner Tantalsäuremengen versetzt und dann das Tantal wieder abgeschieden, ein Verfahren, das zur Abscheidung des in dem Uran eventuell vorhandenen Protaktiniums führt, so wurde bei genügend schnellem Arbeiten außer dem Uran X eine schwache, abnehmende Aktivität beobachtet, deren Ursprung vorerst unbekannt war.

Durch Abzug der Uran-X-Kurve von der gefundenen Aktivitätskurve zeigte es sich, daß die fragliche Aktivität in etwa 6–7 Stdn. auf die Hälfte abnahm. Die Intensität der Strahlung, es handelte sich augenscheinlich um eine  $\beta$ -Strahlung, war aber so gering, daß sie zur

<sup>1)</sup> O. Hahn und L. Meitner, Phys. Ztschr. 15, 236–240 [1914].

<sup>2)</sup> O. Hahn und L. Meitner, B. 54, 69–77 [1921].

Zeit der ersten Messungen nicht viel mehr als 1 Promille der  $\beta$ -Strahlung des verwendeten Uranmaterials betrug.

Es mußte daher vor allem aufgeklärt werden, ob diese geringe Aktivität nicht von Spuren Mesothor 2 herrührte. Mesothor 2 emittiert nämlich  $\beta$ -Strahlen und hat eine Halbwertszeit von 6.2 Stdn. Der Verdacht auf eine Infektion mit Mesothor 2 war also naheliegend, besonders in einem Laboratorium, in dem zeitweilig mit starkem Mesothor gearbeitet worden war.

Allerdings sprachen die chemischen Eigenschaften des beim Tantal gefundenen Körpers gegen Mesothor 2; denn, wie in einer in Gemeinschaft mit L. Meitner ausgeführten Arbeit gezeigt wurde<sup>1)</sup>, bleibt bei einer Flußsäure-Behandlung des Aktiniums, die der hier durchgeführten durchaus vergleichbar ist, das Aktinium quantitativ bei dem in Flußsäure unlöslichen Teil. Da Aktinium und Mesothor 2 isotope Elemente sind, war für Mesothor 2 natürlich dasselbe zu erwarten. Trotzdem wurde dieser Punkt durch eine Reihe von Kontrollversuchen noch besonders aufgeklärt. Aus einem Mesothor-Präparat wurde das Mesothor 2 + Radiothor ausgefällt und der Niederschlag einer HF-Behandlung bei Anwesenheit von Tantal unterworfen. Das Resultat war das erwartete. Bei dem Tantal fand sich etwa 1 % des Radiothors, Mesothor 2 aber war darin überhaupt nicht nachzuweisen. Der Versuch wurde mit gewöhnlichem Thornitrat wiederholt. Das Ergebnis war das gleiche.

Es blieb jetzt nur noch die Möglichkeit einer Infektion der Gefäße, in denen die Weiterverarbeitung der flußsauren Tantal-Lösung vorgenommen worden war. Um hier jede Irrtumsmöglichkeit auszuschließen, wurden außer neuen Gläsern und Trichtern auch völlig neue Plattingefäße verwendet, von denen ja bei der dauernden Verwendung von HF ausgiebiger Gebrauch gemacht werden mußte. Ermöglicht wurde dies durch das große Entgegenkommen der Badischen Anilin- und Soda-Fabrik, die unserer radioaktiven Abteilung eine größere Menge Platin gütigst leihweise überließ.

#### Chemische Eigenschaften von UZ.

Nachdem auf die genannte Weise jede Irrtumsmöglichkeit ausgeschlossen war, konnte durch Wiederholung der Versuche mit größeren Uranmengen eindeutig der Beweis erbracht werden, daß es sich bei der fraglichen Substanz um ein neues radioaktives Produkt mit ganz bestimmten chemischen und radioaktiven Eigenschaften handelte. Der neue Körper sei hier vorläufig als UZ bezeichnet.

<sup>1)</sup> O. Hahn und L. Meitner, Ztschr. f. Phys. 2, 60—70 [1920].

