

Исследование кинетики фазового разделения твердых растворов ^3He в ^4He с помощью прецзионных измерений давления

А. Н. Ганьшин, В. А. Майданов, Н. Ф. Омелаенко, А. А. Пензев,
Э. Я. Рудавский, А. С. Рыбалко

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47
E-mail: rudavskii@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 24 марта 1998 г.

С помощью прецизионных измерений давления при постоянном объеме изучена кинетика изотопического фазового разделения твердых растворов ^3He – ^4He при разных молярных объемах. Установлено, что достижение равновесия между существующими фазами, образованными в результате расслоения, хорошо описывается экспоненциальной зависимостью при разных способах охлаждения и отогрева кристалла. Соответствующее характеристическое время фазового разделения уменьшается с понижением температуры, подтверждая атермический квантовый характер роста новой фазы в процессе фазового перехода. Обнаружено, что время фазового разделения заметно увеличивается с ростом давления кристалла. Показано, что существующая теория лишь качественно описывает установленные закономерности. Для количественного объяснения наблюдаемых в эксперименте времен распада необходимо рассмотреть диффузионные процессы в газе примесных возбуждений при наличии градиента концентрации.

За допомогою прецизійного вимірювання тиску при постійному об'ємі досліджено кінетику ізотопічного фазового розділення твердих розчинів ^3He – ^4He при різних молярних об'ємах. Встановлено, що досягнення рівноваги між співіснуючими фазами, утвореними внаслідок розділення, добре описується експоненціальною залежністю при різних способах охолодження та отеплення кристалу. Відповідний характеристичний час фазового розділення зменшується при зниженні температури, підтверджуючи атермічний квантовий характер росту нової фази в процесі фазового переходу. Виявлено, що час фазового розділення помітно збільшується із зростом тиску кристала. Показано, що існуюча теорія лише якісно описує встановлені закономірності. Для кількісного пояснення часів розпаду, що спостерігаються в експерименті, необхідно провести розгляд дифузійних процесів в газі домішкових збуджень при наявності градієнту концентрації.

PACS: 67.80.Gb, 64.70.Kb

Введение

Фазовое расслоение слабых твердых растворов ^3He в ^4He при достаточно низких температурах приводит, как известно, к тому, что в кристаллической матрице почти чистого ^4He возникают включения (клスター) концентрированной фазы, состоящей практически из чистого ^3He . В отличие от расслоения жидких растворов ^3He – ^4He , где более легкая концентрированная фаза всплывает в поле сил тяжести, в твердых растворах включения ^3He распределены по всему объему матрицы, при этом отсутствует единая

поверхность, разделяющая фазы. В этих условиях рост концентрированной фазы определяется в основном диффузионными процессами в такой системе.

Специфика слабых твердых растворов ^3He в ^4He состоит также в том, что из-за большой амплитуды нулевых колебаний примесные атомы ^3He вследствие квантового туннелирования делокализуются и превращаются в квазичастицы (примесоны). При малой концентрации примесей их можно рассматривать как разреженный газ квазичастиц, движущийся практически свободно по всему кристаллу. Это приводит к особому

характеру диффузионных процессов в твердых растворах ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$.

Несмотря на то что некоторые аспекты кинетики изотопического фазового разделения твердых растворов ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ исследуются уже более 30 лет [1–12], лишь недавно была установлена корреляция между кинетикой роста концентрированной фазы и диффузионными процессами в твердом растворе [13–15]. Было показано, что характеристическое время фазового разделения уменьшается с понижением температуры, что свидетельствовало о нетермоактивационном характере диффузионных процессов. Согласие с экспериментом было получено в предположении, что эволюция включений новой фазы определяется квантовой диффузией [16] делокализованных примесных возбуждений в растворе. Как и ожидалось, процесс существенно зависит от концентрации ${}^3\text{He}$ в растворе.

Уникальная особенность кристаллов гелия, связанная с их чрезвычайно высокой сжимаемостью, приводит к появлению еще одного фактора, который коренным образом может изменить кинетическое поведение системы. Таким фактором является давление, что было экспериментально продемонстрировано в работе [17]. Поскольку обменная энергия пары атомов ${}^3\text{He}$ и ${}^4\text{He}$, являющихся ближайшими соседями, сильно уменьшается с ростом давления, то увеличение давления при постоянной концентрации подавляет квантовую диффузию квазичастиц ${}^3\text{He}$ и приводит к их локализации.

