

Трансформация образцов водяного геля в жидком гелии

А.М. Кокотин, Л.П. Межов-Деглин

Институт физики твердого тела РАН, Черноголовка Московской обл., 142432, Россия
E-mail: mezhov@issp.ac.ru

Статья поступила в редакцию 27 ноября 2002 г.

Обнаружено, что форма и строение образцов водяного геля, которые образуются при конденсации газообразного ^4He с примесью паров воды на поверхности сверхтекучего He II, охлажденного до 1,4 К, существенно зависят не только от условий набора смеси, но и от конструкции экспериментальной ячейки. Приведены результаты наблюдений за эволюцией образцов, приготовленных в широкой ячейке диаметром 29 мм при малой скорости набора смеси.

PACS: 67.40.-Yv, 68.45.Da

1. Введение

В данном сообщении кратко обсуждаются результаты изучения свойств образцов примесь–гелиевого водяного конденсата (водяного геля), которые образуются в сверхтекучем He II при конденсации потока газообразного ^4He с примесью паров воды на поверхности жидкости, охлажденной до 1,4 К. Наблюдения проводили в двух ячейках различной конструкции, причем во второй ячейке площадь поверхности жидкости, на которой конденсируется газовый поток, более чем в 4 раза превосходила площадь поверхности He II в первой ячейке. Обнаружено, что увеличение диаметра рабочей ячейки приводит к качественному изменению формы и структуры образующихся в He II образцов, т.е. кинетика процессов, определяющих формирование образца примесь–гелиевого конденсата в He II, существенно зависит от диаметра ячейки и условий набора, в первую очередь от разности давлений ΔP внутри ячейки и во внешнем дьюаре, которая определяет скорость потока газа.

Сравнение результатов наблюдений в разных ячейках указывает, что общим для всех исследованных образцов водяного геля является то, что область существования конденсата ограничена гелиевыми температурами, а распад образца сопровождается образованием мелкозернистого ледяного порошка (по-видимому, аморфного льда) на дне и отдельных зерен на стенках стеклянной ячейки. Суммарный объем зерен, образующихся при распа-

де, примерно на два порядка меньше объема исходного конденсата, следовательно, содержание воды в объеме примесь–гелиевого конденсата не превышает 10^{20} молекул/см³. Температура, при которой наблюдается распад, сильно зависит от давления и свойств окружающей среды: в паре над сверхтекучей жидкостью извлеченные из He II образцы начинают распадаться при нагреве выше 1,8 К, а в объеме жидкости они могут существовать и в нормальной жидкости He I, причем температура, при которой наблюдается активный распад водяного конденсата в He I, сильно зависит от давления (напомним, что в отличие от сверхтекучей жидкости, вдоль столба нормальной жидкости может существовать градиент температуры порядка 1 К/см; это наблюдается, например, при отключении откачки паров и напуске в дьюар с He I теплого ^4He из сети). При давлении паров над жидкостью $P \approx 200$ Торр образцы начинают распадаться при $T \approx 2,5$ К, а с повышением давления в дьюаре до 760 Торр температура распада повышается до 4 К.

Как указано нами в работах [1–3], сравнение результатов наших исследований с имеющимися в литературе данными (см., например, сообщения Хмеленко с коллегами [4] и Попова с коллегами [5] и литературу в них) дает основания полагать, что в плотном паре над поверхностью He II отдельные молекулы H_2O слипаются в кластеры, средним диаметром порядка нескольких нанометров, так что образующийся в He II примесь–гелиевый конденсат

(водяной гель) состоит из нанокластеров воды, окруженных слоем отвердевшего гелия (ван-дер-ваальсовых комплексов), которые образуют дисперсную систему водяного геля, а заполняющий поры между кластерами сверхтекучий ^4He служит дисперсионной средой.

2. Экспериментальные результаты и обсуждение

Образцы в узкой ячейке

В первой серии экспериментов [1–3] измерения проводили в цилиндрической стеклянной ячейке внутренним диаметром 9 мм. Было обнаружено, что при малой скорости набора газовой смеси ($\Delta P \sim 0,2\text{--}0,5$ Торр) под поверхностью сверхтекучего ^4He , охлажденного до 1,4 К, образуется полупрозрачное облако конденсата. Облако медленно смещается вниз и со временем порядка 10 мин трансформируется в неподвижный айсберг овальной формы средним диаметром, равным диаметру ячейки, подвешенный в объеме жидкости на стенках ячейки.

При постоянной температуре форма айсберга оставалась практически неизменной в течение нескольких часов. Однако при повышении температуры жидкости до 1,8 К видимый диаметр айсберга монотонно уменьшался на $\sim 10\text{--}20\%$, айсберг скользил вниз вдоль стенок ячейки и повисал на термометрах, установленных внутри ячейки. При дальнейшем повышении температуры переход жидкости от ^4He к ^3He не сопровождался заметным изменением объема образцов.