Die allgemeine Arbeitsweise war kurz die folgende: Zuerst handelte es sich um eine Abtrennung des Uran X von dem Uransalz; denn, wie sich herausstellte, fand sich UZ bei den üblichen Uranmengen immer beim Uran X. Die Abscheidung von UX gelingt nach den verschiedensten Methoden<sup>1)</sup>. Bei Verwendung größerer Uranmengen hat es sich aber immer am meisten bewährt, zuerst durch einige fraktionierte Krystallisationen des Nitrats aus Wasser die Hauptmenge des Urans zu entfernen. In den Mutterlaugen findet sich das Uran X in stark angereichertem Zustande. Betragen die Mengen Uransalz dann nur noch etwa 100 g, so wird nach Zugabe von ca. 50 mg Eisenchlorid zur verdünnten Uranlösung mittels Ammoniak + Ammoniumcarbonat das Eisen vom Uran getrennt. Wird die Carbonatlösung einige Zeit vorsichtig erwärmt, so scheidet sich das Eisen in Flocken ab, die sich allmählich zusammenballen und gut filtrieren lassen. Wie bekannt, wird bei diesem Verfahren das Uran X von Eisen adsorbiert, wenn keine wägbaren Mengen Thorium vorhanden sind. Das UX- plus UZ-haltige Eisen wird durch Umfällen mit Ammoniak + wenig Ammoniumcarbonat in der Wärme von etwa mitgerissenen Spuren Uran befreit und mit diesem gereinigten Eisen dann die Tantal-Verarbeitung durchgeführt.

Das Eisen wird zu diesem Zweck mit der Lösung von etwa 10 mg Tantal in Flußsäure unter Zugabe von ebenfalls 10 mg Lanthannitrat längere Zeit mit einem Überschuß von verd. HF + etwas H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> auf dem Wasserbad behandelt. Das Lanthan fällt dabei als unlösliches Fluorid aus, bei ihm befindet sich das UX. In Lösung gehen das Tantal + Eisen und mit diesem etwa anwesendes Protaktinium oder dessen Isotope. Nach dem Abfiltrieren wird eingedampft, die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> vorsichtig abgeraucht und schwach gegläht.

Hierdurch wird das Tantal säure-unlöslich, das Eisen bleibt löslich. Wäre kein Eisen vorhanden, so ließe sich jetzt das Tantal nur sehr schwer quantitativ aus dem Platinschälchen entfernen. Durch die Anwesenheit des Eisens geht dies aber recht gut, wenn man dieses in starker HCl auflöst. Das ungelöste Tantal läßt sich dann mit der Eisenlösung unschwer in ein Gläschen überführen. In diesem wird die gesamte Masse noch einige Zeit mit Königswasser gekocht und dann nach dem Verdünnen mit Wasser die Eisenlösung von dem Tantal abfiltriert. Letzteres bleibt farblos auf dem Filter. Im Filtrat wird das Eisen ausgefällt und abfiltriert. Nach dem Trocknen bei 110° werden die drei Filter mit dem Lanthan, dem Tantal und dem Eisen auf Aluminiumbleche aufgeklebt und in geeigneten Elektroskopen zur Messung gebracht.

Das das Uran X enthaltende Lanthan war immer mehrere hundertmal stärker als das Tantal oder das Eisen. Die schnell ab-

<sup>1)</sup> Siehe z. B. Kirsch, Mitt. Inst. f. Radiumforschung 127. Wien. Ber. IIa 129, 309—334 [1920].

nehmende Substanz fand sich beim Tantal, eine geringe Menge war gewöhnlich auch beim Eisen; beide enthielten noch etwas UX. Hatte man genügend Ausgangsmaterial verwendet, so daß es nicht mehr so sehr auf schnelles Arbeiten ankam, so konnte man die klare flußsaure Lösung des Ta + Fe mit einer neuen kleinen Menge Lanthannitrat versetzen. Dieses reißt bei seinem Ausfallen die geringen Spuren in Lösung gegangenen UX mit; UZ bleibt in Lösung. Die Weiterverarbeitung geschieht dann genau wie oben angegeben.

