

ATTI  
DELLA  
REALE ACCADEMIA DEI LINCEI

ANNO CCCIX.

1912

---

SERIE QUINTA

---

RENDICONTI

---

Classe di scienze fisiche, matematiche e naturali.

---

VOLUME XXI.

1° SEMESTRE.



ROMA

TIPOGRAFIA DELLA R. ACCADEMIA DEI LINCEI

---

PROPRIETÀ DEL CAV. V. SALVIUCCI

1912

# RENDICONTI

DELLE SEDUTE

DELLA REALE ACCADEMIA DEI LINCEI

Classe di scienze fisiche, matematiche e naturali.

*Seduta del 18 febbraio 1912.*

F. D' OVIDIO Vicepresidente.

MEMORIE E NOTE

DI SOCI O PRESENTATE DA SOCI

Chimica. — *Fotosintesi di un alcaloide dall'acetofenone e da l'ammoniaca.* Nota del Socio E. PATERNÒ e C. MASELLI.

Nella tornata del 17 febbraio 1909 uno di noi espose a quest'Accademia un breve sunto dei risultati dei suoi studi sulla sintesi in chimica organica per mezzo della luce solare, che sono stati poi pubblicati in forma estesa nella Gazzetta Chimica Italiana, in una serie di Memorie, delle quali, tre in comune col dott. Chieffi, una col dott. Traetta-Mosca, ed una col dott. Forli-Forti.

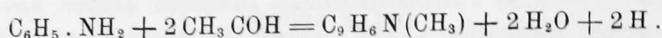
In questa Nota ci occuperemo della sintesi di un nuovo alcaloide.

Lo studio dell'azione della luce sulle sostanze azotate ha senza dubbio una importanza grandissima, e forse potrà in avvenire servire a chiarire la formazione delle sostanze azotate nelle piante. Ma finora non sono conosciuti che fatti isolati, e manca uno studio sistematico dell'argomento.

Ciamician e Silber, che hanno con una lunga serie di ricerche provato quanto sia estesa sotto l'influenza della luce l'azione riduttrice degli alcoli sulle sostanze più svariate, hanno pure preso in considerazione il comportamento di molti nitroderivati (nitrobenzolo, nitrotoluoli, nitroaniline, nitrobenzaldeide) con l'alcool etilico ed alcuni suoi omologhi, ed il comportamento di altri nitroderivati (nitrobenzaldeide, nitropiperonalio) col benzolo ecc. ecc.

Essi, oltre alla trasformazione dell'aldeide nitrobenzoica in acido nitrosobenzoico (Gazz. Chim. 1903, I, 355) hanno provato che dai nitroderivati degli idrocarburi aromatici si ottengono le chinaldine, probabilmente do-

vute alla reazione fra l'anilina e l'acetaldeide, primi prodotti dell'azione fra nitrobenzolo ed alcool, secondo il processo di sintesi di Döbner e v. Miller:

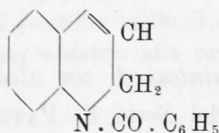


Per altri composti azotati, come l'alloxana, si ha la semplice riduzione in alloxantina; altri, come le ossime, passano da una forma stereoisomera in un'altra.

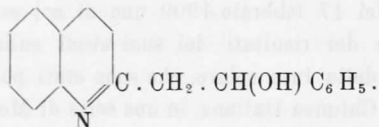
La reazione tra l'acido cianidrico e l'ammonaldeide (Ciamician e Silber, Gazz. Chim. 1907, I, 266) non può considerarsi come fotosintesi, perchè la reazione avviene lo stesso senza la luce, per quanto meno completa.

Fra le trasformazioni dei nitrocomposti per mezzo della luce, importante è quella di Engler e Dorant (Berichte, 28, 2997, an. 1895) che condusse alla sintesi dell'indaco dal benziliden-*o*-nitroacetofenone.

Anche interessanti sono le esperienze di Benrath (Physikalisch-Chemisches Centralblatt, 3<sup>o</sup>, p. 374) sull'azione della benzaldeide con la chinolina e la chinaldina che agiscono diversamente, la prima dando



la seconda



In altri casi i nitroderivati agiscono come ossidanti rispetto alle aldeidi (aldeidi salicilica, cinnamica, piperonal, vanillina), che sono trasformate nei relativi acidi (Ciamician e Silber, Gazz. Chim. 1906, II, 201).

