

## Концентрационная зависимость коэффициента диффузии в распадающихся слабых твердых растворах $^4\text{He}$ в $^3\text{He}$

В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, А.А. Пензев,  
Э.Я. Рудаковский, А.С. Рыбалко, Е.В. Сырников

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: syrnikov@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 6 мая 2003 г.

Изучена кинетика процесса расслоения слабых твердых растворов  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  в интервале температур 100–200 мК, концентраций  $^4\text{He}$   $x = 2,2\text{--}3,3\%$  и давлений 32–35 бар. Обнаружено, что характерное время установления равновесного состояния  $\tau$  при распаде раствора существенно зависит от степени переохлаждения. При переохлаждении раствора более чем на 40–50 мК относительно температуры расслоения исходного раствора величина  $\tau < 10^3$  с и практически не изменяется при дальнейшем уменьшении температуры. При малых переохлаждениях значения  $\tau$  достигают  $4 \cdot 10^4$  с и заметно уменьшаются при дальнейшем понижении температуры. Установлена связь между измеренными значениями  $\tau$  и эффективным коэффициентом массовой диффузии с помощью решения диффузионной задачи с учетом поверхностного сопротивления, возникающего при переходе примесных атомов  $^4\text{He}$  из раствора во включение новой фазы. Показано, что адекватное описание экспериментальных данных в рамках кинетической теории туннельного переноса примесей в условиях их существенного взаимодействия друг с другом может быть получено в предположении, что коэффициент диффузии  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  пропорционален  $x^{-4/3}$ . При этом была определена концентрация зародышей и средний размер области, приходящийся на один зародыш. Анализ результатов эксперимента по кинетике образования зародышей при фазовом расслоении показал, что они могут быть объяснены теорией гомогенной нуклеации. Полученные при этом значения коэффициента межфазного поверхностного натяжения согласуются с имеющимися данными. Впервые оценено время релаксации, обусловленное конечным сопротивлением при проникновении примеси через границу матрица – включение новой фазы.

Вивчено кінетику процесу розшарування слабких твердих розчинів  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  в інтервалі температур 100–200 мК, концентрацій  $^4\text{He}$   $x = 2,2\text{--}3,3\%$  і тисків 32–35 бар. Виявлено, що характерний час установлення рівноважного стану  $\tau$  при розпаді розчину істотно залежить від ступеня переохолодження. При переохолодженні розчину більше ніж на 40–50 мК відносно температури розшарування вихідного розчину величина  $\tau < 10^3$  с і практично не змінюється при подальшому зменшенні температури. При малих переохолодженнях значення  $\tau$  досягають  $4 \cdot 10^4$  с і помітно зменшуються при подальшому зниженні температури. Отримано зв'язок між обмірюваними значеннями  $\tau$  і ефективним коефіцієнтом масової дифузії за допомогою рішення дифузійної задачі з урахуванням поверхневого опору, що виникає при переході домішкових атомів  $^4\text{He}$  з розчину у включення нової фази. Показано, що адекватний опис експериментальних даних у рамках кінетичної теорії тунельного переносу домішок в умовах їхньої істотної взаємодії один з одним може бути отримано в припущенні, що коефіцієнт дифузії  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  є пропорційним  $x^{-4/3}$ . При цьому було визначено концентрацію зародків і середній розмір області, що приходить на один зародок. Аналіз результатів експерименту з кінетики утворення зародків при фазовому розшаруванні показав, що вони можуть бути пояснені теорією гомогенної нуклеації. Здобуті при цьому значення коефіцієнта міжфазного поверхневого натягу узгоджуються з наявними даними. Вперше оцінено час релаксації, обумовлений кінцевим опором при проникненні домішки через границю матрица – включення нової фази.

PACS: 67.80.Gb, 64.70.Kb

## 1. Введение

К настоящему времени получены достаточно подробные сведения о диффузионных процессах в слабых твердых растворах  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  и обнаружены практически все закономерности квантовой диффузии, предсказанные в работе Андреева и Лифшица [1] и ряде последующих публикаций [2–5]. Это оказалось возможным благодаря тому, что наличие ненулевого ядерного спина у  $^3\text{He}$  позволяет следить за его движением с помощью ядерного магнитного резонанса. Атом  $^4\text{He}$  не имеет ядерного спина и информацию о характере его движения можно было извлекать только из косвенных данных. Развитые в последнее время методы количественного изучения кинетики распада твердых растворов при низких температурах [6,7] изменяют ситуацию и дают возможность изучить механизм диффузии также и для растворов  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$ .

