

Нейтроннография поликристаллического ^4He в пористой среде

И. В. Калинин, Е. И. Кац⁺, М. Коза^{*1)}, В. В. Лаутер[×], Х. Лаутер^{×1)}, А. В. Пучков

Физико-энергетический институт им. Лейпунского, 249033 Обнинск, Россия

⁺ Институт теоретической физики им. Ландау РАН, 119334, Москва, Россия

^{*} Institute Laue - Langevin, 38042 Grenoble, Cedex 9, France

[×] Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN 37831, USA

Поступила в редакцию 5 июля 2013 г.

После переработки 19 июля 2013 г.

Работа посвящена изучению упругой (дифракционной) составляющей сечения рассеяния нейтронов, несущей информацию об атомной структуре твердого гелия, заключенного в кремниевый аэрогель. Анализ кристаллической структуры твердого гелия в пористой среде, проведенный на основе имеющихся нейтроннографических данных, показал, что сверхтекучая фаза локализована внутри гранецентрированной плотноупакованной фазы и не присутствует в объемцентрированном кубическом кристалле. Также установлено, что добавление изотопа ^3He изменяет структуру твердого гелия и не оказывает заметного влияния на формирование сверхтекучей фазы.

DOI: 10.7868/S0370274X13160108

Интерес к исследованию твердого гелия в пористой среде методами нейтроннографии был активизирован открытием в 2004 г. явления суперсолидита (*supersolidity*) [1], вызвавшего вал экспериментальных и теоретических работ. Недавнее нейтроннографическое исследование твердого гелия в пористой среде (кремниевом аэрогеле) привело к открытию существования сверхтекучей фазы внутри кристаллитов твердого гелия [2, 3]. Взаимосвязь этих экспериментальных фактов является в настоящее время предметом дискуссий и стимулом для проведения новых экспериментов. Нейтроннографические исследования, которые привели к обнаружению сверхтекучей фазы внутри твердого гелия, проводились на спектрометре IN6 (Гренобль, Франция) [4]. В этих исследованиях основное внимание уделялось анализу неупругой составляющей нейтронного рассеяния, несущей информацию о динамических особенностях атомных взаимодействий в системе жидкий гелий–твердый гелий–подложка (аэрогель). Анализ температурной и плотностной зависимостей основных параметров обнаруженной сверхтекучей фазы и квантовомеханические расчеты позволили создать модель ее пространственной организации внутри твердого гелия, представляющую собой двухатомный слой сверхтекучего гелия, зажатый между слоями твердого гелия [5]. Одновременно с неупругим

рассеянием нейтронов в эксперименте регистрируется упругая (дифракционная) составляющая, несущая информацию об атомной структуре твердого гелия. Методами нейтроннографии структура объемного ^4He подробно изучалась начиная с 1958 г. [6], в то время как фазовые диаграммы твердого гелия в пористых средах, существенно влияющих на параметры кристаллической структуры гелия, исследованы фрагментарно. В данной работе обсуждаются результаты анализа упругой составляющей и, соответственно, структуры твердого гелия, заключенного в кремниевый аэрогель.

Для создания поликристаллического образца гелия использовался метод блокировки капилляра. В контейнер образца, полностью заполненный кремниевым аэрогелем с 96-процентной пористостью, был сконденсирован жидкий гелий при температуре 2.5 К. При этой температуре гелий является нормальной жидкостью и переходит в сверхтекучее состояние при понижении температуры до 2.17 К (лямбда-точка). Затем создавалось необходимое давление (например, 80 бар) газообразным сверхчистым ^4He . Контейнер закрывался и образец охлаждался до минимальной температуры (в нашем случае 50 мК). По мере охлаждения происходили затвердевание гелия в соответствии с кривой плавления (кристаллизации) и уменьшение давления до тех пор, пока весь жидкий гелий не превращался в твердый. Ожидалось, что вследствие быстрого охлаждения поликри-

¹⁾ M. Koza, H. Lauter.