Извлеченные из сверхтекучей жидкости «сухие» айсберги в атмосфере газообразного ^4He при давлении, близком к давлению насыщенных паров над ^4He , распадались при нагреве выше 1,8 К. Распад сопровождался образованием мелкозернистого ледяного порошка на дне ячейки и выделением довольно большого количества газообразного гелия. Это объясняет причины наблюдавшихся скачков айсбергов при плавном понижении уровня жидкости: верхняя часть неподвижного айсберга могла на 1–2 мм выступать над поверхностью ^4He , а затем айсберг «нырял» вниз и вновь повисал на расстоянии около 1 см под поверхностью жидкости.

Повторяя процесс набора несколько раз, можно было приготовить несколько айсбергов, располагавшихся один над другим в объеме ^4He . При быстром понижении уровня ^4He распад выступающей над поверхностью жидкости части верхнего айсберга мог привести к скачкообразному повышению давления в замкнутой ячейке до ~ 20 Торр. В результате жидкость вместе с плавающими в ячейке айсбергами

выталкивалась через тонкое (~ 1 мм) отверстие в дне ячейки в наружную пробирку, заполненную ^4He . Экструзия айсбергов диаметром ~ 6 мм через тонкое отверстие приводила к распаду конденсата и образованию мелкодисперсного порошка, который оседал на дне пробирки.

Как было отмечено во введении, в объеме ^4He I при давлении паров над жидкостью $P \approx 200$ Торр айсберги распадались «на глазах» при повышении температуры окружающей жидкости до 2,5 К. Давление насыщенных паров ^4He при этой температуре около 78 Торр, так что распад конденсата не сопровождается образованием пузырьков газообразного ^4He , которые можно наблюдать при распаде образцов геля в паре над ^4He II в замкнутой ячейке, частично заполненной жидкостью и сообщаемой с наружной пробиркой через тонкое отверстие в доньшке ячейки. С увеличением давления над столбом ^4He I в ячейке до 760 Торр температура распада айсбергов возрастала до 4 К.

Возникновение низкочастотных термоакустических осцилляций в рабочей ячейке в области перехода жидкости из сверхтекучего в нормальное состояние сопровождалось колебаниями уровня ^4He I в ячейке и, соответственно, вертикальными колебаниями айсберга, увлекаемого нормальной жидкостью. Отсюда удалось оценить, что плотность айсберга не более чем на 3% выше плотности окружающей жидкости, что согласуется с приведенными выше оценками содержания воды в примесь-гелиевом конденсате по соотношению объемов айсбергов и образующегося при их распаде ледяного порошка.

И, наконец, последнее. При большой скорости набора примеси ($\Delta P \geq 1$ Торр) вдоль границы раздела ^4He II – пар от стенок ячейки к центру начинает нарастать полупрозрачный слой конденсата, хорошо смачиваемого сверхтекучей жидкостью. Если процесс набора продолжать, то после образования сплошного слоя конденсата на поверхности жидкости давление в ячейке скачком возрастает более чем на порядок, и все содержимое ячейки (конденсат вместе с ^4He II) выталкивается из объема ячейки в наружную пробирку через отверстие в доньшке ячейки. Затем давление в ячейке падает, сверхтекучий ^4He II из пробирки вновь заполняет ячейку, а на дне пробирки собирается слой ледяного порошка. При этом в ряде случаев нам удалось наблюдать также появление в объеме ^4He II в наружной пробирке отдельных фрагментов нераспавшегося конденсата размерами порядка 1–2 мм, которые плавали под поверхностью и «ныряли» в глубь жидкости при плавном понижении уровня ^4He II в пробирке.

