

СОСУЩЕСТВОВАНИЕ СВЕРХТЕКУЧЕГО И ТВЕРДОГО ГЕЛИЯ В АЭРОГЕЛЕ

И. В. Калинин^a, Е. И. Кац, М. Коза^{b}, В. В. Лаутер^c, Х. Лаутер^{b**}, А. В. Пучков^{a***}*

^a *Физико-энергетический институт
249033, Обнинск, Россия*

^b *Institute Laue – Langevin
38042, Grenoble Cedex 9, France*

^c *Oak Ridge National Laboratory, TN 37831, USA*

Поступила в редакцию 30 октября 2009 г.

Обсуждаются результаты недавних нейтронографических исследований твердого гелия в кремниевом аэрогеле. Ранее [1] нами было обнаружено существование сверхтекучей фазы в твердом гелии при температуре ниже 0.6 К и давлении 51 бар, хотя согласно фазовой диаграмме, при этих условиях гелий должен находиться в твердом состоянии. Настоящая работа является продолжением указанных выше исследований, главной целью которых являлась проверка обнаруженного явления и установление основных параметров сверхтекучей фазы. В результате анализа экспериментальных данных определена температура сверхтекучего перехода из твердого гелия в сверхтекучий — $T_C = 1.3$ К. Параметры возбуждений сверхтекучей фазы (время жизни, интенсивность и энергия) имеют сходную с объемным гелием температурную зависимость. Сверхтекучая фаза существует во всем измеренном диапазоне температур от $T = 0.05$ К до T_C , является неравновесной и исчезает при T_C .

Метод рассеяния медленных нейтронов в исследованиях жидкого гелия давно доказал свою эффективность [2]. Наличие спектра возбуждений, характерного только для сверхтекучей жидкости (кривой Ландау [3]), принято считать доказательством того, что жидкий гелий находится в сверхтекучем состоянии. В 2007 г. авторами настоящей работы были проведены нейтронографические исследования твердого гелия в пористой среде [1], стимулированные открытием явления потери момента инерции («spersolidity») [4]. Целью исследований были поиски бездиссипативного переноса массы в твердом гелии, предсказанного в фундаментальной работе Андреева и Лифшица [5]. В результате проведенных ранее измерений было обнаружено существование сверхтекучей фазы в твердом гелии, находящемся в аэрогеле при $T < 0.6$ К и $P = 51$ бар, т. е. в таких термодинамических условиях, в которых ее не должно было бы быть.

* М. Kozá

** H. Lauter

*** E-mail: puchkov@ippe.ru

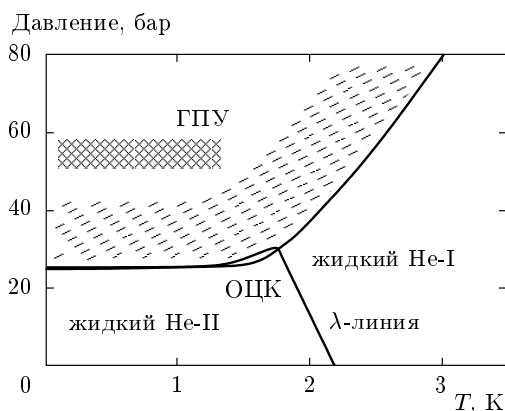


Рис. 1. Фазовая диаграмма состояний ^4He . Заштрихована область сосуществования жидкой и твердой фаз в гелии, находящемся в матрице кремниевое аэрогеле. Горизонтальная полоса с двойной штриховкой в области фазовой диаграммы, соответствующей полному затвердеванию гелия в аэрогеле — область, в которой экспериментально обнаружена сверхтекучая жидкая фаза