Один из интересных вопросов в этом направлении связан с выяснением влияния на движение примесей упругих полей, возникающих в кристалле из-за заметного различия амплитуд нулевых колебаний атомов  $^3\text{He}$  и  $^4\text{He}$  и обеспечивающих взаимодействие примесей друг с другом. Применительно к примесям  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  эта задача для не очень малых концентраций примесей  $x$ , когда становится необходимым учет их взаимодействия, теоретически была рассмотрена в работах [8–10], где предсказана следующая зависимость коэффициента диффузии  $D$  от концентрации:

$$D \sim x^{-4/3}. \quad (1)$$

Соотношение (1) является фактически единственной предсказанной закономерностью квантовой диффузии, которая еще не нашла подтверждения в эксперименте. Последнее обстоятельство связано с тем, что в растворах  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  эта закономерность имеет место в весьма узком диапазоне концентраций между областью зонного движения примесей, где  $D \sim x^{-1}$ , и областью самолокализации примесных возбуждений, где  $D$  резко падает. Кроме того, зависимость  $D \sim x^{-4/3}$  очень близка к закону  $D \sim x^{-1}$ , действующему в области достаточно малых  $x$ .

Обращает на себя внимание то, что Андреев [8], выводя (1), исходил из зонной картины движения примесей, а Ландесман [9], как Сакко и Вайдом [10], рассматривал чисто туннельное некогерентное движение примесей, и, тем не менее, во всех случаях был получен одинаковый результат

$$D_x = A \frac{J^2 a^2}{V_0 x^{4/3}}, \quad (2)$$

где  $J$  – обменный интеграл для примеси  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$ ,  $a$  – расстояние между ближайшими соседями,  $V_0$  – амплитуда упругого взаимодействия примесей,  $A$  – численный коэффициент, для которого в [9] получено выражение  $A = (16/3) \times \Gamma(4/3)(8,77)^{-4/3} \approx 0,26$  ( $\Gamma(x)$  – гамма-функция). Совпадение результатов работ [8] и [9,10] дает основание полагать, что зависимость (2) является универсальной для тех случаев, когда необходимо учитывать замедление диффузионного движения из-за сближения энергетических уровней примесей в соседних узлах решетки, обусловленного взаимодействием примесей друг с другом, и, в частности, может быть использована при рассмотрении диффузии  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$ .

Как известно, из-за хаотичного расположения ядерных спинов при температурах выше температуры ядерного упорядочения в твердом  $^3\text{He}$  не возможно зонное движение примесей, и поэтому атомы  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  движутся за счет случайных туннельных перескоков. Такой механизм движения приводит к тому, что коэффициент диффузии оказывается независящим от температуры, а при достаточно малых концентрациях и от концентрации. Естественно, что на таком фоне гораздо легче обнаружить зависимость (2), и поиск ее в растворах  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  оказывается достаточно перспективным.

## 2. Методика эксперимента

В настоящей работе проведено экспериментальное изучение кинетики распада слабых твердых растворов  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$  в интервале 100–200 мК при давлениях 33–35 бар. Использован метод прецизионного измерения изменения давления в образце при ступенчатом понижении температуры. Изменение давления  $\Delta P$  однозначно связано с изменением концентрации матрицы  $\Delta x$  соотношением Маллина [11]. При малых концентрациях

$$\Delta x = 2,5 V_\mu \beta \Delta P, \quad (3)$$

где  $V_\mu$  и  $\beta$  – молярный объем ( $\text{см}^3/\text{моль}$ ) и сжимаемость образца.

Исследуемые образцы представляли собою диск диаметром 9 мм и высотой 1,5 мм и были получены методом блокировки капилляра из исходного раствора, содержащего  $x_0 = 2\%$   $^4\text{He}$ . Содержание  $^4\text{He}$  в полученном образце уточняли с помощью (3) по значению  $\Delta P_0$ , соответствующему фазовому распаду раствора на чистые компоненты. Полученные образцы подвергали своеобразной термической обработке путем многократного циклирования температуры в интервале 100–270 мК. В ходе предыдущих исследований было установлено, что при этом получают

ся высококачественные однородные образцы, на которых могут быть получены воспроизводимые результаты. В частности, при дальнейшем фазовом расслоении таких образцов удавалось получать концентрацию примесей в матрице, соответствующую в пределах ошибок равновесной фазовой диаграмме [12]. Более подробно методика приготовления образцов и техника измерений описаны в [7].

Подготовленные таким образом образцы подвергали ступенчатому охлаждению и на каждой ступени измеряли давление в образце. Изменение давления  $P(t)$  носило экспоненциальный характер и описывалось зависимостью

$$P_f - P(t) = (P_f - P_i) \exp(-t/\tau), \quad (4)$$

где  $P_i$  и  $P_f$  — начальное и конечное (равновесное) давление в образце. Путем машинной обработки находили значения  $P_f$  и характерного времени  $\tau$ .