Da quanto abbiamo sommariamente esposto risulta che lo studio dell'azione della luce sui composti azotati si è finora limitato ai soliti fenomeni di riduzione e di ossidazione, o ad ottenere delle trasformazioni o intramolecolari o più complesse; ma nessuna esperienza è nota, nella quale sia stato introdotto l'azoto in una molecola di un altro composto qualsiasi. In altri termini, nessuna sintesi di composti organici azotati è stata conseguita per l'azione della luce, partendo da composti contenenti l'azoto inorganico.

Noi abbiamo iniziato una serie di ricerche a questo scopo, dirette principalmente ad introdurre l'azoto nella molecola organica fornito dai più semplici composti azotati inorganici, idrogenati o ossigenati.

Abbiamo cominciato dallo studio dell'azione dell'alcool sul benzofenone in presenza di ammoniacca, di sali ammoniacali e di nitrati, ed è notevole

il fatto che nel caso del nitrato di calcio si ha senza dubbio una riduzione di questo sale e la formazione di una sostanza organica azotata. Anche fra acetofenone, acetato ammonico ed alcool ha luogo reazione con formazione di una sostanza dotata di una forte fluorescenza verde, anch'essa azotata. Ma in questa Nota esporremo soltanto lo studio dell'azione dell'ammoniaca alcoolica sull'acetofenone, che ci ha condotto alla sintesi di un importante alcaloide, del quale è stato dato l'annuncio sin dal 29 maggio 1909 in una conferenza tenuta a Londra da uno di noi al VII Congresso di Chimica applicata (vedi anche *Gazzetta Chim.* 1909, II, pag. 213).

Cominceremo dal dire che esperienze comparative fatte nelle stesse condizioni ci hanno provato che la reazione non avviene fuori dell'azione diretta della luce solare.

In una prima esperienza furono esposti alla luce in tubo chiuso gr. 10 di acetofenone sciolti in cmc. 50 di ammoniaca alcoolica satura, per la durata di otto mesi, e cioè dal 5 agosto al 15 aprile 1908. La soluzione, in principio incolore, va mano mano colorandosi in giallo cedrina sempre più intenso, ma resta sempre limpida. All'apertura del tubo non si nota pressione.

Eliminato l'alcool a b. m., il residuo oleoso viene sottoposto alla distillazione in corrente di vapore; l'acqua ottenuta con la distillazione si presenta opalescente, ed odora debolmente di acetofenone. La parte oleosa rimasta nel palloncino viene separata dall'acqua e sciolta in alcool bollente: la soluzione, filtrata ed abbandonata a lenta evaporazione in cristallizzatore a temperatura ordinaria, deposita grossi cristalli trasparenti, incolori, disseminati in seno ad una resina gialla molle; trattando la massa a freddo con etere, questo scioglie la resina, ed i cristalli rimasti indisciolti sono raccolti su filtro, lavati con etere e purificati per cristallizzazione nel benzolo.

Così purificato, il nuovo prodotto si fonde a 227° senza decomposizione; riscaldando una piccola porzione in tubicino da saggio, svolge fumi bianchi che hanno reazione alcalina, e la sostanza sublima senza apparente decomposizione. È poco solubile nell'acqua, anche all'ebollizione; si scioglie meglio nell'alcool, e la soluzione possiede forte reazione alcalina. Si scioglie a freddo nell'acido acetico glaciale; con acido solforico concentrato la sostanza ingiallisce, ma non si carbonizza, e a caldo si scioglie completamente. Se a questa soluzione raffreddata si aggiunge un cristallino di bicromato potassico, si ottiene quasi subito una colorazione verde smeraldo.

In una seconda preparazione furono esposti all'azione della luce gr. 50 di acetofenone sciolti in cc. 250 di ammoniaca alcoolica, dal 27 settembre al 20 gennaio, cioè per 4 mesi circa; e si tentò di separare in modo diverso l'alcaloide nella speranza di ottenere un miglior rendimento: tentando cioè di separare l'alcaloide direttamente per mezzo di un acido dalla sostanza resinosa e dai prodotti inalterati.