Es zeigte sich, daß durch diese Weise Präparate von großer Reinheit erhalten werden konnten. Wie außerordentlich wirksam die Abtrennung des UX von dem tantal-ähnlichen UZ durchgeführt werden konnte, zeigt folgende Überlegung: Wie schon erwähnt, betrug die Aktivität des neuen Körpers zur Zeit der ersten Messungen im allgemeinen nicht viel mehr als 1 Promille der Aktivität des UX. Findet sich von dem UX also nur 1 Promille bei UZ, so ist dieses schon zu fast 50% mit dem langsam zerfallenden UX verunreinigt. Nach der eben angegebenen Methode wurde aber schließlich ein Präparat von UZ erhalten, das zu über 99.5% radioaktiv rein war; nur knapp 0.5% der Aktivität rührten von UX her. Dies beweist, daß die Abtrennung des UX von diesem UZ auf 1 Hunderttausendstel gelungen war. Allerdings ist es wahrscheinlich, daß bei dem zweimaligen UX-Niederschlag eine gewisse Menge UZ von dem Lanthanfluorid adsorbiert wird; zu einem erheblichen Prozentsatz scheint dies aber nicht stattzufinden. Umgekehrt geht von der Substanz UZ im allgemeinen bei dem Kochen mit Königswasser etwas mit dem Eisen in Lösung. Das im allgemeinen recht schwach aktive Eisenfilter zeigt daher außer der UX-Abnahme auch anfänglich die zu schnelle Abnahme von UZ; doch beträgt die Menge UZ beim Eisen immer sehr viel weniger als beim Tantal. Daß UZ tatsächlich tantalähnliche Eigenschaften hat, also ein Isotop des Protaktiniums vorstellt, wurde zum Überfluß noch durch einen besonderen Versuch bewiesen.

Etwa 10 mg UZ + UX-haltiges Tantal wurden unter Zugabe von Lanthan und Eisen von neuem der obigen chemischen Verarbeitung unterworfen. Es resultierten wieder 3 Filter, ein Lanthan-, ein Tantal- und ein Eisenfilter. Der Rest der Aktivität von UZ, es war mittlerweile der größte Teil zerfallen, fand sich wieder beim Tantal und zwar frei von UX, das beim Lanthan zurückgeblieben war.

Der Körper UZ ist also zweifellos ein Isotopes des Protaktiniums.

#### Radioaktive Eigenschaften von UZ.

Durch die Herstellung von reinen UZ-Präparaten aus größeren Uranmengen ließen sich die radioaktiven Eigenschaften dieser Sub-

stanz recht genau ermitteln. Zwecks Bestimmung ihrer Halbwertszeit wurden die Präparate anfangs mit kurzen, später mit längeren Unterbrechungen in genau definierter Stellung gemessen. Am vorteilhaftesten geschahen diese Messungen in einem unten durch 0.02 mm Al abgeschlossenen, allseitig geschlossenen (sogen.  $\beta$ -Strahlen-) Elektroskop. Dasselbe Präparat wurde zur Kontrolle immer auch noch durch eine dickere Folie gemessen und außerdem in einem  $\alpha$ -Strahlen-Elektroskop. Die Strahlungs-Intensität in diesem betrug immer weniger als die Hälfte der Intensität in dem geschlossenen Elektroskop; sie war meist auch geringer als die durch die dickere Aluminiumfolie beobachtete. Dies beweist einwandfrei, daß die Strahlung der neuen Substanz eine typische  $\beta$ -Strahlung ist. Bei einer gleichzeitig  $\alpha$ -strahlenden Substanz wäre das Intensitätsverhältnis für das  $\alpha$ -Elektroskop 50—100-mal günstiger. Das Verhältnis der weichen zu den durchdringenderen  $\beta$ -Strahlen schwankte stark mit dem Reinheitsgrad von UZ. Bei Anwesenheit von relativ viel UX war der Unterschied beträchtlich geringer als bei reinem UZ. Dies läßt schon den Schluß zu, daß die  $\beta$ -Strahlen von UZ absorbierbarer sind, als die durchdringenden UX-Strahlen (siehe weiter unten).