Первые ступени, соответствующие охлаждению из области однородного раствора, имели различную величину  $\Delta T_1$  от 5 до  $\sim 100$  мК, а последующие — 10–15 мК (см. рис. 1). Было установлено, что при  $\Delta T_1$ , превышающих 40–50 мК, характерное время  $\tau$  составляло  $\sim 500$ –700 с и практически оставалось постоянным при дальнейшем понижении температуры. Для малых  $\Delta T_1$  величина  $\tau$  оказывалась значительно больше, до  $4 \cdot 10^4$  с. И в этом случае происходило значительное понижение  $\tau$  на последующих ступенях. На рис. 2 приведены временные зависимости относительного изменения давления на различных последовательных ступеньках для одного из образцов при небольшой величине  $\Delta T_1 = 26$  мК. Видно заметное увеличение скорости приближения к равновесию при понижении температуры, особенно при высоких температурах.

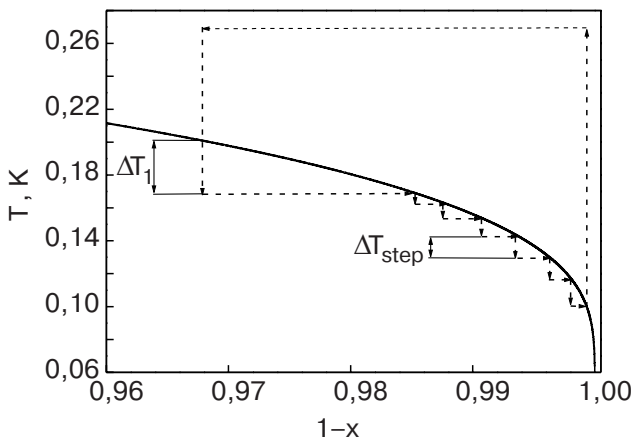


Рис. 1. Схема проведения эксперимента. Сплошная кривая — участок фазовой диаграммы по данным Эдвардса и Балибара [23] при  $P = 33$  бар.

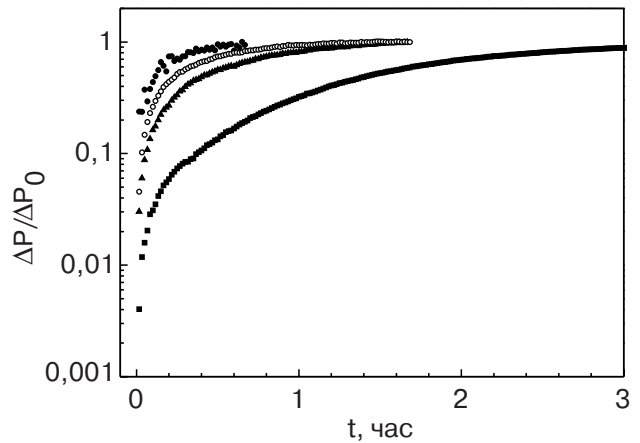


Рис. 2. Зависимость относительного изменения давления от времени для образца с  $x_0 = 3,34\%$   ${}^4\text{He}$ ,  $V_\mu = 24,2$  см<sup>3</sup>/моль и  $\Delta T_1 = 26$  мК при различных температурах  $T_i$  и  $T_f$ , мК: 221 и 195 (■); 195 и 185 (▲); 175 и 162 (○); 121 и 107 (●).

### 3. Связь постоянной времени распада с коэффициентом диффузии

Наличие коротких и независящих от температуры времен  $\tau$  уже отмечалось нами ранее [13] в связи с ситуацией, когда вокруг вакансий в матрице  ${}^3\text{He}$  образовывались кластеры  ${}^4\text{He}$ . В [13] было высказано предположение, что такое поведение связано с отличием от единицы вероятности проникновения примесного атома, подошедшего к границе, внутрь кластера. Естественно полагать, что аналогичная ситуация может возникнуть и в данном случае в условиях достаточно большой концентрации зародышей новой фазы, когда время диффузионного переноса окажется меньше времени пребывания атома на поверхности зародыша. Именно такая картина должна иметь место при больших степенях пересыщения в условиях гомогенного зародышеобразования, в пользу реализации которого в твердых растворах  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$  приведены аргументы в [14,15].

При уменьшении степени переохлаждения концентрация зародышей быстро (экспоненциально) падает, что приводит к росту диффузионного времени  $\tau_D$ , которое в конце концов может обеспечить доминирующий вклад в  $\tau$ . Обнаруженная в последнем случае зависимость  $\tau(T)$  является следствием зависимости коэффициента диффузии от концентрации, поскольку при фазовом распаде температура задает равновесную концентрацию. Проиллюстрирована зависимость  $\tau(x)$  (рис. 3), полученная при обработке данных рис. 2. Концентрация для каждой ступеньки определялась как среднее между начальной  $x_i$  и конечной  $x_f$  концентрацией. Видно заметное изменение  $\tau$  с концентрацией, особенно при ее боль-