сталл будет формироваться из мелких разупорядоченных кристаллитов, что будет усиливаться влиянием пористой среды. Затвердевание гелия сопровождается появлением брэгговских пиков на упругой линии (с нулевой передачей энергии), см. рис. 1.

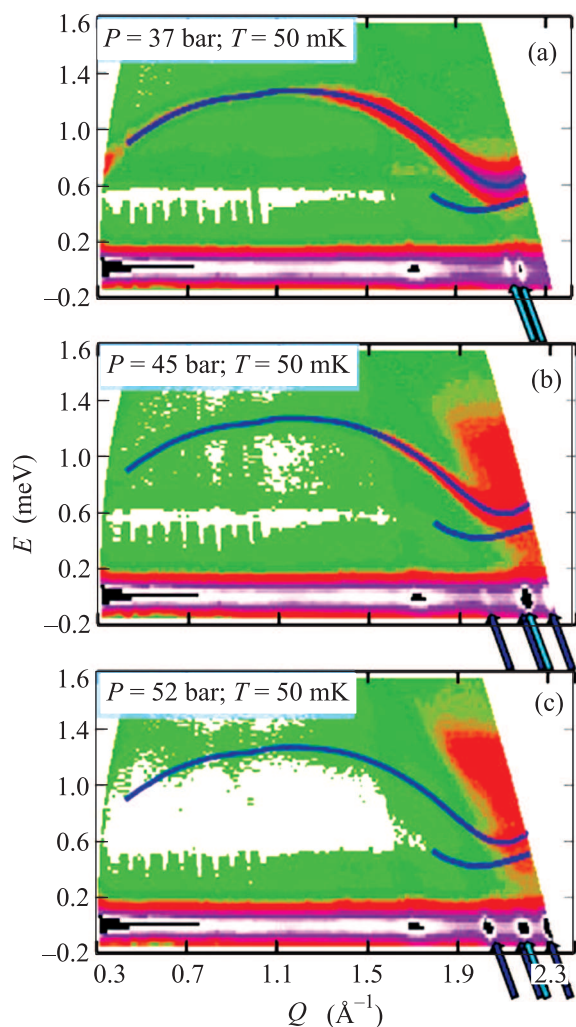


Рис. 1. Карты интенсивности неупругого и упругого рассеяния нейтронов, полученные в измерениях на спектрометре ИН6 (ИЛЛ, Гренобль, Франция) при температуре 50 мК и различных значениях давления в образце. Дифракционные пики расположены на линии нулевой передачи энергии в виде черных пятен. При передачах импульса $Q > 1.9 \text{ \AA}^{-1}$ брэгговские пики, связанные с упругим рассеянием нейтронов на твердом гелии отмечены черными (ГПУ-структура) и серыми (ОЦК-структура) стрелками. На всех трех рисунках для сравнения приведены кривые Ландау для объемного гелия при давлении 20 бар и температуре 0.5 К (сплошные тонкие линии) [7] и ротон-подобные возбуждения, известные из исследований тонких гелиевых пленок на поверхности аэрогеля [8] как поверхностный ротон

Сверхтекучие фазы, свойства которых подробно обсуждались в [3], локализованы внутри твердого гелия и по границе твердый гелий–аэрогель. Предполагается, что сверхтекучий бислой располагается по границе гранцентрированной плотно упакованной (ГПУ) и объемноцентрированной кубической (ОЦК) кристаллических фаз и находится в метастабильном состоянии. Действительно, дифрактограммы, показанные на рис. 2 свидетельствуют о наличии двух

