

REPUBLICA ARGENTINA

PUBLICACIONES

DE LA

COMISION NACIONAL DE LA ENERGIA ATOMICA

SERIE QUIMICA

VOL. I — N° 3

DOS NUEVOS ISOTOPOS DE RUTENIO Y RODIO

Por G. B. BARO, P. REY y W. SEELMANN-EGGEBERT



BUENOS AIRES

1955

Imprenta y Casa Editora CONI, Perú 684, Buenos Aires

1136

DOS NUEVOS ISOTOPOS DE RUTENIO Y RODIO

POR G. B. BARO, P. REY Y W. SEELMANN-EGGEBERT

De la Comisión Nacional de la Energía Atómica

SUMMARY

A new series of mass number 108 (110) was found. The half life of Ru-108 is nearly the same as that of the Ru-107 with a mean value of 4 minutes for both of them. The half life of Rh-108 is 18 ± 2 seconds; its maximum β energy is about 4,5 MeV. It also emits γ rays of several energies, so that the total disintegration energy is likely to be higher than 4,5 MeV. The Ru-107 was produced by a Pd-110 (n, α) Ru-107 reaction, which confirms the mass number of the mother substance of 23 minutes rhodium as 107. The Ru-107 emits β rays with maximum energy of about 4 MeV and γ rays as well. The Ru-105 was found too, by a (n, α) reaction. The half life of Rh-107 was found to be $23 \pm 0,5$ minutes, its maximum β energy being of 1,25 MeV. The Laboratories of Nuclear Spectroscopy of the Comisión Nacional de la Energía Atómica found several γ lines. One line of 315 Kev coincides probably with the 1,25 MeV β particles, so that the total Q-value is about 1,5 MeV. No Ru isotopes were found among fission products with half lives between 1,5 and 4 minutes.

INTRODUCCIÓN

El objeto del presente trabajo fué hallar los isóbaros de rutenio y rodio con un número de masa mayor que 107 — todavía desconocidos — puesto que no existen razones teóricas que impidan su formación como productos de fisión.

Su energía de desintegración se calcula aplicando la fórmula del modelo de la gota (1), con ciertas correcciones para esta zona en concordancia con las curvas de K. Way (2), de manera que hay que suponer períodos cortos para los isóbaros considerados (fig. 1).

NOTACION

	A	Z	n	A: N ^o de masa
■)	par	impar	impar	
▲)	par	par	par	Z: N ^o atómico
●)	impar	{ par	{ impar	
○)		{ impar	{ par	
o)	Datos experimentales			n: N ^o de neutrones

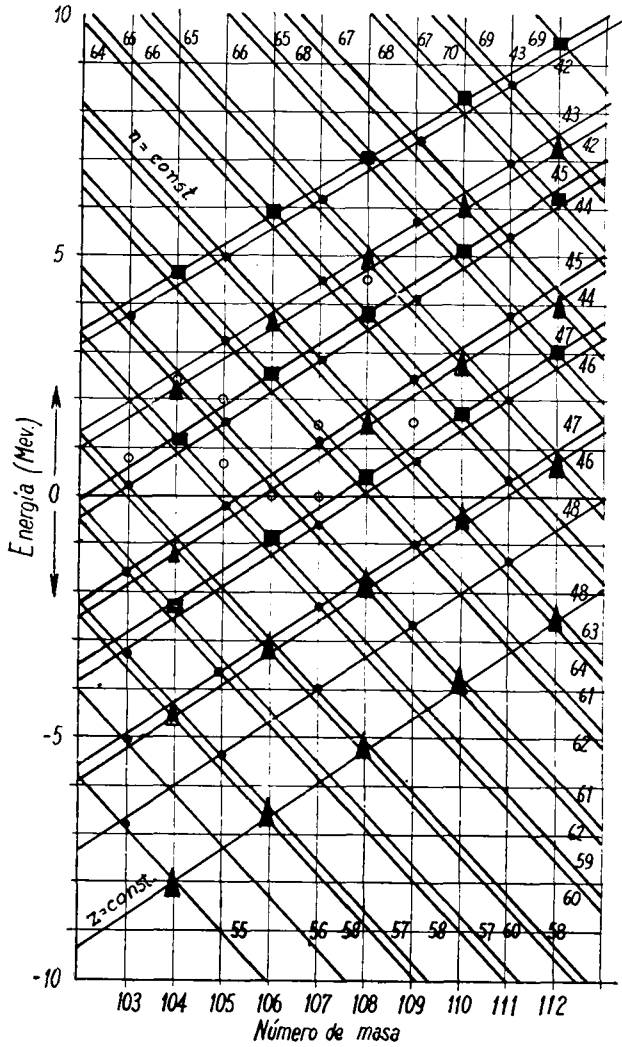


Fig. 1. — Energías de desintegración calculadas aplicando la fórmula del modelo de la gota, para los isótopos de Mo, Te, Ru, Rh, Pd, Ag, y Cd comprendidos entre los números de masa 103 y 112 inclusive.