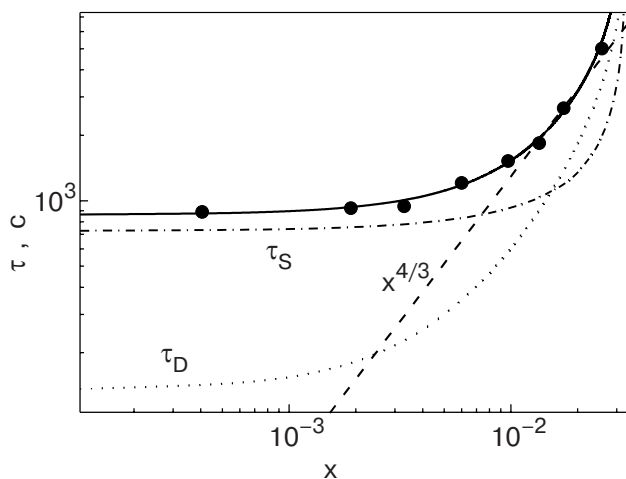


Рис. 3. Зависимость характерного времени распада от концентрации <sup>4</sup>He: экспериментальные точки (●);  $\tau \sim x^{4/3}$  (---);  $\tau_D$  (12) (···);  $\tau_S$  (13) (-·-·); уравнение (11) (—).

ших значениях. Для сравнения нанесена зависимость  $\tau \sim x^{4/3}$ , оказавшаяся в этой области близкой к экспериментальной. Некоторые характеристики исследованного образца приведены в таблице.

Таблица

Некоторые характеристики исследованного образца  $x_0 = 3,34\% \text{ } ^4\text{He}$ ,  $V_m = 24,2 \text{ см}^3/\text{моль}$  и  $\Delta T_1 = 26 \text{ мК}$

$T_f, \text{ К}$	$\tau \cdot 10^{-3}, \text{ с}$	$x_i, \% \text{ } ^4\text{He}$	$x_f, \% \text{ } ^4\text{He}$	$z$	$D_{43} \cdot 10^8, \text{ см}^2/\text{с}$	$\tau_D \cdot 10^{-3}, \text{ с}$	$\tau_s \cdot 10^{-3}, \text{ с}$
0,195	5,01	3,34	1,97	0,201	1,04	3,03	1,98
0,185	2,66	1,97	1,55	0,255	1,64	1,46	1,20
0,175	1,84	1,55	1,19	0,274	2,16	0,81	1,03
0,162	1,52	1,19	0,80	0,289	2,98	0,60	0,92
0,145	1,21	0,80	0,44	0,303	4,44	0,37	0,83
0,132	0,94	0,44	0,25	0,312	6,35	0,20	0,78
0,121	0,925	0,25	0,14	0,316	7,78	0,17	0,76
0,107	0,89	0,14	0,05	0,321	9,49	0,16	0,73

Примечание:  $T_f$  — конечная температура,  $\tau$  — найденные в эксперименте характерные времена установления равновесия,  $x_i$  и  $x_f$  — начальная и конечная концентрация примесей в матрице,  $z = r/R$  — отношение радиуса включения новой фазы к размеру области, приходящейся на один зародыш,  $D_{43}$  — эффективный коэффициент диффузии <sup>4</sup>He в матрице <sup>3</sup>He,  $\tau_D$  — характерное диффузионное время согласно (12),  $\tau_s$  — характерное «поверхностное» время согласно (13).

Для количественного рассмотрения, аналогично тому, как это было сделано в [7] для растворов <sup>3</sup>He в <sup>4</sup>He, использовано решение диффузионной задачи в сферических координатах при граничных и начальном условиях, соответствующих постановке эксперимента.

Решение уравнения диффузии

$$\frac{\partial x}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 x}{\partial \rho^2} + \frac{2}{\rho} \frac{\partial x}{\partial \rho} \right) \quad (5)$$

при начальном условии  $x(\rho, 0) = x_i$  и граничных условиях

$$\left. \frac{\partial x}{\partial \rho} \right|_{\rho=R} = 0, \quad D \left. \frac{\partial x}{\partial \rho} \right|_{\rho=r} = K(x - x_f) \quad (6)$$

имеет вид (см., например, [16]),

$$x(\rho, t) = x_f + (x_i - x_f) \sum_{n=1}^{\infty} A_n e^{-D\lambda_n^2 t} \frac{\sin [\lambda_n(\rho - r) + \nu_n]}{\rho}, \quad (7)$$

где  $x_i$  и  $x_f$  — начальная и конечная концентрации <sup>4</sup>He в матрице,  $r$  — радиус зародыша новой фазы,  $R$  — радиус условной сферы, ограничивающей объем, из которого примеси поступают в данный зародыш,  $K$  — коэффициент, характеризующий вероятность проникновения примеси в зародыш,  $A_n$  и  $\nu_n$  — известные постоянные коэффициенты,  $\lambda_n$  — корни трансцендентного уравнения

$$\text{tg } \lambda_n(R - r) = \frac{\lambda_n(hrR + R - r)}{\lambda_n^2 rR + hr + 1}, \quad h = \frac{K}{D}. \quad (8)$$