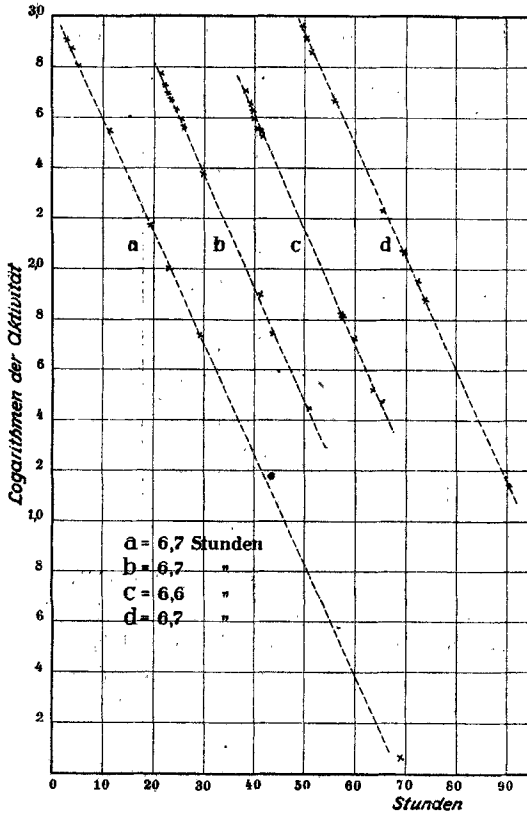
Die Halbwertszeit wurde nun bestimmt durch mehrtägiges Messen und Zurückextrapolieren des übrig bleibenden UX auf die Zeit Null. Man kann dann die zu jedem beliebigen Zeitpunkte gehörige UX-Aktivität von dem direkt gemessenen UZ + UX abziehen und erhält so die Abklingung von UZ allein. Als Uran-X-Halbwertszeit wurden 24 Tage angenommen. Die neueste Bestimmung dieses Wertes durch Kirsch ergab 23.83 Tage, die frühere Soddysche Angabe war 24.6 Tage. Bei dem großen Unterschied in der Zerfallsgeschwindigkeit von UZ und UX fallen übrigens kleine Schwankungen in dem Wert für UX nicht ins Gewicht. Ebenso wenig störte das mit UX isotope, in 1 Tag zur Hälfte zerfallende UY; denn einerseits beteiligt sich dies an der UX-Strahlung im Gleichgewicht nur zu wenig Prozenten, andererseits wurden für die neueren Bestimmungen im allgemeinen die UX-Präparate erst verarbeitet, wenn ein großer Teil des UY oder alles schon zerfallen war.

In der Figur 1 sind vier in der angegebenen Weise erhaltene Abfallskurven für UZ wiedergegeben. Die Abszissen geben die Zeit in Stunden, die Ordinaten die Logarithmen der Aktivität.

Als Halbwertszeiten ergeben sich in sehr guter Übereinstimmung die Werte 6.7, 6.7, 6.6 und 6.7 Stdn. Die Halbwertszeit von UZ beträgt also rd. 6.7 Stdn.; sie ist vermutlich innerhalb 2% richtig. Der Gehalt an UX, auf den korrigiert werden mußte, war bei den einzelnen Präparaten recht verschieden. Er betrug für Kurve a 0.4%, b 11.8%, c 29%, d 1.3%.

Was die Durchdringbarkeit der  $\beta$ -Strahlen von UZ<sub>2</sub> anbelangt, so wurde schon darauf hingewiesen, daß sie verhältnismäßig gering ist.

Fig 1.



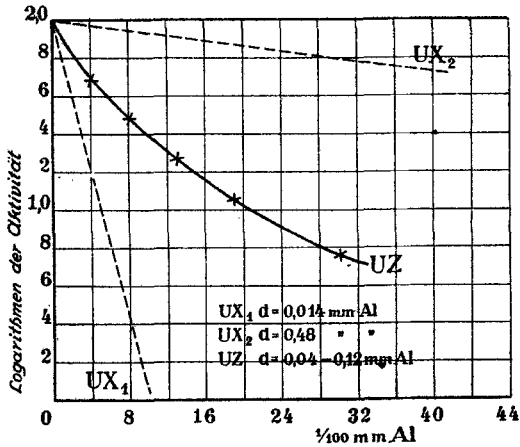
Zwecks genauere Bestimmung wurde mit dem sehr reinen Präparat, das auch zur Bestimmung der Kurve a in Figur 1 gedient hat, eine Absorptionskurve der Strahlen in Aluminium aufgenommen. Die Messungen geschahen in dem schon erwähnten Elektroskop von  $\beta$ -Strahlen-Typ, dessen untere abschließende Folie aus 0,02 mm dickem Aluminium bestand. Die absorbierenden Aluminiumfolien wurden zwischen zwei flachen Metallringen festgehalten, das Präparat (etwa 10 mg Gewicht) lag ausgebreitet auf einem Filter. Die Messungen geschahen durch