PARTE EXPERIMENTAL

Primeramente se irradió óxido de uranio con neutrones rápidos y térmicos o directamente con deuterones de 28 Mev¹.

Los tiempos de irradiación fueron de 10 minutos utilizando el generador en cascadas y de 4 minutos empleando el sincrociclotrón.

El material irradiado se disolvió en un mínimo de ácido nítrico que contenía 10 mg. de ión rutenio. Se calentó la solución obtenida en un baloncito de destilación con tubo de desprendimiento en U (ajustable por medio de juntas esmeriladas), junto con 30-50 ml. de ácido sulfúrico al 25 % y solución saturada de bromato, persulfato o bismutato de potasio sólidos. Se destiló el tetróxido de rutenio formado recibíendoselo en ácido clorhídrico concentrado. Se hirvió la solución clorhídica de rutenio obtenida, para eliminar el bromo que destiló junto con el tetróxido.

Se añadieron cloruros y bromuros como portadores de retención de los halógenos que pudieran haber quedado en el destilado y que no fueron eliminados por calentamiento.

Se diluyó la solución con agua hirviente hasta 5-10 % de acidez y se precipitó sulfuro de rutenio con ácido sulfhídrico en caliente; se filtró sobre membrana coloidal de 2 segundos empleando vacío y se introdujo la misma con el precipitado dentro de otro balón similar al primero. Se repitió la operación, obteniéndose finalmente un sulfuro de rutenio libre de actividades extrañas. (Fracción rutenio).

Con este procedimiento logramos comenzar a medir la fracción rutenio entre 5 y 6 minutos después del fin de irradiación.

Cuando se quisieron medir los isótopos del rodio formados por la desintegración de rutenio, se llevó la solución clorhídica de la segunda destilación a débil acidez con solución saturada de hidróxido de potasio; se añadieron 20 mg. de ion rodio como portador y se precipitó rodinitrito de potasio en presencia de cloruro de potasio llevando a ebullición incipiente.

¹ Las irradiaciones fueron realizadas mediante un generador en cascadas Philips de 1,4 MeV y 180 microamperes, provisto de un «target» de litio metálico o con el sincrociclotrón Philips, que produce deuterones de 28 MeV. En este último también se utilizó la reacción $Be(d, n)$, a fin de poder irradiar con neutrones. El sincrociclotrón produce una corriente máxima de deuterones de 23 microamperes aproximadamente.

Se disolvió este precipitado previo lavado con solución acuoso-alcóhólica débilmente clorhídrica de cloruro de potasio saturado en 2-3 ml. de ácido clorhídrico al 25 % en caliente y se agregaron iones rutenio y paladio como portadores de retención, precipitándose el rodio como antes. (Fracción rodio.)

El análisis de la curva de desintegración de la fracción rodio dió períodos de 23 minutos y 36,5 horas, que corresponden respectivamente al Rh-107 y al Rh-105 (fig. 2).

Comparando el valor hallado por nosotros para el período del Rh-107 con los obtenidos por L. E. Glendenin (3) y H. J. Born y W. Seelmann-Eggebert (4), el nuestro resulta algo menor. La energía máxima se fijó — usando métodos de absorción — en 1,25 MeV. (alcance: 540 mg/cm² de aluminio), resultado coincidente con el obtenido por H. J. Born y W. Seelmann-Eggebert (4) (fig. 3). Los Laboratorios de de Espectroscopia Nuclear de la C.N.E.A. están midiendo actualmente el espectro γ y han encontrado una línea principal de 315 kev. Probablemente existen más líneas débiles con energías mayores que la mencionada.

El análisis de la curva de desintegración de la fracción rutenio dió períodos de 4 minutos, 23 minutos, 4,5 horas y 36,5 horas (fig. 4).