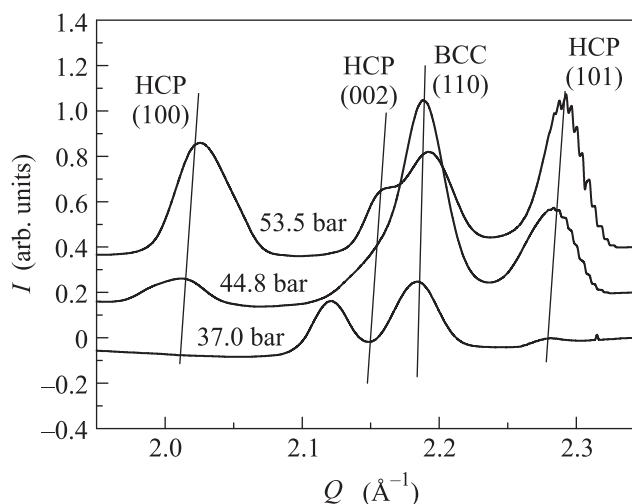


Рис. 2. Дифрактограммы твердого гелия, заключенного в аэрогель, полученные при различном давлении. Прямыми линиями показан результат интерполяции, которая использовалась для определения давления в образце. Для калибровки применялись известные значения волновых векторов, отвечающих брэгговским пикам ГПУ-фазы твердого гелия при давлениях 28 и 67 бар [6, 9]. Для интерполяции дифрактограммы разнесены по шкале ординат на величину, пропорциональную разности давлений. Рассеяние от аэрогеля и контейнера учтено в фоновой составляющей и на дифрактограммах не показано. Искажения пиков при передачах импульса более 2.3 \AA^{-1} связаны с ограничениями области детектирования (максимальный обратный угол рассеяния)

кристаллических структур: ГПУ- и ОЦК-фаз. Существование этих кристаллических структур в твердом гелии уже обсуждалось в [10] и отмечалось в [11]. Укажем, прежде всего, что параметры решетки ГПУ-фазы использовались для определения давления в поликристалле гелия по сдвигу брэгговских пиков, как это показано на рис. 2. Как оказалось, ОЦК-фаза нечувствительна к изменению давления, возможно из-за того, что формируется вблизи подложки и стабилизируется кремниевым аэрогелем. Суммарное увеличение интенсивности брэгговских пиков с

давлением происходит за счет уменьшения количества сверхтекучей фазы [3].

Из ширины дифракционных пиков (с учетом разрешения спектрометра) можно оценить средний размер кристаллитов. Он оказался равным 500 \AA . Это находится в хорошем согласии с данными работы [12], в которой приводится средний размер кристаллитов твердого гелия в аэрогеле 1000 \AA при давлении 60 бар. Однако ОЦК-пик в [12] не наблюдался. Вместе с тем, как видно из рис. 2, интенсивность ОЦК-пика значительно падает при увеличении давления с 45.8 до 53.8 бар. Экстраполяция этой тенденции к давлению 60 бар дает нулевую интенсивность ОЦК-пика, что согласуется с данными [12].

Остановимся теперь на эффекте отжига, который присутствует и в экспериментах с торсионным маятником. В них было показано, что отжиг поликристаллического гелия приводит к исчезновению эффекта “суперсоидити”, или эффекта “неклассического вращательного момента инерции” [8]. Сверхтекучая фаза, ассоциируемая с квазидвумерным ротонном, отжигается при температуре 1.3–1.4 К [3], в то время как фаза, ассоциируемая с поверхностными ротонами, не изменяется и существует при 1.3 К. Эффект отжига продемонстрирован на рис. 3. ГПУ-

