

# Mitteilungen aus dem Institut für Radiumforschung

Nr. 84

## Zur Kenntnis des Atomgewichtes des Urans

Von

Otto Hönigschmid und Stefanie Horovitz

Ausgeführt mit Unterstützung der Kaiserl. Akademie der Wissenschaften

(Vorgelegt in der Sitzung am 9. Dezember 1915)

In einer früheren Untersuchung<sup>1</sup> zeigten wir, daß das aus krystallisiertem Uranerz isolierte Blei, das offenbar rein radioaktiven Ursprungs ist, also als ein Gemisch der beiden anscheinend stabilen Endprodukte der Uran-Radium- und der damit genetisch zusammenhängenden Actinium-Zerfallsreihe anzusehen ist, das Atomgewicht  $RaG + AcE = 206 \cdot 05$  besitzt gegenüber gewöhnlichem Blei  $Pb = 207 \cdot 18$ .

War damit im Prinzip erwiesen, daß ein und dasselbe Element je nach seiner Provenienz verschiedene Atomgewichte besitzen kann, so schien es immerhin der Mühe wert, auch das Atomgewicht des Hauptbestandteiles dieser Erze, nämlich des Urans, mit diesem Material nachzuprüfen.

Vor kurzem hat der eine von uns eine Revision des Atomgewichtes des Urans<sup>2</sup> durch Analyse des Uranobromids ausgeführt und gelangte dabei zu der Zahl  $U = 238 \cdot 18$ , die um zirka  $0 \cdot 3$  Atomgewichtseinheiten niedriger ist als der bis dahin geltende internationale Wert, der inzwischen von der

---

<sup>1</sup> O. Hönigschmid und St. Horovitz, *Monatsh.* 36, 355 (1915).

<sup>2</sup> O. Hönigschmid, *Monatsh.* 36, 51 (1915).

Internationalen Kommission in ihrem Berichte für 1916 auf Grund des Ergebnisses der zitierten Untersuchung auf  $U = 238.2$  korrigiert worden ist.

Von vielen Seiten wird immer wieder die Einheitlichkeit des Urans in Zweifel gezogen und namentlich mit Rücksicht auf die Kompliziertheit des Spektrums der Verdacht geäußert, daß das Uran ein komplexes Element sei, bestehend aus zwei oder mehreren in ihren chemischen Eigenschaften einander sehr nahe stehenden und deshalb auch schwer trennbaren Grundstoffen. Verschiedene Trennungsversuche, die, weil immer negativ verlaufend, vielfach gar nicht publiziert worden sind, gaben nicht den geringsten Anhaltspunkt als Stütze für die vermutete komplexe Natur des Urans.

Tatsächlich ist ja das, was wir als das Element Uran ansehen, ein Gemisch der beiden Isotope UI und UII, von welchen das letztere, da es aus UI durch eine  $\alpha$ - und zwei  $\beta$ -Umwandlungen auf dem Wege über  $UX_1$  und  $UX_2$  entstanden ist, ein um 4 Einheiten niedrigeres Atomgewicht besitzen muß als UI. Nun verhalten sich im radioaktiven Gleichgewicht, welches in den Uranerzen ja zuverlässig erreicht ist, die Mengen der Umwandlungsprodukte wie deren Halbwertszeiten und demnach die gleichzeitig vorhandenen Gewichtsmengen der untrennbaren Isotope UI und UII wie  $5 \cdot 10^9$  zu  $2 \cdot 10^6$ , welche Zahlen die Halbwertszeiten der beiden Elemente darstellen. Es wären somit von UII nur zirka  $0.04\%$  vorhanden, die ohne Einfluß auf das Atomgewicht bleiben müßten.

Alle bisherigen Atomgewichtsbestimmungen des Urans dürften mit Material ein und derselben Provenienz ausgeführt worden sein, nämlich mit solchem aus der Uranfabrik in St. Joachimsthal, welche die dort vorkommende Pechblende verarbeitet oder mit englischem Uran aus der Cornvallis-Pechblende, die im wesentlichen identisch ist mit der von St. Joachimsthal. Diese Pechblenden enthalten als Verunreinigung so ziemlich alle bekannten chemischen Elemente.

Da nun das krystallisierte Uranerz von Morogoro in Deutsch-Ostafrika nahezu frei ist von Verunreinigungen, so war, die Komplexität des Urans vorausgesetzt, die Vermutung, daß es in diesen Erzen eine andere Zusammensetzung besitzen

könnte als in der Pechblende, nicht von vornherein von der Hand zu weisen.

