

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

ИЗОТОП He^3

К. А. Туманов

Прогресс физики жидкого гелия и техники разделения изотопов сделал перспективной задачу выделения изотопа He^3 . Изучение свойств He^3 представляет интерес как для физики атомного ядра, так и для учения о сверхтекучести. He^3 мог бы быть использован в качестве рабочей частицы в циклотроне. Точное определение массы атома He^3 имеет теоретический интерес. Как известно, в жидком гелии не растворяется в заметных количествах ни одно вещество; раствор He^3 в He^4 можно считать единственным исключением. Наконец, весьма важным было бы исследование отношения He^3 к явлению сверхтекучести.

Содержание He^3 в гелии весьма невелико: масс-спектрографические измерения Альвареца и Корнога¹ и Олдрича и Ниира² показали, что отношение числа атомов He^3 к числу атомов He^4 в гелии, добытом из воздуха, равно $12 \cdot 10^{-7}$, а в гелии, содержащемся в природных газах, равно $1,6 \cdot 10^{-7}$. В своей следующей работе²² Олдрич и Ниир произвели систематическое исследование изотопического состава гелия, содержащегося в различных минералах и различных природных газах. Оказалось, что отношение He^3/He^4 изменяется в широких пределах от $120 \cdot 10^{-7}$ до $0,5 \cdot 10^{-7}$, причём различно для образцов одного и того же минерала из разных месторождений. В пробах гелия, полученных из радиоактивных руд, количество He^3 оказалось не поддающимся измерению ($\text{He}^3/\text{He}^4 < 0,2 \cdot 10^{-7}$). Разнообразие концентрации He^3 в гелии, добытом из различных минералов, природных газов и воздуха, свидетельствует о том, что источники возникновения обоих изотопов различны. Весьма правдоподобным является предположение о существовании постоянно действующих источников He^3 . Возможны, например, следующие ядерные реакции, приводящие к образованию He^3 . Нейтроны, связанные с космическим излучением, воздействуют на Li^6 в земной коре и N^{14} в атмосфере: $\text{Li}^6(n, \alpha) \text{H}^3$, $\text{N}^{14}(n, \text{C}^{12}) \text{H}^3$ или $\text{N}^{14}(n, 3\alpha) \text{H}^3$; получающийся при этом тритий H^3 в результате β -распада превращается в He^3 . Авторы указывают, что для доказательства гипотезы о постоянном образовании He^3 необходимы дополнительные экспериментальные данные.

Выделение изотопа He^3 , встречающегося в столь малых концентрациях, естественно связано со значительными трудностями. Поэтому были предприняты попытки воспользоваться для разделения аномальными свойствами жидкого гелия, в первую очередь свойством сверхтекучести.

РАЗДЕЛЕНИЕ ГЕЛИЯ С ПОМОЩЬЮ КРИОГЕННОЙ ТЕХНИКИ

Первые попытки объяснения явления сверхтекучести принадлежат Ф. Лондону и Тиссе. По мнению этих авторов, атомы гелия (He^4), находящиеся в состоянии с нулевой энергией, образуют идеальный газ, подчиняющийся статистике Бозе-Эйнштейна. Явление сверхтекучести Ф. Лондон и Тисса связывают с вырождением этого бозе-эйнштейновского газа. Основываясь на этом, Франк^{3*)} заключил, что поскольку атомы изотопа He^3 не подчиняются статистике Бозе-Эйнштейна, они не могут участвовать в сверхтекучем движении. Франк высказал предположение, что, возможно, методом фильтрации удастся разделить гелий.

Теоретические попытки Ф. Лондона и Тиссы базируются на необоснованных предположениях и приводят к результатам, не подтверждающимся экспериментом. Последовательная теория сверхтекучести была развита Л. Д. Ландау^{**)}. Основываясь на положениях теории Ландау, автор теории и Померанчук⁵ подвергли критике аргументацию Франка. Ландау и Померанчук указали, что, поскольку свойство сверхтекучести связано не с отдельными атомами, а с коллективом одинаковых атомов He^4 , всякие иные атомы, образующие небольшие примеси, как He^3 и ещё более редкий изотоп He^6 , не будут участвовать в сверхтекучем движении независимо от того, обладают ли они сами по себе в чистом виде свойством сверхтекучести.