Решение диффузионной задачи проведено при постоянных  $r$  и  $D$ , что можно оправдать сравнительно небольшими изменениями этих величин для каждой ступеньки. Частично влияние их непостоянства учитывается использованием средних величин на каждой ступеньке. Оценки показывают, что даже при малых  $t$  в (7) можно ограничиться первым членом. Измеряемое в эксперименте изменение давления пропорционально изменению средней концентрации  $\bar{x}(t)$ , которая может быть найдена усреднением (7) в интервале от  $r$  до  $R$ .

$$\begin{aligned} \bar{x}(t) &= \frac{3}{(R^3 - r^3)} \int_r^R x(\rho, t) \rho^2 d\rho = \\ &= x_f + 3 \frac{x_i - x_f}{R^3 - r^3} \tilde{A}_1 e^{-t/\tau}, \end{aligned} \quad (9)$$

где  $\tilde{A}_1$  — постоянная величина.

Интересующая нас зависимость от времени характеризуется величиной

$$\tau = \frac{1}{D\lambda^2}, \quad (\lambda \equiv \lambda_1), \quad (10)$$

где  $\lambda$  находится из решения уравнения (8). Это легко сделать при условии  $\lambda(R - r) < 1$ , разложив  $\text{tg } \lambda(R - r)$  в ряд. Если ограничиться в разложении членами порядка  $\lambda^3(R - r)^3$  и использовать для связи  $R$  и  $r$  условия сохранения  $^4\text{He}$  в объеме сферы радиусом  $R$ , можно получить следующее уравнение

$$\tau = \frac{1}{D\lambda^2} = \frac{R^2}{3D} \frac{(1 - z)^3}{z} + \frac{R}{3K} \frac{1 - z^3}{z^2}, \quad (11)$$

где

$$z = \frac{r}{R} = \sqrt[3]{\frac{x_0 - \bar{x}}{1 - 2\bar{x}}}.$$

Фактически формула (11) означает, что в рассматриваемом приближении измеряемое время релаксации можно рассматривать как сумму диффузионного

$$\tau_D = \frac{R^2}{3D} \frac{(1 - z)^3}{z} \quad (12)$$

и «поверхностного» времени

$$\tau_s = \frac{R}{3K} \frac{1 - z^3}{z^2}. \quad (13)$$

Заметим, что выражение для  $\tau_D$  точно соответствует решению диффузионной задачи, полученному в том же приближении, в случае, когда нет сопротивления при переходе примеси в зародыш. Зависимость  $\tau_s$  от концентрации (температуры) обусловлена изменением соотношения объема матрицы к суммарной поверхности включений новой фазы. Из (11) следует, что

$$\tau D f_1(z) = \frac{R^2}{3} + \frac{RD}{3K} f_2(z), \quad (14)$$

где

$$f_1(z) = \frac{z}{(1 - z)^3}, \quad f_2(z) = \frac{1}{z} + \frac{3}{(1 - z)^2}.$$

Таким образом, если построить зависимость  $\tau D f_1(z)$  от  $D f_2(z)$ , то должна получиться прямая, отсечка которой на оси ординат дает возможность найти  $R$ , а угол наклона позволит определить  $K$ .

При дальнейшей обработке экспериментальных данных естественно было бы отождествить входящий в (11) коэффициент диффузии с  $D_x$  из (2). В случае слабых растворов  $^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  входящая в (2) величина  $J_{34}$  достаточно надежно определена в экспериментах по изучению квантовой диффузии и оказывается приблизительно в 5–6 раз меньше об-

менного интеграла  $J_{33}$  в чистом  $^3\text{He}$  при одинаковых молярных объемах (см., например, [17]). Уменьшение  $J_{34}$  по сравнению с  $J_{33}$  обусловлено двумя факторами: участием в туннельном обмене более тяжелого атома и из-за большей амплитуды нулевых колебаний атома  $^3\text{He}$ , расстояние его до ближайшего соседа оказывается больше среднего расстояния в решетке. Оба фактора уменьшают вероятность туннелирования и обеспечивают найденное различие. Относительно обменного интеграла  $^4\text{He}$  в  $^3\text{He}$   $J_{43}$  каких-либо достоверных сведений нет. Однако, имея в виду, что в этом случае указанные факторы и действуют в противоположных направлениях, можно предположить, что  $J_{43} \approx J_{33}$ . Используя известное значение  $J_{33}$  [18] и оцененное в работе Кального и Стржемечного [19] значение  $V_0$ , характеризующее взаимодействие примесей  $^4\text{He}$  в ОЦК  $^3\text{He}$  (адаптированное к нашему молярному объему), можно получить следующее выражение:

$$D_x = 8,8 \cdot 10^{-11} x^{-4/3} \text{ см}^2/\text{с}. \quad (15)$$

Следует обратить внимание на то, что  $D_x$  из (15) при малых  $x$  оказывается больше коэффициента спиновой диффузии в чистом  $^3\text{He}$   $D_{33}$ , чего, конечно, не должно быть при нашем предположении о равенстве  $J_{33}$  и  $J_{43}$ , поскольку диффузия в  $^3\text{He}$  осуществляется при полном отсутствии тормозящих упругих взаимодействий. Для исключения такой ситуации следует использовать эффективный коэффициент диффузии,

$$D_{43} = \frac{D_x D_{33}}{D_x + D_{33}}, \quad (16)$$

обеспечивающий условие  $D_{43} \leq D_{33} = 5,0 \cdot 10^{-34} V_\mu^{19} \text{ см}^2/\text{с}$  [20,21]. Физически происхождение формулы (16) можно, по-видимому, рассматривать как следствие сосуществования в образце микроскопических областей со случайным различием концентраций. В областях с пониженной концентрацией примеси не «чувствуют» друг друга, и диффузия осуществляется так же как и в чистом  $^3\text{He}$ , с коэффициентом  $D_{33}$ , а в областях с повышенной концентрацией взаимодействие примесей приводит к зависимости типа (15). Совокупность таких процессов может дать коэффициент диффузии, описываемый формулой (16). На рис. 4 представлена зависимость  $D_{43}$  от концентрации. Для сравнения нанесены также значение  $D_{33}$  и зависимость  $D_x(x)$ . Видно, что при малых концентрациях  $D_{43}$  стремится к  $D_{33}$  и существенно уменьшается при увеличении  $x$ .

Построенная при указанных выше предположениях зависимость (14) представлена на рис. 5. Видна хорошая линейная зависимость, позволяющая достаточно надежно определить значения парамет-

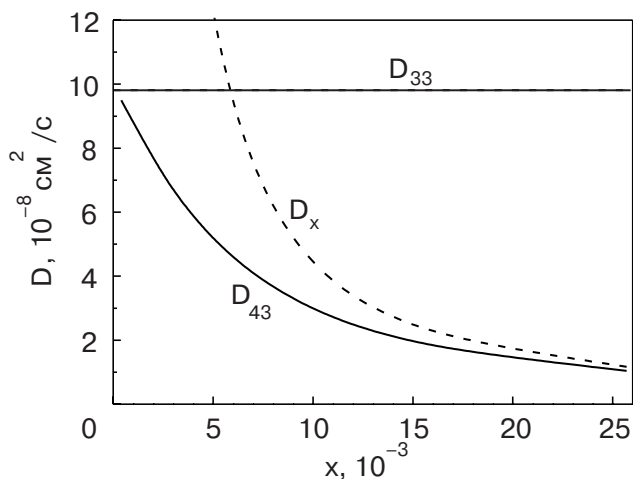


Рис. 4. Зависимость коэффициента диффузии примесей  ${}^4\text{He}$  от концентрации в соответствии с (16).

ров  $R$  и  $K$ :  $R = (6,4 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$  см и  $K = (2,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-5}$  см/с. Заметим, что найденное максимальное значение  $\lambda R(1 - z) \approx 0,7$  оправдывает пренебрежение степенями выше кубической при разложении  $\text{tg } \lambda(R - r)$  в (8). Подставляя найденные значения  $R$  и  $K$  в (11), можно описать полученные экспериментальные данные. Сплошная кривая на рис. 3 соответствует расчету с помощью (11). Здесь представлены также  $\tau_D(x)$  и  $\tau_s(x)$  в соответствии с формулами (12) и (13). Как и следовало ожидать, при больших концентрациях преобладающим является вклад  $\tau_D$ , а при малых —  $\tau_s$ .

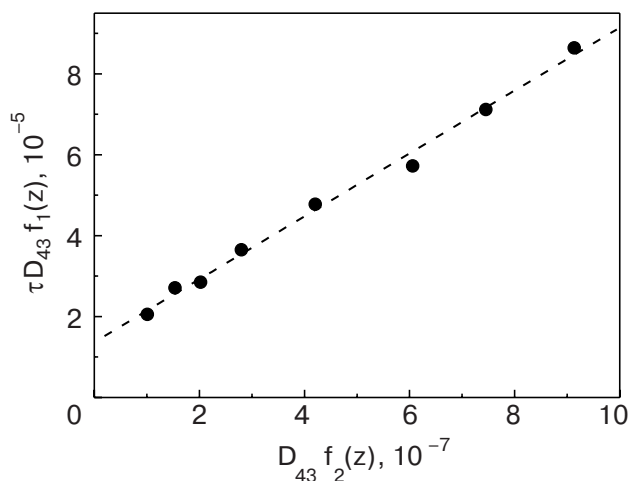


Рис. 5. Зависимость  $\tau D_{43} f_1(z)$  от  $D_{43} f_2(z)$  в соответствии с уравнением (14).

