

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

97-7

P8-97-7

В.Г.Гребинник, Д.Л.Демин, В.Г.Зинов,
В.И.Пряничников, А.И.Руденко, В.Т.Сидоров

ТЕПЛОВОЙ ЭФФЕКТ РАСТВОРЕНИЯ ВОДОРОДА
И ДЕЙТЕРИЯ

Направлено в «Журнал экспериментальной и теоретической физики»

1997

1. Вступление

Первое сообщение об обнаружении теплового эффекта растворения в жидкой смеси водорода и дейтерия при 21 К было сделано в статье [1]. После этого нами была изготовлена и запущена в работу автоматизированная система записи экспериментальной информации, что позволило более детально изучить особенности процессов растворения, протекающих в диапазоне $19 \div 23$ К.

2. Схема установки

Низкотемпературная часть установки представляет собой термостат Т (рис.1) с холодной мощностью 10 Вт. В качестве теплоносителя используется жидкий водород, температура которого поддерживается на заданном уровне с точностью $\pm 0,1$ К по давлению насыщенных паров, измеряемых манометром М1. Фактически термостат одновременно выполняет роль конденсационного термометра.

Количество жидкого водорода в термостате около 70 см^3 . Конструкционный материал термостата — нержавеющая сталь 12Х18Н10Т. Термостат предназначен для ожижения в ампуле А водорода и дейтерия. Температура термостата поддерживается с помощью электронной системы термостабилизации [2].

Блок подачи изотопов водорода в ампулу А содержит мерный объем V (1,35 л), манометры М2 и М3, вентили, баллоны с водородом и дейтерием. Он позволяет заполнять ампулу и добавлять водород и дейтерий отдельными порциями.

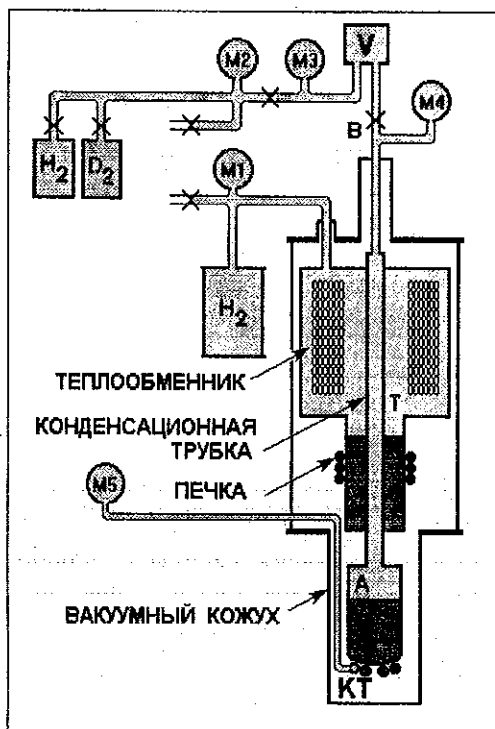


Рис. 1. Схема установки

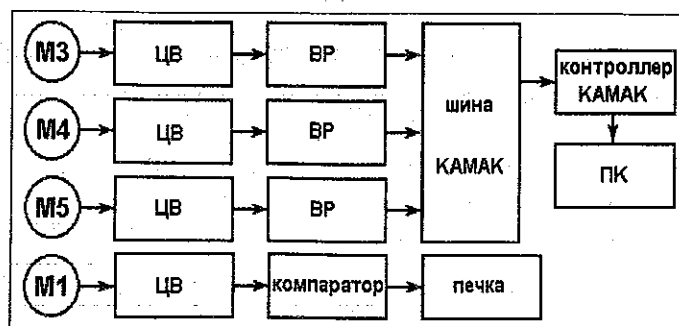


Рис. 2. Схема записи экспериментальной информации и термостабилизации.

Ампула А имеет объем 30 см^3 ($\varnothing 22 \text{ мм}$, высота 60 мм). При ее заполнении газообразные водород или дейтерий ожижаются на внутренней поверхности конденсационной трубки ($\varnothing 8 \text{ мм}$, высота 300 мм) и стекают в ампулу. Испаряясь из ампулы под действием радиационного теплопритока, изотопы конденсируются на той же трубке и стекают обратно. Давление в ампуле контролируется манометром М4. Температура ампулы контролируется конденсационным термометром КТ с водородным или дейтериевым наполнением. Термочувствительный элемент КТ — капилляр, свернутый спиралью и припаянный к дну ампулы. Количество водорода в КТ не превышает 50 см^3 при нормальных условиях. Давление в КТ измеряется манометром М5.

