

К ВОПРОСУ О НАЛИЧИИ ВОЗДУШНЫХ СУБМИКРОПУЗЫРЕЙ В ВОДЕ; ЭКСПЕРИМЕНТ ПО МАЛОУГЛОВОМУ РАССЕЯНИЮ НЕЙТРОНОВ

Н.Ф.Бункин, О.И.Виноградова, А.И.Куклин[†], А.В.Лобеев, Т.Г.Мовчан**

*Институт общей физики РАН
117942 Москва, Россия*

**Институт физической химии РАН
117915 Москва, Россия*

*[†]Объединенный институт ядерных исследований, Лаборатория нейтронной физики
им.Франка
141980 Дубна, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 7 сентября 1995 г.

В эксперименте по малоугловому рассеянию нейтронов в очищенной от примесей воде в длинноволновой области спектра рассеянных нейтронов обнаружен режим Гинье: прямое доказательство того, что в воде присутствуют частицы, размер которых сравним с длиной волны нейтронного излучения.

Одно из применений малоуглового рассеяния нейтронов – это исследование структуры микрообъектов (молекул белка, мицелл, полимеров и т.д.), растворенных в некоторой жидкости [1]. Эта жидкость должна быть прозрачной для нейтронного излучения и не иметь посторонних частиц, которые могли бы давать картину рассеяния, сходную с той, что дают исследуемые объекты. Идеальным растворителем считается вода. Очевидно, что вода для экспериментов по нейтронному рассеянию должна обладать очень высокой степенью чистоты, которой добиваются за счет деионизации и фильтрации, при которой удаляются частицы размером не меньше 100 нм.

Настоящая работа была стимулирована экспериментами по изучению стабильных субмикروпузырьков в жидкости – зародышей акустической и оптической (стимулированной лазерным импульсом) кавитации. Поскольку прочность жидкости на разрыв по крайней мере на порядок меньше ее молекулярной прочности, считается [2], что в жидкости содержатся мельчайшие газовые пузырьки (поскольку жидкость рассматривается в нормальных условиях, вероятность появления паровых пузырей крайне мала), которые и являются затравками кавитации. При этом в многочисленных экспериментальных и теоретических работах было показано, что такие субмикропузыри должны быть стабилизированы; в противном случае они должны растворяться [3]. Под стабилизацией здесь понимается некий механизм, благодаря которому силы поверхностного натяжения оказываются скомпенсированными и давление газа внутри пузырька оказывается равным гидростатическому давлению. Среди возможных механизмов стабилизации выделим механизм на основе решения уравнения Ван-дер-Ваальса для газового пузырька в жидкости [4], а также за счет адсорбции ионов на границе пузырька [5] и за счет захвата молекул газа внутрь трещин стенок сосуда или твердых микрочастиц в жидкости [6–8]. Все эти механизмы не бесспорны: например, если жидкость "засорена" твердыми микрочастицами, естественно предположить, что кавитация должна

прекращаться после достаточно тщательной очистки жидкости; этого, однако, не происходит.

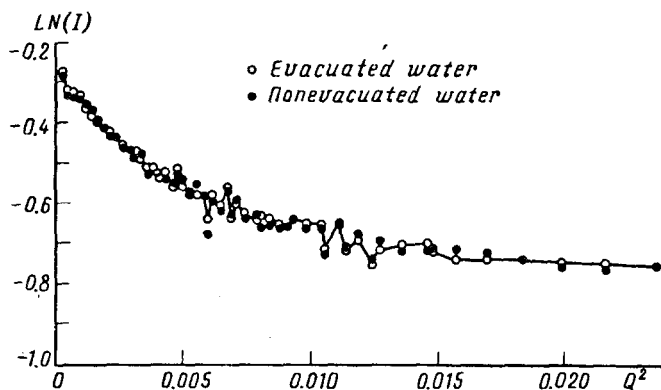
В работе [9] (где развивается модель, предложенная в [5]) было показано на качественном уровне, что вдали от точки кипения в жидкости с малой ионной примесью существуют субмикropузыри, стабилизированные за счет адсорбции ионов одного знака на границе такого пузыря; таким образом возникает отрицательное кулоновское давление, которое компенсирует поверхностное натяжение, и пузырь оказывается стабильным (такие пузыри были названы бабстонами от *bubble, stabilized by ions*). В соответствии с оценками [9], критический размер бабстона в воде 100 \AA . Объекты такого размера удобно изучать с помощью малоуглового нейтронного рассеяния, поскольку длины волн нейтронного излучения попадают в диапазон $1 \div 10 \text{ \AA}$ и объекты с размером 100 \AA могут проявляться на малых углах в спектре рассеяния.

Эксперимент по малоугловому рассеянию нейтронов был проведен на установке ИБР-2 (ОИЯИ, г. Дубна); диаметр пучка нейтронов в кювете составил 2 см. Эта установка имеет ряд преимуществ перед другими: в частности, нормировка здесь производится периодически, что исключает различные факторы, связанные с изменением мощности пучка в ходе эксперимента [10]. В экспериментах по малоугловому рассеянию нейтронов встает вопрос об учете вклада, вносимого кварцевым стеклом, из которого сделана кювета, поскольку оно может дать как некогерентный, так и когерентный вклады в спектральную картину; возможен также и вклад, обусловленный неупругими взаимодействиями нейтронов в кварцевом стекле. Поэтому очень важна чистота кварца, из которого сделаны окна кюветы. Мы использовали кювету, изготовленную фирмой "HELMА", ее протяженность вдоль пучка 1 мм; такой размер позволяет исключить возможность многократного рассеяния. Отметим, что кюветы именно этой фирмы широко применяются в экспериментах по нейтронному рассеянию. Предварительные измерения показали, что спектр рассеяния пустой кюветы в длинноволновой области обладает лишь некогерентной составляющей (изотропный фон, не связанный с конкретной атомной конфигурацией). Простое вычитание спектра, полученного в случае пустой кюветы, некорректно, так как вклад от дальней к реактору стенки кюветы в картину рассеяния зависит от мощности пучка и, таким образом, различен для пустой и заполненной кювет. Однако, как следует из вышесказанного, ошибка, связанная с некорректностью вычитания вклада от пустой кюветы может сказаться только на определении некогерентной составляющей спектра. Как будет показано ниже, некогерентный фон для нас не важен.