Distillato l'alcool a b. m., il residuo oleoso denso, che pesava gr. 60. si divise in due parti; una si trattò con acido acetico, l'altra con acido cloridrico diluito: col primo si ebbe soluzione completa, con il secondo rimase una buona quantità di resina indisciolta. Alla soluzione acetica si aggiunse acqua che precipitò un olio bruno, e le due soluzioni acquose acide, separate dalla parte insolubile, furono filtrate e precipitate con ammoniaca; si separa un olio che si raccoglie lentamente, e che tende a solidificarsi, ma che non si rapprende.

Si scioglie a caldo in alcool, e la soluzione, dopo evaporazione spontanea del solvente, lascia un olio completamente solubile in acido acetico; aggiungendo a questa soluzione poco acido cloridrico ed alcool, si separano cristallini bianchi che furono riconosciuti per il cloridrato della base, fusibile a 227°.

La parte resinosa, insolubile in acido cloridrico diluito, viene sciolta nella miscela di etere e ligroina, e la soluzione abbandonata all'evaporazione spontanea. In seno al residuo si notano grossi cristalli trasparenti che possono raccogliersi con maggiore facilità dopo che la massa bruna vischiosa è rimasta per un giorno ad asciugare su mattonella porosa. Purificati per cristallizzazione nella miscela di alcool (1 parte) e ligroina (3 parti), si fondono a 122°, e sono *acetofenonpinacone*.

In una terza preparazione si adoperarono gr. 50 di acetofenone e cmc. 250 di ammoniaca alcoolica, per una durata d'insolazione eguale alla precedente. Si lascia evaporare l'alcool a temperatura ordinaria, e il residuo oleoso si riscalda per un giorno su b. m. bollente; si separano cristallini bianchi, che possono essere raccolti trattando il tutto con etere che scioglie solamente la parte resinosa. La parte cristallina, dopo asciugata all'aria, pesa gr. 5; riscaldata, si rammollisce verso 200°, ed è completamente fusa a 220° (base impura).

La soluzione eterea ha colore giallo e, dopo evaporazione spontanea del solvente, lascia un olio denso giallo (gr. 50) che emana odore aromatico. Quest'olio viene nuovamente sciolto in etere, e alla soluzione si aggiunge tanto etere di petrolio finchè si produce intorbidamento. Dopo lungo riposo, si trovano attaccate alle pareti del vaso delle goccioline oleose; si decanta allora la soluzione limpida e si scioglie in etere il residuo oleoso. La soluzione eterea, dopo evaporazione spontanea del solvente, lascia una resina gialla vischiosa. Dalla soluzione etere + etere di petrolio, distillando il solvente, su b. m., si ricava un liquido giallo oleoso trasparente, con odore che ricorda quello dell'acetofenone. Seminato con alcuni cristalli di acetofenonpinacone, non si ha accenno a cristallizzazione; allora si sottopone il liquido alla distillazione. Col riscaldamento si sviluppano vapori con reazione alcalina, ma non si avverte odore ammoniacale.

Si raccolgono diverse porzioni, alle temperature di 186-260°, 260-300° (in quantità maggiore delle altre), 300-320°, che si presentano tutte come

liquidi gialli oleosi, mentre l'ultima porzione, che distilla a 320-335°, è molto più densa, di colore giallo carico, e col raffreddamento si rapprende in una morsa cristallina impregnata di olio; separato questo per assorbimento sopra mattonella, e ricristallizzato il residuo, esso è costituito da alcaloide puro. Le prime porzioni furono trattate con acido cloridrico e distillate col vapor d'acqua; è trasportato un olio che bolle fra 185 e 205°, e dal punto di fusione del fenilidrazone fu riconosciuto per acetofenone inalterato.

In una quarta preparazione, finalmente, furono esposti al sole gr. 100 di acetofenone e emc. 500 (dal 27 luglio 1909 al 18 marzo 1910) di ammoniaca alcoolica. Con l'evaporazione spontanea dell'alcool si separano dal liquido giallo grossi cristalli incolori trasparenti, che, raccolti su filtro e lavati con etere, dopo essiccazione all'aria, si fondono a 180-200° (gr. 12) (base impura). Continuando l'evaporazione a temperatura ordinaria, si ottiene in definitiva una resina gialla trasparente, disseminata di altri cristalli che, raccolti e lavati come prima, pesano gr. 5 e si fondono a 150-190° (base impura).

