

02.55.02

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1955

REPUBLICA ARGENTINA

**PUBLICACIONES**  
DE LA  
**COMISION NACIONAL DE LA ENERGIA ATOMICA**  
SERIE QUIMICA  
VOL. I — Nº 4

**UN ISOMERO DEL RODIO-106**

POR

G. B. BARO, W. SEELMANN-EGGEBERT e I. ZABALA



**BUENOS AIRES**

1955

REPUBLICA ARGENTINA

---

PUBLICACIONES

DE LA

COMISION NACIONAL DE LA ENERGIA ATOMICA

SERIE QUIMICA

VOL. I — N° 4

# UN ISOMERO DEL RODIO-106

POR

G. B. BARO, W. SEELMANN-EGGEBERT e I. ZABALA



BUENOS AIRES

1955

**Imprenta y Casa Editora CONI, Perú 684, Buenos Aires**

# UN ISOMERO DEL RODIO-106

POR G. B. BARO, W. SEELMANN-EGGEBERT E I. ZABA

De la Comisión Nacional de la Energía Atómica

LA

## SUMMARY

A new rhodium activity of 117 minutes half-life was found by (n, p) (n,  $\alpha$ ) and (d,  $\alpha$ ) reaction but not as a normal fission daughter of Ru-106. The maximum energy of the negatrons emitted is 0,7 Mev. The total disintegration energy Q is about 3,6 Mev. The new rhodium activity is 106, probably a higher isomer of the Rh-106. The newly found Rh-106<sup>m</sup> does not disintegrate by  $\beta$  transition to the normal state of Rh-106. It emits the same gamma rays as Rh-106 and the Ag-106 as well as other gamma lines.

Se estudiaron los isótopos con exceso de neutrones por la acción de deuterones y neutrones sobre platino y sobre plata. Podía esperarse la formación de los isótopos de números de masa 108 y 110, e isómeros de los isótopos de números de masa 102, 106, 108, 110. La posibilidad de que se forme el Rh-109 por la reacción (n, p) y el Rh-107 por las reacciones (n, pn) y (d,  $\alpha$  n).

Cabía suponer que los isótopos 108, 109 y 110 presentarían períodos cortos, ya que les corresponden valores altos de acuerdo al modelo nuclear de la energía de enlace: 3,8; 2,5 y 5,0 MeV.

Todos estos nucleídos pueden formarse por fisión, pero por la dificultad de separar los productos de fisión pareció más conveniente utilizar las reacciones (n, p) y (n,  $\alpha$ ) para su formación.

Junto con los nucleídos mencionados se forman los ya conocidos Rh-102, 104, 105, 107 y otros con número de masa menor (d,  $\alpha$  xn),

which is formed as a product or as a fission product. The maximum energy of the negatrons emitted is 0,7 Mev. The total disintegration energy Q is about 3,6 Mev. The new rhodium activity is 106, probably a higher isomer of the Rh-106. The newly found Rh-106<sup>m</sup> does not disintegrate by  $\beta$  transition to the normal state of Rh-106. It emits the same gamma rays (<1%) as Rh-106 and the Ag-106 as well as other gamma lines.

iones, formados por fisión y de neutrones sobre platino y sobre plata. Podía esperarse la formación de los isótopos desconocidos de los números de masa 102, 106, 108, 110. La posibilidad de que se forme el Rh-109 por la reacción (n, p) y del Rh-107 por las reacciones (n, pn) y (d,  $\alpha$  n).

Los isótopos 108, 109 y 110 presentarían períodos cortos, ya que les corresponden valores altos de Q, que calculados con el modelo nuclear de la energía de enlace: 3,8; 2,5 y 5,0 MeV.

Todos estos nucleídos pueden formarse por fisión, pero por la dificultad de separación rápida de rodio de los productos de fisión pareció más conveniente utilizar las reacciones (n, p) y (n,  $\alpha$ ) para su formación.

Junto con los nucleídos mencionados, se forman los ya conocidos Rh-102, 104, 105, 107 y otros con número de masa menor (d,  $\alpha$  xn),

( $x: 1,2,3$ ). Las actividades de todos estos en conjunto es muy baja.

Para encontrar los nucleídos desconocidos ya mencionados se estudiaron primeramente las actividades de rodio con exceso de neutrones de períodos mayores de 15 minutos.

#### REACCIONES CON NEUTRONES

Se utilizaron los neutrones producidos por la reacción de deuterones de 1,2 MeV sobre litio metálico. La corriente de deuterones del acelerador en cascadas utilizado fué de 200  $\mu$  A aproximadamente. La sustancia se irradió dentro de una cápsula de cadmio de 0,1 mm. de espesor, en el centro y muy cerca del blanco.

Se dispuso luego de un sinrociclotrón que produce deuterones de 28 MeV, con una corriente iónica de hasta 25  $\mu$  A, y pudo obtenerse un flujo más intenso de neutrones rápidos mediante la reacción Be ( $d, n$ ), utilizando como blanco un tubo abierto de cobre, en cuyo extremo se había soldado un trozo de berilio metálico.