Согласно теории Ландау гелий II состоит из нормальной и сверхтекучей компонент. Очевидно, примеси входят в состав нормальной компоненты. В чистом гелии количество нормальной компоненты быстро убывает с понижением температуры. В случае же примесей количество нормальной компоненты при самых низких температурах будет отличаться от нуля. Это приводит к тому, что при низких температурах, даже в случае очень малых примесей, термодинамические функции гелия с примесями будут заметно отличаться от термодинамических функций чистого гелия. Померанчук³ произвёл расчёт изменения нормальной плотности, энтропии, теплоёмкости, а также скорости второго звука в гелии, обусловленных наличием примесей. Оказалось, например, что благодаря примесям температурная зависимость скорости второго звука претерпевает качественное изменение: при понижении температуры скорость второго звука не растёт, приближаясь к конечному значению, а убывает.

*) Подобную мысль высказал также Л. Онсагер (см. ⁹⁾).

**) Теория Ландау изложена в обзоре Е. М. Лифшица⁴.

Доунт, Пробст, Джонстон, Олдрич и Ниир⁶ экспериментально исследовали возможность разделения изотопов на основе сверхтекучести. В своём опыте они пользовались прибором, показанным на рис. 1. В сосуде с жидким атмосферным гелием A находился частично погружённый в жидкий гелий маленький дьюар D . Отверстие дьюара было заткнуто стеклянной притёртой пробкой, препятствовавшей проникновению паров гелия из сосуда A в дьюар D . В дьюаре находился электрический нагреватель T_1 . Прибор был помещён в гелиевую ванну B с температурой $1,3^\circ\text{K}$. При пропускании тока через нагреватель создавалось сверхтекучее течение гелия в маленький дьюар в виде поверхностной плёнки*), свободно протекавшей через зазор в шлифе. Масс-спектрометрическое исследование содержимого маленького дьюара установило, что отношение He^3/He^4 в нём оказалось меньшим, чем $5 \cdot 10^{-8}$, тогда как начальное He^3/He^4 равнялось $1,2 \cdot 10^{-6}$. Этим было доказано, что атомы He^3 не принимают участия в сверхтекучем движении. Авторы надеялись обнаружить во время опыта увеличение концентрации He^3 в парах гелия в сосуде A . Однако оказалось, что в пробах пара, извлечённых через трубку a , отношение He^3/He^4 меньше, чем в исходном гелии примерно в 3 раза, иначе говоря, большая часть He^3 находится в жидком гелии. Это понижение содержания He^3 в парах над жидким гелием ниже λ -точки, как указывали авторы, могло являться новым свойством гелия. Другое возможное объяснение, предложенное авторами, состоит в нарушении равновесного распределения изотопов, связанном с тем, что условия испарения обоих изотопов не одинаковы — испарение He^4 происходит значительно интенсивнее, потому что он в виде плёнки перетекает в более тёплые места и испаряется со всей поверхности плёнки.

В следующей работе Доунт, Пробст и Джонстон⁸, конденсируя гелий в сосуд A (рис. 1) выше уровня шлифа, осуществляли фильтрацию жидкого гелия через узкую щель (ширина порядка 1μ) и снова получили обогащение гелия в сосуде A изотопом He^3 . Увеличение концентрации He^3 вне дьюара D в обоих работах Доунта и сотрудников получалось в 4—5 раз.

Лэйну, Фэрбенку, Олдричу и Ниiru⁹ удалось значительно интенсифицировать разделение изотопов, создав тепловой поток в массе

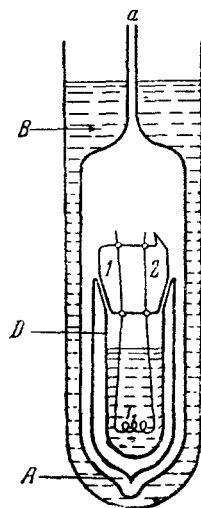


Рис. 1. Прибор для разделения изотопов гелия с помощью сверхтекучей плёнки. На этом приборе было впервые экспериментально доказано, что He^3 не участвует в сверхтекучем движении.

*) Описание явления сверхтекучести см., напр., в⁷ (гл. I).

