

**Influenza dell'adsorbimento e della migrazione superficiale
sulla separazione isotopica nella diffusione di un gas
attraverso una parete porosa (*).**

P. CALDIROLA e G. ROSSI (+)

*Istituto di Scienze Fisiche dell'Università - Milano
Istituto Nazionale di Fisica Nucleare - Sezione di Milano*

(ricevuto il 29 Marzo 1957)

Nello studio della separazione di isotopi col procedimento della diffusione gassosa attraverso una parete porosa, possono avere importanza, in determinate condizioni, i fenomeni di adsorbimento e di migrazione superficiale del gas.

Si è fatta una valutazione dell'influenza di questi processi allo scopo soprattutto di stabilire la loro dipendenza dei vari parametri e in particolare dalla temperatura.

Nella parete porosa, che supporremo costituita da granuli compressi (sinterizzati) a contatto col gas possono aver luogo, come illustrato in Fig. 1, i seguenti processi:

- a) adsorbimento di atomi del gas sulla superficie dei granuli;
- b) evaporazione di atomi adsorbiti dalla superficie dei granuli;
- c) migrazione di atomi adsorbiti

lungo la superficie dei capillari risultanti dalla sinterizzazione dei granuli e entro i quali si manifesta il flusso di Knudsen.

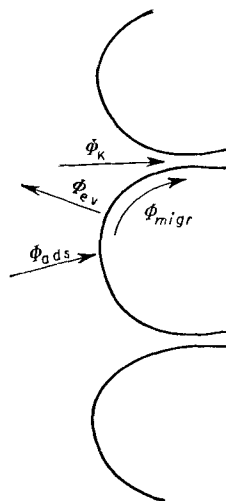


Fig. 1. - Schematizzazione del processo di migrazione superficiale sui grani di una parete porosa.

(*) Lavoro eseguito nel quadro di una collaborazione con i Laboratori CISE.

(+) Attualmente all'Ufficio Studi dell'Agip Nucleare, Milano.

In condizioni stazionarie sarà valida la conservazione dei flussi per entrambi

gli isotopi considerati:

$$(1) \quad \Phi_{\text{ads}}^{(i)} = \Phi_{\text{ev}}^{(i)} + \Phi_{\text{migr}}^{(i)} \quad (i = 1, 2).$$

L'arricchimento isotopico nella fase che attraversa la parete porosa in seguito ai processi di adsorbimento e di migrazione superficiale sarà dato da:

$$(2) \quad \delta_{\text{migr}} = \frac{\Phi_{\text{migr}}^{(1)}}{\nu_1/\nu_2} \cdot \frac{\Phi_{\text{migr}}^{(2)}}{\nu_1/\nu_2},$$

essendo ν_1/ν_2 il rapporto fra le densità dei due isotopi nel gas prima dell'attraversamento.

Esplicitando la (1) si ha allora:

$$\begin{aligned} S(1 - \theta_i - \theta) \nu \int_0^{h\nu_M} dE \varphi_i(E) \sum_s h \Gamma_{es}^{(i)} = \\ = S \theta_i n_s \sum_s \int_0^{h\nu_M - |E_s|} \pi(E) \cdot G_{s,E}^{(i)} dE + f \theta n_L L \frac{1}{\tau_0}, \end{aligned}$$

ove i simboli dei primi due flussi hanno lo stesso significato che in (I), mentre quelli che compaiono nel flusso di migra-

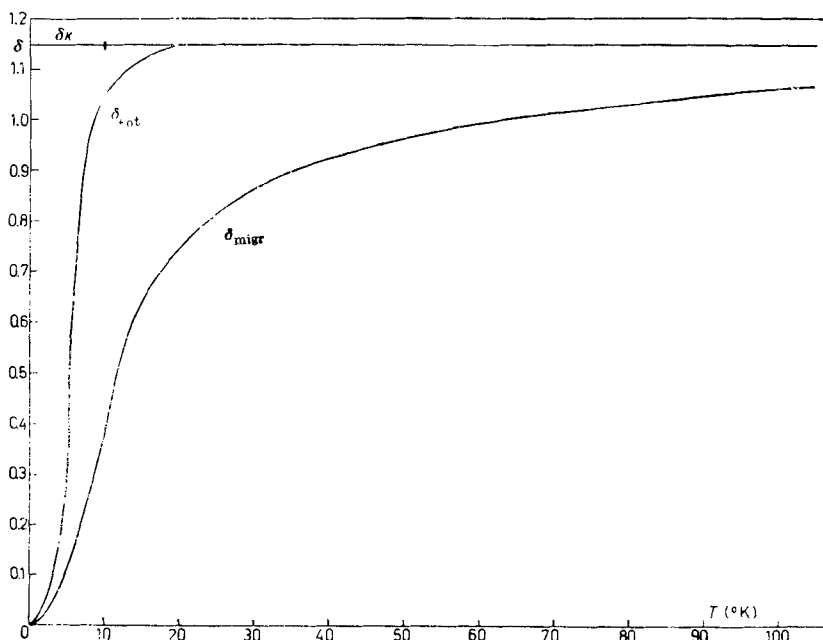


Fig. 2 - Dipendenza dalla temperatura dell'arricchimento isotopico della fase adsorbita che migra superficialmente (curva δ_{migr}) e dell'arricchimento isotopico totale (curva δ_{tot}).