Para las irradiaciones con neutrones rápidos se utilizó un gramo de paladio o de plata metálica. El tiempo de exposición fué generalmente de 20 minutos.

#### SEPARACIÓN QUÍMICA

Se disolvió la sustancia irradiada en un pequeño volumen de ácido nítrico concentrado y se agregaron 20 mg. de  $Rh^{+++}$ , 10 mg. de  $Ru^{++}$  y 10 mg. de  $Ag^+$ .

Se precipitó cloruro de plata y se filtró a través de un filtro coloidal. Se neutralizó el filtrado con hidróxido de sodio hasta acidez débil, agregando luego nitrito de potasio y calentando a ebullición para formar el rodiohexanitrito de potasio, que se filtró en frío. Este precipitado se disolvió en ácido clorhídrico concentrado, se le agregó nuevamente  $Ru^{++}$  y  $Pd^{++}$  como portadores de retención y se precipitó el rodiohexanitrito de potasio.

Se repitió el mismo procedimiento para eliminar toda la actividad de paladio y rutenio. Se precipitó el cloruro de plata hasta obtener un precipitado inactivo. Es necesario eliminar la actividad de plata después de la separación de rodio de paladio, ya que la desintegración de paladio produce plata activa.

Por último el rodio se precipito en forma metálica, reduciéndolo con una solución de tricloruro de titanio.

Para verificar que se trataba de rodio, en algunos ensayos se extrajo el rodio con piridina, según el método de N. E. Ballou (1).

Para comprobar la eficiencia del método químico utilizado se hicieron varios ensayos con indicadores tales como Ag-111, Ru-106 y Pd-111. Se efectuó la marcha química descrita en presencia de altas actividades de estos indicadores, comprobándose que no quedaban con el rodio contaminaciones de plata, paladio y rutenio, mayores del 0,05 % de la actividad del indicador inicialmente agregado.

El rendimiento químico determinado mediante uso del Rh-102 como indicador resultó de 50-60 %. Este bajo rendimiento se debe a la solubilidad relativamente alta del rodiohexanitrito de potasio.

La separación de rodio de la plata irradiada se realizó en la forma siguiente: se disolvió la plata en ácido nítrico que contenía 30 mg. de  $Rh^{+++}$  y 10 mg. de  $Pd^{++}$ . Se precipitó la plata con cloruro de potasio varias veces hasta la eliminación de la plata activa en solución. En el filtrado se precipitó el rodio como rodiohexanitrito de potasio, que se disolvió para precipitarlo de nuevo en presencia de 10 mg de  $Pd^{++}$ . Se repitió esta purificación una vez.

Se invirtió casi una hora en la marcha química completa, contando desde el fin de la irradiación hasta la primera medición, de modo que no pudieron detectarse períodos menores de 10-15 minutos.

#### MEDICIÓN

Los preparados fueron medidos con contadores de campana con ventanas de mica de 2 mg/cm<sup>2</sup>. de espesor. Las actividades fueron registradas por un equipo compuesto de un integrador con gran constancia del cero, un amplificador logarítmico (2) y un inscriptor mecánico. Los valores de la curva registrada se trasladaron a una escala semilogarítmica y como detector gama se utilizó un equipo compuesto de un contador de centelleo con un cristal de yoduro de sodio, discriminador simple y escalímetro.

#### RESULTADOS DE IRRADIACIONES CON NEUTRONES

La curva A de la figura 1 muestra una curva de desintegración típica. El análisis de la misma indica la presencia de tres períodos: 23 minutos, 117 minutos y 36,5 horas.

