
ATTI ACCADEMIA NAZIONALE DEI LINCEI
CLASSE SCIENZE FISICHE MATEMATICHE NATURALI
RENDICONTI

FRANCO BARONCELLI

**Che cosa erano i «Transuranici» studiati a Roma nel
1934**

*Atti della Accademia Nazionale dei Lincei. Classe di Scienze Fisiche,
Matematiche e Naturali. Rendiconti, Serie 8, Vol. 78 (1985), n.1-2, p. 29-33.*
Accademia Nazionale dei Lincei

<http://www.bdim.eu/item?id=RLINA_1985_8_78_1-2_29_0>

L'utilizzo e la stampa di questo documento digitale è consentito liberamente per motivi di ricerca e studio. Non è consentito l'utilizzo dello stesso per motivi commerciali. Tutte le copie di questo documento devono riportare questo avvertimento.

*Articolo digitalizzato nel quadro del programma
bdim (Biblioteca Digitale Italiana di Matematica)
SIMAI & UMI*

<http://www.bdim.eu/>

SEZIONE II

(Fisica, chimica, geologia, paleontologia e mineralogia)

Chimica inorganica. — *Che cosa erano i « Transuranici » studiati a Roma nel 1934.* Nota di FRANCO BARONCELLI^(*), presentata^(**) dai Soci U. COLOMBO e E. SEGRÈ.

SUMMARY. — In order to satisfy a historical curiosity, we have bombarded with neutrons uranium and thorium under conditions similar to those used by the Fermi group in 1934, and we have analyzed the products obtained trying to interpret the results obtained 50 years ago.

The activities observed by the Rome group seem to be due to a mixture of Tc^{101} and Mo^{101} for the 13m activity generated in uranium. The activity of thorium was correctly interpreted as Th^{233} . Other activities are due to mixture of fission products as shown in the paper. The original assertion that their atomic number is not between those of lead and uranium is correct.

1. LE ESPERIENZE DEGLI ANNI '30

I lavori originali del gruppo di Roma [1, 2, 3] descrivono la separazione di specie chimiche, coprecipitate da biossido di manganese da soluzioni di uranio irradiato con una sorgente di Rn-Be di 800 m Ci (circa 10^7 n/sec), che esibivano una attività beta con tempo di dimezzamento di 13 e 23 min. Data la limitata attività disponibile, misurata con contatore Geiger con finestra di 0,2 mm di Al ed il fondo dovuto alle attività naturali nell'uranio, non era possibile eseguire il decadimento per tempi superiori ai 20'.

Malgrado questa seria limitazione, gli Autori furono in grado di escludere la presenza di isotopi già noti e di avanzare l'ipotesi della scoperta di elementi « transuranici ».

Dal torio irradiato e separato successivamente come fluoruro, fu riscontrata parimenti una specie chimica con caratteristiche di decadimento di 24 min., accompagnata da altri nuclidi con dimezzamento da 1 min. a tempi superiori.

Come è noto trascorsero cinque anni prima che, attraverso un'intensa attività di ricerca costellata di conferme e smentite [4, 5, 6, 7], Hahn e Strassmann scoprissero la scissione nucleare [8].

A cinquant'anni da quelle storiche esperienze, non è stata ancora chiarita, da una diretta esperienza, la natura delle specie chimiche originariamente iso-

(*) Dipartimento Tecnologie Intersettoriali di Base - DIV-Chimica - ENEA - CRE Casaccia - Roma.

(**) Nella seduta del 26 gennaio 1985.

late a Roma negli anni 1934-1935. Ci sono stati lavori in tal senso [9, 10], ma essi riguardano più le ricerche tedesche [6, 7, 8] e francesi [11] che quelle romane.

Scopo del presente lavoro è pertanto l'interpretazione storica dei risultati degli esperimenti condotti come descritti dagli Autori in [1] e [2] avvalendosi delle tecniche attualmente disponibili.

2. IRRAGGIAMENTO IN REATTORE

È stato utilizzato il Reattore TRIGA Marck II del C.R.E.-Casaccia alla potenza di 10 Kw (10^{10} n sec/cm²) operando su quantità di uranio e torio comprese fra 50-100 mg per 5 min. totali.

La separazione dei precipitati, rispettivamente di biossido di manganese nel caso dell'uranio e di fluoruro di torio è stata realizzata entro 20' dall'irraggiamento, come descritto in [1] e [2].

Una parte dei campioni di torio sono stati irraggiati attraverso uno schermo di Cd di 0,5 mm per ridurre l'effetto del flusso termico.

3. MISURA

Tutti i campioni sono stati sottoposti a spettrometria gamma ad alta risoluzione utilizzando una unità multicanale Canberra 80 a 8 K munita di Ge (Li) coassiale con risoluzione migliore di 1 Kev.

4. RISULTATI

A) Uranio

Sullo spettro gamma del preparato di MnO₂ ottenuto dopo 25' dalla separazione del campione, sono stati riscontrati 17 picchi significativi (45 min. dall'irradiazione) corrispondenti ad 8 nuclidi identificati.