Aluminiumfolien von  $\frac{2}{100}$  und  $\frac{11}{100}$  mm Dicke. Wegen der schnellen Abnahme der Aktivität von UZ mußte die mittlere Zeit jeder Messung genau notiert werden. Gleichzeitig wurde mit demselben Präparat durch häufiges Messen, ohne absorbierende Folien die Halbwertszeit kontrolliert. Hierdurch ließ sich die Abnahme der Aktivität von UZ während der Absorptionsmessungen durch Interpolation leicht ausschalten, und man erhielt die direkte Absorptionskurve der  $\beta$ -Strahlen. Zu verschiedenen Zeiten erhaltene Messungen mit der gleichen absorbierenden Schicht, die also wegen der Abnahme von UZ ganz verschiedene Werte ergeben hatten, zeigten nach Berücksichtigung der Halbwertszeit innerhalb der Fehlergrenzen völlige Übereinstimmung. Hierdurch sieht man auch, daß

die geringe Menge anwesendes UX für die Messungen keinen nennenswerten Fehler bedingte.

In der Figur 2 ist die auf die angegebene Weise aufgenommene Absorptionskurve wiedergegeben. Als Abszissen sind aufgetragen die Dicken der Aluminiumschichten in  $\frac{1}{100}$  mm, als Ordinaten die Logarithmen der Aktivität.

Fig. 2.



Zum Vergleich sind die entsprechenden Kurven für UX<sub>1</sub> und UX<sub>2</sub>, berechnet aus ihrem Absorptionskoeffizienten, gestrichelt beige-fügt. Man sieht aus der Kurve, daß die  $\beta$ -Strahlen von UZ augenscheinlich sehr verschiedene Geschwindigkeit besitzen. Der Hauptteil der  $\beta$ -Strahlung ist recht weich. Die Halbwertsdicke für Aluminium ist anfangs rd. 0.04 mm, steigt aber schnell an und ist zwischen 0.18 und 0.30 mm schon 0.12 mm. Für dickere absorbierende Schichten läßt sich vorerst eine Angabe nicht machen, da das Präparat zur Aufnahme weiterer Punkte nicht stark genug war.

Als Absorptionskoeffizienten von UZ in Aluminium ergeben sich aus den obigen Zahlen die Werte  $\lambda = 170$  bis  $58 \text{ cm}^{-1}$  zwischen den Grenzen 0.02 und 0.30 mm absorbierender Schicht, wobei die  $\frac{2}{100}$  mm Elektroskop-Abschluß nicht berücksichtigt sind.

#### Beteiligung von UZ an der Gesamtstrahlung.

Es wurde bereits oben angegeben, daß die  $\beta$ -Aktivität von UZ im Vergleich zu der  $\beta$ -Strahlung des UX äußerst gering ist. Um zu einer Schätzung dieser Beteiligung von UZ an der Gesamt- $\beta$ -Strahlung zu gelangen, wurde die Aktivität von UZ auf die Zeit der Abtrennung von UX umgerechnet und mit der  $\beta$ -Aktivität des aus der gleichen Uranmenge stammenden UX verglichen.



Im allgemeinen geschah das einfach so, daß die beiden Filter, das UX-haltige Lanthanfilter und das UZ-haltige Tantalfilter, unter gleichen Bedingungen zur Messung gebracht und dann nach Bestimmung des Reinheitsgrades von UZ die Umrechnung auf die Zeit Null vorgenommen wurde. Außerdem kam noch hinzu der Betrag an UZ, der sich in dem Eisenfilter vorfand und der im allgemeinen nicht zu vernachlässigen war.

Für das mit dünner Al-Folie abgeschlossene  $\beta$ -Elektroskop ergaben sich auf diese Weise Werte von etwa 2.5 Promille.