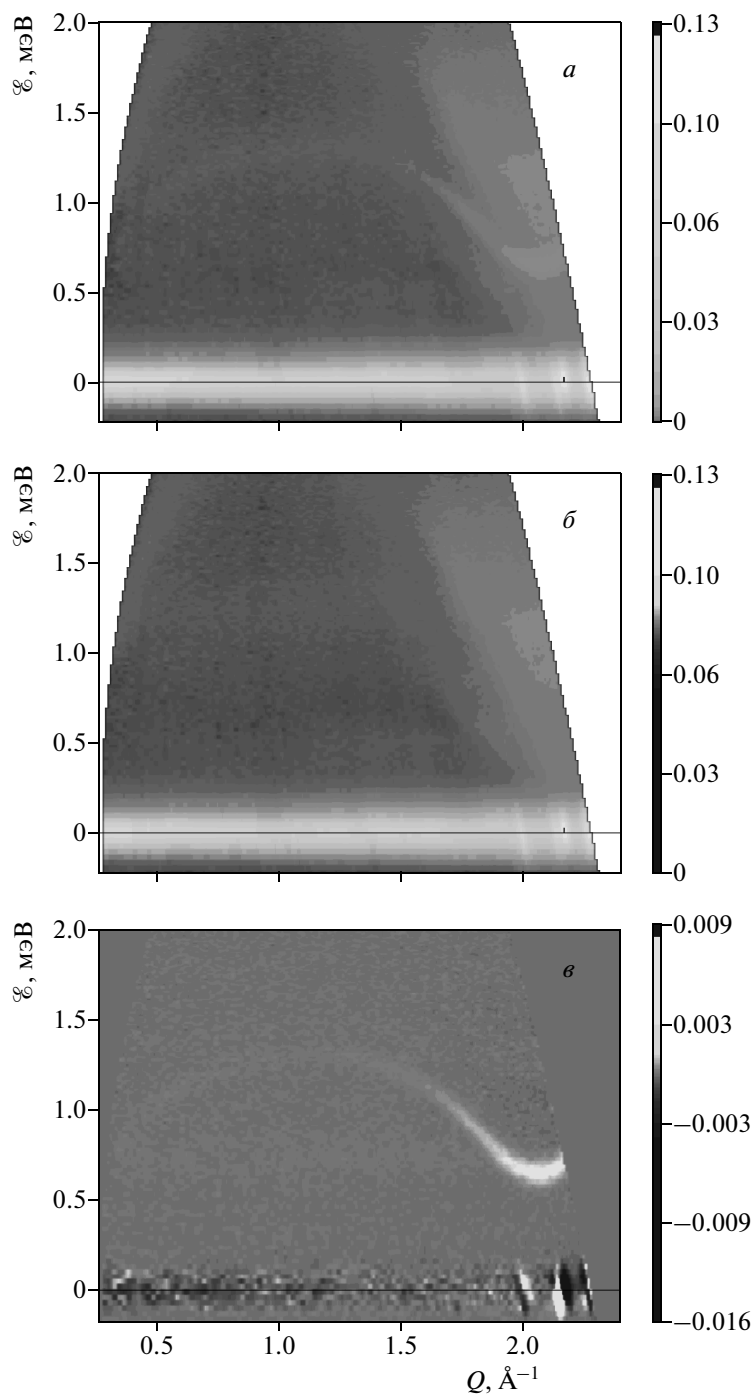


Рис. 2. Экспериментальные спектры нейтронов, рассеянных твердым гелием в аэрогеле при давлении 57 бар и $T = 0.4$ К, представленные в виде карт интенсивности: *a* — до нагрева, *б* — после нагрева выше T_C . Характер брэгговских пиков после нагрева не изменился и соответствует ГПУ-фазе. На рис. *в* показана разность спектров *a* и *б*. Хорошо видна дисперсионная кривая Ландау, характерная для сверхтекучей фазы гелия. Изменения интенсивности пиков брэгговского рассеяния связано с переходом сверхтекучей фазы в твердое состояние (ГПУ-фаза) при переходе через T_C (1.3 К)

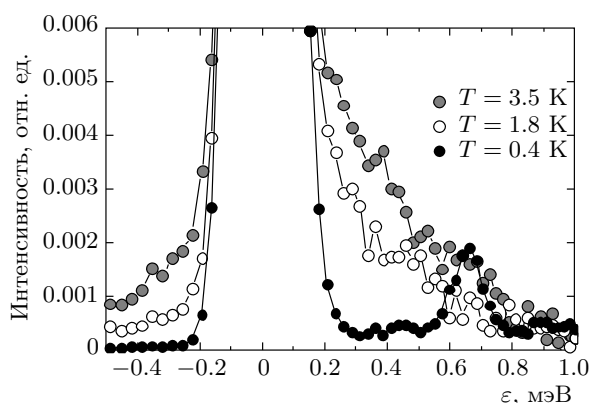


Рис. 3. Трансформация спектра за счет возникновения сверхтекучей фазы в твердом гелии, находящемся под давлением 57 бар в аэрогеле. Пик в спектре при передаче энергии около 0.65 мэВ соответствует рассеянию нейтронов с рождением ротона. Ширина пика примерно равна функции разрешения спектрометра. Это означает, что время жизни возбуждения велико, что характерно только для сверхтекучей фазы