La parte resinosa (gr. 50) viene riscaldata per un giorno su b. m. bollente, ma non lascia separare altri cristalli. Dopo lungo riposo, accennando la massa pastosa a solidificare, si distende su mattonella porosa, e si può in tal modo raccogliere una sostanza solida (gr. 14.5), che lavata a freddo con etere di petrolio, in parte si scioglie colorando in giallo il solvente. La parte cristallina indisciolta (gr. 10) è solubile a caldo nel benzolo, ma col raffreddamento non torna a separarsi. Aggiungendo alla soluzione benzolica il triplo volume di etere di petrolio, dopo lungo riposo si separano cristalli riuniti in mammelloncini (base impura), mentre dalla soluzione decantata per evaporazione del solvente si separano altri cristalli fusibili a 20°, che sono di acetofenone. Complessivamente, da gr. 100 di acetofenone si ebbero circa 20 gr. dell'alcaloide ancora non del tutto puro, e possiamo affermare che anche nelle altre preparazioni mai si giunse ad avere di alcaloide un peso maggiore del 20 % dell'acetofenone adoperato.

Si completa la purificazione del nuovo alcaloide sciogliendo a caldo nell'alcool e lasciando evaporare la soluzione a temperatura ordinaria. Si hanno così grossi cristalli, trasparenti, molto ben definiti e dei quali il prof. Zambonini si compiace di fare lo studio.

Sistema cristallino: triclino

$$a : b : c = 1,5017 : 1 : 1,5993$$

$$\alpha = 91^\circ 21 \frac{1}{2}'$$

$$\beta = 106 14$$

$$\gamma = 79 50 \frac{1}{2}'$$

Forme osservate:  $c \{001\}$ ,  $b \{010\}$ ,  $a \{100\}$ ,  $p \{101\}$ ,  $r \{1\bar{0}1\}$ ,  $s \{11\bar{1}\}$ .  
I cristalli studiati sono tutti più o meno fortemente tabulari secondo  $\{001\}$

ed allungati nella direzione dell'asse  $a$ . Nella zona  $[010]$  spesso la forma dominante è  $\{100\}$  ed allora, come nell'attigua figura,  $\{101\}$  e  $\{\bar{1}01\}$  sono affatto subordinati: in altri casi, invece,  $\{101\}$  è molto più estesa di  $\{100\}$  e di  $\{\bar{1}01\}$ , che possono diventare esilissime. Non sono rari i geminati secondo la legge: piano di geminazione  $\{001\}$ .

Di solito i cristalli dei quali ho potuto disporre sono piuttosto mal conformati: le loro facce sono poco piane e le misure vanno soggette ad oscillazioni piuttosto forti. Alcuni pochi, però, hanno fornito buone misure ben concordanti, che si sono poste a base del calcolo delle costanti.

Spigoli misurati	Media delle misure	Calcolo
(001) : (010)	91°33'	*
(001) : (100)	73 45	*
(100) : (010)	100 11	*
(00 $\bar{1}$ ) : (11 $\bar{1}$ )	66 40	*
(010) : (11 $\bar{1}$ )	41 37	*
(001) : ( $\bar{1}01$ )	55 54	56°7'
(010) : (10 $\bar{1}$ )	97 40	97 33
(10 $\bar{1}$ ) : (11 $\bar{1}$ )	56 2	55 56
(001) : (101)	38 30	38 34
(010) : (010)	3 0	3 6

Sfaldatura un po' imperfetta parallelamente a  $\{010\}$ .

Su (001) una direzione di massima estinzione forma con lo spigolo  $[(001):(010)]$  un angolo di  $46^\circ$  nell'angolo piano formato dagli spigoli  $[(001):(010)]$  e  $[(001):(100)]$ . In luce convergente si osserva, sempre su (001), un asse ottico all'orlo del campo.

La sostanza, allo stato di completa purezza, fonde a  $227^\circ$  senza decomposizione. È poco solubile nell'acqua anche alla ebollizione; poco nell'etere e nell'etere di petrolio a freddo: si scioglie meglio nell'alcool, e la soluzione possiede forte reazione alcalina. Si scioglie negli acidi acetico, solforico, nitrico; con acido cloridrico dà il sale, poco solubile.

All'analisi:

I. Gr. 0,2428 di sostanza essiccata a  $100^\circ$  e fusibile a  $227^\circ$ , diedero gr. 0,7330 di  $\text{CO}_2$  e gr. 0,1564 di  $\text{H}_2\text{O}$ .