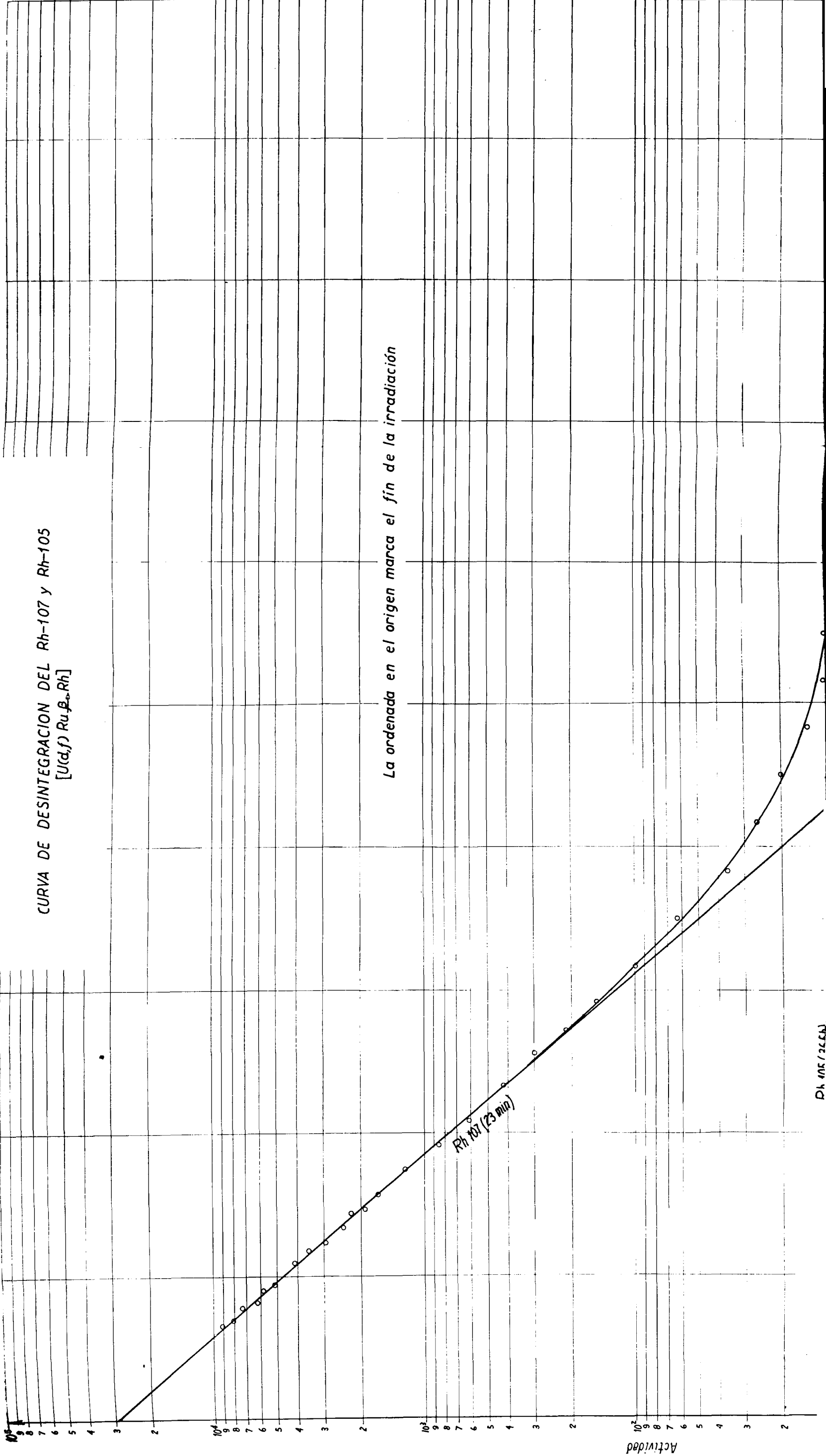
Comparando las actividades de rutenio de 4 minutos y rodio de 23 minutos, extrapoladas al momento de la segunda destilación, se encontró una relación de actividades semejante a la hallada por L. E. Glendenin (3), es decir, Ru 4 min/Rh 23 min 11/1, mientras que la relación de actividades extrapolada al último tiempo de separación daría en caso de una relación genética simple madre/hija una proporción de 5/1.

Para encontrar una explicación al comportamiento anómalo de la relación de actividades citada arriba, se trató de producir la serie de isóbaros 107 utilizando la reacción Pd-110 (n, z) Ru-107. Para ello se irradió 1 gramo de paladio en polvo durante 6 minutos con neutrones rápidos obtenidos por la reacción Be (d, n) en el sincrociclotrón.

Se disolvió el paladio en un mínimo de ácido nítrico que contenía 10 mg. de ion rutenio como portador y se destiló el tetróxido de rutenio como describimos anteriormente, pero utilizando ahora una mezcla de persulfato y bromato de potasio, que tiene la ventaja de reducir considerablemente la formación de espuma que se produce al calentar en presencia de paladio. El resto de la marcha se prosiguió según se indica en Fracción Rutenio.