Для записи экспериментальных параметров (давление в мерном объеме М3, давление насыщенных паров в ампуле М4 и температура ампулы М5) используется система протоколирования (рис. 2), в которую входят тензометрические манометры М типа "Сапфир", цифровые вольтметры ЦВ (Щ-300), входные регистры ВР в стандарте КАМАК [3], контроллер КАМАК [4] и персональный компьютер ПК. Она позволяет записывать в память компьютера файлы экспериментальных данных. Временной интервал между соседними измерениями можно устанавливать от одной секунды до 10 минут.

3. Проведение измерений

Сначала в ампуле А (рис.1) ожижали от 2 до 10 см^3 водорода или дейтерия, а затем клапан В закрывали и откачивали мерный объем V. Далее с помощью мерного объема отдельными порциями добавляли некоторое количество разноименного изотопа, ведя учет процентного содержания полученной в ампуле смеси. После открывания клапана В добавляемый изотоп, конденсируясь, стекал в ампулу, где и происходило его растворение. Температура термостата Т в течение всего опыта поддерживалась на заданном уровне ($19 \div 23 \text{ К}$). Вели запись показаний манометров М3, М4 и М5.

Общее количество смеси водорода и дейтерия в ампуле составляло не более 30 л при нормальных условиях. Масса газовой фазы изотопов водорода в ампуле и конденсационной трубке была намного меньше массы жидкой смеси, что позволяло определять концентрацию дейтерия C_d в жидкости с точностью 4 %.

Температуру термостата и конденсационной трубки контролировали

манометром М1 по давлению насыщенных паров водорода. Разницу температур ампулы А и термостата Т проверяли при контрольном заполнении ампулы водородом по разности давления насыщенных паров водорода в термостате и ампуле (М1, М4). Эта разница слабо зависела от количества жидкости в ампуле и была менее 0,2 К. Если по какой-либо причине температура жидкой смеси в ампуле опускалась ниже температуры термостата, конденсация изотопов в конденсационной трубке не происходила и тепловая динамика ампулы полностью определялась внутренними процессами в ней и внешним теплопритоком (в основном радиационным).

4. Результаты измерений

Были проведены измерения давления насыщенных паров и температуры жидких смесей дейтерия и водорода в ампуле А для различных концентраций при температуре термостата 19, 20, 21 и 23 К.

Оказалось, что установившаяся температура жидкой смеси в ампуле T_A зависит от процентного состава смеси и систематически превышает температуру термостата T_T . Для примера на рис. 3 приведена экспериментальная зависимость температуры ампулы в стационарных условиях от концентрации дейтерия C_d в смеси с водородом при температуре термостата 21 К. Было сделано два цикла измерений этой зависимости: один при заполнении конденсационного термометра водородом (треугольники), второй — дейтерием (кружки). Кривая, объединяющая экспериментальные точки, дана для наглядности.

Экспериментально измеренные величины разности $\delta T = T_A - T_T$ температур ампулы и термостата для различных температур термостата T_T при концентрации дейтерия в смеси 50 % представлены в таблице.

Таблица

T_T, K	19	20	21	23
$\delta T, K$	1,2(2)	1,3(2)	1,3(2)	1,4(2)

Наиболее интересными представляются переходные процессы, происходящие при растворении водорода и дейтерия в жидкой смеси. Было установлено, что при добавлении дейтерия к смеси, ее температура падает и оказывается ниже первоначальной, а при добавлении дейтерия к чистому водороду — ниже температуры термостата.