Это обстоятельство влияет на кинетику изотопического фазового разделения. В настоящей работе начаты систематические экспериментальные исследования влияния давления на кинетику роста концентрированной фазы с помощью прецизионных измерений давления в процессе изотопического фазового разделения твердых растворов ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ при постоянном объеме.

Методика эксперимента

В работе исследовался раствор с исходной концентрацией 2,04 ат.% ${}^3\text{He}$. Кристаллический образец выращивался методом блокировки капилляра. Образцы отжигались вблизи температуры плавления в течение 2 суток для улучшения качества кристалла, которое оценивалось по воспроизводимости температурной зависимости давления в однофазной области перед расслоением при нескольких охлаждениях. Схема используемой

экспериментальной ячейки приведена на рис. 1. Образец имел форму плоского цилиндра диаметром 9 мм и высотой 1,5 мм, что облегчало охлаждение кристалла. Тепловая связь ячейки с камерой растворения осуществлялась с помощью разъемного конического теплового контакта [18]. В ячейке не использовался спеченный теплообменник, поскольку наличие мелких пор может существенно повлиять на процесс фазового разделения [19].

По оценкам, время тепловой релаксации образца, связанное с его конечным теплосопротивлением, составляло ~ 1 с, а время релаксации, обусловленное сопротивлением Капицы, 25–50 с.

Для получения сверхнизких температур использовался новый мощный рефрижератор растворения ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$ собственного изготовления, отличительной особенностью которого является наличие как внешней циркуляции ${}^3\text{He}$ механическим насосом НВПР-16, так и криогенной циркуляции с помощью двух адсорбционных насосов. Двойная система циркуляции позволяла с помощью мощных адсорбционных насосов быстро достигать необходимой температуры, а затем только механическим насосом поддерживать эту температуру. Такой режим работы значительно сокращает расход гелия во внешней ванне. Минимальная температура, которая была получена при охлаждении с пустой ячейкой (без теплопритока по капилляру заполнения), составила 4,2 мК.

Температура образца определялась кристаллизационным термометром [20], который был установлен на плате камеры растворения. Т

е

м

п

е

р

а

т

у

р

н

о

р

а

з

п

и

ш

с

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

и

ение термометра составило 0,3 мК. Вместе с тем использовалось несколько термометров сопротивления, показания которых измерялись мостом переменного тока Cryo Bridge R441 и специально разработанным цифровым мостом переменного тока при выделяемой мощности до 10^{-15} Вт [21]. Стабилизация температуры осуществлялась при помощи нагревателя, расположенного на плите камеры растворения и включенного в выходную цепь цифрового моста.

Фазовый переход изучался при охлаждении образца в область фазового расслоения малыми ступеньками по температуре с последующей стабилизацией температуры. При этом в нескольких случаях для сравнения использовалось и однократное охлаждение (одна большая ступенька).

Кинетика изотопического фазового разделения изучалась путем регистрации изменения давления в образце. Для этого использовался емкостной датчик давления Страти и Адамса, в котором подвижной мембраной служила одна из стенок экспериментальной ячейки (рис. 1). Для регистрации изменения давления в образце использовался мост переменного тока General Radio 1615-A. Разрешение датчика во всем диапазоне рабочих давлений было лучше чем 8 П