жидкого гелия. Как известно, тепловой поток в жидком гелии осуществляется потоком нормальной компоненты (см. ⁷, гл. I, § 6). Навстречу ему, от более холодных к более тёплым местам, движется сверхтекучая компонента с энтропией, равной нулю. Так как атомы He^3 могут

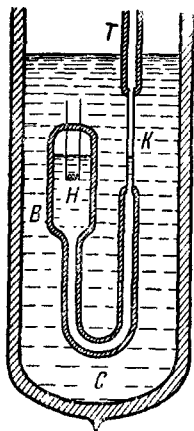


Рис. 2. Прибор для разделения изотопов гелия с помощью теплового потока в массе жидкого гелия.

принимать участие только в движении нормальной компоненты, то они сконцентрируются в местах с наименьшей температурой.

На рис. 2 изображён прибор, применявшийся Лэйном и др. Толстостенный стеклянный сосуд B с электрическим нагревателем H соединён посредством стеклянного капилляра C с металлическим капилляром K (из сплава «ковар») и, далее, с трубкой T , выходящей за пределы криостата. Сосуд и капилляр были заполнены жидким гелием. При пропускании тока через нагреватель тепло посредством конвекции в жидком гелии переносилось в капилляр K и, далее, через металлические стенки поступало в гелиевую ванну. Для определения концентрации He^3 в капилляре K авторы брали пробы газообразного гелия над поверхностью жидкости в K . С течением времени, при температуре $2,01^\circ\text{K}$, содержание He^3 в парах постепенно росло, увеличившись за 45 минут в 130 раз по сравнению с исходным. Этот результат позволил авторам высказать надежду, что, основываясь на методе

теплового потока, удастся построить аппаратуру для практического разделения изотопов гелия.

При температуре $1,83^\circ\text{K}$, напротив, наблюдалось значительное понижение содержания He^3 в парах, несмотря на увеличение теплового потока.

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ИЗОТОПОВ МЕЖДУ ЖИДКОЙ И ПАРООБРАЗНОЙ ФАЗАМИ

Успешное решение проблемы о разделении He^3 и He^4 оказалось стоящим в зависимости от выяснения вопроса о распределении изотопов между жидкой и парообразной фазами при различных температурах. Этому были посвящены две работы Фэрбенка, Лейна, Олдрича и Ниира. В первой работе¹⁰ получена температурная зависимость отношения концентраций He^3 в паре и жидкости в интервале температур от $4,2$ до $2,2^\circ\text{K}$. Во второй работе¹¹ интервал температур был расширен от $5,2$ до $1,7^\circ\text{K}$. Авторами применялся прибор, состоявший из стеклянного сосудика, погружённого в гелиевую ванну; в сосудике конденсировался исследуемый гелий. По трубке из сосудика брались пробы паров гелия напуском паров в присоеди-

нённые к трубке, предварительно откачанные маленькие сосуды. С помощью масс-спектрометра определялось отношение He^3/He^4 в паре — C_V . По известному C_V можно было вычислить концентрацию He^3 в жидкости C_L с помощью уравнений баланса масс изотопов.

Перед взятием проб криостат выдерживался при постоянной температуре выше λ -точки 30 минут, а ниже λ -точки 15 минут.

Особое внимание авторы обратили на испарение поверхностной плёнки, являющееся наиболее вероятным и значительным источником ошибок. Поскольку количество гелия, переносимое плёнкой, пропорционально периметру соединяющей поверхности, в качестве подводящей трубки был взят капилляр сечением 1,5 мм. Для того чтобы предотвратить частичное испарение плёнки на стенках сосуда до входа в капилляр, сосудик был защищён экраном. Предположив, что в сосудице плёнка не испаряется, авторы подсчитали количество гелия, испарившегося из плёнки за время между взятием проб, и нашли, что даже при наиболее невыгодном предположении, что весь этот гелий попадает в пробу, истинная величина C_V/C_L будет отличаться от измеренной не более чем на 10%.

На рис. 3 приведены результаты измерений Фэрбенка и др. Авторы сочли величину C_V/C_L наиболее удобно и универсально описывающей явление, так как согласно закону распределения Генри для разбавленных растворов эта величина при данной температуре не зависит от общей концентрации. Результаты работы, по мнению её авторов, подсказывают простой способ обогащения гелия изотопом He^3 , именно, испарение гелия при температуре значительно ниже λ -точки.