Zur Entscheidung dieser Frage führten wir einige Analysen mit dem aus krystallisiertem Uranerz von Morogoro isolierten Uran aus und das Ergebnis derselben bestätigte den Atomgewichtswert, welchen der eine von uns vor kurzem für Uran aus Pechblende ermittelt. Mit anderen Worten: Uran aus krystallisiertem Erz von Morogoro, dessen Alter sich aus dem Verhältnis »Uranblei« zu Uran zu zirka 800 Millionen Jahren berechnen läßt, besitzt dasselbe Atomgewicht wie das aus der viel jüngeren Pechblende, deren Alter auf Grund einer ähnlichen Berechnung etwa 250 Millionen Jahre betragen dürfte.

### Experimenteller Teil.

Zur Herstellung des Analysenmaterials wurde das krystallisierte Uranerz in Salpetersäure gelöst, die Hauptmenge des Bleis durch Schwefelsäure abgeschieden, aus dem Filtrat mit Ammoniak das Uranat gefällt, dieses in Salzsäure gelöst und mit Schwefelwasserstoff zur Entfernung der Schwermetalle behandelt. Das durch Kochen von Schwefelwasserstoff befreite Filtrat wurde mit Ammoncarbonat übersättigt und dadurch neben Eisen und den Erdalkalien die zu zirka 2% vorhandenen seltenen Erden<sup>1)</sup> entfernt. Schließlich wurde nach Zersetzung des gelösten Uran-Ammoniumcarbonats durch Salzsäure mittels Schwefelammon das Uranylsulfid gefällt, gewaschen und mit Salpetersäure unter Abscheidung von Schwefel in das Nitrat verwandelt. Das Nitrat wurde in Platingefäßen

<sup>1)</sup> In unserer II. Mitteilung über das Atomgewicht des »Uranbleis« (Monatsh. f. Ch. 36, 355, 1915) führen wir eine von W. Marckwald publizierte Analyse des krystallisierten Uranerzes von Morogoro an, nach welcher das Erz zirka 2.00% CaO enthalten sollte. Wie uns Marckwald privat aufmerksam machte, hat er schon vor Jahren diese Analysen ergänzt und berichtigt, wobei sich zeigte, daß neben sehr wenig Kalk nicht unbeträchtliche Mengen seltener Erden und Thor vorhanden sind. Er gibt in seiner diesbezüglichen Publikation (Jahrbuch für Landwirtschaft, Bd. 38, Ergänzungsband V, p. 424 [1909]) z. B. folgende Analyse:

UO <sub>3</sub>	UO <sub>2</sub>	PbO	FeO	ThO <sub>2</sub>	Erden	CaO	H <sub>2</sub> O + CO <sub>2</sub>	Gangart
45.4	38.2	7.2	0.7	0.4	2.0	0.5	0.8	3.2

unter Benutzung der Platinzentrifuge zehnmal aus Wasser umkrystallisiert und aus der Lösung des reinsten Anteiles mittels Oxalsäure das Oxalat gefällt. Durch Glühen desselben im elektrischen Muffelofen erhielt man ein lockeres Oxyd, welches leicht von Kohle und Brom angegriffen wird.

Alle zu den Analysen verwendeten Reagentien waren eigens hergestellt oder gereinigt. Bezüglich der näheren Details der Darstellung des Uranobromids und seiner Analyse sei auf die schon früher zitierte Mitteilung des einen von uns, betreffend die Revision des Atomgewichtes des Uran, verwiesen.

Ermittelt wurden die beiden Verhältnisse  $U\text{Br}_4 : 4\text{Ag}$  und  $U\text{Br}_4 : 4\text{AgBr}$ .

Es wurden wiederum zwei Serien von Analysen ausgeführt, und zwar wurde für die erste derselben das Uranobromid ein zweites Mal im Bromdampf sublimiert und geschmolzen, für die zweite Serie hingegen erfolgte die zweite Sublimation und Schmelzung in reinem Stickstoff. Es konnte wieder beobachtet werden, daß während des Schmelzens in konzentriertem Bromdampf offenbar überschüssiges Brom gelöst wird, denn das Erstarren des Bromids erfolgte unter diesen Versuchsbedingungen immer unter Spratzen. Die Resultate dieser Serie sind auch stets wieder niedriger als die der zweiten, was wahrscheinlich damit zu erklären ist, daß das überschüssig gelöste Brom beim Erstarren nicht vollständig abgegeben wird. Die durch die zweite Analysenserie ermittelten Zahlen werden als die maßgebenden angesehen und geben jedenfalls einen Maximalwert für die zu bestimmende Atomgröße.

### Erste Serie.

Verhältnis  $U\text{Br}_4 : 4\text{Ag}$ .