На рис. 1 приведена хорошо известная фазовая диаграмма ^4He . Фазовая диаграмма гелия, помещенного в пористую среду, будет отличаться от диаграммы объемного гелия и зависеть от свойств пористой среды. Структуру аэрогеля можно рассматривать как огромную открытую поверхность, формируемую порами различного размера от нескольких ангстрем до тысяч. Именно поэтому аэрогель был выбран в качестве пористой среды, усиливающей поверхностные эффекты, но не вносящей дополнительного параметра порядка, связанного с выделенным преобладающим размером поры (как, например, в пористом стекле викоре). По этим же причинам аэрогель использовался в нейтронографических исследованиях поверхностных возбуждений в пленках гелия атомарной толщины, моделирующих квазидвумерную систему [6, 7]. Характер распределения пор по размерам определяет особенности фазовой диаграммы гелия в аэрогеле. В порах большого размера поверхностные эффекты вносят незначительный вклад в свойства помещенного в них гелия и они мало отличаются от свойств объемного ^4He . В маленьких порах эффекты размерности существенны, в них гелий затвердевает при больших давлениях, что приводит к сосуществованию жидкой и твердой фаз, показанному на фазовой диаграмме (рис. 1). В наших измерениях использовался один и тот же кремниевый аэрогель пористостью 95 %,

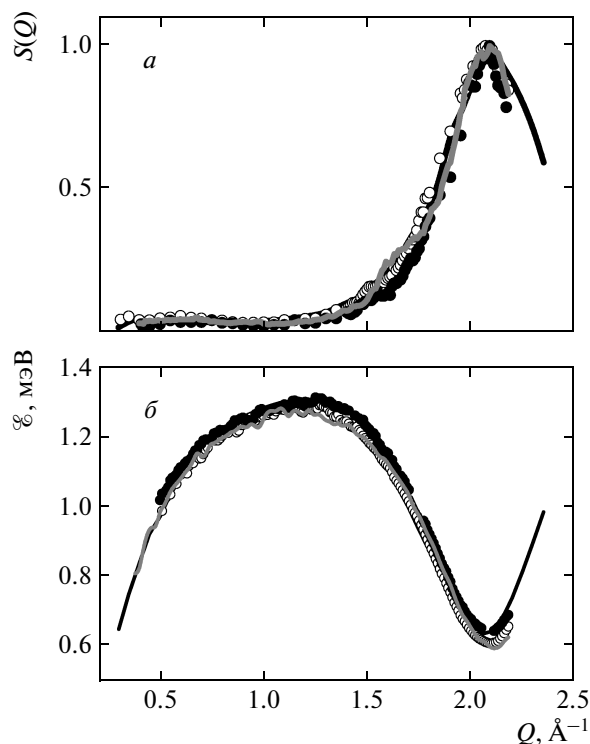


Рис. 4. *а)* Сравнение структурного фактора обнаруженной сверхтекучей фазы при давлениях 57, 51 и 25 бар. Сплошной черной кривой показан структурный фактор объемного жидкого гелия при $T = 0.5$ К и давлении 20 бар [8], сплошная серая кривая соответствует $P = 51$ бар, $T = 0.05$ К [1], \bullet — $P = 57$ бар, $T = 0.05$ К, \circ — $P = 25$ бар, $T = 0.01$ К. Амплитуда структурного фактора нормирована на единицу. *б)* Сравнение дисперсионных кривых сверхтекучей фазы, обнаруженной в твердом гелии, помещенном в аэрогель с дисперсионной кривой объемного жидкого гелия под давлением

отожженный в течение 24 часов в вакууме около 10^{-4} мм. рт. ст. при температуре 600°C .

Настоящие исследования, так же как и предыдущие, проводились на спектрометре IN6 (Гренобль, Франция) [8]. Образец представлял собой тонкостенный медный контейнер с кремниевым аэрогелем, который был полностью заполнен жидким гелием. Твердый гелий был получен методом блокировки капилляра. Давление в твердой фазе определялось по положению максимумов брэгговских пиков, регистрировавшихся одновременно с неупругим рассеянием нейтронов.