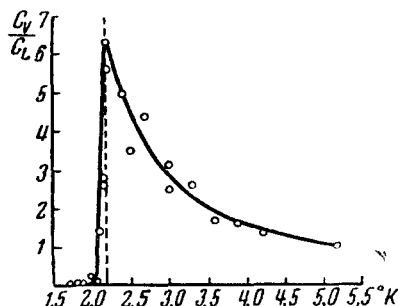


Рис. 3. Зависимость отношения концентрации He^3 в парообразной и жидкой фазах от температуры.

Результаты следующей экспериментальной работы, принадлежащей Доунту, Пробсту и Смит¹², приведены на рис. 4. По оси абсцисс отложена обратная температура $1/T$, по оси ординат $\lg C_V/C_L$. В области He I экспериментальные точки ложатся примерно на одну кривую; в области He II, напротив, каждой общей концентрации соответствует своя кривая. Кружки — значения, взятые из работы Фэрбенка и др. (рис. 3, общая концентрация $\text{He}^3/\text{He}^4 = 1,2 \cdot 10^{-6}$), квадраты и крестики — результаты опытов Доунта и др., квадраты соответствуют общей концентрации $10 \cdot 10^{-6}$, крестики $(30 \div 40) \cdot 10^{-6}$. Из рис. 4 видно, что результаты опытов Фэрбенка и др. и Доунта и др. согласуются друг с другом и указывают на

увеличение C_V/C_L с увеличением общей концентрации He^3/He^4 , что находится в противоречии с законом Генри.

В сообщении Доунта и сотрудников не приводится описание аппаратуры и методики эксперимента; авторы отмечают, однако, что ими были приняты меры по предотвращению вредного влияния поверхностной плёнки *).

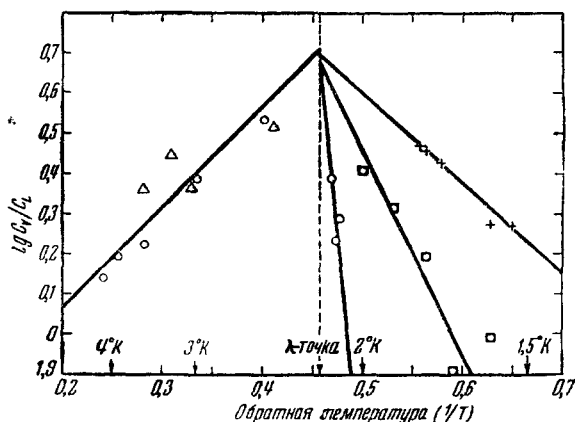


Рис. 4. Зависимость логарифма отношения концентраций He^3 в парообразной и жидкой фазах от обратной температуры. Треугольники соответствуют общей концентрации $\text{He}^3/\text{He}^4 = 10^{-6}$, квадраты $10 \cdot 10^{-6}$, крестики $(30 \div 40) \cdot 10^{-6}$. Кружками обозначены результаты опытов Фэрбенка и др. 11 $\text{He}^3/\text{He}^4 = 1,2 \cdot 10^{-6}$.

Роллин и Хэттон¹³, измеряя C_V/C_L для гелия, первоначальная концентрация которого равнялась $\text{He}^3/\text{He}^4 = 1,5 \cdot 10^{-3}$, обнаружили, что при $1,3^\circ\text{K}$ относительное содержание He^3 в паре в 10 раз больше, чем в жидкости.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Из результатов работ Фэрбенка и др.¹¹, Доунта и др.¹² и Роллина и Хэттона¹³ следует, что отношение содержаний He^3 в паре и жидкости ниже λ -точки не остаётся постоянным, а увеличивается с увеличением общей концентрации He^3 . Это означает, что результаты находятся в противоречии с законом Генри уже при концентрациях порядка $\text{He}^3/\text{He}^4 \sim 10^6$. Следует напомнить, что закон Генри

*) В своём сообщении Доунт и сотрудники указывают, что ими построен прибор для разделения изотопов, в котором плёнкой переносится 0,5 л жидкого гелия в час.