Эксперименты проводились с легкой (H_2O) и тяжелой (D_2O) водой, очищенной с помощью стандартной аппаратуры "Millipore" (удельное сопротивление воды составило 18 МОм·см); после очистки вода подвергалась обезгаживанию под вакуумом в течение нескольких суток. К сожалению, мы не могли контролировать газосодержание в процессе обезгаживания. Однако сама процедура обезгаживания не приносит дополнительных загрязнений, в чем можно убедиться, сравнивая спектры рассеяния для обезгаженной и для обычной воды. В процессе заливки в кювету (в течение нескольких секунд) обезгаженной воды газосодержание в ней заметно не повышалось. После снятия спектра обезгаженной воды в этой же кювете снимался спектр обычной (необезгаженной) воды. При этом положение кюветы относительно оси пучка не менялось.

Затем снимался спектр пустой кюветы. Время экспозиции под пучком как для пустой кюветы, так и для заполненных, — 3 часа.

На рисунке приведена зависимость логарифма нормированной интенсивности рассеяния $\ln I$ от квадрата вектора рассеяния $Q^2 = [(4\pi/\lambda) \sin(\theta/2)]^2$ (измеренного в \AA^{-2}) в широком диапазоне углов рассеяния для отгазованной и неотгазованной H_2O ; вклад от пустой кюветы вычтен. На графике легко выделить так называемый режим Гинье [11], характеризующийся тем, что в длинноволновой области угол наклона полученной зависимости отличен от угла наклона для остальной области спектра (проведенные оценки убеждают, что этот участок не может быть связан с неупругим вкладом в картину малоуглового рассеяния). Это свидетельствует о наличии в жидкости частиц, размер которых однозначно характеризуется так называемым радиусом гирации. Радиус гирации соответствует границе режима Гинье на оси абсцисс. Участок спектра, соответствующий режиму Гинье, хорошо аппроксимируется прямой $y = ax + b$ с параметрами $a = -63 \pm 2$, $b = -0.291 \pm 0.005$ для неотгазованной воды и $a = -59 \pm 2$, $b = -0.295 \pm 0.004$ для отгазованной воды. Экстраполяция дает для радиуса гирации 14\AA ; в приближении сферичности объекта получаем, что его диаметр $d \approx 36 \text{\AA}$. Подобная процедура для D_2O дает $d \approx 40 \text{\AA}$. Таким образом, размер объектов, обуславливающих режим Гинье в спектре рассеяния нейтронов, близок к теоретическому размеру бабстона.



Зависимость интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов $\ln I$ от Q^2 (\AA^{-2}) для отгазованной и неотгазованной H_2O : режим Гинье характеризуется более резким спадом зависимости в длинноволновой области

Теоретическая оценка [9] дает для концентрации бабстонов в воде $C \sim 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Поскольку плотность ядер в жидкости выше, чем в газовых микропузырях, естественно ожидать, что некогерентная составляющая спектра (обусловленная рассеянием на пространственно некоррелированных ядрах) после отгазовки должна возрасти. Предположим, что в результате отгазовки бабстоны полностью исчезают (хотя это предположение заведомо неверно, так как полностью убрать растворенный воздух при отгазовке невозможно и, к тому же, режим Гинье имеет место как для неотгазованной, так и для отгазованной воды), и внутри бабстонов нет ядер, рассеивающих нейтроны. Тогда, исходя из оценки C и зная d , нетрудно получить, что рассеивающий объем, который занимает нейтронный пучок внутри кюветы, должен в результате отгазовки увеличиться на 10^{-9} см^3 . Обнаружить столь малое изменение рассеивающего объема по некогерентной составляющей невозможно. Как видно из рисунка, существует незначительная разница в спектрах для отгазованной и неотгазованной воды, что может свидетельствовать в пользу рассматриваемой

модели. Однако эта разница – в пределах статистической ошибки и не может быть использована для оценок. Данная работа поддержана Международным научным фондом и правительством России (проект N75300).

-
1. Д.И.Свергун, Л.А.Фейгин, *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние*, М.: Наука, 1986.
 2. *Мощные ультразвуковые поля* (под ред. Л.Д.Розенберга), М.: Наука, 1968.
 3. P.S.Epstein and M.S.Plesset, *J. Chem. Phys.* **18**, 1505 (1950).
 4. R.A.Wentzell, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 732 (1986).
 5. В.А.Акуличев, *Акуст. жур.* **12**, 160 (1966).
 6. M.J.Strasberg, *J. Acoust. Soc. Am.* **31**, 163 (1959).
 7. A.A.Atchley and A.Proseretti, *Ibid.* **86**, 1065 (1989).
 8. L.A.Crum, in *Mechanics and Physics of Bubbles in Liquid*, L. van Wijngaarden, Eds.: Nijhoff, the Hague, 1982, p.101.
 9. Н.Ф.Бункин, Ф.В.Бункин, *ЖЭТФ* **101**, 512 (1992).
 10. Yu.M.Ostanevich, *Macromol. Chem.* **15**, 91 (1988).
 11. A.Guinier and G.Fournet, *Small-Angle Scattering of X-rays*, New York, Wiley, 1955.