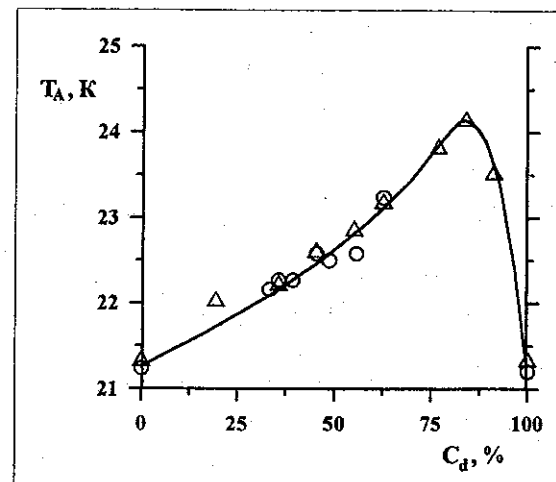


Рис. 3. Экспериментальная зависимость температуры T_A смеси водорода и дейтерия в ампуле от концентрации в ней дейтерия C_d при температуре термостата 21 К

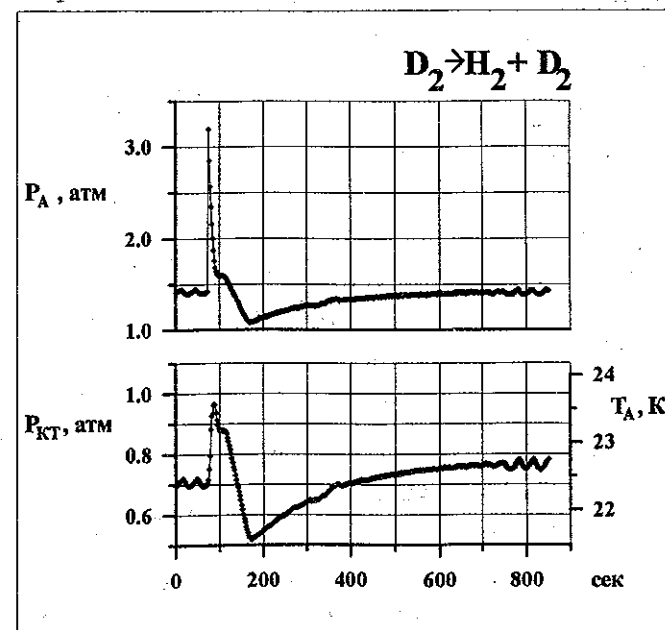


Рис. 4. Временная зависимость давления насыщенных паров P_A и температуры T_A (P_{KT}) смеси водорода и дейтерия внутри ампулы при добавлении в нее дейтерия

Временная зависимость давления насыщенных паров смеси (верхний график) и температуры ампулы (нижний график) при добавлении дейтерия в смесь изотопов в ампуле показана на рис. 4, при добавлении водорода — на рис. 5 (концентрация дейтерия в смеси около 50%).

В обоих случаях резкий скачок давления и температуры соответствует моменту открывания вентиля В при подаче изотопа в ампулу. Из рис. 4 и 5 видно, что процессы растворения дейтерия и водорода имеют принципиальное отличие. Температура ампулы при растворении дейтерия падает ниже первоначальной и ниже установившейся впоследствии.

В контрольном эксперименте при добавлении водорода в чистый (без дейтерия) водород подобное уменьшение температуры ампулы не наблюдалось.

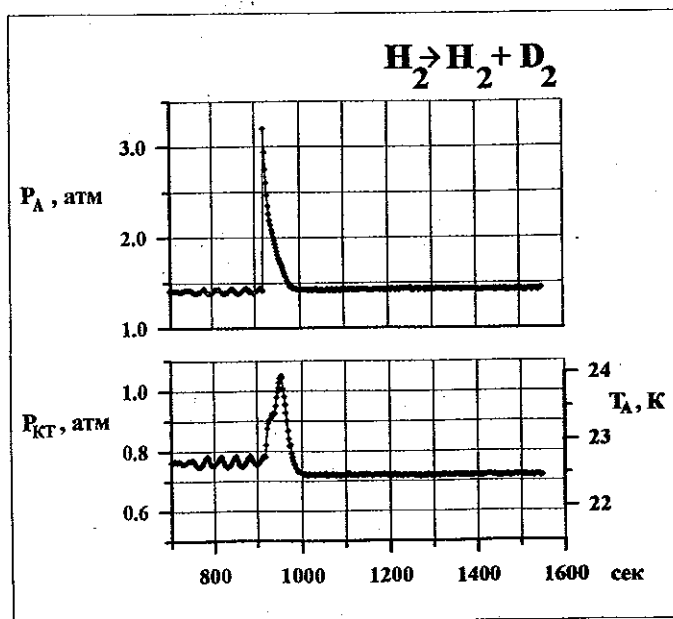


Рис. 5. Временная зависимость давления насыщенных паров P_A и температуры T_A (P_{KT}) смеси водорода и дейтерия внутри ампулы при добавлении в нее водорода.