выводится из уравнений термодинамики при единственном предположении о разбавленности раствора (см., напр.,¹⁴). Отклонения от закона Генри наступают, когда начинает сказываться взаимодействие между молекулами растворённого вещества. Невозможно допустить, что взаимодействие атомов He^3 , отделённых друг от друга сотнями атомов He^4 , заметно влияет на термодинамические функции жидкого гелия. Следовательно, закон Генри для слабых растворов He^3 в He^4 должен выполняться. С другой стороны, создание равновесия в He^3 является делом очень трудным; равновесие нарушается как благодаря движению и испарению плёнки, так и благодаря конвекции в жидкости, создающейся при самых ничтожных разностях температур. Согласно вычислениям Померанчука²³ в гелии II с обычным содержанием He^3 ($\text{He}^3/\text{He}^4 \sim 10^6$) достаточно в каком-либо месте переохлаждения на 10^{-5} градуса, для того чтобы в нём собрались все атомы He^3 . Поэтому следует согласиться с мнением Роллина и Хэттона, что в работе Фэрбенка и др., несмотря на все предосторожности и оценки, всё же не было полностью учтено влияние плёнки. Чем меньше общая концентрация He^3 , тем больше сказывается избыток He^4 , создаваемый плёнкой, и тем меньшим оказывается измеренное относительное содержание He^3 в парах.

Разумеется, теоретические работы Ф. Лондона и Райса¹⁵ и Стоута¹⁶, базирующиеся на результатах Фэрбенка и других, также ошибочны.

ДРУГИЕ СВОЙСТВА РАСТВОРА He^3 В He^4

Кроме вопроса о распределении изотопа He^3 между двумя фазами растворителя, были изучены и другие свойства раствора He^3 в He^4 , именно, осмотическое давление, создаваемое изотопом He^3 в растворе, и изменение давления паров гелия при наличии в гелии изотопа He^3 . Нужно отметить, впрочем, что эти два явления не были изучены количественно в зависимости от различных факторов; было доказано лишь их существование.

Первое явление открыто Доунтом, Пробстом и Джонстоном¹⁷. Их прибор (рис. 5) представлял собой П-образную трубку. В верхней части трубка была преграждена стеклянным шлифом, препятствовавшим перетеканию паров гелия из одного колена трубки в другое. Концы колен соединялись с трубками, выведенными из криостата; по ним в прибор мог подаваться гелий. Прибор был погружён в гелиевую ванну с температурой $1,57^\circ \text{K}$. В одно из колен конденсировался гелий, начальная концентрация которого равнялась $\text{He}^3/\text{He}^4 = 2,4 \cdot 10^{-5}$, перетекавший в виде плёнки

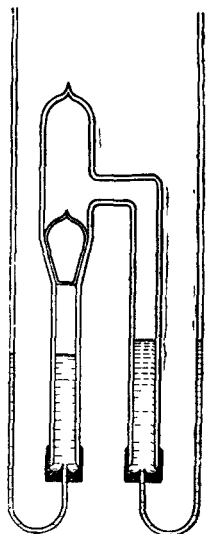


Рис. 5. Прибор для измерения осмотического давления He^3 .

в другое колено. Однако уровни в коленях не выравнивались, разность уровней при этих условиях оказалась равной 2,1 мм. Авторы указывали на сложность интерпретации этого результата, поскольку

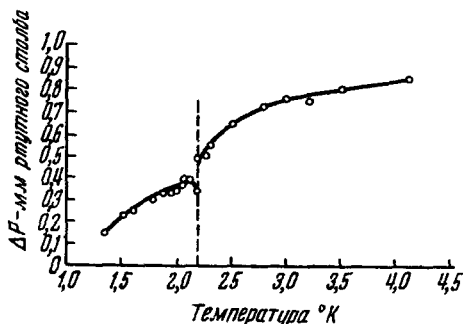


Рис. 6. Изменение давления паров, создаваемого изотопом He^3 .

Не³ содержится как в жидкости, так и в паре и в различных концентрациях. Изменение давления паров, создаваемое изотопом He^3 , было обнаружено Фэрбенком, Рэйнольдсом, Лэйном, Мак Интиром, Олдричем и Нииром¹⁸. Они пользовались прибором, состоявшим из двух одинаковых стеклянных тонкостенных сосудов, соединённых трубками с двумя концами масляного дифференциального манометра. Сосуды были погружены в гелиевую ванну. Один из сосудов содержал обычный гелий из источников ($\text{He}^3/\text{He}^4 = 1,6 \cdot 10^{-7}$), а другой — обогащённый гелий ($\text{He}^3/\text{He}^4 = 1,6 \cdot 10^{-3}$). На рис. 6 приведены результаты этой работы. Авторы отмечают, что разрыв в λ-точке воспроизводился при всех измерениях.