В результате подробных экспериментов было установлено сосуществование сверхтекучей и твердой фаз гелия при давлениях 35, 42, 52 и 57 бар и

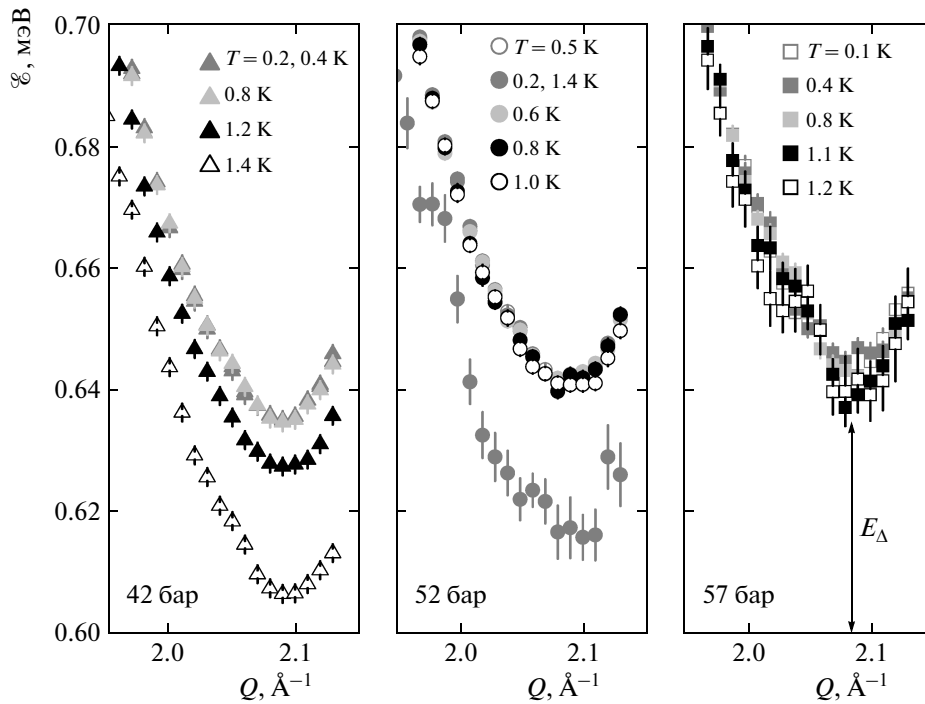


Рис. 5. Ротонный минимум обнаруженной сверхтекучей фазы для различных давлений и температур

температурах ниже температуры сверхтекучего перехода T_λ . При давлении 25 бар гелий находился полностью в жидком состоянии во всем интервале температур 0.05–3 К.

При давлении 57 бар сверхтекучая фаза появлялась при температуре 1.3 К и ее количество возрастало с понижением температуры. Экспериментальные спектры в представлении карты интенсивности показаны на рис. 2. Такое представление несет в себе всю информацию о структурном динамическом факторе $S(Q, \mathcal{E})$ в доступном в эксперименте диапазоне динамических переменных — переданных импульса нейтрона Q и энергии \mathcal{E} при рассеянии. Оттенками серого цвета показана интенсивность рассеяния. На рис. 2в приведен результат вычитания спектров, полученных при давлении 57 бар и $T = 0.4$ К до и после нагрева выше $T = 1.4$ К. Разностный спектр удобно использовать для дальнейшего анализа обнаруженной фазы, так как из него автоматически удалено рассеяние, не связанное со сверхтекучим гелием. Хорошо видна дисперсионная кривая Ландау, характерная для сверхтекучей фазы. Изменения интенсивности брэгговских пиков (рассеяние с нулевой передачей энергии) вызваны переходом сверхтекучей фазы в твердое состояние (ГПУ-фаза).

Характерные спектры неупругого рассеяния нейтронов (профили разрезов карт интенсивности, показанных на рис. 2, $S(Q = \text{const}, \mathcal{E})$) и дисперсионные кривые приведены соответственно на рис. 3 и 4. При нагреве образца до температуры 1.3 К сверхтекучая фаза полностью исчезала, тогда как количество твердой фазы незначительно увеличивалось, что проявлялось в изменении интенсивности брэгговского рассеяния. Повторное охлаждение от T_C до $T = 0.05$ К не приводило к появлению сверхтекучей фазы.

Повторный нагрев до температуры 3 К и быстрое охлаждение образца опять приводили к возникновению сверхтекучей фазы при $T < T_C$ и ее существованию при температурах $0.05 \text{ К} < T < T_C$ без замеченного гистерезиса. Таким образом, обнаруженное состояние является неравновесным.