5. Обсуждение результатов эксперимента

Падение температуры смеси при добавлении к ней дейтерия и увеличение температуры смеси изотопов в ампуле в стационарных условиях по сравнению с температурой ампулы, заполненной чистыми изотопами, может быть обусловлено, на наш взгляд, только тепловым эффектом растворения водорода и дейтерия. При растворении дейтерия теплота поглощается, при растворении водорода выделяется.

В стационарном случае, когда температура ампулы стабильна, она определяется растворением водорода в смеси водорода и дейтерия. В газовую фазу, в основном, выходит водород (более летучий компонент), и он, конденсируясь, стекает в ампулу, где растворяется в смеси с выделением тепла. Испаряясь с поверхности раздела фаз, водород уносит тепло испарения и тепло растворения. Таким образом, температура ампулы определяется процессами теплопереноса на поверхности раздела и в конденсационной трубке.

Если Q^+ — теплота растворения водорода в смеси, Q^c — теплота парообразования при температуре смеси, Q^e — теплота конденсации водорода в трубке, то уравнение теплового баланса для смеси будет выглядеть следующим образом:

$$Q^+ + Q^c = Q^e. \quad (1)$$

Например, для температуры смеси 23 K, зная теплоту парообразования $r(23 K)$ в смеси и теплоту конденсации $r(21 K)$ [5] (температура термостата 21 K), можно оценить теплоту растворения водорода в смеси c^+ :

$$c^+ + r(23 K) = r(21 K), \quad c^+ = 447,6 - 435,5 = 12,1 \text{ Дж/г}. \quad (2)$$

Важно отметить, что для водорода это оценка теплового эффекта снизу. Реальное уравнение теплового баланса выглядит сложнее. Следует учитывать испарение менее летучего компонента (дейтерия):

$$Q^+(C_d) + Q^e(C_d) = Q^e(C_{dg}), \quad (3)$$

где C_d — концентрация дейтерия в смеси, C_{dg} — концентрация дейтерия в газовой фазе.

Более детальное исследование теплового эффекта растворения водорода и дейтерия интересно не столько для практического использо-

вания, сколько для понимания квантовых основ процесса криогенного растворения. Рассматривая систему изотопов водорода, можно понять, какой вклад вносит приведенная масса молекулы или атома в теплоту процесса растворения, а какой — спиновые переменные. В системе $^3\text{He} - ^4\text{He}$ имеем атомы и растворение ферми- и бозе-частиц в смеси ферми- и бозе-частиц. В случае с $\text{H}_2 - \text{D}_2$ имеем молекулы и растворение бозе-частиц. Для более серьезных выводов необходимы дальнейшие исследования.

Авторы выражают благодарность В. С. Неганову, Л. Б. Голованову, А. Д. Конинову, С. В. Медведю, В. С. Мележику, М. А. Назаренко, В. Н. Павлову, Ю. К. Пилипенко и В. В. Фильченкову за поддержку и ценные советы при обсуждении эксперимента, а также А. Б. Аполлонову, А. Н. Графову, А. П. Кустову, М. М. Петровскому, В. В. Ракалю за помощь при изготовлении, сборке, испытаниях криосистемы и при проведении измерений.

Литература

- [1] В. Г. Гребинник, Д. Л. Демин, В. Г. Зинов. Сообщение ОИЯИ Р8-95-480, Дубна (1995).
- [2] Н. Н. Графов, В. Г. Гребинник, Д. Л. Демин и др. Препринт ОИЯИ Р13-95-179, Дубна (1995).
- [3] Н. И. Журавлев, Ли Зу Эк, Нгуен Мань Шат и др. Сообщение ОИЯИ 10-8114, Дубна (1974).
- [4] В. А. Антюхов, Н. И. Журавлев, С. В. Игнатъев и др. Сообщение ОИЯИ Р10-90-589, Дубна (1990).
- [5] М. П. Малков, И. Б. Данилов, А. Г. Зельдович и др. *Справочник по физико-техническим основам криогеники*. Энергоатомиздат, Москва (1985).

Рукопись поступила в издательский отдел
15 января 1997 года.