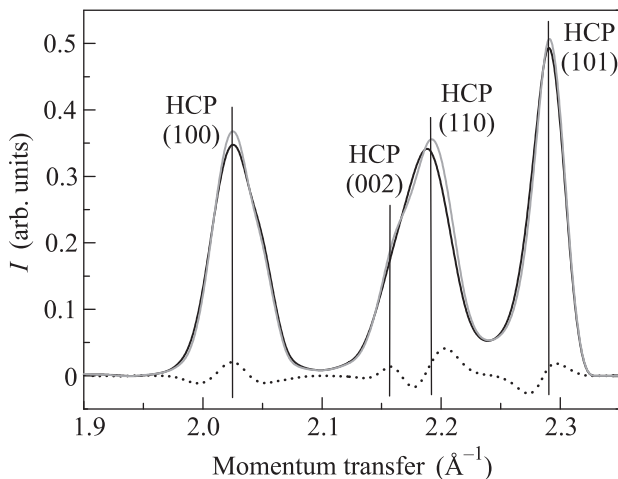


Рис. 3. Дифрактограммы твердого гелия, заключенного в аэрогель, при давлении 53.8 бар и температуре 1.1 К до (сплошная черная кривая) и после (серая кривая) отжига. Пунктирной кривой показан разностный спектр. После отжига наблюдаются увеличение интенсивности брэгговских пиков (100), (200) и (101) ГПУ-фазы и небольшой сдвиг пика (110) ОЦК-фазы твердого гелия

пики становятся интенсивней, в то время, как ОЦК-пик немного сдвигается, сохраняя ширину и амплитуду. Лучше всего этот эффект заметен на изоли-

рованном (100) ГПУ-пике. Однако он наблюдается и на остальных ГПУ-пиках. Сдвиг ОЦК-пика хорошо демонстрирует асимметрия на разностной кривой на рис. 3. Помимо того, что после отжига пропадает сверхтекучая фаза, мы наблюдаем увеличение ширины ГПУ-пигов и, соответственно, увеличение до 550 \AA среднего размера кристаллитов твердого гелия. Если предположить, что размеры кристаллитов увеличиваются за счет затвердевания сверхтекучей фазы, то можно оценить, что примерно 10 двухатомных слоев толщиной 6 \AA каждый находятся внутри кристаллитов до отжига.

Эффект создания “высококачественного поликристалла” посредством отжига влияет только на ГПУ-фазу, оставляя неизменной ОЦК-структуру (см. рис. 3). Это означает, что сверхтекучая фаза локализована внутри ГПУ-фазы и не присутствует в ОЦК-кристалле.

Число двухатомных слоев жидкого гелия, из которого предположительно формируется сверхтекучая фаза, пропорционально интенсивности вдоль фонон-ротонной кривой (кривая Ландау) [13], которая достигает максимума в области ротонной щели (рис. 1, $Q \sim 2.1 \text{ \AA}^{-1}$). Понижение давления с 53.8 до 37 бар приводит к увеличению этой интенсивности и пропорциональному, уменьшению амплитуды ГПУ-пигов и их полному исчезновению при давлении 37 бар. Это неплохо согласуется с приведенными выше оценками размера кристаллитов, так как 100 двухатомных слоев, возникающих в процессе понижения давления с 53.8 до 37 бар, составляют примерно 500 \AA , т.е. достигают размера исчезнувшего при 37 бар кристаллита. Конечно, приведенные выше оценки являются лишь качественными. Однако они дополняют картину возникновения сверхтекучих фаз в твердом гелии [3] и помогают понять их взаимосвязь с кристаллической структурой твердого гелия в аэрогеле.

Интересно посмотреть, какое влияние оказывает на процессы кристаллизации и формирования сверхтекучей фазы добавление в наш образец небольшого количества ^3He . Известно, что добавление $10\text{--}100 \text{ млн}^{-1}$ изотопа ^3He в экспериментах с торсионным маятником заметно влияло на температуру “перехода” (резкое изменение периода колебаний торсионного маятника [8]).

Оказалось, что добавление 100 млн^{-1} ^3He в образец, заполненный жидким ^4He и аэрогелем, приводит к следующей картине. Во-первых, если интенсивность рассеяния от сверхтекучей фазы и изменилась, то в пределах экспериментальной погрешности. В отличие от сверхтекучей фазы твердая фаза

изменилась значительно. Относительное количество ОЦК-фазы по сравнению с ГПУ уменьшилось. Параметры ГПУ-фазы изменились: существенно выросла амплитуда пика (002) и упала интенсивность (101)-пика. Отжиг, как это описывалось выше для образцов чистого ^4He , привел к исчезновению ОЦК-фазы (рис. 4). К сожалению, нет возможности провести