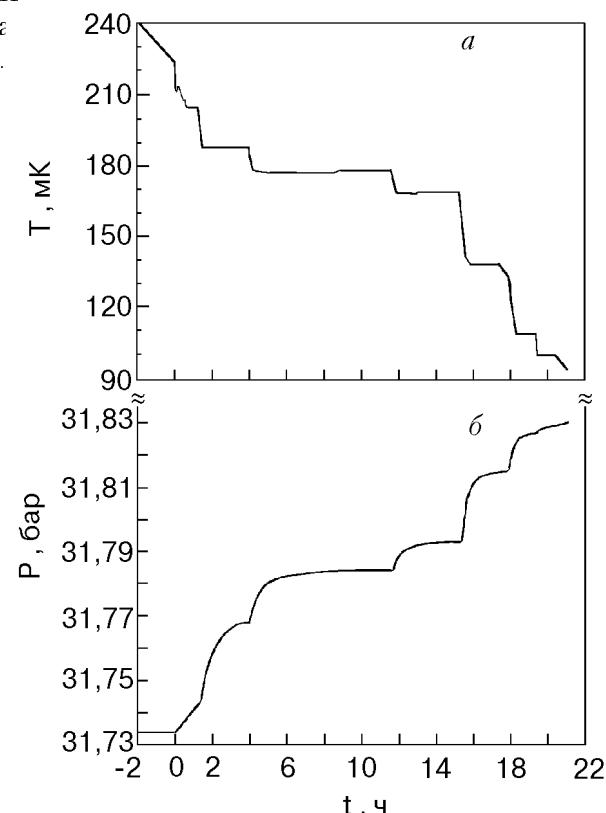


Рис. 2. Кинетика охлаждения образца 3 (а) и соответствующая зависимость давления кристалла от времени (б) (молярный объем $20,54 \text{ см}^3/\text{моль}$).

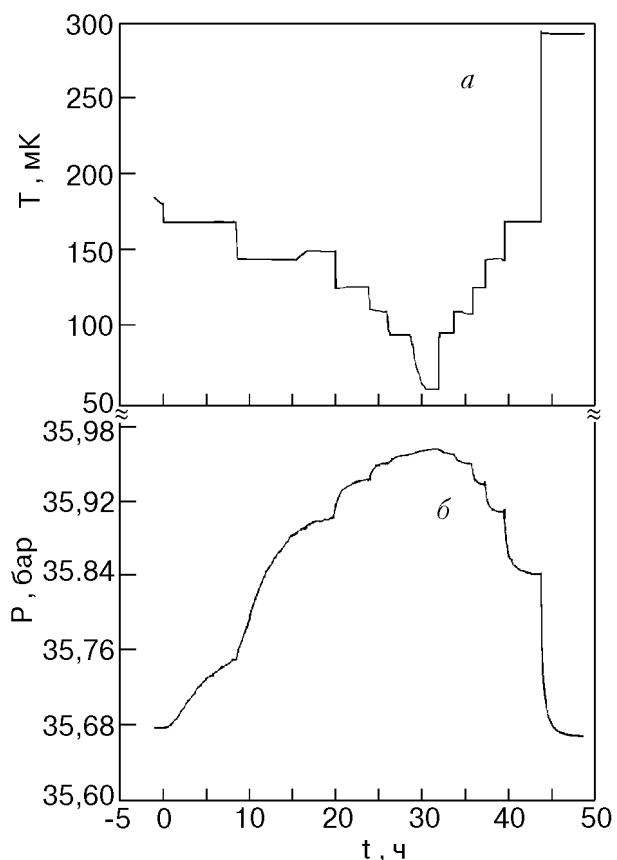


Рис. 3. Кинетика охлаждения и последующего отопления образца 8 (а) и соответствующая временная зависимость изменения давления кристалла (б) (молярный объем $20,28 \text{ см}^3/\text{моль}$).

Термограммы охлаждения и кинетика изменения давления

Выращенные и отожженные образцы охлаждались до температуры, близкой к температуре фазового расслоения T_s , со скоростью $34 \pm 10 \text{ мК/ч}$. При этом ниже $\sim 400 \text{ мК}$ давление кристалла практически не изменялось вплоть до температуры T_s , при которой регистрировалось резкое возрастание давления, свидетельствующее о начале фазового перехода. Дальнейшее охлаждение образца уже в области фазового распада проводилось небольшими ступеньками с последующей стабилизацией температуры. На рис. 2 приведена типичная термограмма охлаждения образца в области фазового разделения и соответствующее изменение давления кристалла, отражающее кинетику роста концентрированной фазы.

В пределах каждой ступеньки равновесное состояние между сосуществующими фазами достигалось через определенное время τ — характерное время выхода на плато. При этом время достижения плато уменьшалось по мере перехода к более низкотемпературным

