

# Mitteilungen aus dem Institut für Radiumforschung

Nr. 88

## Die Lebensdauer des Ioniums und einige Folgerungen aus der Bestimmung dieser Konstante

Von

Stefan Meyer

(Vorgelegt in der Sitzung am 10. Februar 1916)

Die Atomgewichtsbestimmung des aus St. Joachimsthaler Uranpecherz von C. Auer v. Welsbach<sup>1</sup> abgeschiedenen Ionium-Thorium durch O. Hönigschmid<sup>2</sup> gestattet, unter Zuhilfenahme von Strahlungsmessungen auch die mittlere Lebensdauer ( $\tau$ ) des Io zu bestimmen.

Die bisher möglichen Schätzungen der Zerfallskonstante ( $\lambda$ ) dieses Elementes waren indirekter Art. Aus der Geiger-Nuttall'schen<sup>3</sup> Beziehung zwischen  $\lambda$  und  $R$  hatten diese Autoren unter Zugrundelegung ihrer Reichweitenbestimmung  $R_0 = 2.84 \text{ cm}$  den Wert  $\tau = 200.000$  Jahre angenommen; R. Swinne<sup>4</sup> hatte aus seiner Beziehung  $\tau = 330.000$  Jahre angesetzt. Aus neueren Beobachtungen von St. Meyer, V. F. Hess und F. Paneth<sup>5</sup> war  $R_0 = 2.95 \text{ cm}$  bestimmt worden,

<sup>1</sup> C. Auer v. Welsbach, diese Ber., 119, 1 (1910).

<sup>2</sup> O. Hönigschmid, diese Ber. (Mitt. Ra-Inst., Nr. 87); Bunsen-Ges. 18. Okt. 1915.

<sup>3</sup> H. Geiger und J. M. Nuttall, Phil. Mag. (6), 22, 618 (1911); 23, 439 (1912); 24, 653 (1912).

<sup>4</sup> R. Swinne, Phys. Z., 13, 14 (1912).

<sup>5</sup> St. Meyer, V. F. Hess und F. Paneth, diese Ber. (Mitt. Ra-Inst., Nr. 64), 123, 1472 (1914); infolge eines Versehens ist dort p. 1473 statt des oben richtig berechneten Wertes eine etwas zu kleine Lebensdauer angeführt.

wonach gemäß der Formel für die Uran-Radiumfamilie [ $\log \lambda = -37.7 + 53.9 \log R_0$ ] der kleinere Wert  $\tau = 7.4 \cdot 10^4$  Jahre anzunehmen gewesen wäre; es konnte aber, auf diesem Wege errechnet, nur die Größenordnung ( $10^5$  Jahre) als gesichert gelten, da geringe Abweichungen in der Messung der Reichweite schon erhebliche Änderungen bei der Berechnung der Zerfallskonstante mit sich bringen.

Eine andere Methode, die Lebensdauer des Io zu bestimmen, gründet sich auf die von E. Rutherford<sup>1</sup> abgeleiteten Formeln, die für den Fall gelten, daß zwischen Uran (d. h. UI+U II) und Radium nur ein langlebiges Zwischenprodukt vorhanden sei, eine Annahme, die heute als gesichert gelten darf. Danach ist für Zeiten ( $t$ ), die klein gegenüber den in Frage kommenden Lebensdauern ( $\tau$ ) bleiben, die innerhalb  $t$  entwickelte Radiummenge  $Ra = \frac{1}{2} t^2 Ra_0 \lambda_{Ra} \lambda_{Io}$  ( $\lambda_{Ra}$  und  $\lambda_{Io}$  = Zerfallskonstanten von Radium, beziehungsweise Ionium). Setzt man die zu 1 g Uran im Gleichgewicht befindliche Radiummenge ( $Ra_0$ ) mit  $3.3 \cdot 10^{-7} g$  oder  $3.4 \cdot 10^{-7} g$  an und  $\tau_{Ra} = 4 \cdot 10^{-4}$  1/Jahre, so wird  $Ra = 6.6 \cdot 10^{-11} t^2 \lambda_{Io}$ , beziehungsweise  $= 6.8 \cdot 10^{-11} t^2 \lambda_{Io}$ . (Einheit = Jahr.)