II. Gr. 0,2250 di sostanza diedero cmc. 20.8 di N ( $t = 15^\circ.5$ ;  $h = 763$ ).

Donde, in 100 parti, si ha:

	Trovato per %	Calcolato per $\text{C}_{18}\text{H}_{18}\text{N}_2$
C	82.33	82.4
H	7.15	6.9
N	10.84	10.7

Non ci fu possibile determinare il p. m. col metodo crioscopico adoperando la benzina, ed abbiamo dovuto ricorrere all'acido acetico, dal quale facilmente solidificava. I risultati ottenuti sono i seguenti:

Concentrazione della soluzione	Abbassamento termometrico	Peso molecolare trovato
2.79	0.42	256.0
3.35	0.51	254.5
4.28	0.56	294.8
5.25	0.70	291.0
		MEDIA 274.0

Calcolato per la formola  $C_{18}H_{18}N_2$ , P. M. = 262.

Col metodo ebullioscopico, adoperando come solvente l'etere, non si potè determinare la grandezza molecolare del composto, perchè anche la soluzione satura, che ha la concentrazione di 1.508 %, bolle alla stessa temperatura del solvente, cioè dà una soluzione colloide come ha provato il prof. Paternò con parecchi altri alcaloidi (Rendiconti della Società Chimica Italiana, 1910, pag. 301).

Si prepararono alcuni sali della nuova base.

Il *nitrate* fu ottenuto sciogliendo la sostanza in acido nitrico concentrato (la soluzione ingiallisce leggermente col riscaldamento); per aggiunta di acqua si separarono abbondanti fiocchi bianchi che, purificati per cristallizzazione nell'acqua, fornirono una polvere bianca cristallina, fusibile a 258° con decomposizione.

Il *cloridrato* si ottiene per aggiunta di acido cloridrico fumante alla soluzione alcoolica o acetica della base. Si separa come polvere bianca cristallina che riscaldata, fino a 270°, non si fonde. A piccole porzioni, si può cristallizzare nell'acido acetico diluito e si separa dalla soluzione in lunghi cristalli aciculari bianchi, riuniti a ciuffetti. Riscaldato a 350° (temperatura del bagno esterno) in corrente di acido cloridrico secco, non si altera. All'analisi:

- I. Gr. 0,1352 di sostanza, sciolti in acqua acida per aggiunta di acido nitrico, consumarono cmc. 4.5 di soluzione decinormale di  $AgNO_3$  (Vohlard).
- II. Gr. 0,1246 di sostanza consumarono cmc. 4.1 di  $AgNO_3$  N/10. Donde, in 100 parti:

	Trovato per %		Calcolato per $C_{18}H_{18}N_2 \cdot HCl$
	I	II	
HCl	12.14	12.04	12.2

Per aggiunta di ammoniaca alla soluzione acquosa-alcoolica o acetica del cloridrato, si riottiene la base fusibile a 227°.



Il *cloroplatinato* venne preparato per aggiunta della soluzione concentrata di cloruro di platino a quella acquosa alcoolica del cloridrato della base, contenente un eccesso di acido cloridrico. Si separa in laminette di color roseo carnicino e di aspetto sericeo; riscaldato in tubicino, a 260° incomincia ad annerire e a 268° si decompone rapidamente. All'analisi:

I. Gr. 0,2194 di sostanza, calcinati, lasciarono gr. 0,0462 di platino.  
 II. Gr. 0,2986 di sostanza, calcinati, lasciarono gr. 0,0650 di platino. Donde si ha:

	Trovato per %		Calcolato per
	I	II	$[C_{18}H_{18}N_2 \cdot HCl]_2 \cdot Pt Cl_4$
Pt	21.05	21.76	20.86

Il *sale di argento* fu preparato per azione diretta della soluzione di nitrato d'argento su quella acquoso-alcoolica della sostanza. Si separa sotto forma di polvere amorfa bianca.

Il *nitroso* derivato della base si prepara sciogliendo con lieve riscaldamento la base in un miscuglio di acido acetico ed alcool, ed aggiungendovi una soluzione di nitrito potassico al 20% resa acida con acido acetico. Col riscaldamento ha luogo una viva reazione, con abbondante svolgimento gassoso (si avverte l'odore del nitrito di etile) e separazione di laminette lucenti. Il precipitato, raccolto su filtro, lavato con acqua e asciugato all'aria, si fonde a 215° in un liquido bruno che lentamente si decompone. È molto solubile in alcool; e per aggiunta di acqua alla soluzione, si separa il prodotto allo stato oleoso, nè è più possibile averlo cristallino. Si lava il prodotto cristallino con benzolo a caldo, ove è poco solubile; si raccoglie su filtro e, lasciato essiccare all'aria, si fonde a 218° con decomposizione.