\* Здесь приведено значение  $\sigma$ , исправленное с учетом того, что в [14] при расчете  $\sigma$  по найденной величине  $\beta$  вместо параметра  $\tilde{a}$  использовано  $a = (V_\mu/N_A)^{1/3}$ .

#### 4. Концентрация зародышей и межфазное натяжение

Найденное значение  $R$  позволяет определить концентрацию зародышей новой фазы  $N_m = \tilde{a}^3/R^3 = 3,6 \cdot 10^{-17}$ ,  $\tilde{a}$  — межатомное расстояние, определяемое соотношением  $4\pi\tilde{a}^3/3 = V_\mu/N_A$  ( $N_A$  — число Авогадро).

В рамках теории гомогенного зародышеобразования Слезов и Шмельцер [22] рассчитали концентрацию зародышей в зависимости от концентрации примесей, температуры и степени пересыщения. Применительно к распаду твердых растворов изотопов гелия можно записать

$$N_m = \beta^{-3/8} x_i^{7/4} \exp \left\{ - \frac{3\beta^3 \left[ 1 + 8 \frac{T_0}{T_f} (x_i - x_f) \right]}{8 \ln^2 \frac{x_i}{x_f}} \right\}, \quad (17)$$

где  $\beta = (8\pi/3)(\sigma\tilde{a}^2/T_f)$ ;  $T_0$  — температура максимума кривой расслоения;  $T_f$  — конечная температура;  $\sigma$  — поверхностное натяжение на границе зародыша.

Формула (17) отличается от приведенной в [22, 15] наличием в показателе экспоненты множителя в квадратной скобке, который введен для учета неидеальности твердых растворов  ${}^3\text{He} - {}^4\text{He}$  (см. [23]). Расчет  $N_m$  с помощью (17) показывает, что практически все зародыши в данном случае возникают на первой ступени охлаждения, так что число зародышей и эквивалентный радиус  $R$  на всех ступенях можно считать одинаковыми. Найденное значение  $N_m$  приблизительно на два порядка меньше, чем в [15], что в первую очередь связано с заметным различием степени переохлаждения. Если с помощью (17) оценить величину межфазного поверхностного натяжения, то получим  $\sigma = 1,9 \cdot 10^{-2}$  эрг/см<sup>2</sup>, что сравнимо с величиной  $1,5 \cdot 10^{-2}$  эрг/см<sup>2</sup>\*, найденной в [14] при изучении кинетики расслоения при различных степенях переохлаждения. Получение близких значений  $\sigma$  в экспериментах различных типов (см. также [15]) является на наш взгляд весомым аргументом в пользу реализации в твердых растворах  ${}^3\text{He} - {}^4\text{He}$  условий гомогенного зародышеобразования.

## 5. Заключение

Проведены исследования кинетики распада слабых твердых растворов  ${}^4\text{He}$  в  ${}^3\text{He}$ . Установлена существенная зависимость характерного времени распада  $\tau$  от степени переохлаждения из области однородного раствора. Найдено, что при больших степенях переохлаждения времена распада составляют несколько сот секунд и не зависят от температуры. При малых переохлаждениях обнаружены более длинные времена до  $4 \cdot 10^3$  с при высоких температурах и заметное уменьшение  $\tau$  при понижении температуры. Такое поведение  $\tau$  связано с изменением коэффициента диффузии в соответствии с зависимостью  $D \sim x^{-4/3}$ , предсказанной для диффузии примесей в квантовых кристаллах в условиях их существенного взаимодействия друг с другом. Для количественной обработки результатов использовано решение диффузионной задачи с учетом конечного сопротивления границы. Сравнение экспериментальных и расчетных данных позволило впервые выделить время релаксации, связанное с граничным сопротивлением, а также оценить средний размер области, приходящийся на один зародыш новой фазы и концентрацию зародышей  $N_m$ . По величине  $N_m$  в рамках теории гомогенного зародышеобразования рассчитан коэффициент межфазного поверхностного натяжения  $\sigma$ , который оказался близким к величине, найденной в других экспериментах. Совпадение значений  $\sigma$ , полученных в различных экспериментах, можно рассматривать как свидетельство реализации в достаточно совершенных образцах твердых растворов  ${}^3\text{He}$ — ${}^4\text{He}$  условий гомогенного зародышеобразования и возможности на примере этой системы количественного изучения кинетики фазовых переходов первого рода.

Работа была поддержана Государственным Фондом Украины по фундаментальным исследованиям (проект 02.07/00391, договор Ф7/286-2001).