РАЗДЕЛЕНИЕ ГЕЛИЯ МЕТОДОМ ТЕРМОДИФУЗИИ

В книге К. Джонса и В. Ферри¹⁹ приведён расчёт термодиффузионной установки для разделения гелия. Как отмечают авторы, этот расчёт основан на таблицах и формулах, неприменимых к гелию, и поэтому весьма приблизителен. Согласно расчёту установка должна давать 3,8 см³ в день гелия с $\text{He}^3/\text{He}^4 = 10^{-2} - 10^{-3}$ и иметь характеристическое время приближения к рабочим условиям 14 дней.

Мак Интир, Олдрич и Ниир²⁰ построили установку, подобную предложенной Джонсом и Ферри. Она состоит из двух колонн с концентрическими трубками и одной колонны с горячей проволокой. Эта установка, согласно измерениям авторов, при времени приближения к рабочим условиям 29 дней даёт в сутки 7 см³ гелия (при нормальных условиях), концентрация которого равна $\text{He}^3/\text{He}^4 = 4,2 \cdot 10^{-3}$, если начальная концентрация равна $1,15 \cdot 10^{-7}$ (обогащение 36 600). Можно увеличить обогащение, уменьшая ежедневный выход обогащённого газа; при этом время приближения к рабочим условиям возрастет.

Эндрью и Смит²¹ построили установку, в которой последовательно с колонной Клузиуса и Диккеля (колонка с горячей проволокой) установлен насос Гертца, действие которого основано на различной скорости диффузии изотопов через струю пара ртути.

Проба, полученная ими после двухнедельной обработки, массой примерно 0,07 мг содержала 0,5% He^3 .

Следует указать, что в большинстве рассмотренных выше работ, в которых применялся обогащенный гелий, этот гелий был получен методом термодиффузии.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. L. W. Alvarez a. R. Cornog, Phys. Rev. **56**, 613, 379 (1939).
2. L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **70**, 983 (1946).
3. J. Franck, Phys. Rev. **70**, 561 (1946).
4. Е. М. Лифшиц, УФН **34**, 512 (1948).
5. Л. Ландау и И. Померанчук, ДАН СССР, **59**, 669 (1948).
6. J. G. Daunt, R. E. Probst, H. L. Johnston, L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **72**, 502 (1947).
7. Э. Л. Андроникашвили и К. А. Туманов, УФН **33**, 469 (1947).
8. J. G. Daunt, R. E. Probst a. H. L. Johnston, J. Chem. Phys. **15**, 759 (1947).
9. C. T. Lane, H. A. Fairbank, L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **73**, 256 (1948).
10. H. A. Fairbank, C. T. Lane, L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **71**, 911 (1947).
11. H. A. Fairbank, C. T. Lane, L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **73**, 729 (1948).
12. J. G. Daunt, R. E. Probst a. S. R. Smith, Phys. Rev. **74**, 495 (1948).
13. B. V. Rollin a. J. Hutton, Phys. Rev. **74**, 508 (1948).
14. Л. Ландау и Е. Лифшиц, Статистическая физика, ОНТИ, Москва, 1938, § 49.
15. F. London a. O. K., Rice, Phys. Rev. **73**, 1188 (1948).
16. J. W. Stout, Phys. Rev. **74**, 615 (1948).
17. J. G. Daunt, R. E. Probst a. H. L. Johnston, Phys. Rev. **73**, 638 (1948).
18. H. A. Fairbank, C. A. Reynolds, C. I. Lane, B. B. McInteer, L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **74**, 345 (1948).
19. К. Джонс и В. Ферри, Разделение изотопов методом термодиффузии, ИЛ, Москва, 1947, стр. 134.
20. B. B. McInteer, L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **72**, 510 (1947); **74**, 916 (1948).
21. A. Andrew a. W. R. Smythe, Phys. Rev. **74**, 496 (1948).
22. L. T. Aldrich a. A. O. Nier, Phys. Rev. **74**, 1590 (1948).
23. И. Померанчук, ЖЭТФ **19**, 42 (1949).