Demnach wäre, wenn Ionium keine allzu große Lebensdauer besitzt, die Beobachtung einer allmählichen Aufwärtskrümmung der Anstiegskurve für die entwickelten Radiummengen aus sorgfältig gereinigtem Uran zu erwarten.

F. Soddy<sup>2</sup> konnte tatsächlich an seinen durch mehr als zehn Jahre fortgesetzten Versuchen eine solche Abweichung vom geradlinigen Anstieg erkennen und schätzt aus dem Verlauf seiner Kurven, daß Io eine mittlere Lebensdauer von etwa 100.000 Jahren haben müsse, ein Wert, den er als Minimalwert ansieht, der jedoch vom wahren nicht mehr stark abweichen soll.

Eine obere Grenze für die Lebensdauer läßt sich gewinnen, wenn man die Menge »Thorium« angeben kann, die in dem Ausgangsmaterial vorhanden ist, aus dem das Radium

<sup>1</sup> E. Rutherford, Jahrb. Rad. u. El., 5, 152 (1908).

<sup>2</sup> F. Soddy, Phil. Mag. (6), 16, 632 (1908); 18, 846 (1909); 20, 340 (1910); F. Soddy und A. F. R. Hitchins, Phil. Mag. (6), 30, 209 (1915).

gewonnen wird. Für die St. Joachimsthaler Pechblendenrückstände, aus denen das im Besitz des Institutes für Radiumforschung der Kaiserlichen Akademie der Wissenschaften befindliche Radium stammt,<sup>1</sup> konnten St. Meyer und V. F. Hess<sup>2</sup> dies einigermaßen durchführen; sie schätzten, daß zu  $11 \cdot 5 \cdot 10^6 g$  Uran etwa  $500 g$  »Thorium« (also alle Thorisotopen) vorhanden sein mochten. Wären diese ganzen  $500 g$  als Io anzusprechen, so wären mit den zu obigen Uranmengen im Gleichgewicht stehenden  $3 \cdot 8 g$  Radium etwa 130mal soviel Ionium vorhanden. Da das Produkt aber sicher größtenteils aus gewöhnlichem Thor besteht, so ist nur ein Bruchteil davon zu nehmen. Die mittlere Lebensdauer wäre also höchstens 130mal so groß als die des Ra, was als obere — gewiß zu hoch gegriffene — Grenze rund  $3 \cdot 10^5$  Jahre lieferte.<sup>3</sup> (B. E. Boltwood hat bei Thoriumextraktionen aus anderem Material statt der Zahl 130 das Verhältnis 230 gefunden, was einem maximalen  $\tau$  von  $5 \cdot 6 \cdot 10^5$  Jahren entspräche, da aber schon nach dem Gesagten die obere Grenze eine niedrigere ist, hat im Hinblick auf das vorliegende Problem diese Angabe keine weitere Bedeutung.)

O. Hönigschmid hat nun die Atomgewichte des reinen Thoriums mit  $232 \cdot 12$  und des Thorium-Ioniums aus St. Joachimsthaler Pechblende mit  $231 \cdot 51$  festgestellt.<sup>4</sup> Das Atomgewicht des reinen Ioniums können wir entweder entsprechend der gut verbürgten Zahl für Radium ( $226 \cdot 0$ ) aus  $226 \cdot 0 + 4 \cdot 0 = 230 \cdot 0$  annehmen oder gemäß den Ergebnissen an Uran, wenn dessen Atomgewicht mit  $238 \cdot 18$  angesetzt wird, aus  $\frac{1}{3}(238 \cdot 18 - 226 \cdot 0) + 226 \cdot 0 = 230 \cdot 06$ . Lassen wir zunächst die genannten Zahlen für Th und für Io-Th als gesichert gelten, so ergibt erstere Annahme ( $230 \cdot 0$ ) für das

<sup>1</sup> L. Haitinger und C. Ulrich, diese Ber., 117, 619 (1908).