Bei späteren Versuchen werden nicht mehr die Filter direkt verglichen, sondern sowohl das Lanthan- als das Tantalfilter verascht und ihre Gesamtgewichtsmenge bestimmt. Die Präparate werden dann nach Anreiben mit Chloroform mittels eines feinen Haarpinsels auf gewogene Aluminiumbleche aufgestrichen und die Menge wieder genau bestimmt. Kontrollbestimmungen der gleichen Präparate in variierenden Schichten, die aber niemals 10 mg erreichten, ergaben sehr gute Übereinstimmung. Die Messung des sehr starken UX geschah dabei immer mit einer 50-stel-Sekunden-Stoppuhr. Das Resultat war ungefähr das gleiche wie oben, so daß die Beteiligung von etwa  $\frac{1}{4}$  % unter den gegebenen Bedingungen wohl ziemlich richtig sein dürfte.

Die wirkliche Beteiligung kennt man aber darum doch nicht genau; denn Vergleiche verschiedener  $\beta$ -strahlender Substanzen untereinander sind ziemlich willkürlich. Außerdem liegt in unserem Falle noch die Komplikation vor, daß der einheitliche Körper UZ mit dem komplexen UX, das ja aus 2  $\beta$ -strahlenden Substanzen  $UX_1$  und  $UX_2$  besteht, verglichen wird. Von diesen ist die Strahlung von  $UX_1$  außerordentlich absorbierbar, die von  $UX_2$  sehr durchdringend. Über die Ausnutzung dieser Strahlen in unserem speziellen Elektroskop wissen wir nicht viel, und der obige Wert von  $\frac{1}{4}$  % kann daher nur als eine ungefähre Grenze der wahren Beteiligung von UZ zur Gesamtstrahlung angesehen werden.

#### Die Muttersubstanz von UZ.

Natürlich muß UZ eine Muttersubstanz haben, aus der es entsteht, und muß selbst wieder in ein anderes Produkt zerfallen. Nach dem sog. radioaktiven Verschiebungsgesetz entsteht das fünfwertige UZ durch den Zerfall eines vierwertigen  $\beta$ -Strahlers oder eines siebenwertigen  $\alpha$ -Strahlers.

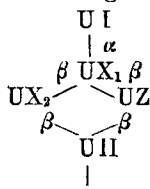
Die näherliegende Annahme für das Mutterprodukt ist ein vierwertiger  $\beta$ -Strahler und deren sind ja im Uran auch zwei enthalten, nämlich das  $UX_1$  und UY. Es wurden daher weitere Versuche unternommen, um zu prüfen, ob einer der beiden Körper als Muttersubstanz in Frage kommt. Uran  $X_1$  hat eine Halbwertszeit von 24 Tagen, UY eine von nur 1 Tag.

Fällt man aus Uranlösungen das  $UX_1$  aus, so fällt dabei automatisch das mit ihm isotope  $UY$  ebenfalls aus. Nur ist dann das letztere wegen seiner großen Zerfallsgeschwindigkeit nach wenigen Tagen praktisch verschwunden. Ist  $UY$  die Muttersubstanz von  $UZ$ , so wird man also  $UZ$  in einem älteren  $UX$  Präparat nicht mehr finden dürfen. Ist  $UX$  die Muttersubstanz, dann muß die Menge an  $UZ$  proportional der Menge des vorhandenen  $UX$  sein, d. h. die Ausbeuten an  $UZ$  müssen sich mit einer Periode von 24 Tagen verringern.

Es wurde nun oben schon erwähnt, daß  $UZ$  aus  $UX$ -Präparaten gewonnen werden konnte, in denen das kurzlebige  $UY$  bereits zerfallen war.  $UY$  scheidet als Muttersubstanz also aus. Es bleibt als nächstliegende Muttersubstanz also das  $UX_1$ . Aus einer größeren Uranmenge wurde ein sehr starkes  $UX$  abgetrennt und dieses  $UX$  nach bestimmten Zeitabschnitten auf  $UZ$  verarbeitet. Mit der Stärke dieses  $UZ$  wurde dann immer die entsprechende Stärke der übriggebliebenen  $UX$  verglichen: beide Präparate wurden allmählich schwächer. Es ließ sich aber bis jetzt noch nicht mit Sicherheit feststellen, ob die Abnahme der beiden Produkte in demselben Tempo, also mit einer Periode von 24 Tagen erfolgt, oder ob für  $UZ$  ein anderes Gesetz giltig ist.