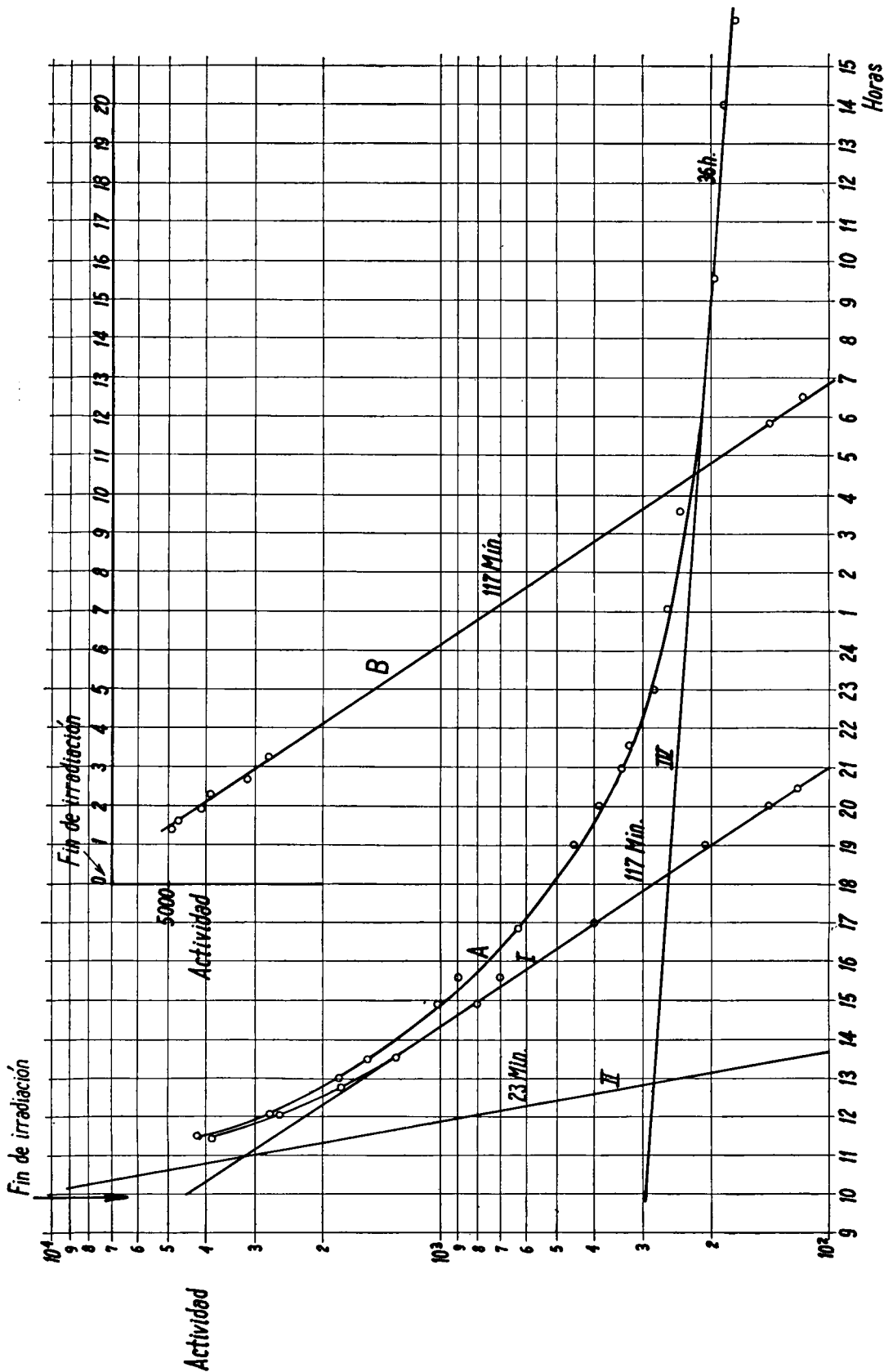


Fig. 1. — A) Curva de desintegración de Rh, obtenida por la reacción (n. p.) a partir de Pd, medida en un escalímetro; I. Curva correspondiente a la actividad de Rh de 117 Min. y 23 Min.; II, Curva correspondiente a la actividad de Rh de 23 Min.; III, Curva correspondiente a la actividad de Rh de 36,5 h. B) Curva de desintegración de Rh, obtenida por la reacción n.α a partir de Ag medida con escalímetro.

La actividad correspondiente al período de 23 minutos es relativamente baja, debido a la pequeña sección eficaz de los procesos en que se forma: Pd-108 ( $n, pn$ ); Rh-107 y Pd-110 ( $n, \alpha$ ); Ru-107, que a su vez desintegra por emisión de rayos beta a Rh-107.

La actividad correspondiente al Rh-105 (36,5 horas) es relativamente mayor, ya que se forma por Pd-105 ( $n, p$ ); Rh-105 y en menor proporción por Pd-108 ( $n, \alpha$ ); Ru-105, que desintegra por emisión de rayos beta en Rh-105.

La actividad principal se debe a un isótopo de rodio de 117 minutos de período.

La curva B muestra la actividad beta de rodio obtenido por la reacción Ag-109, 107 ( $n, \alpha$ ); Rh-106, 104.

#### REACCIONES DE DEUTERONES

El isótopo de 117 minutos se forma también en la irradiación de paladio con deuterones.

Se irradió paladio metálico en polvo colocado en un blanco de aluminio con nueve agujeros de 1 mm de diámetro. Se utilizaron deuterones de una energía aproximada de 28 MeV. Se irradió 20 minutos con una corriente de iones de 15-20  $\mu$ . A. Terminada la irradiación se procedió a la separación química descripta anteriormente.

La curva (I) de desintegración resultante aparece en la figura 2-es más compleja que la obtenida con neutrones, ya que contiene, además de los períodos de 23 minutos, 117 minutos y 36,5 horas, actividades muy débiles de los isótopos de rodio con deficiencia de neutrones (4,4 días, 4,5 horas, 30 minutos y 210 días).

#### PRODUCTOS DE FISIÓN

Teniendo en cuenta las reacciones nucleares que conducen a la formación del Rh de 117 minutos y los isótopos conocidos del rodio, había que suponer que el isótopo que nos ocupa tiene un número de masa mayor que 105, por este motivo se lo buscó entre los productos de fisión.