El análisis de la curva de desintegración de la fracción obtenida

CURVA DE DESINTEGRACION DEL Rh-107 y Rh-105
 [U(d,f) Ru β_s Rh]



CURVA DE ABSORCION DEL Rh-107

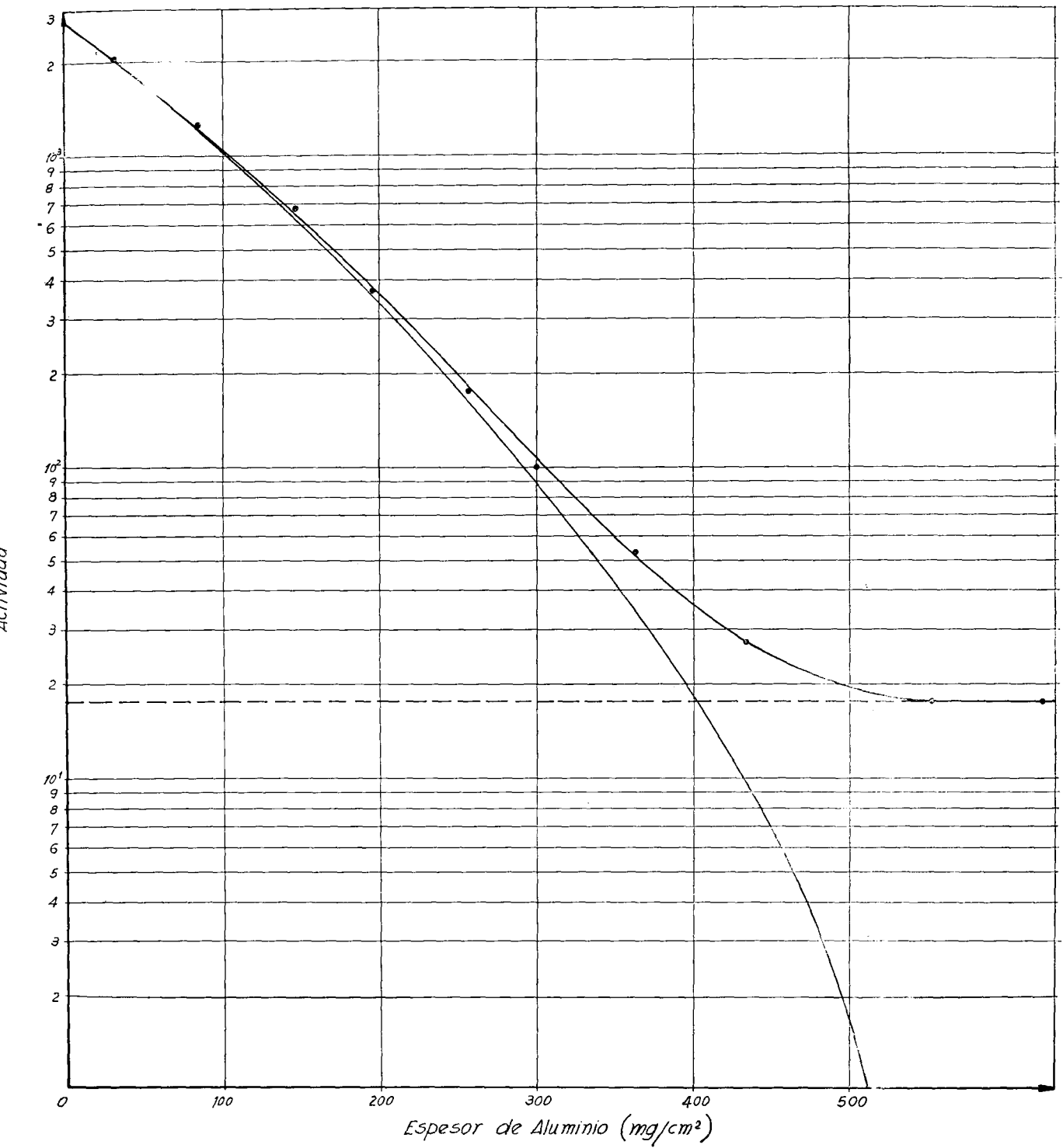


Figura 3

CURVA DE DESINTEGRACION DEL Ru-107+Ru-108, Rh-107, Ru-105 y Rh-105
 [(U(α,f) Ru→Rh).- Medida con tubo campana de 2mg cm de pared de mica.- La ordenada de puntos y rayas marca el tiempo medio de destilación.