<sup>2</sup> St. Meyer und V. F. Hess, Mitt. Ra-Inst., Nr. 17, diese Ber., 121, 626 (1912).

<sup>3</sup> Eine gewisse Unsicherheit lag darin, daß in den  $11 \cdot 5 \cdot 10^6 g$  Uran, die aus dem Ausgangsmaterial zu gewinnen waren, noch unbestimmte Mengen von Ionium-Thorium enthalten gewesen sein dürften (vgl. St. Meyer, Mitt. Ra-Inst., Nr. 48, diese Ber., 122, 1085 [1913]).

<sup>4</sup> O. Hönigschmid, diese Ber., 125 (Mitt. Ra-Inst., Nr. 86 und 87) (1916).

vorliegende Mischprodukt einen Prozentgehalt von 29·2, die zweite (230·06) einen solchen von 30·1% Ionium. Wir können daher mit der Annahme rechnen, daß das fragliche Material neben 70·5% Th 29·5% Io enthält.<sup>1</sup>

Zur Gewinnung der Zahl für die mittlere Lebensdauer des Ioniums bedarf es dann nur noch der Feststellung des Stromäquivalentes der  $\alpha$ -Strahlung einer gegebenen Menge obigen Io-Th-Gemisches in unendlich dünner Schicht.

Zu diesem Zwecke wurden Tropfen einer von der Atomgewichtsbestimmung O. Hönigschmid's stammenden Lösung (1  $cm^3$  enthaltend 2·69 mg Io-Th) auf blankem flachen Platinblech derart eingedampft, daß der eingetrocknete Tropfen etwa 4 bis 10  $cm^2$  bedeckte. Die Blechstücke wurden jeweils im Zentrum einer hochaufgeladenen Halbkugel angebracht und der hervorgerufene Strom galvanometrisch gemessen.<sup>2</sup>

Die verwendete Halbkugel hatte einen Radius von 8  $cm$ ; die Ladung betrug 1400 Volt. Wäre das Präparat punktförmig gewesen, so gälte der Fall, daß die Strahlen- und Feldrichtung zusammenfallen und dann wäre bei obiger Feldstärke von rund 180 Volt/ $cm$  ein Fehlbetrag von etwa 8% auf die Sättigung anzusetzen gewesen; da die strahlende Schicht aber eine gewisse Ausdehnung hatte, so daß zahlreiche  $\alpha$ -Teilchen auch quer zum Felde flogen, so war eine kleinere Korrektur zu nehmen, die auf Grund von Beobachtungen bei verschiedenen Feldstärken mit rund 5% eingeschätzt werden konnte.

Vier Messungsreihen mit eingedampften Io-Th-Mengen von 0·90, 1·29, 1·72, 2·10 mg ergaben im Mittel für die einseitig gerichtete Strahlung unter Berücksichtigung obiger Korrektur das Stromäquivalent von 5·84 stat. Einh. für 1 mg Ionium-Thorium der vorliegenden Zusammensetzung.<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Für Schwankungen der Atomgewichte von Thor 232·1 bis 232·2 und von Io-Th 231·5 bis 231·55 würde der so berechnete Prozentsatz zwischen 26 und 33 liegen.

<sup>2</sup> Eine Beschreibung dieser Anordnung vgl. Mitt. Ra-Inst., Nr. 2, diese Ber., 120, 1188 (1911).

<sup>3</sup> Die Wirkung des vorhandenen Thoriums kann hierbei neben der des Ioniums völlig vernachlässigt werden, da 1 mg Th samt allen seinen Zerfalls-