Gewicht des geschmolzenen $U\text{Br}_4$ im Vakuum	Gewicht des Ag im Vakuum	$U\text{Br}_4 : 4\text{Ag}$	Atomgewicht von U Ag = 107.88
4.65837	3.60418	1.29249	238.071
3.99404	3.09028	1.29245	238.055
4.59078	3.55214	1.29240	238.031
4.43275	3.42969	1.29246	238.060
<hr/> 17.67594	<hr/> 13.67629	<hr/> 1.29245	<hr/> 238.054

Verhältnis  $\text{UBr}_4 : 4\text{AgBr}$ .

Gewicht des geschmolzenen $\text{UBr}_4$ im Vakuum	Gewicht des $\text{AgBr}$ im Vakuum	$\text{UBr}_4 : 4\text{AgBr}$	Atomgewicht von U $\text{Ag} = 107.88$
4.65837	6.27409	0.74247	238.073
3.99404	5.37994	0.74239	238.011
4.59078	6.18353	0.74242	238.030
4.43275	5.97038	0.74246	238.058
<u>17.67594</u>	<u>23.80794</u>	<u>0.74243</u>	<u>238.043</u>

Als Mittel dieser Analysen ergibt sich  $\text{U} = 238.043 \pm 0.018$ , welcher Wert für das Atomgewicht des Urans aus den oben angeführten Gründen offenbar zu niedrig ist.

## Zweite Serie.

Verhältnis  $\text{UBr}_4 : 4\text{Ag}$ .

Gewicht des geschmolzenen $\text{UBr}_4$ im Vakuum	Gewicht des $\text{Ag}$ im Vakuum	$\text{UBr}_4 : 4\text{Ag}$	Atomgewicht von U $\text{Ag} = 107.88$
5.28043	4.08466	1.29275	238.183
5.36124	4.14755	1.29263	238.130
5.90561	4.56818	1.29277	238.192
3.14043	2.42929	1.29273	238.177
4.40377	3.40682	1.29263	238.133
<u>24.09148</u>	<u>18.63650</u>	<u>1.29270</u>	<u>238.163</u>

Verhältnis  $\text{UBr}_4 : 4\text{AgBr}$ .

Gewicht des geschmolzenen $\text{UBr}_4$ im Vakuum	Gewicht des $\text{Ag}$ im Vakuum	$\text{UBr}_4 : 4\text{Ag}$	Atomgewicht von U $\text{Ag} = 107.88$
5.28043	7.11092	0.74258	238.150
5.36124	7.22023	0.74253	238.113
5.90561	7.95237	0.74262	238.182
3.14043	4.22884	0.74262	238.181
4.40377	5.93036	0.74258	238.151
<u>24.09148</u>	<u>32.44272</u>	<u>0.74258</u>	<u>238.155</u>

Als Mittel dieser zehn Bestimmungen ergibt sich das Atomgewicht des Urans aus krystallisiertem Uranerz zu  $U = 238 \cdot 159 \pm 0 \cdot 023$ .

Dieser Wert weicht nur innerhalb des Versuchsfehlers von der Zahl  $U = 238 \cdot 175$  ab, welche der eine von uns für das Atomgewicht des Urans ermittelt hat.

---

### Zusammenfassung.

Es wurde das Atomgewicht des aus dem reinen krystallisierten Uranerz von Morogoro (Deutsch-Ostafrika) isolierten Urans bestimmt, da bisher zur Ermittlung dieser Konstante wohl ausschließlich die aus der viel jüngeren Pechblende, die stets viele Verunreinigungen enthält, gewonnenen Uranpräparate verwendet worden waren.

Analysiert wurde das Uranobromid, dessen Darstellung und Analyse schon in einer früheren Mitteilung des einen von uns ausführlich beschrieben worden ist.

Bei zehn Analysen der definitiven Serie verbrauchten  $24 \cdot 09148 \text{ g } UBr_4$  zur Ausfällung des Halogens  $18 \cdot 63650 \text{ g Ag}$  und ergaben dabei  $32 \cdot 44272 \text{ g AgBr}$ . Daraus berechnet sich das Atomgewicht des Urans zu  $U = 238 \cdot 159 \pm 0 \cdot 023$ , wenn für Silber und Brom die respektiven Atomgewichte  $Ag = 107 \cdot 88$  und  $Br = 79 \cdot 916$  angenommen werden. Dieser Wert stimmt mit dem für das Uran aus Pechblende von St. Joachimsthal früher ermittelten Atomgewicht  $U = 238 \cdot 175$  innerhalb der Versuchsfehlergrenze vollkommen überein.

---