Se irradió óxido de uranio directamente con deuterones de 28 MeV durante 5 minutos, se disolvió en ácido nítrico y se neutralizó la solución con hidróxido de potasio, se agregaron 20 mg de Rh<sup>+++</sup> y algunos mg de Ru<sup>++++</sup>, Pd<sup>++</sup>, Cd<sup>++</sup> y MoO<sub>4</sub><sup>--</sup>. Se precipitó el

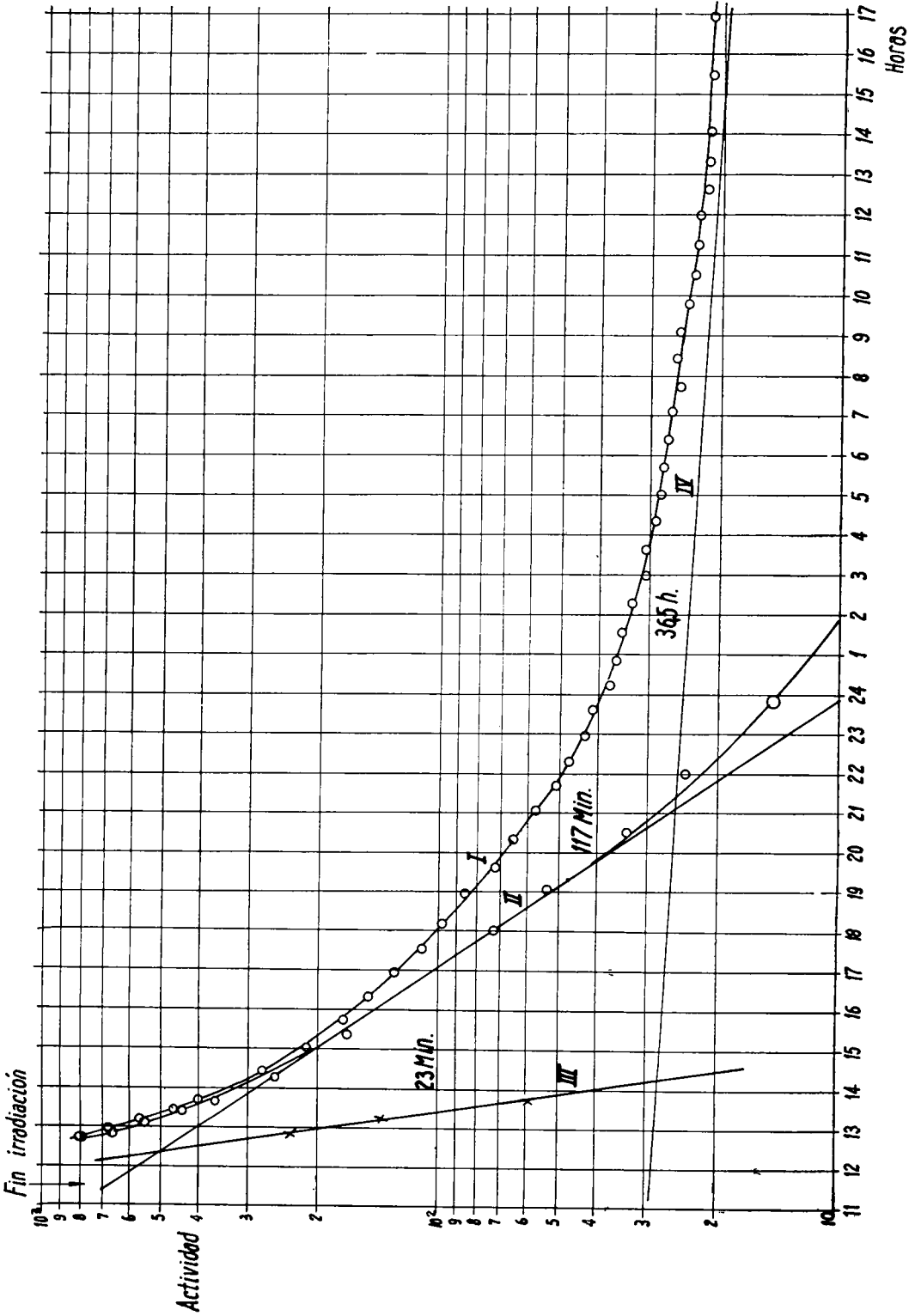


Fig. 2. — I, Curva de desintegración del Rh, obtenida por la reacción  $d, \alpha$  a partir de Pd; II, Curva que se obtiene por sustracción de la curva IV de la I; III, Curva correspondiente al Rh de 23 min.; IV, Curva correspondiente al Rh de 36,5 h.

rodiohexanitrito de potasio para separar el rodio del uranio y de la mayoría de los productos de fisión. Este precipitado se disolvió en ácido clorhídrico al 25 % y a la solución neutralizada con hidróxido de sodio se le agregó nitrito de sodio, 2-3 mg de  $\text{Fe}^{+++}$  e hidróxido de sodio hasta débil alcalinidad. Se filtró el hidróxido férrico. Este procedimiento se repitió varias veces para eliminar las impurezas que se absorben o coprecipitan con el hidróxido férrico. El filtrado se aciduló débilmente y se agregó cloruro de potasio en exceso para precipitar el rodiohexanitrito de potasio, luego se continuó la purificación de rodio según la marcha descrita anteriormente hasta obtenerlo en forma metálica.