Um diese Strahlenwirkung mit der des Radiums relationieren zu können, muß noch die Beziehung der  $\alpha$ -Wirkung des Ra zu der des Io bekannt sein. Für Ra kann die Reichweite bei 760 *mm* und  $0^\circ$   $R_0 = 3.13$  *cm* angenommen werden; für Io lagen, wie eingangs erwähnt, der offenbar etwas zu kleine Wert H. Geiger's und J. M. Nuttall's mit  $R_0 = 2.84$  *cm* und der, wie aus dem Folgenden hervorgeht, nur um rund 1% zu hohe von St. Meyer, V. F. Hess und F. Paneth mit  $R_0 = 2.95$  *cm* vor. Bestimmt man die zu jeder  $\alpha$ -Partikel gehörende Ionenzahl  $k$  nach der Formel  $k = 6.76.10^4 R_0^{3/2}$ , so wird  $k_{\text{Ra}} = 1.45.10^5$  und für Reichweiten zwischen 2.90 und 2.95 (Ionium entsprechend)  $k_{\text{Io}} = 1.38.10^5$ . Das gesuchte Verhältnis kann daher zu  $1.45/1.38 = 1.05$  mit hinreichender Genauigkeit festgesetzt werden.

Eine gleiche Anzahl von  $\alpha$ -Partikeln aus Ra, wie diejenige aus Io, die einen Strom von 5.84 stat. Einh. lieferte, würde also einen Strom von  $5.84.1.05 = 6.13$  stat. Einh. unterhalten.

Nun ist 1 *g* Ra in einseitiger  $\alpha$ -Strahlung äquivalent  $1.21.10^6$  stat. Einh., 1 *g* unseres Io-Th-Gemisches nach Obigem  $6.13.10^3$  stat. Einh., entsprechend  $5.07.10^{-3}$  *g* Ra, und wenn 29.5% Io und 70.5% Th vorhanden sind, wird 1 *g* reines Io äquivalent  $17.2.10^{-3}$  *g* Ra.

Setzen wir nunmehr noch die mittlere Lebensdauer des Radiums mit  $\tau_{\text{Ra}} = 2500$  Jahre ein, so wird entsprechend dem angeführten Radiumäquivalent von 1 *g* Io und der Lebensdauer des Ra aus dem Verhältnis  $2500/0.0172$  die mittlere Lebensdauer des Io  $\tau_{\text{Io}} = 1.45.10^5$  Jahre; wollten wir für die mittlere Lebensdauer des Ra nur 2400 Jahre wählen, so würde  $\tau_{\text{Io}} = 1.40.10^5$  Jahre. Die Halbwertszeit ist daher fast genau mit  $T = 10^5$  Jahren anzunehmen.<sup>1</sup>

---

produkten in (unendlich) dünner Schicht nur ein Stromäquivalent von etwa  $0.88.10^{-3}$  stat. Einh. liefert. Vgl. B. Heimann, Mitt. Ra-Inst., Nr. 65, diese Ber., 122, 1369 (1914).

<sup>1</sup> Wäre der Stromwert selbst um 10% unterschätzt worden, was einigermaßen außerhalb der wahrscheinlichen Fehlergrenzen liegt, so würde für  $\tau_{\text{Ra}} = 2500$  Jahre  $\tau_{\text{Io}} = 1.34.10^5$  Jahre. Wären statt 30% Io in unserem

Diese Angaben können als obere Grenzen für die betreffenden Konstanten des Ioniums gelten. Denn einerseits kann der gemessene Stromwert ein wenig unterschätzt werden, da man ja, trotzdem keine merkliche Abhängigkeit von der eingedampften Menge (Schichtdicke) in den angeführten vier Beobachtungsreihen zu konstatieren war, praktisch nicht wirklich unendlich dünne Schichten herstellen kann. Weiters haben zwar E. Haschek und O. Hönigschmid im Spektrum dieses Präparates keine Spuren anderer seltener Erden mehr auffinden können, jedoch würden solche spektroskopisch nicht mehr wahrnehmbare Beimengungen das Atomgewicht herabgesetzt haben und es könnte daher das gefundene Atomgewicht des Io-Th ( $231.51$ ), wenn auch gewiß nur in sehr geringem Maße, sich zu klein ergeben haben, wodurch ein zu hoher Prozentgehalt an Io berechnet worden wäre. In den Fußnoten 1 der beiden vorigen Seiten sind Andeutungen für ziemlich extrem angesetzte Fehlermöglichkeiten gegeben.