Supponendo che l'adsorbimento abbia luogo in uno strato unimolecolare, un calcolo da noi sviluppato ⁽¹⁾ partendo dalla teoria di Lennard Jones e collaboratori, permette di valutare i flussi di adsorbimento e di evaporazione.

zione denotano rispettivamente: f un parametro connesso con la possibilità di libero movimento di un atomo adsorbito nella direzione di attraversamento della parete, n_L il numero di posti a disposizione per l'adsorbimento, per unità di lunghezza sul perimetro L dell'imboccatura (« fronte » di migrazione) di un singolo capillare lungo le pareti del quale

⁽¹⁾ P. CALDIROLA e G. ROSSI: *Nuovo Cimento*, **5**, 1316 (1957) [indicato con (I)].

ha luogo la migrazione e infine τ_0 è il valore medio dell'intervallo di tempo che separa l'adsorbimento di due atomi in un posto determinato del « fronte » di migrazione.

Il calcolo di f e di τ_0 è piuttosto complicato; si può però rendersi conto abbastanza facilmente che per i casi di interesse pratico è in generale $\Phi_{\text{migr}} \ll \Phi_{\text{ev}}$ per cui il rapporto θ_1/θ_2 è praticamente eguale a quello calcolato in (I) nel caso del puro processo di adsorbimento. In queste condizioni si ha pure: $\delta_{\text{migr}} \approx \delta_{\text{ads}}$.

Abbiamo eseguito un'applicazione numerica al caso di un gas formato da un miscuglio dei due isotopi ^3He ed ^4He che attraversi una parete di polvere compressa di LiF, assumendo gli stessi valori dei vari parametri usati in (I).

I risultati sono riportati in Fig. 2. La curva δ_{migr} dà la dipendenza dalla temperatura dell'arricchimento isotopico per il flusso di migrazione. È interessante osservare che dai nostri risultati deriva che quando il flusso di migrazione superficiale si sovrappone al consueto flusso di Knudsen, l'arricchimento isotopico risultante δ_{tot} viene ad essere diminuito rispetto a quello δ_k che si ha per il solo flusso di Knudsen. Precisamente la diminuzione è tanto più forte quanto più la temperatura è bassa e ciò anche perchè, diminuendo T , diminuisce pure il rapporto $(2) \Phi_k/\Phi_{\text{migr}}$.

Concludendo vogliamo osservare che i risultati dei nostri calcoli si accordano,

almeno qualitativamente, con i risultati sperimentali ottenuti a Oak Ridge da TRAWICK e BERMAN ⁽³⁾, sperimentando sulla separazione isotopica dell'ossigeno, azoto e argon per mezzo della diffusione attraverso polveri compresse di silice. Detti autori, come è noto, non hanno confermato i risultati precedenti di HUL ⁽⁴⁾, che probabilmente non sono interpretabili come effetto dell'adsorbimento e della migrazione superficiale ma, come è stato già osservato, come fenomeni transitori.

Naturalmente una diminuzione dell'arricchimento isotopico rispetto a $\delta_k = \sqrt{m_2/m_1}$ si può avere, oltre che per effetto dell'adsorbimento, anche per altre ragioni. Fra queste possono avere particolare importanza il fatto che il diametro dei pori della parete non è trascurabile rispetto al libero cammino medio delle molecole nel gas () e il fatto che quando il gas scorre tangenzialmente alla parete (come si ha di regola negli impianti) si produce la formazione di uno strato limite nel quale non si ha l'immediato rimescolamento ⁽⁵⁾.

⁽³⁾ W. G. TRAWICK and A. S. BERMAN: *Report A.E.C. K-1236* (1956).

⁽⁴⁾ R. A. W. HAUL: *Naturwiss.*, **41**, 255 (1954).

⁽⁵⁾ W. G. POLLARD and R. D. PRESENT: *Phys. Rev.*, **73**, 762 (1948); W. G. POLLARD and A. J. DE BÉTHUNE: *Phys. Rev.*, **75**, 1050 (1949); v. anche: P. CALDIROLA e L. SELMI: *Rapporto CISE* n. 41 (1954).

⁽⁶⁾ P. CALDIROLA: *Rapporto CISE* n. 34 (1953). L'esistenza di questo effetto è stata provata da G. PERONA con esperienze eseguite presso i laboratori del CISE [cfr. G. PERONA: *International Symposium on Isotope Separation* (Amsterdam, 1957)].

⁽²⁾ Questo rapporto è stato valutato in base a considerazioni teoriche. In pratica è più conveniente ricavare sperimentalmente la sua dipendenza dalla temperatura.