La curva de desintegración correspondiente puede verse en la figura 3; el análisis de la misma mostró una fuerte actividad de Rh de 23 minutos y la actividad correspondiente del Rh-105 (36,5 horas); no fué posible detectar otro período comprendido entre estos dos.

Se realizaron además las siguientes experiencias: separación de rodio de actividades fuertes de Ru-107 (4 minutos) y Ru-108 (4 minutos) y de Ru-105 (4,6 horas) y de Ru-106, este último procedente de Harwell.

En ninguna de estas fracciones de rodio se encontró el período de 117 minutos y tampoco otra actividad de rodio desconocida de período comprendido entre 12 minutos y muchos días.

De estos resultados hay que deducir que el Rh de 117 minutos no es un producto de fisión normal; de formarse en la fisión, el rendimiento es cientos de veces menor que lo que correspondería al rendimiento total de la serie de isóbaros con su número de masa.

#### CARACTERÍSTICAS DEL RODIO DE 117 MINUTOS

Para el estudio de las radiaciones del Rh de 117 minutos se utilizó el rodio obtenido por irradiación de paladio con neutrones rápidos; en este preparado aparece sólo una actividad débil del Rh-105, además de la 117 minutos.

También se produjo el mismo rodio por la reacción  $\text{Ag-109} (n, \alpha)$ ; Rh-106 y se obtuvo una actividad única de 117 minutos de período, pero más débil que la del rodio obtenido por la reacción  $(n, p)$ .

Con la ayuda de un imán simple se comprobó la ausencia de positrones. La energía máxima de los negatrones emitidos se determinó mediante una curva de absorción con chapas de aluminio. El alcance fué de 240 mg/cm<sup>2</sup> (fig. 4).