Es läßt sich also sagen, daß der Wert für die mittlere Lebensdauer des Ioniums mit großer Wahrscheinlichkeit als sehr nahe an  $1.45 \cdot 10^5$  Jahre gelegen ( $T = 100.000$  Jahre) betrachtet werden darf, wobei dies als obere Grenze anzusehen ist. Da nach F. Soddy, l. c., die mittlere Lebensdauer, auf ganz andere Weise berechnet, einen Minimalwert von  $10^5$  Jahren ergab ( $T = 7 \cdot 10^4$  Jahre), so kann diese wichtige Konstante zum mindesten als in einander sehr nahe gerückte Grenzen eingeeengt gelten.

Aus  $T = 10^5$  Jahren,  $\lambda = 2.2 \cdot 10^{-13} \text{ sec}^{-1}$  berechnet man dann rückschließend aus der eingangs angeführten Beziehung zwischen  $\lambda$  und  $R_0$  letzteres zu  $2.914 \text{ cm}$ , was, da es von dem direkt beobachteten Wert  $2.95 \text{ cm}$  nur weniger abweicht, als dies die Fehler derartiger Reichweitenbestimmungen als möglich erscheinen lassen, dementsprechend auch als bestgesicherte Angabe dieser Reichweite angenommen werden darf.

---

Io-Th-Gemisch nur  $25 \frac{0}{100}$  vorhanden (was ebenfalls jenseits der wahrscheinlichen Fehlergrenzen liegt), so ergäbe sich für das gleiche  $\tau_{Ra}$  und obigen Stromwert  $6.13$  stat. Einh. die mittlere Lebensdauer des Io zu  $1.23 \cdot 10^5$  Jahre.

### Bestimmung des Thoriumgehaltes der St. Joachimsthaler Pechblende und des Mesothorgehaltes der internationalen Radiumstandardpräparate.

Schätzungen des Thoriumgehaltes des fraglichen Uranpecherzes konnten auf Grund verschiedener Analysen wohl schon früher vorgenommen werden,<sup>1</sup> doch blieb speziell die Menge des in den Uranpräparaten noch vorhandenen Betrages unsicher. Die Kenntnis der Zerfallskonstanten des Ioniums ermöglicht nunmehr genauere Angaben.

Zu 1 g Ra gehören nach dem Vorstehenden  $145000/2500$  g Io, gemäß der Beziehung der beiden Lebensdauern, also 58 g Ionium.

Da das Io in der St. Joachimsthaler Pechblende zu 29·5 % neben 70·5 % Thorium vorkommt, gehören zu 1 g Ra aus dieser Pechblende weiters 139 g Thorium.

Insgesamt sind daher an Thorisotopen zu 1 g Ra  $58 + 139 = 197$  oder nahe 200 g vorhanden.

Zu 1 g Uran gehören  $3 \cdot 3 \cdot 10^{-7}$  g Ra, also  $1 \cdot 91 \cdot 10^{-5}$  g Io und  $4 \cdot 59 \cdot 10^{-5}$  g Th (beziehungsweise  $3 \cdot 4 \cdot 10^{-7}$  g Ra, also  $1 \cdot 97 \cdot 10^{-5}$  g Io und  $4 \cdot 73 \cdot 10^{-5}$  g Th);

insgesamt an Thorisotopen demnach  $6 \cdot 5 \cdot 10^{-5}$  g (beziehungsweise  $6 \cdot 7 \cdot 10^{-5}$  g).

Zu den seinerzeit für die Kaiserliche Akademie der Wissenschaften hergestellten Radiumpräparaten, die im Gleichgewicht zu  $11 \cdot 5 \cdot 10^6$  g Uran standen<sup>1</sup> (l. c., p. 628), gehören also 750 (beziehungsweise 770) g Io + Th (chemisch gleich Thor). Es war l. c.<sup>1</sup> eingeschätzt worden, daß außer den mit den Uranpräparaten mitgerissenen Spuren etwa 500 g Thorisotope vorhanden wären; dann wäre anzunehmen, daß in den käuflichen Uransalzen dieser Herkunft zu 1 kg Uran noch etwa 20 mg Thorisotope (Io + Th) oder rund 6 mg Ionium mitgegangen wären.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Vgl. St. Meyer und V. F. Hess, Mitt. Ra-Inst., Nr. 17, diese Ber., 121, 626 (1912).