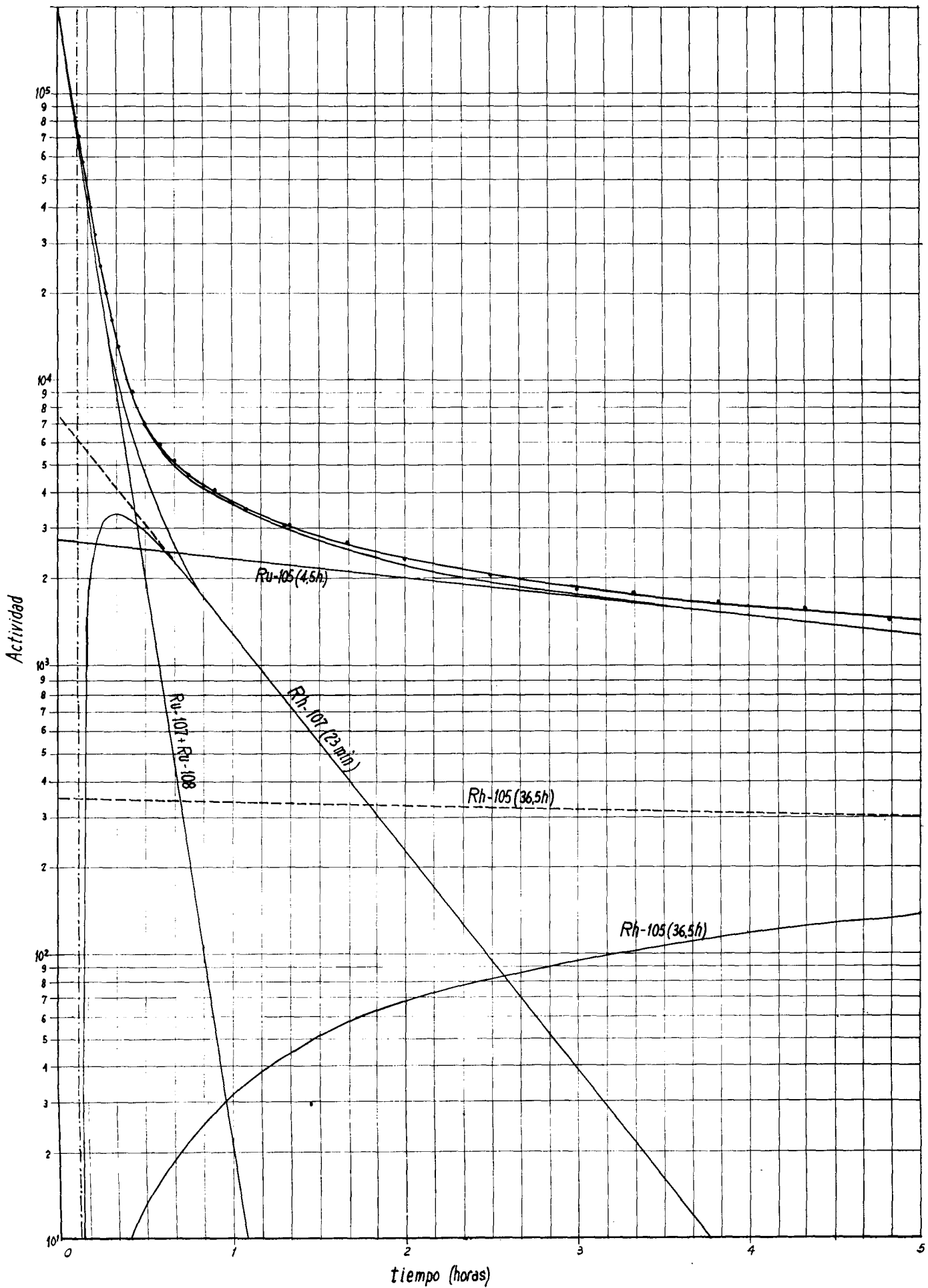


Figura 4

CURVA DE DESINTEGRACION DE Ru-107, Rh-107, Ru-105 y Rh-105 [Pd(n, α) Ru \rightarrow Rh]
 Medida con tubo campana de 2 mg/cm² de pared de mica.- La ordenada de puntos y rayas marca el tiempo medio de destilación.-