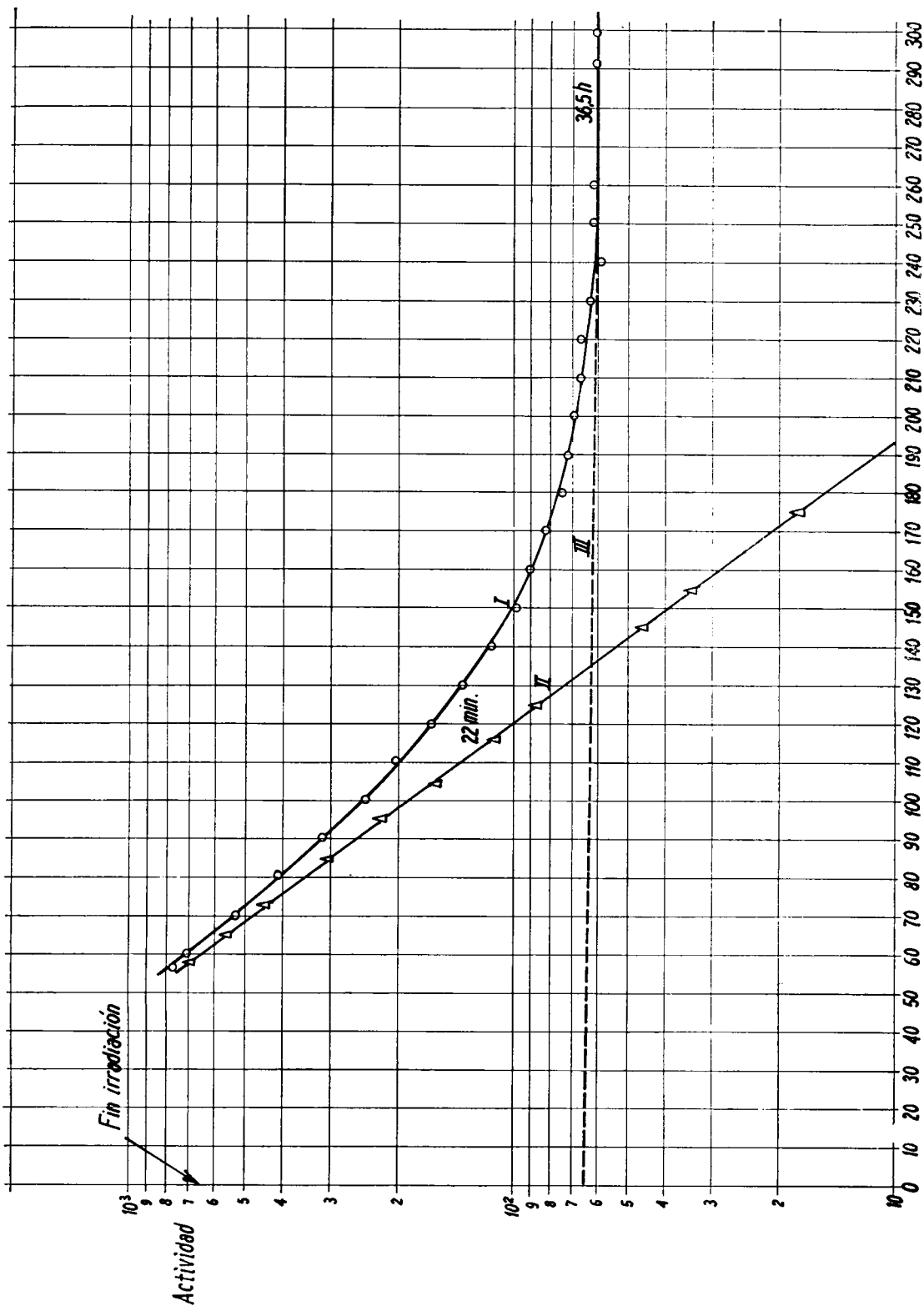


Fig. 3. — I, Curva de desintegración de Rb obtenido por la fisión del uranio ; II, Curva correspondiente al Rb-107 ; III, Curva correspondiente al Rb-105

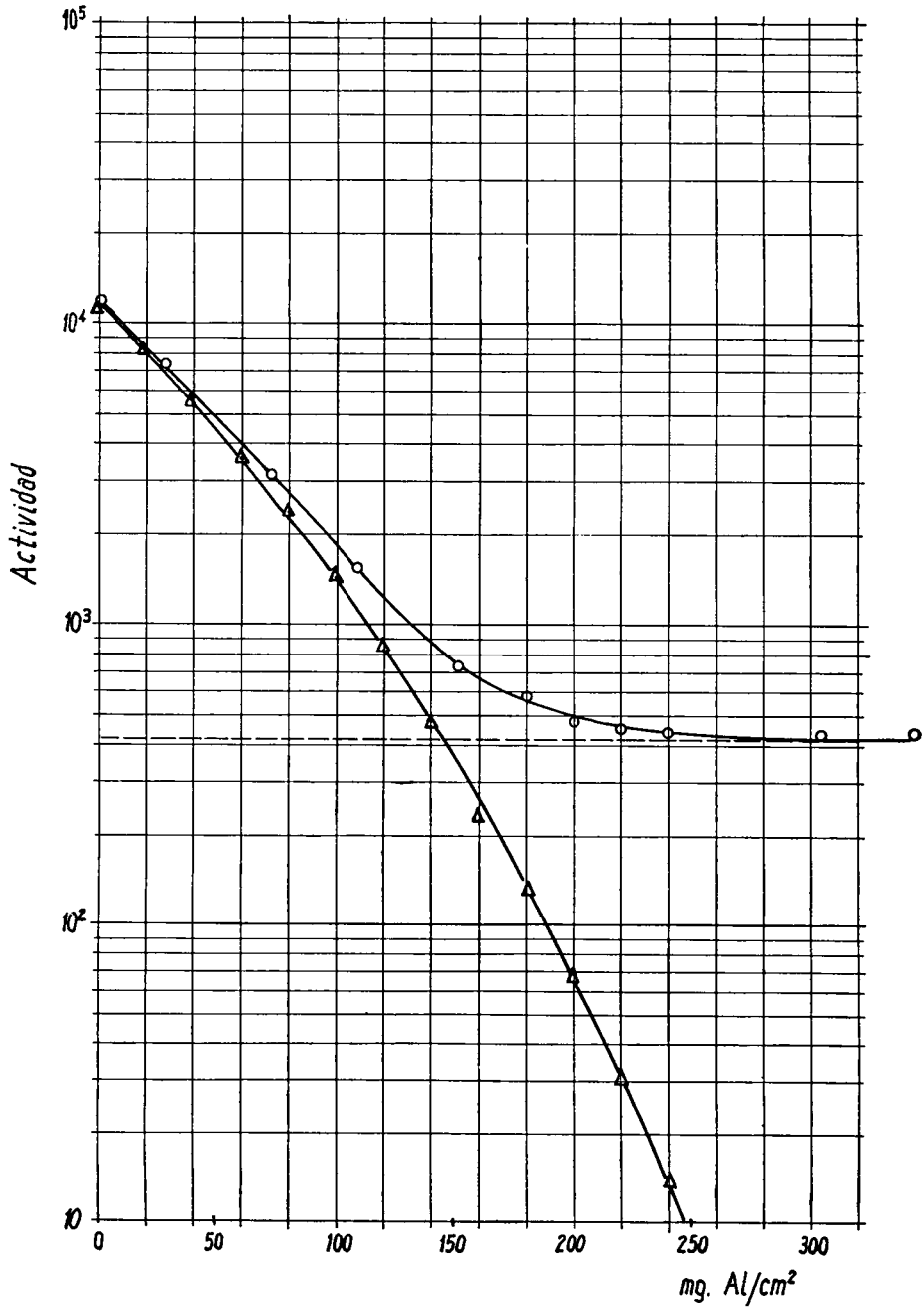


Fig. 4. — Curva de absorción del Rh-106\* de 117 minutos

Resultó una energía máxima de aproximadamente 0,7 MeV. La curva de absorción señaló también la existencia de radiación gama cuya energía total sería de 2,9 MeV por partícula beta emitida, teniendo en cuenta la sensibilidad para rayos gama del contador utilizado; de esto resultaría una energía de desintegración total de 3,6 MeV aproximadamente.