Структурный фактор жидкости $S(Q)$ (где Q — переданный импульс или волновой вектор), отражающий распределение флуктуаций плотности на атомном уровне, может быть получен из экспериментального структурного динамического фактора $S(Q, \mathcal{E})$ интегрированием по переданной энергии \mathcal{E} (пределы интегрирования при этом ограничены областью пика однофононного рассеяния). Сравнение $S(Q)$ сверхтекучей фазы для различных образцов

приведено на рис. 4а. Положения максимумов структурных факторов, характеризующие среднее межатомное расстояние, в пределах ошибок совпадают, несмотря на существенное различие в величине давления в образце. Это говорит о том, что формирование сверхтекучей фазы происходит специфическим образом, с участием поверхностных эффектов, трансформирующих потенциал взаимодействия атомов гелия. Особую роль в формировании структурного фактора играет структура первых слоев атомов гелия, образующихся при адсорбции атомов на поверхности подложки. Так, в первом эксперименте [1] структурный фактор имел особенность при передаче импульса порядка 1.65 \AA^{-1} и тогда же отчетливо наблюдались поверхностные возбуждения (риплонны и поверхностные ротонны), хорошо изученные на этом же образце аэрогеля ранее [7]. В настоящем эксперименте указанная выше особенность наблюдалась менее выражено, при меньших переданных импульсах и не зависела от наличия твердой фазы. Можно предположить, что эта особенность структурного фактора определяется параметрами первых слоев атомов гелия, адсорбируемых поверхностью подложки, которые зависят, прежде всего, от термодинамического режима и скорости адсорбции. На это указывает и практическое отсутствие поверхностных возбуждений в настоящем эксперименте. Понятно, что для изменения структуры созданных поверхностных слоев недостаточен нагрев до $T = 3 \text{ К}$, а требуется более высокая температура, необходимая для десорбции гелия поверхностью кремниевого аэрогеля. Необходимо заметить, что операция десорбции образца аэрогеля занимает значительное время, так как требует нагрева образца до азотной температуры, что практически невозможно осуществить в одном цикле измерений на нейтронном пучке. Поэтому мы располагаем в настоящее время результатами измерений, фактически, двух «разных» образцов: описанных в работе [1] и в настоящей работе. Несмотря на то что в измерениях при давлениях 51 и 57 бар использовался один и тот же образец, отчетливо видны различия экспериментальных структурных факторов, особенно при передачах импульса, соответствующего переходной максон-ротонной области. Это свидетельствует, по-видимому, о заметном влиянии условий формирования кристаллической фазы на параметры образующейся в ней сверхтекучей фазы.

Поведение энергии ротонного минимума E_{Δ} (или ротонной щели) — важнейшей характеристики квантовой сверхтекучей системы, также существенно зависит от условий «приготовления» образца, упоми-