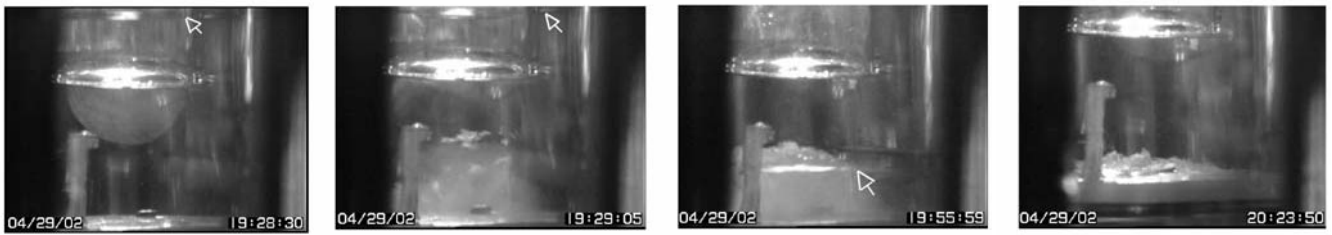


Рис. 1. Формирование и эволюция образца водяного геля на тефлоновой подложке в широкой ячейке. Стрелки на трех первых кадрах указывают положение уровня сверхтекучего He II в ячейке. Температура жидкости поддерживается постоянной $T \approx 1,40$ К. Кадры слева направо: 1 — облако водяного геля на выходе из трубки набора; 2 — образец, образовавшийся при падении облака на подложку; 3 — эволюция формы образца с понижением уровня He II; 4 — распад примесь-гелиевого водяного конденсата в парах гелия, температура подложки 2,18 К, температура на уровне верхнего термометра 2,6 К, температура He II на дне рабочей ячейки 1,4 К, т.е. давление паров в ячейке $P \approx 2,16$ Торр.

Образцы в широкой ячейке

Обсуждение свойств водяного геля с В.В. Несвижевским, специалистом в области физики холодных нейтронов, привело к идее попытаться использовать пропитанные He II пористые нанокластерные системы, охлажденные до температуры ~ 1 мК, для накопления и хранения ультрахолодных нейтронов [6]. Естественно, что для этого потребуются большие образцы объемом порядка 10^3 см³, приготовленные из веществ, практически не поглощающих нейтроны (тяжелая вода, дейтерий, кислород и т.д.).

В качестве первого шага к реализации этой идеи мы решили выяснить влияние размеров ячейки на свойства образцов водяного конденсата. Образцы приготавливали в тонкостенной стеклянной пробирке внутренним диаметром 2,9 см и высотой 10 см, в нижней части которой располагалась плоская тефлоновая шайба (подложка) диаметром 2,8 см. Два резистивных угольных термометра, установленных в центре шайбы и на расстоянии ~ 1 см над ее поверхностью, позволяли контролировать распределение температуры в рабочей ячейке. Поток газообразного ⁴He с примесью паров воды поступал по стеклянной трубке внутренним диаметром 1,9 см, нижний торец которой помещали на расстоянии 2–4 см над поверхностью подложки. Схема приготовления смеси осталась прежней: газообразный гелий при комнатной температуре пропускали сквозь слой воды, далее поток газа с примесью паров воды через переходную муфту с запорным вентилем, расположенную в верхней части прибора, направляли в стеклянную трубку.

Как показали наблюдения, оптимальной для наших целей оказалась ситуация, когда уровень сверхтекучего He II в рабочей ячейке в период набора смеси находился на расстоянии ~ 1 см выше края трубки набора, а разность давлений паров в трубке и

в наружном дьюаре ΔP составляла $\sim (0,1-0,3)$ Торр. Температуру He II, равную 1,4 К, во время приготовления образцов поддерживали постоянной с точностью до сотых градуса. Изменение условий набора заметно сказалось на форме и строении образующихся образцов. В большинстве случаев, как только открывали вентиль набора смеси, на поверхности тефлоновой шайбы под трубкой начинал расти образец в форме снежной горки или, точнее, столбика, который образовывали падающие из трубки хлопья размером порядка 1 мм и колеблющиеся эластичные нити длиной до 1 см. Диаметр основания столбика был близок к диаметру трубки, а высота определялась временем набора (верхний край столбика мог входить в трубку). Наряду с хлопьями и нитями мы наблюдали также образование в трубке полупрозрачных облаков конденсата характерными размерами, близкими к диаметру трубки, которые формировались под поверхностью жидкости и медленно смещались вниз вдоль стенок трубки (см. кадр 1 на рисунке, стрелка указывает положение уровня He II). Для наглядности мы специально подобрали более редкий случай, когда в процессе набора в первый момент времени в трубке формируется овальное облако, которое затем выходит из трубки (кадр 1) и медленно опускается на подложку (кадр 2), так как на фоне горки, образованной хлопьями, различить на фотографии овальный айсберг было бы довольно трудно. На приведенных фотографиях хорошо видны расположенный в центре подложки термометр и термометр, укрепленный на столбике над поверхностью тефлоновой шайбы. Цифры в правом углу указывают реальное время наблюдений, а в левом — дату.

Если облако, точнее овальный айсберг, на выходе из трубки падало на горку, образованную водяными хлопьями, то на поверхности горки образовыви-

валась вмятина (аналогично падению плотного снежка на снежную поверхность), т.е. механические свойства и плотность столбика и айсберга заметно различались. Нагрев жидкости до температуры $T > 1,8$ К приводил к частичной гомогенизации подобных образцов. Однако во всех случаях диаметр образца был близок к диаметру трубки, так что нам не удалось, как хотелось бы, приготовить образец, который бы равномерно заполнял всю поверхность подложки.