Die Aufklärung dieses Punktes ist von besonderer Wichtigkeit. Es werden aber wohl noch eine ganze Reihe von Versuchen durchgeführt werden müssen, bis sich eine sichere Aussage machen läßt. So einfach der qualitative Nachweis von  $UZ$  ist, so relativ einfach es auch noch ist, reine  $UZ$ -Präparate herzustellen, wenn man auf eine quantitative Ausbeute keinen Wert legt, so schwierig sind quantitative Versuche, die sich auf größere Zeiträume erstrecken. Sicher scheint es zu sein, daß die Abnahme der Ausbeute aus  $UZ$  von der des  $UX$  nicht sehr stark verschieden ist. Aber mehr läßt sich vorerst nicht sagen.

Erfolgt die Abnahme mit der Zerfallsgeschwindigkeit von  $UX_1$ , so ist an der genetischen Beziehung beider kaum zu zweifeln;  $UX_1$  wäre dann die direkte Muttersubstanz von  $UZ$ . Da  $UX_1$  aber, wie seit langem bekannt, auch die Muttersubstanz von  $U II$  ist, so müßten wir beim  $UX_1$  einen doppelten Zerfall annehmen. Das Zerfallsschema wäre unter diesen Voraussetzungen das nebenstehende.



Es würde sich hier also um einen dualen Zerfall handeln, bei dem beide Äste durch je eine  $\beta$ -Strahlen-Umwandlung entstehen. Ein solcher Fall ist bis jetzt bei den radioaktiven Umwandlungen noch nicht beobachtet worden. Ausgeschlossen ist eine solche Art des

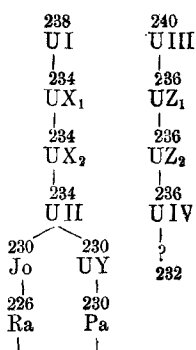
Zerfalls aber wohl nicht. Gleichzeitig ist in dem Schema als besonders einfach die Annahme gemacht, daß sich die Glieder der Verzweigung nach ihrer doppelten  $\beta$ -Strahlen-Umwandlung beim UII wieder schließen. Auch hierüber läßt sich nichts Bestimmtes vorher sagen.

Nimmt die Ausbeute an UZ in UX-Präparaten nicht in dem Tempo von UX<sub>1</sub> ab, dann kann UX<sub>1</sub> nicht die Muttersubstanz von UZ sein, und das angegebene Schema ist nicht richtig. Dann hat UZ seine besondere Muttersubstanz, die natürlich ein  $\beta$ -strahlendes Isotopes von UX<sub>1</sub> sein und in den üblichen UX-Präparaten enthalten sein muß. Ihre Halbwertszeit ließe sich indirekt ermitteln aus der Stärke von UZ in altem UX. Eine Andeutung für dieses neue Produkt würde sich dann vielleicht auch ergeben durch Aufnahme sehr genauer Abfallkurven von UX<sub>1</sub>, das aus verschiedenen alten Uranpräparaten hergestellt ist.

Falls sich die Existenz eines solchen neuen UX<sub>1</sub>-Isotopes bestätigt, dann würden in Analogie mit UX<sub>1</sub> und UX<sub>2</sub> die beiden neuen radioaktiven Produkte als UZ<sub>1</sub> und UZ<sub>2</sub> zu bezeichnen sein.

UZ<sub>1</sub> hätte natürlich auch eine Muttersubstanz, und zwar wäre diese sicher ein Isotopes des Urans. Unwahrscheinlich wäre es aber, daß unser gewöhnliches UI diese Muttersubstanz vorstellte<sup>1)</sup>, es sei denn, daß man die Entstehung von UZ aus UI durch Emission eines X<sub>2</sub>-Teilchens, des neuen Rutherford'schen Helium-Isotopes von der Masse 3; annähme. Wahrscheinlicher wäre vielmehr die Annahme, daß UZ<sub>1</sub> nicht aus dem UI, sondern unabhängig von diesem aus einem bisher unbekanntem UIII entstünde. Wir hätten also außer der bekannten Uranreihe eine mit ihr isotope Reihe, etwa nach nebenstehendem Schema.