1. А.Ф. Андреев, И.М. Лифшиц, *ЖЭТФ* **56**, 2056 (1969).
2. В.А. Слюсарев, М.А. Стржемечный, в сб.: *Физика низких температур*, вып. 19, ФТИИТ (1972), с. 85.
3. A. Widom and M.J. Richards, *Phys. Rev.* **A6**, 1196 (1972).
4. Yu. Kagan and M.I. Klinger, *J. Phys.* **C7**, 2791 (1974).
5. Ю.М. Каган, Л.А. Максимов, *ЖЭТФ* **84**, 792 (1983).
6. В.А. Шварц, Н.П. Михин Э.Я. Рудаевский, А.М. Усенко, Ю.А. Токарь, В.А. Михеев, *ФНТ* **21**, 717 (1995).

7. А.Н. Ганьшин, В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, Н.Ф. Омелаенко, А.А. Пензев, Э.Я. Рудаевский, А.С. Рыбалко, Ю.А. Токарь, *ФНТ* **25**, 796 (1999).
8. А.Ф. Андреев, *УФН* **118**, 251 (1976).
9. A. Landesman, *Phys. Lett.* **A54**, 137 (1975).
10. J.E. Sacco, A. Widom, *Proc. Int. Quantum Crystals Conf.*, Colorado Univ. (1977), p. C-15; *Phys. Rev.* **B17**, 204 (1978).
11. W.J. Mullin, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 254 (1968).
12. В.А. Ганьшин, В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, Н.Ф. Омелаенко, А.А. Пензев, Э.Я. Рудаевский, А.С.Рыбалко, *ФНТ* **26**, 1175 (2000).
13. В.А. Ганьшин, В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, Н.Ф. Омелаенко, А.А. Пензев, Э.Я. Рудаевский, А.С. Рыбалко, Е.В. Сырников, *ФНТ* **29**, 5 (2003).
14. A. Penzev, A. Ganshin, V. Grigor'ev, V. Maidanov, E. Rudavskii, A. Rybalko, V. Slezov, and Ye. Syrnikov, *J. Low Temp. Phys.* **126**, 151 (2002).
15. A. Smith, V. Maidanov, E. Rudavskii, V. Grigor'ev, V. Slezov, M. Poole, J. Saunders, and B. Cowan, *Phys. Rev.* **B** (to be published).
16. Б.М. Будаков, А.А. Самарский, А.Н. Тихонов, в сб.: *Задачи по математической физике*, Наука, Москва (1972).
17. В.Н. Григорьев, *ФНТ* **23**, 5 (1997).
18. M.F. Panczyk and E.D. Adams, *Phys. Rev.* **A1**, 1356 (1970).
19. С.Е. Кальной, М.А. Стржемечный, *ФНТ* **8**, 1025 (1982).
20. Б.Н. Есельсон, В.А. Михеев, В.Н. Григорьев, *ФНТ* **2**, 1229 (1976).
21. В.Н. Григорьев, *Автореф. дисс. д-ра физ.-мат. наук*, ФТИИТ, Харьков (1981).
22. В.В. Слезов, Ю. Шмельцер, *ФТТ* **39**, 2210 (1997).
23. E.D. Edwards and S. Balibar, *Phys. Rev.* **B39**, 4083 (1989).

Concentration dependence of diffusion coefficient in separating dilute solid mixtures of  ${}^4\text{He}$  in  ${}^3\text{He}$ 

V.N. Grigor'ev, V.A. Maidanov, A.A. Penzev, E.Ya. Rudavskii, A.S. Rybalko, and Ye.V. Syrnikov

The precise pressure measurements of the phase separation kinetics of dilute solid mixtures of  ${}^4\text{He}$  in  ${}^3\text{He}$  are made in the temperature range from 100 to 200 mK at  ${}^4\text{He}$  concentrations  $x = 2,2$ – $3,3\%$  and pressures between 32 and 35 bar. It is found that the characteristic time constant of separation,  $\tau$ , is very sensitive to the degree of supercooling. When the mixture is supercooled by more than 40–50 mK relative to the separation temperature of the initial mixture, the value of  $\tau$  becomes lower than  $10^3$  s and remains almost unchanged with further decrease in temperature. For low supercooling levels the values of  $\tau$  may be as much as  $4 \cdot 10^4$  s and decrease appre-

ciably with temperature. A relation between the measured values of  $\tau$  and the effective mass diffusion coefficient is obtained by solving the diffusion problem with involving a surface resistance appearing under transition of  $^4\text{He}$  impurity atoms from the mixture to a new phase inclusion. It is shown that an adequate treatment of the experimental data in terms of the kinetic theory of tunnel transport of impurities under their strong interaction with one another may be obtained assuming that the diffusion coefficient of  $^4\text{He}$  in  $^3\text{He}$  is proportional to  $x^{-4/3}$ . The nuclei concentration and the average area size per a

nucleus are calculated. The analysis of the experimental data on nucleation kinetics at phase separation indicates that they can be treated in terms of the homogeneous nucleation theory. The values of interphase surface tension coefficient obtained appear to be in agreement with the available data. The relaxation time accounted for by the finite resistance on impurity penetration through the matrix — new phase inclusion boundary was estimated for the first time.