Para determinar el período más exactamente se midió el preparado mediante un contador de centelleo (cristal de yoduro de sodio activado con talio), utilizando un discriminador simple que permite la detección de rayos gama con energías mayores que 0,6 MeV, de modo de impedir la detección de los rayos gama del Rh-105 y 107.

La figura 5 muestra tres curvas con un solo período de desintegración de 117 minutos, libres de toda otra actividad. Se trata de preparados de rodio producidos por las reacciones  $(n, p)$ ,  $(n, \alpha)$  y  $(d, \alpha)$ .

#### DISCUSIÓN DE LOS RESULTADOS

El paladio y la plata presentan los siguientes isótopos estables con sus correspondientes abundancias relativas :

	%		%
Pd-102.....	0,8	Pd-108.....	26,8
Pd-104.....	9,3	Pd-110.....	13,5
Pd-105.....	22,6	Ag-107.....	51,9
Pd-106.....	27,2	Ag-109.....	48,1

Los isótopos de rodio de número de masa 104 y 105 presentan dos isómeros bien conocidos cada uno.

Si bien del Rh-102 no se conoce ningún isómero todavía, parece muy poco probable que el período de 117 minutos corresponda a este número de masa, ya que la actividad obtenida es relativamente alta por haberse formado a partir del Pd-102 cuya abundancia relativa es de 0,8 %, o a partir de la plata por la reacción  $(n, \alpha 2n)$ . Además los valores para la energía total de desintegración del Rh-102 y del Rh de 117 minutos difieren en más de 2 MeV, por lo que no puede tratarse de 2 isómeros.

El número de masa 110 se puede excluir ya que el Rh de 117 minutos se forma también por irradiación de paladio con deuterones y a partir de plata por irradiación con neutrones.

El número de masa 107 es poco probable dada la gran diferencia entre los valores de Q y por no haberse encontrado el periodo de