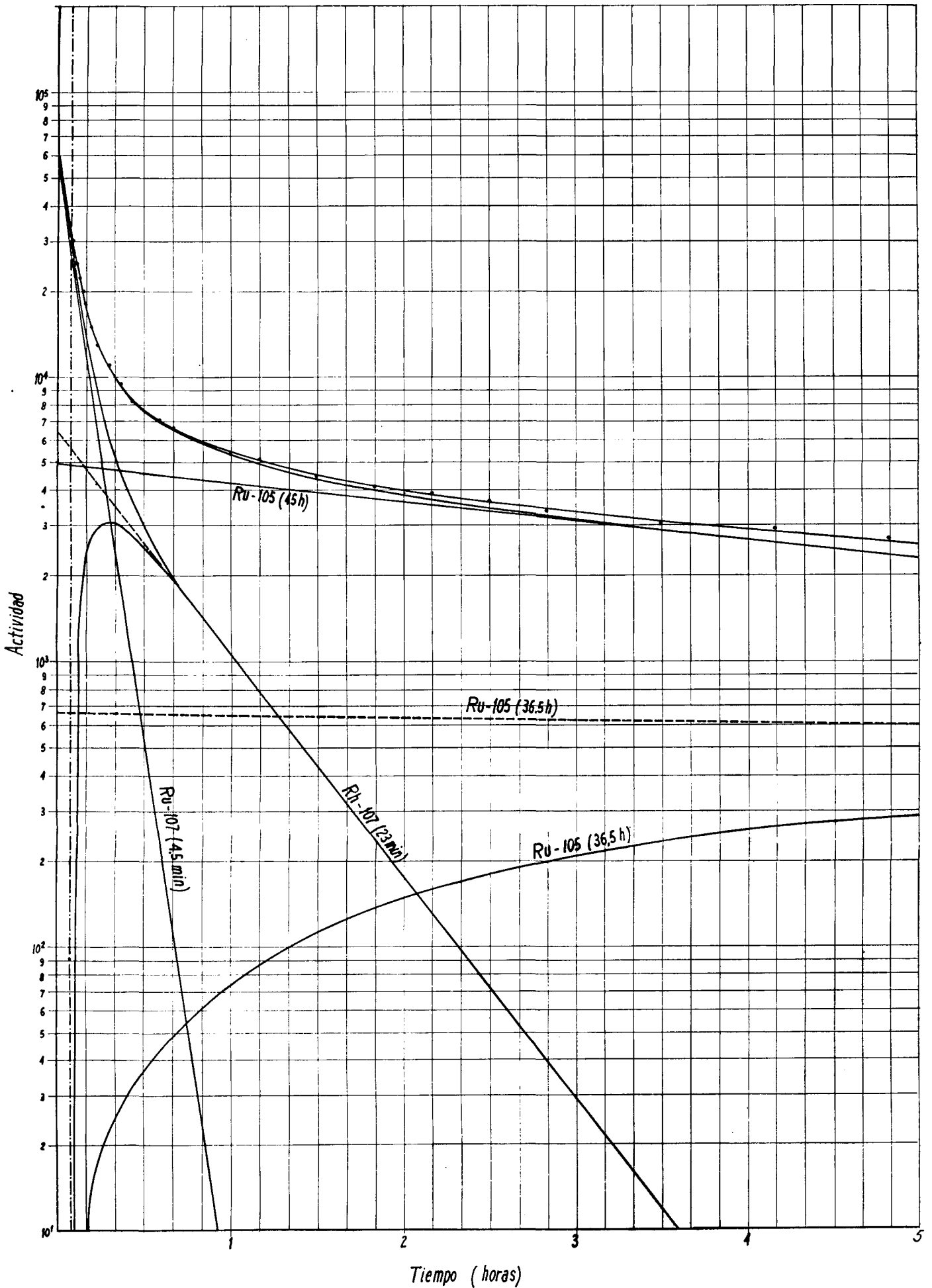


Figura 5

por la reacción $\text{Pd}(n, \alpha)$ dió períodos de 4 minutos, 23 minutos, 4,5 horas y 36,5 horas. La relación de actividades entre el rutenio de 4 minutos y el rodio de 23 minutos resultó ahora conforme con la calculada, o sea, de 5/1 (fig. 5).

Quedó así confirmado el número de masa de la serie de isóbaros

$$107; \text{Ru} \xrightarrow{4 \text{ min}} \text{Rh} \xrightarrow{23 \text{ min}} \text{Pd} \xrightarrow{7 \times 10^6 \text{ años}} \text{Ag} \text{ (estable)}.$$

El Ru-105 se forma en esta reacción en mayor proporción que el Ru-107. Esto no se explicaría suficientemente por la abundancia relativa de Pd-108 y Pd. 110 (26,8 % y 13,5 %); es necesario suponer también que las secciones eficaces respecto del espectro de neutrones utilizado son distintas, hecho que se explicaría por la gran diferencia entre las energías de desintegración de las dos series de isóbaros (5,5 MeV para el número 105 y 2,58 MeV para el número 107).

La energía máxima del Ru-107 logrado por la reacción $\text{Pd}(n, \alpha)$ fué determinada por el método de absorción. El valor calculado en base a un semiespesor de 950 micrones de aluminio (256,5 mg/cm²), fué de 4 MeV aproximadamente.

La discrepancia entre el rutenio de 4 minutos hallado por fisión y el producido por $\text{Pd}(n, \alpha)$ hizo pensar en la existencia de dos isótopos de período muy parecido. En este caso debieran formarse dos hijas activas; una de ellas resultó ser el Rh-107 y la otra no se conocía.