Il decadimento del campione è stato seguito ad intervalli di tempo allo scopo di favorire l'identificazione dei nuclidi in base al loro tempo di dimezzamento.

In Tabella I è riportata la ripartizione dell'attività del precipitato fra i nuclidi identificati dopo 25 min., 245 min. e 7 giorni dalla separazione.

L'identificazione dei nuclidi riportati in Tabella I è stata confermata su di un campione esaminato dopo 7 giorni dall'irraggiamento. I risultati confermano la coprecipitazione del Mo⁹⁹ + Tc^{99m} e dello I¹³¹ e hanno mostrato la presenza del Te¹³² + I¹³², dello I¹³³ e del Nb⁹⁵ di difficile identificazione per la loro minore attività.

Da rilevare che l'attività della coppia Mo⁹⁹ + Tc^{99m} cresce nel tempo dopo la separazione del precipitato.

TABELLA I.

Attività del precipitato di MnO₂ a vari tempi di decadimento.

Nuclide	Tempo dimezz.	Tempi dell'irraggiamento		
		25'	245'	7 g
Tc ¹⁰¹	14,2 m	44%	—	—
Mo ¹⁰¹	14,6 m	32%	—	—
I ¹³⁴	52,6 m	10%	10%	—
Te ¹³¹	25 m	6%	—	—
Sb ¹³¹	23 m	5%	—	—
I ¹³⁵ + Xe ^{135m}	6,61 h (15,6 m)	(*)	74%	—
Mo ⁹⁹ + Tc ^{99m}	66,02 h (6 h)	(*)	11%	90%
Nb ⁹⁷	72 m	(*)	3%	—
I ¹³¹	8,04 g	(*)	(*)	7%
Nb ⁹⁵	34,47 g	(*)	(*)	(*)
I ¹³³	2,08 g	(*)	(*)	(*)
Te ¹³² + I ¹³²	78,2 h (2,3 h)	(*)	(*)	2%
Σ (*)		3%	2%	1%

B) *Torio*

Entrambi i campioni di fluoruro di torio, esaminati per spettrometria gamma dopo 30' dall'irradiazione mostrano una trentina di picchi significativi tutti attribuibili a Th²³³ (22,3 min.) che mascherano i prodotti di fissione.

Nel campione irraggiato con Cd come assorbitore di neutroni termici, la quantità di Th²³³ è di circa la metà del corrispondente campione senza Cd ed in esso è identificabile l'Y⁹⁴ di 19,1 m di tempo di dimezzamento. Soltanto dopo

TABELLA II.

*Attività del precipitato di fluoruro di torio a vari tempi di decadimento
(campione senza rivestimento di Cd).*

Nuclide	Tempi dell'irraggiamento			
	1 h 30 m	3 h	6 h	1 giorno
Th ²³³ 22,3 m	99,1%	84,5%	—	—
Pa ²³³ 24,7 g	0,6%	13,8%	92,5%	99,3%
Y ⁹² 3,5 h	0,2%	0,5%	1,6%	—
La ¹⁴² 1,5 h	0,04%	0,4%	0,7%	—
Sr ⁹² 2,7 h	0,03%	0,3%	2,4%	—
Sr ⁹¹ + Y ^{91m} 9,6h (50m)	0,02%	0,4%	2,8%	0,7%
Attività totale dis/sec	5,1.10 ⁵	3,10 ⁴	4.4.10 ³	3,7.10 ³

TABELLA III.

*Attività del precipitato di fluoruro di torio a vari tempi di decadimento.
Campione con rivestimento di Cadmio*

Nuclide	Tempi dell'irraggiamento			
	1 h 30 m	3 h	6 h	1 giorno
Th ²³³ 22,3 m	99,3%	91,4%	—	—
Pa ²³³ 24,7 g	0,3%	5,3%	79,5%	98,3%
Y ⁹² 3,5 h	0,2%	0,8%	6,7%	—
La ¹⁴² 1,5 h	0,1%	0,8%	2,8%	—
Sr ⁹² 2,7 h	0,07%	1,0%	5,8%	—
Sr ⁹¹ +Y ^{91m} 9,6h (50m)	0,03%	0,8%	5,0%	1,6%
Attività totale dis/sec	3,2.10 ⁵	1,8.10 ⁴	1,6.10 ³	1,2.10 ³

1,5 ore di decadimento gli spettri sono decifrabili e sono chiaramente identificabili La¹⁴², Y⁹², Sr⁹² + Y^{91m}.

La situazione dopo il decadimento parziale e totale del Th²³³ è riportata in Tabella II e Tabella III a tempi crescenti calcolati dall'irraggiamento dei campioni.

Dal confronto delle Tabelle II e III si può affermare che i contributi all'attività totale dovuti ai prodotti di fissione sono molto bassi specie a tempi di decadimento brevi.