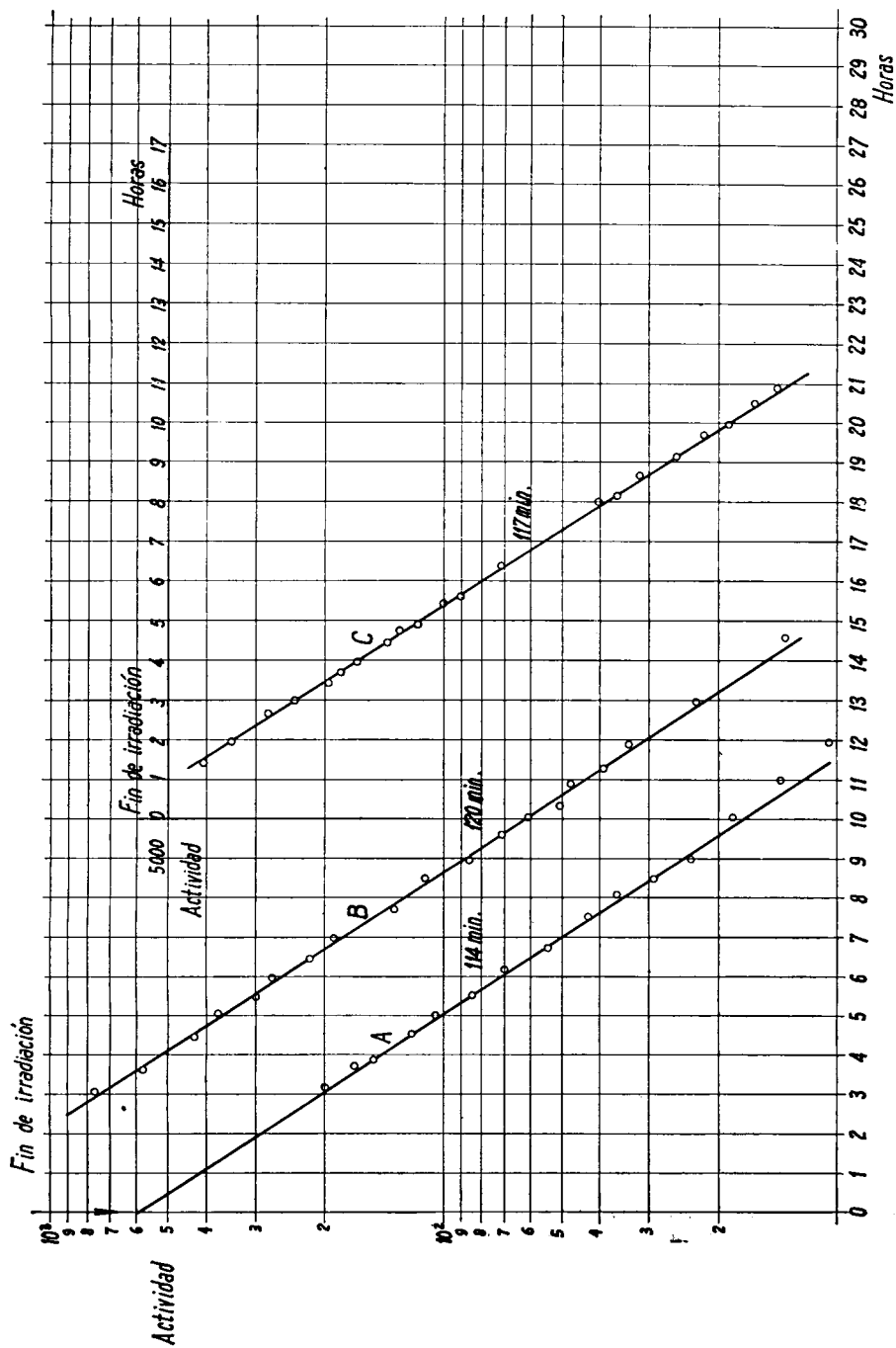


Fig. 5. — A) Curva de desintegración medida con un contador de centello con integrador correspondiente al Rh de 117 min. obtenida por n. p.; B) Curva medida en la misma forma que la anterior pero obtenida por d. x; C) Curva también medida en el contador de centello correspondiente al Rh obtenida por n. x a partir de Ag.

117 minutos entre los productos de fisión. Además la formación de rodio con número de masa 107 por una reacción  $\text{Ag-109} (n, 2pn)$   $\text{Rh-107}$  parece prácticamente imposible.

El número de masa 109 puede excluirse también, ya que de un preparado de rodio de 117 minutos de período, fuertemente activo, no pudo aislarse el  $\text{Pd-109}$  de 13,4 horas, que debería haberse formado; además, su formación por irradiación de plata con neutrones es imposible.

Quedan por lo tanto los números de masa 106 y 108. El número de masa 108 no es muy probable ya que no se ha podido encontrar en la fisión ni como hija del rutenio «corto» (3). Además una reacción  $\text{Ag-109} (n, 2p)$   $\text{Rh-108}$  es improbable.

Queda para el Rh de 117 minutos el número de masa 106, faltaría explicar por qué no aparece como producto de fisión normal. Podría deberse al hecho de que el  $\text{Ru-106}$  presenta un valor de  $Q$  muy bajo (0,04 MeV), de modo que un isómero con un valor de  $Q$  mayor que 0,04 MeV que el  $\text{Rh-106}$  conocido, de 30 segundos de período no podría formarse como hija de este rutenio; naturalmente existe también la posibilidad de que la desintegración beta del  $\text{Rh-106}$  que conduce a un nivel menor que el del rodio de 30 segundos sea tan altamente prohibida que no se ha podido detectarla hasta ahora. En este caso sólo se podría formar directamente en la fisión de núcleos pesados y les correspondería un rendimiento de fisión independiente muy bajo, ya que la serie de isobaros 106 tiene la máxima probabilidad de formación para los elementos tecnecio y molibdeno. Por esta razón el rendimiento de su formación independiente en la fisión sería menor del 0,1 % del rutenio producido, así se explicaría la dificultad para detectarlo en una mezcla de isótopos de 23 minutos y 36,5 horas. Por otra parte el número de masa del Rh de 117 minutos está suficientemente asegurado por su formación mediante la reacción  $\text{Ag-109} (n, \alpha)$   $\text{Rh-106}$ .

En los laboratorios de espectrografía nuclear de la Comisión Nacional de la Energía Atómica, Argentina, se midió, en forma provisional, el espectro gama del rodio de 117 minutos; resultó un espectro parecido al del  $\text{Ru-Rh-106}$  y al de  $\text{Ag-106}$ , existiendo más líneas gama en el rodio de 117 minutos, pero hasta ahora no se han efectuado mediciones de comparación con el  $\text{Rh-106}$  y  $\text{Ag-106}$ .

De acuerdo con lo expuesto se puede llegar a la conclusión de que el período de 117 minutos corresponde a un isómero del  $\text{Rh-106}$  de 30 segundos con un valor de  $Q$  probablemente mayor que éste, es decir, que el Rh de 117 minutos correspondería al  $\text{Rh-106}^m$ .

La probabilidad de una transición por rayos gama del Rh-106<sup>m</sup> a Rh-106 debe ser menor del 1 %, ya que no se detectaron rayos beta con la energía correspondiente a estos últimos. En caso de que el rodio de 30 segundos fuera el isómero con mayor Q, tampoco se transformaría en el rodio de 117 minutos en mayor porcentaje que 0,1 %, ya que no se encontró un período de 117 minutos en el Rh-106.

#### BIBLIOGRAFIA

- (1) N. E. BALLOU, Paper 263, NNES Radiochemical studies: The fission products.
- (2) K. FRANZ Y A. MARCÓ DEL PONT, Rev. Teleg., Buenos Aires, 495, 767, (1953).
- (3) G. B. BARÓ, P. REY Y W. SEELMANN-EGGEBERT, Ztschrift. Naturfrschg., 10a 81-82 (1955).