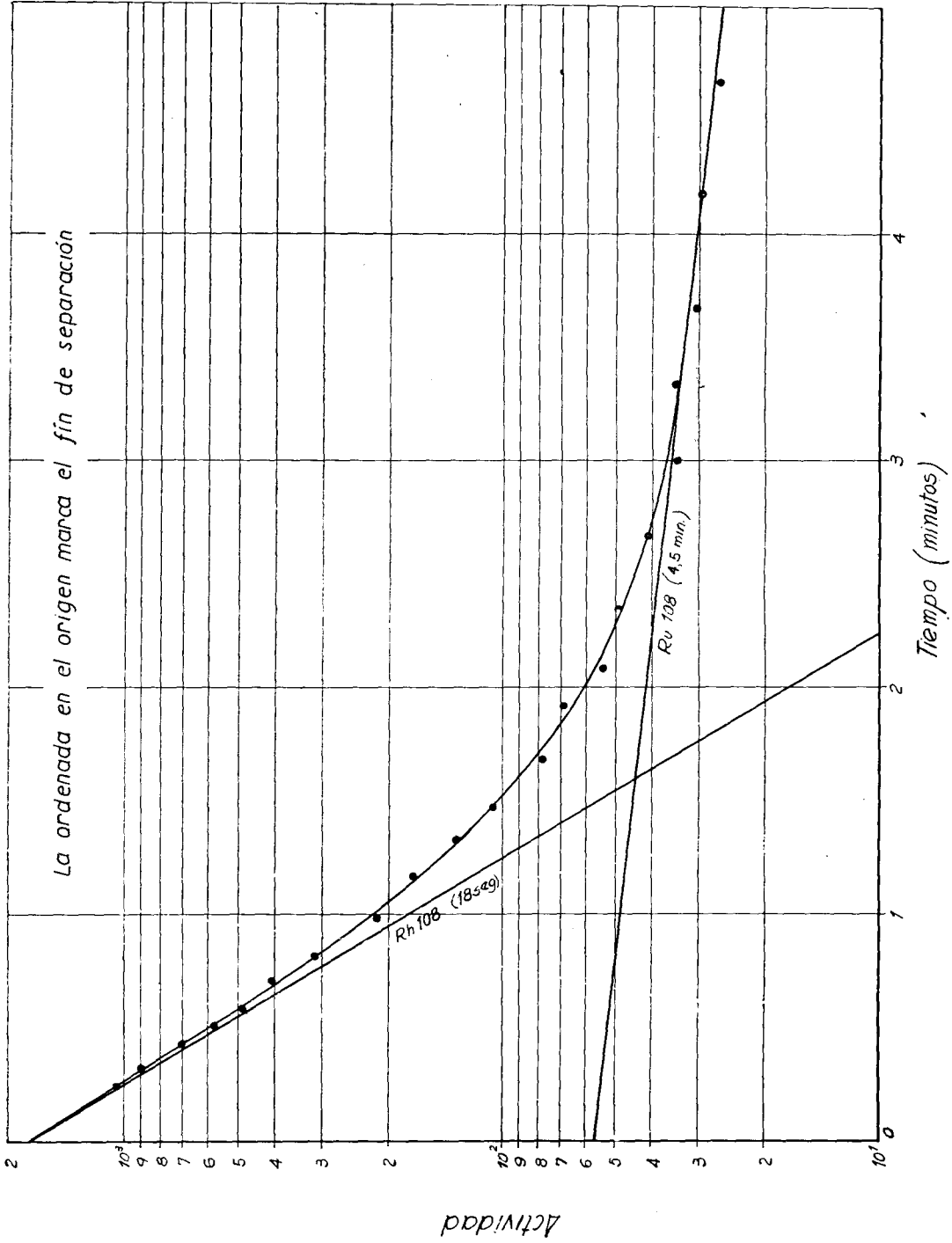
Se trató entonces de encontrar otro isótopo del rodio, cuyo período fuera menor que 1 minuto o muy largo (esto último, en realidad muy improbable para un Rh-108 o mayor), pues en caso contrario se hubiera detectado fácilmente.

Para ello se precipitó de la solución de rutenio « corto » de fisión rodinitrito de potasio en presencia de 20 mg de ion rodio llevando a ebullición incipiente. Debido a la corta vida del rodio buscado, no se pudo llevar a cabo una redisolución y precipitación del mismo, de manera que quedó impurificado con una actividad de rutenio del 1 %. Como tiempo cero de separación se tomó el promedio entre principio y fin de filtración del rodinitrito. En esta forma se pudo comenzar la medición de la fracción rodio unos 10 segundos después de separada del rutenio.

Hemos encontrado a partir de la solución de rutenio « corto » de fisión, un nuevo isótopo del rodio, cuyo período es de 18 ± 2 segundos (fig. 6).

Precipitando rodinitrito de potasio a intervalos de 4 minutos se separaron de la fracción rutenio el rodio de 18 segundos y el de 23

CURVA DE DESINTEGRACION DEL Rh-108



minutos. Los rayos β del rodio de 23 minutos que se encontraban con los del de 18 segundos, fueron detenidos interponiendo una chapa de 1800 micrones de aluminio.

Uniendo los puntos correspondientes a las distintas actividades de rodio de 18 segundos obtenidas por separaciones sucesivas y extrapoladas al instante de separación, resultó una curva de desintegración de aproximadamente 4,5 minutos, que es la del rutenio madre de dicho rodio. Se dejó desintegrar el rodio de 18 segundos en los precipitados separados cada 4 minutos y se midió el rodio de 23 minutos restante. Con los datos obtenidos se trazó otra curva en la misma forma que anteriormente, la cual corresponde a la de la madre del rodio de 23 minutos y que resultó ser de 4 minutos de período (fig. 7).