<sup>2</sup> Beim Umkrystallisieren von Uranyl Nitrat bleiben U X, also auch die anderen Thorisotope, vorwiegend in den Mutterlaugen; es handelt sich bei dieser Angabe also bloß um die mögliche Größenordnung.

Auch betreffs des möglichen Mesothorgehaltes der Radiumstandardpräparate konnte schon früher<sup>1</sup> eine Schätzung durchgeführt werden, welche die Beruhigung gab, daß die Normalpräparate aus St. Joachimsthaler Uranpecherz keinesfalls durch die vorhandenen Spuren an Mesothor merklich beeinflusst werden können; jetzt läßt sich auch diese Angabe quantitativer machen. Nehmen wir als mittlere Lebensdauern für Thor und für Mesothor mit für unsere Betrachtung hinlänglicher Genauigkeit  $2 \cdot 10^{10}$  und rund acht Jahre an, so stehen mit 1 g Thorium rund  $4 \cdot 10^{-10}$  g Mesothor im Gleichgewicht.

Zu 1 g Radium gehören nun im fraglichen Material nach dem Vorstehenden 139 g Thor, also  $5 \cdot 56 \cdot 10^{-8}$  g Mesothor.

Das  $\alpha$ -Strahlenäquivalent der Mesothorprodukte verhält sich zu dem der Radiumprodukte<sup>2</sup> für gleiche Gewichtsmengen wie 420 zu 1; über das  $\gamma$ -Strahlenäquivalent lassen sich keine von der Versuchsanordnung unabhängige Beziehungen aufstellen, doch kann man in roher Annäherung das Verhältnis 600 gelten lassen. Demnach wäre die  $\alpha$ -Wirkung des in 1 g Radium, wie es zu den Standardherstellungen verwendet wurde, enthaltenen Mesothor mit  $2 \cdot 3 \cdot 10^{-5}$  der Radiumwirkung bestimmt und die  $\gamma$ -Wirkung ließe sich mit etwa  $3 \cdot 4 \cdot 10^{-5}$  der Radium- $\gamma$ -Wirkung einschätzen. Die Größenordnung des Einflusses der vorhandenen Mesothorspuren bleibt also weit hinter der zur Zeit möglichen Meßgenauigkeit zurück.

### Zusammenfassung.

Die mittlere Lebensdauer des Ioniums läßt sich aus den Hönigschmid'schen Atomgewichtsbestimmungen im Zusammenhang mit Strahlungsmessungen zu  $1 \cdot 45 \cdot 10^5$  Jahren (die Halbwertszeit mit  $10^5$  Jahren) berechnen. Diese Zahl wird als obere Grenze angesehen, von der der wahre Wert nicht weit abstehen kann.

Die Reichweite der  $\alpha$ -Strahlen des Io bei  $0^\circ$  und 760 mm bestimmt sich daraus zu 2.91 cm (früher beobachtet 2.95 cm).

<sup>1</sup> Vgl. St. Meyer und V. F. Hess, Mitt. Ra-Inst., Nr. 17, diese Ber., 121, 626 (1912).

<sup>2</sup> Vgl. Fußnote Jahrb. Rad. u. El., 11, 445 (1915).

In der St. Joachimsthaler Pechblende gehören zu 1 *g* Uran  $2 \cdot 10^{-5}$  *g* Ionium und  $4 \cdot 6 \cdot 10^{-5}$  *g* Thorium, zusammen  $6 \cdot 6 \cdot 10^{-5}$  *g* Thorisotope. In den käuflichen Uransalzen dieser Herkunft könnten zu 1 *kg* Uran bis etwa 6 *mg* Ionium vorhanden sein.

Zu 1 *g* Radium (Qualität der Standardpräparate) sind  $5 \cdot 6 \cdot 10^{-8}$  *g* Mesothor vorhanden; sowohl die  $\alpha$ - wie die  $\gamma$ -Wirkung dieser Spuren bleiben von der Größenordnung  $10^{-5}$  des Radiums, also unbedingt vernachlässigbar.

---