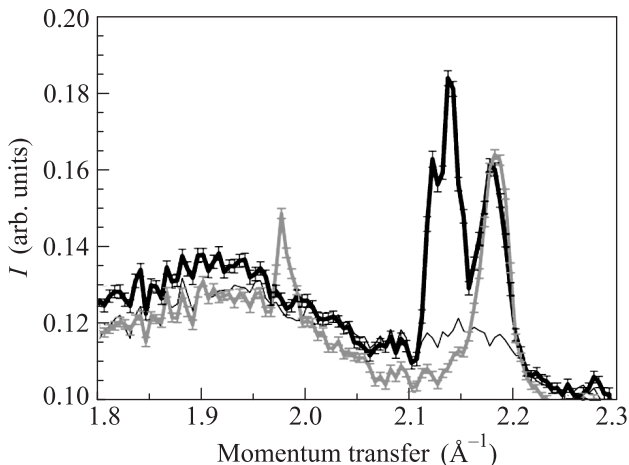


Рис. 4. Дифракционные пики поликристаллического гелия с добавкой $100 \text{ млн}^{-1} \text{ } ^3\text{He}$ в аэрогеле при температуре 1.4 К под давлением 26 бар. Жирная черная кривая – до отжига образца, серая – после отжига при 2 К. При нагревании до температуры 2 К смесь ГПУ- и ОЦК-фаз исчезает и образец находится в жидком состоянии (тонкая черная кривая). При повторном охлаждении ОЦК-фаза исчезает

количественное сравнение спектров чистого ^4He и спектров гелия с добавкой изотопа ^3He , полученных в идентичных термодинамических условиях, так как удалось выполнить только одно измерение $^4\text{He} + ^3\text{He}$ при давлении 26 бар. Для справки укажем, что пропускание образца за счет огромного сечения поглощения нейтронов гелием-3 [14] становится порядка 0.91 по сравнению с 0.95 для чистого ^4He .

На основе приведенных выше экспериментальных данных можно сделать следующие качественные выводы:

- эффект создания “высококачественного поликристалла” посредством отжига влияет только на ГПУ-фазу, оставляя неизменной ОЦК-структуру (см. рис. 3). Это означает, что сверхтекучая фаза локализована внутри ГПУ-фазы и не присутствует в ОЦК-кристалле;
- добавление ^3He влияет на структуру твердого гелия и не оказывает влияния на формирование сверхтекучей фазы, возникающей на границе ГПУ- и ОЦК-фаз твердого гелия.

Исследования проведены при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и Правительства Калужской области (проект # 12-02-97502).

1. E. Kim and M. H. W. Chan, *Nature* **427**, 225 (2004).
2. И. В. Калинин, Е. Кац, М. Коза и др., *Письма в ЖЭТФ* **87**, 743 (2008).
3. И. В. Калинин, Е. Кац, М. Коза и др., *ЖЭТФ* **138**, 243 (2010).
4. <http://www.ill.eu/in6/home/>.
5. H. Lauter, V. Arāja, I. Kalinin et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 265301 (2011).
6. D. G. Henshaw, *Phys. Rev.* **109**, 328 (1958).
7. M. R. Gibbs, K. H. Andersen, W. G. Stirling, and H. Schober, *J. Phys.: Condens. Matter.* **11**, 603 (1999).
8. H. J. Lauter, I. V. Bogoyavlenskii, A. V. Puschkov et al., *Appl. Phys. A* **74**, 1547 (2002).
9. H. Wiechert, H. Lauter, and B. Stuehn, *J. Low Temp. Phys.* **48**, 209 (1982).
10. D. Wallacher, M. Rheinstaedter, T. Hansen, and K. Knorr, *J. Low Temp. Phys.* **138**, 1013 (2005).
11. J. V. Pearce, J. Bossy, H. Schober et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 145303 (2004).
12. N. Mulders, J. T. West, M. H. W. Chan et al., *Phys. Rev. Lett.* **101**, 165303 (2008).
13. L. D. Landau, *J. Phys. USSR.* **11**, 91 (1947).
14. J. Als-Nielsen and O. Dietrich, *Phys. Rev.* **133**, B925 (1964).