Se calculó el rendimiento relativo de fisión entre los dos isótopos de rutenio de período aproximado de 4 minutos, en base a las actividades de las hijas separadas después de 4 minutos de espera (fig. 7). El rendimiento obtenido fué aproximadamente 1 : 1, lo que nos indicaría que también el rutenio madre del rodio de 18 segundos es un producto directo de fisión y que sus números de masa no son muy diferentes.

Con el método de absorción se ha encontrado que el rodio de 18 segundos separado del rutenio emite rayos β con una energía de 4,5 MeV aproximadamente. Debido a la cortísima vida del rodio de 18 segundos se midieron varios preparados con chapa de 2000 micrones de aluminio, para detener los rayos β del rodio de 23 minutos y al mismo tiempo obtener un factor de transformación que relaciona los preparados entre sí. Además, se midió cada preparado con la chapa de 2000 micrones más otra del juego (diferentes para cada preparado) a fin de medir la curva de absorción.

Interponiendo una chapa de 2000 micrones de aluminio con un contador de centelleo, se encontraron γ de distintas energías.

Con el objeto de decidir si el número de la nueva serie era o no 109 fué necesario separar paladio del rutenio. Para ello se dejó crecer aquél durante una hora en el rutenio « corto » y se agregó Pd como portador. La solución clorhídrica de rutenio se evaporó a pequeño volumen calentando, se diluyó con agua, se neutralizó con hidróxido de amonio y se llevó a débil acidez con ácido clorhídrico al 5 %. Se añadieron iones rutenio y rodio como portadores de retención y luego 5 ml de dimetilglioxima al 1 % en solución alcohólica; se calentó por unos minutos y se dejó reposar hasta enfriamiento a temperatura

ordinaria. Se filtró por membrana coloidal de 2 segundos empleando vacío y se lavó con ácido clorhídrico al 3 %. Se repitió el proceso dos veces para asegurar un precipitado libre de actividades extrañas.

Se comprobó que la nueva serie encontrada no tiene número de masa 109, ya que no fué posible hallar el Pd-109 de 13,4 horas a partir de una actividad resultante de la mezcla de actividades de los rutenios de aproximadamente 4 minutos, a pesar de que la actividad total de rutenio era suficientemente grande como para dar unos centenares de cuentas por minuto de un isótopo de 13,4 horas que se encontrara en relación genética con la mitad de las actividades de la mezcla de rutenio de 4 minutos.

MEDICIONES

Los preparados se midieron con tubo campana de 2 mg/cm² de pared de mica o con uno de 27-30 mg/cm² de pared de vidrio o bien con un contador de centelleo provisto de discriminador simple.

En los casos en que la actividad era débil se midió un preparado con dos tubos conectados a dos escalímetros para poder obtener al mismo tiempo una curva de desintegración con hojas de absorción y otra sin ellas.

También se usó un integrador modificado por K. Fränz (5), en el que se leía directamente la actividad cuando era necesario hacer lecturas rápidas. En casos de tener colas extensas se conectó el integrador a un amplificador logarítmico unido a un grafo-registrador, con lo cual se obtuvo un registro gráfico de las curvas de desintegración.

ASIGNACIÓN DEL NÚMERO DE MASA

El número de masa del rodio de 18 segundos no puede ser menor que 105, ya que es un producto de fisión normal y emite negatrones de alta energía. Los números de masa 105, 106 y 107 están ya ocupados y es casi imposible que se trate de un isómero del Rh-107, pues posee un valor Q mucho más grande. También son improbables los números de masa 105 y 106, ya que no se forman a partir de un rutenio de 4 minutos. Por otra parte, no fué posible separar el Ph-109 de dicho rutenio y por lo tanto dicho número de masa queda descartado. Los números 111 y mayores se eliminan también ya que el rodio de 18 segundos no desintegra en los nucleídos activos correspon-

dientes. De manera que resta como más probable el número 108. El número 110 es también posible, aunque en menor escala, pues su valor Q calculado según la teoría del modelo de la gota es mayor que el calculado para el número 108 y por eso su período debe ser más corto. Por otra parte, el valor obtenido para el número 108 coincide bastante bien con la energía de desintegración del rodio de 18 segundos.

BIBLIOGRAFIA

- (1) N. METROPOLIS Y G. REITWIESNER, Los Alamos scientific laboratory, NP 1980 (1950).
- (2) K. WAY Y M. WOOD, *Phys. Rev.*, *94*, 119 (1954).
- (3) L. E. GLENDENIN, Paper 115, NNES Radiochemical studies: The fission products.
- (4) H. J. BORN Y W. SEELMANN-EGGEBERT, *Naturwiss.*, *31*, 420 (1943).
- (5) K. FRÄNZ Y A. MARCÓ DEL PONT, *Rev. Telegr., Buenos Aires*, *495*, 767 (1953).