5. DISCUSSIONE

La precipitazione del biossido di manganese in seno a soluzioni di uranio irradiato trascina il Nb e Mo (del gruppo leggero dei prodotti di fissione) e Te, Sb e I (del gruppo pesante).

Poiché il Tc non è precipitato direttamente, la presenza di Tc¹⁰¹ dopo 25' dalla separazione è attribuibile al rapido stabilirsi di un equilibrio transiente di decadimento del Mo¹⁰¹. Tale ipotesi è convalidata sia dal comportamento della coppia Mo⁹⁹ + Tc^{99m}, la cui attività cresce dopo la separazione del precipitato, che dalle note proprietà chimiche del tecnezio che come ione pertecnato non precipita dalle sue soluzioni in assenza di energici agenti riducenti.

Le coprecipitazioni del Nb, del Mo e del Te su MnO₂, già riscontrate da Glendinin e Gest [12, 13] nonché di quelle dell'antimonio e dello iodio, messe in evidenza dal presente lavoro, chiariscono pertanto le osservazioni sperimentali riportate dal 1935 al 1939, che attribuivano alle specie chimiche isolate tempi di dimezzamento di 13; 23 e maggiore ai 100 min.

Difatti il Mo¹⁰¹ ha un tempo di dimezzamento 14,6 min., l'equilibrio transiente dell'attività totale del Mo¹⁰¹ simula un tempo di 23 min. e il Te¹³¹ e Sb¹³¹ hanno rispettivamente tempi di dimezzamento di 25 e 23 min. Il contributo

della miscela di nuclidi a vita più lunga simula un « dimezzamento » che assume valori variabili a secondo del tempo di decadimento e di irradiazione subiti.

Per quanto riguarda l'individuazione delle specie chimiche derivanti dall'irraggiamento neutronico del torio recuperato come fluoruro, le osservazioni sperimentali confermano l'ipotesi che gli Autori avanzarono negli anni trenta della formazione dell'isotopo del torio di 24 min. Th^{233} e infatti l'attività riscontrabile a brevi tempi dall'irraggiamento è da imputare esclusivamente a Th^{233} di 22,3 min. di tempo di dimezzamento.

La sua abbondanza relativa, anche a tre ore dall'irraggiamento, conferma che, comunque si proceda ad una precipitazione del torio dopo l'irraggiamento, sia come fluoruro sia come carbonato o fosfato o perossido, (come in effetti gli Autori riscontrano sperimentalmente), non si modificano le caratteristiche dell'attività rilevata.

Le condizioni per la separazione chimica del torio dopo l'irraggiamento influenzano la separazione di prodotti di fissione, tuttavia la bassa attività di quest'ultimi, che si formano esclusivamente per fissione indotta da neutroni veloci, non poteva essere messa in evidenza con i mezzi strumentali dell'epoca.

Le attività segnalate a vita molto breve, oltre a quella riscontrata di 24 min. possono essere attribuite, alla luce dei risultati sperimentali, a isotopi dei prodotti di fissione di natura chimica affine a quelli riscontrati nel presente lavoro. In particolare, nel caso di precipitazioni mediante acido fluoridrico, a Y^{95} , Y^{96} , Sr^{94} , Ba^{142} , Ba^{143} , La^{142} , e La^{144} i cui tempi di dimezzamento vanno da 1 a 10 min.

BIBLIOGRAFIA

- [1] E. FERMI (1934) - « Nature », 133, 898.
- [2] O. D'Agostino e E. SEGRÉ (1935) - « Gazz. Chimica Italiana », 65, 1088.
- [3] E. FERMI, E. AMALDI, O. D'AGOSTINO, F. RASETTI e E. SEGRÉ (1934) - « Proc. Roy. Soc. », Serie A, 146 483; (1935) - *Ibid.*, Serie A, 149, 522.
- [4] O. HAHN e L. MEITNER (1935) - « Naturw. », 23, 320.
- [5] I. NODDACK (1934) - « Zeit. F. Ang. Chem. », 37, 653.
- [6] O. HAHN, L. MEITNER e F. STRASSMAN (1937) - « Ber. », 70, 1974.
- [7] O. HAHN, L. MEITNER e F. STRASSMAN (1938) - « Naturw. », 26, 475.
- [8] O. HAHN e F. STRASSMANN (1939) - « Naturw. », 27, 11, 89.
- [9] G.N. WALTON (1961) - « Quarterly Reviews Chem. Soc. », London, 15, 71.
- [10] H. MENKE e G. HERRMANN (1971) - « Radioch. Acta », 16, 119.
- [11] J. CURIE e P. SAVITCH (1938) - « Journal de Physique », 9, 355.
- [12] H. GEST e L.E. GLENDENIN (1951) - « Radiochemical Studies: The Fission Product » C.D. Coryell, N. Sugarman, Ed. McGraw-Hill, Book 1, paper 14.
- [13] *Ibid.* - Book 3, paper 254.