Эволюцию формы образца при плавном понижении уровня He II при постоянной температуре $T \approx 1,40$ К иллюстрирует кадр 3. Видно, что в паре над жидкостью выступающая часть образца постепенно распадается, так что высота столбика постепенно уменьшается. При этом на поверхности образца можно наблюдать появление зерен аморфного льда, которые остаются и после полного распада конденсата (кадр 4) и повышении температуры подложки выше 4,2 К. Температура сверхтекучего He II в данном эксперименте поддерживалась постоянной, но на последнем кадре уровень жидкости находится почти на 1 см ниже тefлоновой шайбы, так что температура, зарегистрированная термометром в центре подложки, составляла 2,18 К, а на уровне верхнего термометра — 2,6 К.

При больших скоростях набора ($\Delta P > 1$ Торр) на границе раздела He II — пар образовывался плоский слой конденсата, растущий от стенок к центру трубки. Как и в узкой ячейке, образование сплошного слоя на границе раздела фаз приводило к скачкообразному росту давления в трубке и разрушению слоя конденсата.

В двух пробных экспериментах мы заменили воду (сильнополярная жидкость, склонная к образованию кластеров в насыщенном паре даже при комнатных температурах) на этаноловый спирт (слабополярная жидкость, твердеющая при давлении насыщенных паров при заметно более низкой температуре). Как и в экспериментах с узкой ячейкой, переход от воды к спирту не привел к качественному изменению свойств примесь–гелиевого конденсата, т.е. для приготовления образца, характерными размерами $10 \times 10 \times 10$ см, необходима дальнейшая модернизация схемы приготовления образцов. Возможно, для получения образцов нужной формы конденсат придется запрессовывать в рабочую ячейку, как это сделано в [4]. В ближайшее время мы планируем провести также серию экспериментов с образцами дейтерия в широкой ячейке.

Заключение

Исследования свойств примесь–гелиевых конденсатов, т.е. новых нанокластерных систем, суще-

ствующих только при низких температурах, в последние годы заметно расширяются. Изучаются возможности использования этих материалов в современной науке и в технологии, например, для исследования кинетики реакций между свободными радикалами при низких температурах и выяснения возможности изготовления низкотемпературных топливных элементов, содержащих свободные радикалы, на базе гелий–примесных конденсатов [4], для накопления и хранения ультрахолодных нейтронов [6]), или, например, для получения взвешенных облаков ультрадисперсного металлического порошка испарением металлической навески в газобразном ^4He при гелиевых температурах, что используется в настоящее время для визуализации распределения вихрей Абрикосова в сверхпроводниках.

Опыт наших исследований показывает, что строение и свойства образцов примесь–гелиевых конденсатов существенно зависят от способа приготовления и свойств окружающей среды. В связи с этим представляется весьма интересным провести эксперименты по приготовлению и изучению свойств подобных конденсатов в условиях микрогравитации, где строение левитирующих в сверхтекучей жидкости образцов в первую очередь будет определяться особенностями взаимодействия между ван-дер-ваальсовскими комплексами, которые образуют нейтральные нанокластеры, покрытые слоем отвердевшего гелия.

Данные исследования проведены при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Правительства Московской области (грант 01-02-97037) и Минпромнауки РФ.

Авторы благодарны коллегам по лаборатории Г.В. Колмакову, А.А. Левченко, В.Б. Ефимову, А.В. Лохову, В.Н. Хлопинскому и М.Ю. Бражникову за внимание и помощь в работе и В.В. Несвижевскому за полезные обсуждения.

1. Л.П. Межов-Деглин, А.М. Кокотин, *Письма ЖЭТФ* **70**, 744 (1999).
2. А.М. Кокотин, Л.П. Межов-Деглин, *ФНТ* **28**, 235 (2002).
3. Л.П. Межов-Деглин, А.М. Кокотин, *ПТЭ*, №2, 159 (2001).
4. S.I. Kiselev, V.V. Khmelenko, and D.M. Lee, *Fiz. Nizk. Temp.* **29**, 678 (2003).
5. E.A. Popov, J. Floranta, J. Ahokas, and H. Kunttu, *Fiz. Nizk. Temp.* **29**, 684 (2003).
6. V.V. Nesvizhevsky and L.P. Mezhev-Deglin, *Thermalization of Neutrons in Gels of Ultracold Particles*, in: *The Third Chernogolovka Workshop on Low Temperature Physics in Microgravity Environment CWS-2002, Book of Abstracts*, Chernogolovka, Russia (2002), p. 40.

Transformation of watergel samples in liquid
helium

A.M. Kokotin and L.P. Mezhov-Deglin

It is found that the form and the structure of
watergel samples grown by condensing ^4He gas,

admixed with water vapours, on a superfluid
He II surface cooled below 1.6 K essentially de-
pend not only on conditions of taking mixture
components but also on experimental cell con-
struction. The results on evolution of the sam-
ples prepared in a wide cell 29 mm in dia with a
small rate of mixture taking are considered.