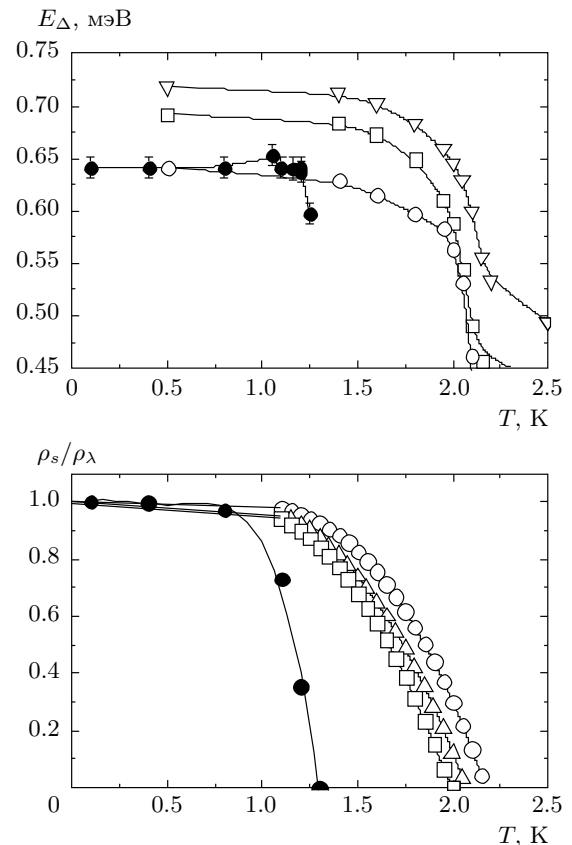


Рис. 6. а) Температурная зависимость энергии ротонного минимума обнаруженной фазы при давлении 57 бар (●) и объемного гелия под давлением 5 (▽), 10 (□) и 20 бар (○) [9]. б) Температурная зависимость относительной плотности сверхтекучей компоненты объемного гелия из работы [10] для давления насыщенных паров (○), плотности 0.1611 г/см^3 , соответствующей области давлений 10–12 бар (△) и плотности 0.1697 г/см^3 (□), соответствующей давлению 18–20 бар в измеренном температурном диапазоне. Линейная экстраполяция данных к единице при $T = 0$ показана сплошными линиями. Темными кружками показана интенсивность возбуждений в ротонной области дисперсионной кривой обнаруженной сверхтекучей фазы при давлении 57 бар. Интенсивность нормирована на единицу при $T = 0.1 \text{ К}$. Сплошная кривая — аппроксимация данных полиномом

навшихся выше. Обращает на себя внимание очень слабая (в отличие от объемного гелия) зависимость E_{Δ} от давления и заметное различие энергии ротонного минимума для «разных» образцов — из работы [1] и описываемого в данной работе (рис. 5). Температурная зависимость $E_{\Delta}(T)$, которую можно наблюдать на рис. 5 также очень незначительна для

образца при давлении 57 бар. Температурная зависимость $E_{\Delta}(T)$ начинает проявляться при уменьшении давления образца до соответствующей области сосуществования жидкой и твердой фаз, что объясняется наличием объемного жидкого гелия при этом давлении. Сравнение температурной зависимости энергии ротонного минимума обнаруженной фазы и объемного гелия [9] показано на рис. 6а.

Если предположить, что интенсивность «ротонного» пика, показанного на рис. 3 пропорциональна количеству сверхтекучей компоненты, то можно сравнить температурные зависимости относительной плотности сверхтекучей компоненты обнаруженной фазы и объемного гелия под давлением. Такое сравнение показано на рис. 6б. Нельзя не отметить сходный характер температурных зависимостей. Наконец, значение температуры перехода в сверхтекучее состояние новой фазы, T_C , при давлении 57 бар находится в хорошем согласии с температурой перехода, полученной линейной экстраполяцией известной зависимости T_{λ} объемного гелия от давления [11].

Таким образом, подтверждено существование неравновесной сверхтекучей фазы в твердом гелии, помещенном в пористую среду. Определена температура сверхтекучего перехода из твердого гелия в сверхтекучий — $T_C = 1.3$ К. Параметры возбуждений сверхтекучей фазы (время жизни, интенсивность и энергия) имеют сходную с объемным гелием температурную зависимость. Сверхтекучая фаза сосуществует с твердой фазой во всем измеренном диапазоне температур от 0.05 К до T_C и исчезает при T_C .

Для понимания механизма возникновения неравновесной сверхтекучей фазы и построения пространственной модели сосуществования сверхтекучей и

твердой фаз требуются дальнейшие эксперименты и квантово-механические расчеты, учитывающие особенности ограниченной геометрии.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ и Правительства Калужской области (проект № 09-02-97501).

ЛИТЕРАТУРА

1. И. В. Калинин, Е. И. Кац, М. Коза и др., Письма в ЖЭТФ **87**, 743 (2008).
2. H. Palevsky, K. Otnes, and K. E. Larsson, Phys. Rev. **112**, 11 (1958).
3. L. D. Landau, J. Phys. USSR **11**, 91 (1947).
4. E. Kim and M. H. W. Chan, Nature (London) **427**, 225 (2004).
5. A. F. Andreev and I. M. Lifshitz, Sov. Phys. JETP **29**, 1107 (1969).
6. H. Lauter, I. V. Bogoyavlenskii, A. V. Puchkov et al., Appl. Phys. A **74**[suppl.], S1547 (2002).
7. И. В. Калинин, Х. Лаутер, М. Коза и др., Кристаллография **52**, 505 (2007).
8. <http://www.ill.eu/in6/home/>.
9. M. R. Gibbs, K. H. Andersen, W. G. Stirling, and H. Schober, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 603 (1999).
10. Б. Н. Есельсон, Л. А. Погорелов, В. И. Соболев и др., УФЖ **19**, 763 (1974).
11. J. H. Vignos and H. A. Fairbank, Phys. Rev. **147**, 185 (1966).