All'analisi, gr. 0,1356 di sostanza diedero cmc. 15,3 di N a 15° e 752 mm. Donde si ha:

	Trovato per %	Calcolato per $C_{18}H_{17}N_4 \cdot NO$
N	13.07	14.4

I risultati finora ottenuti mostrano che il nuovo alcaloide avuto per azione della luce sulla soluzione dell'acetofenone nell'ammoniaca alcoolica è una base monoacida, priva di ossigeno e che corrisponde alla formola grezza  $C_{18}H_{18}N_2$ . Dà sali stabilissimi con gli idracidi; fornisce pure un sale di argento ed un mononitroso-derivato.

La formazione di questo alcaloide non può interpretarsi con una reazione stechiometrica semplice. La sua formola grezza  $C_{18}H_{18}N_2$  tende a far supporre che alla sua genesi, oltre a due molecole di acetofenone ed a due di ammoniaca, concorra la molecola dell'alcool per fornire gli altri due atomi di carbonio; ma non è necessario che l'alcool agisca come tale perchè nelle condizioni della esperienza è sempre possibile che intervenga sotto forma di

etilammina, o sotto forma di aldeide o di un suo composto ammoniacale. Ma che che ne sia, dall'addizione pura e semplice dei primi tre prodotti, eliminando l'ossigeno sotto forma di acqua, si perviene ad un composto  $C_{18}H_{18}N_2$ , o  $C_{18}H_{20}N_2$  nel caso in cui si supponga l'intervento dell'aldeide. Onde è necessario ammettere che per la formazione dell'alcaloide intervenga una ossidazione che elimini 4 o 2 atomi d'idrogeno: cosa del resto naturalissima in presenza dell'acetofenone che si trasformerebbe in acetobenzoinacone che abbiamo riscontrato nei prodotti della reazione.

In vista di tante complicazioni noi non tenteremo nemmeno di scrivere come ipotesi una formola di struttura. Sono necessarie ricerche più precise che non abbiamo avuto il tempo di fare. Diremo intanto che abbiamo tentato l'ossidazione dell'alcaloide col permanganato, e la determinazione dell'alchile col processo Zeisel, ma con risultati negativi. Nemmeno possiamo affermare con certezza la presenza di un doppio legame perchè la base in soluzione acetica scolora il permanganato nè più nè meno come l'acido acetico solo, ed in soluzione alcoolica la differenza nella velocità della reazione è così piccola che non può trarsi nessuna conseguenza.

Dobbiamo infine notare che l'alcaloide, riscaldato per 3 ore in tubo chiuso, a  $370^\circ$  si trasforma in parte in un liquido oleoso rosso-bruno; la maggior parte resta inalterata.

Si è inoltre tentata la riduzione della base con acido iodidrico e fosforo, secondo il metodo di Claus, adoperando gr. 3 della base, bagnata con poca acqua (1 cmc.) e mescolata con gr. 6 di fosforo rosso, e aggiungendo cautamente gr. 12 di iodio. Dopo 6 giorni di riscaldamento con piccola fiamma, si aggiunge acqua e si distilla in corrente di vapore. Insieme con l'acqua passa un olio leggermente colorato in giallo e con odore aromatico, ma in così piccola quantità da non permettere alcun saggio; il residuo della distillazione, dopo allontanata l'acqua, viene ripreso con alcool, e la soluzione filtrata, dopo evaporazione del solvente, lascia una massa di cristallini gialli, infusibili, che costituiscono il iodidrato della base.

I risultati contenuti in questa Nota erano stati ottenuti da noi circa tre anni addietro, ma, prima di pubblicarli, volevamo attendere i risultati di esperienze intraprese trattando l'acetofenone con soluzioni di ammoniaca nell'alcool metilico e nell'acetone, e di altre impiegando soluzioni alcooliche di metilammina ed etilammina. Ma un temporale ruppe i tubi dopo un anno d'insolazione, e perciò, avendo dovuto ripetere le esperienze, abbiamo creduto di non ritardare oltre a rendere pubblica la parte già annunciata al Congresso di Londra del 1909.