In der Einleitung wurde bereits die Hermannsche Vermutung erwähnt, der die Möglichkeit der Existenz einer solchen neuen Uranreihe ins Auge faßte, um die Atomgewichts-anomalie des Urans (238.2) zu erklären. Die sehr geringe Strahlungsintensität, die der neue Körper UZ, im obigen Schema das UZ<sub>2</sub>, aufweist, würde nicht gegen diese Vermutung sprechen. UIII hätte wahrscheinlich das Atomgewicht 240. Nun wachsen im allgemeinen die Lebensdauern  $\alpha$ -strahlender isotoper Elemente schnell mit wachsendem Atomgewicht. Die Lebensdauer von UIII wäre daher vermutlich beträchtlich größer als die von UI; seine Strahlungsstärke, und damit die seiner Folgepro-



<sup>1)</sup> L. Meitner, Ztschr. f. Phys. 4, 146—156 [1921].

dukte könnte also sehr wohl den niedrigen Wert haben, den die neu aufgefundene Substanz zeigt. Sicher wäre die neue Zerfallsreihe mit dem Uran-Isotop UIV vom Atomgewicht 236 noch nicht zu Ende. Ob es gelingen würde, weitere Zerfallsprodukte der neuen Reihe nachzuweisen, könnte nur die weitere experimentelle Forschung ergeben. Vorerst muß aber vor jeder weiteren Erörterung erst einmal die Frage nach der direkten Muttersubstanz von UZ aufgeklärt werden.

Zum Schluß möchte ich nicht verfehlen, Hrn. O. Peters meinen herzlichen Dank zu sagen für die unermüdlliche Hilfe, die er mir bei der Aufarbeitung und Messung der sehr vielen Präparate geleistet hat.

#### Zusammenfassung der Ergebnisse.

1. In gewöhnlichen Uransalzen findet sich eine neue radioaktive Substanz mit den chemischen Eigenschaften des Protaktiniums.
2. Sie sendet  $\beta$ -Strahlen aus und hat eine Halbwertszeit von 6.7 Stdn.
3. Die Strahlen sind sehr komplex. Die Halbwertsdicke steigt in den untersuchten Grenzen von 0.014 auf 0.12 mm Al.
4. Die Strahlungsintensität des neuen Körpers beträgt unter den beschriebenen Bedingungen rd. 0.25 % der Stärke des UX ( $UX_1 + UX_2$ ), das aus der gleichen Menge Uran stammt.
5. Als Muttersubstanz kommt nur das  $UX_1$  oder ein neues  $UX_1$ -Isotop ähnlicher Lebensdauer in Frage.

Im ersteren Fall erlitt das  $UX_1$  einen dualen Zerfall, in einer Art, wie er bisher bei den Radioelementen noch nicht beobachtet wurde. Im letzteren Falle wäre die wahrscheinlichste Annahme die Existenz einer neuen Uranzerfallsreihe geringer Strahlungsintensität, deren einzelne Glieder sich als Isotope in die bekannte Uran-Radiumreihe einreihen.

So lange die Frage nach der Muttersubstanz noch nicht geklärt ist, wird der neue Körper UZ genannt.

Kaiser-Wilhelm-Institut für Chemie, Berlin-Dahlem.

### 139. Arno Müller: Die Kondensation zwischen Formaldehyd und Aceton.

(Eingegangen am 1. April 1921.)

Das nach der Theorie zu erwartende Methylen-aceton, welches bei der Kondensation zwischen Formaldehyd und Aceton entstehen sollte, konnte in isolierbaren Mengen niemals beobachtet werden. Wird als Kondensationsmittel Alkalilauge verwendet, so tritt einerseits bei wenig Alkali, das von den Elberfelder Farbenfabriken auf diesem Wege dargestellte Keto-butanol,  $CH_3.CO.CH_2.CH_2(OH)$ , auf, andererseits wird bei Gegenwart von viel Alkali ein völlig amorpher Körper erhalten, dessen Konstitutionsaufklärung bisher