Таблица 1

Т Характеристики исследованных образцов

| № образца | Давление при $T = T_s$, бар | Молярный объем, см ³ /моль | T_s , мК | Способ охлаждения | Примечание |
|-----------|---------------------------------|--|------------|---------------------|---|
| Н 1 | 31,66 | 20,54 | 180 | Быстрое (1 ступень) | Отжиг в течение 3 суток; охлаждение и отогрев |
| Ь | | | | | |
| К 2 | 31,72 | 20,54 | 216 | Быстрое (2 ступени) | Охлаждение после гомогенизации образца 1 и повторный отогрев |
| а | | | | | |
| М 3 | 31,73 | 20,54 | 215 | Ступенчатое | Ступенчатое охлаждение после гомогенизации образца 2 |
| . | | | | | |
| Т 4 | 30,18 | 20,64 | 202 | Быстрое | Без предварительного отжига; охлаждение и отогрев |
| а | | | | | |
| К 5 | 35,61 | 20,29 | 207 | Быстрое | Без предварительного отжига; охлаждение и отогрев |
| о | | | | | |
| е 6 | 35,61 | 20,29 | 221 | Быстрое | После гомогенизации образца 5; охлаждение и отогрев |
| п | | | | | |
| о 7 | 31,28 | 20,56 | 200 | Быстрое | Без предварительного отжига; охлаждение |
| в | | | | | |
| е 8 | 35,67 | 20,28 | 194 | Ступенчатое | Отжиг в течение 1,5 суток; охлаждение и отогрев |
| д | | | | | |
| е 9 | 35,67 | 20,28 | 220 | Быстрое | После гомогенизации образца 8; охлаждение и отогрев |
| и | | | | | |
| е | | | | | |

было обнаружено и в экспериментах, выполненных методом ЯМР [12,13].

Некоторые образцы были исследованы как в процессе их охлаждения в области фазового разделения, так и последующего отепления (тоже небольшими ступеньками по температуре) вплоть до перехода расплавившегося раствора в гомогенное состояние. Пример такой термограммы и соответствующего изменения давления приведен на рис. 3. Из графиков видно отсутствие существенного различия в величине скачка давления при расслоении и гомогенизации как в пределе одной температурной ступеньки независимо от ее величины, так и суммарного изменения давления в процессе многоступенчатого расслоения и последующей гомогенизации.

В табл. 1 приведены основные характеристики исследованных образцов. Переход от одного образца к другому происходил путем отогрева кристалла до температуры плавления в замкнутом объеме. После этого давление в ячейке уменьшалось или увеличивалось с помощью газификатора, заполненного таким же раствором. Новый кристалл затем снова подвергался отжигу для устранения возможных неоднородностей и напряжений. Некоторые кристаллы для сравнения исследовались до и после отжига.

В табл. 1 также отмечены температуры фазового расслоения T_s , зарегистрированные в

момент изменения давления при охлаждении кристалла. Отметим, что у образцов, выращенных без предварительного отжига, начало фазового перехода имеет место при более высоких температурах, чем у хорошо отожженных образцов. Наиболее высокие значения T_s были получены при последующем охлаждении образцов, перешедших из двухкомпонентной системы в однородный раствор. Это свидетельствует о наличии областей метастабильных фаз, что типично для фазовых переходов первого рода.

Характеристическое время фазового разделения при ступенчатом охлаждении. Сравнение с теорией

Для количественного описания кинетики изотопического фазового разделения временная зависимость давления для n -й ступеньки аппроксимировалась экспоненциальной зависимостью

$$P_n = P_{n0} \pm A \exp(-t/\tau), \quad (1)$$

где знак «-» соответствует охлаждению, а «+» — отогреву; τ — характеристическое время, определяющее кинетику распада или гомогенизации в пределах одной ступеньки; параметр P_{n0} соответствует конечному

равновесному давлению для каждой ступеньки, а параметр A — разности конечного и исходного давлений.

Полученные экспериментальные данные хорошо описываются формулой (1), что в увеличенном масштабе показано на рис. 4 на примере охлаждения двухфазного раствора в рамках одной температурной ступеньки. Аппроксимация проводилась методом наименьших квадратов, а полученные значения параметров, входящих в (1), приведены в табл. 2 для каждого из кристаллов.

Таблица 2

Параметры, характеризующие фазовое разделение

| № образца | Начальная и конечная T ступеньки, мК | P_{n0} , бар | τ , ч | Конечная равновесная концентрация, % ^3He |
|-----------|--|----------------|------------|--|
| 3 | 216–188 | 31,768 | 0,76 | 1,0 |
| | 188–177 | 31,784 | 1,07 | 0,76 |
| | 177–168 | 31,793 | 0,74 | 0,6 |
| | 168–139 | 31,814 | 0,40 | 0,2 |
| | 139–110 | 31,827 | 0,27 | 0,04 |
| | 110–100 | 31,829 | 0,37 | 0,017 |

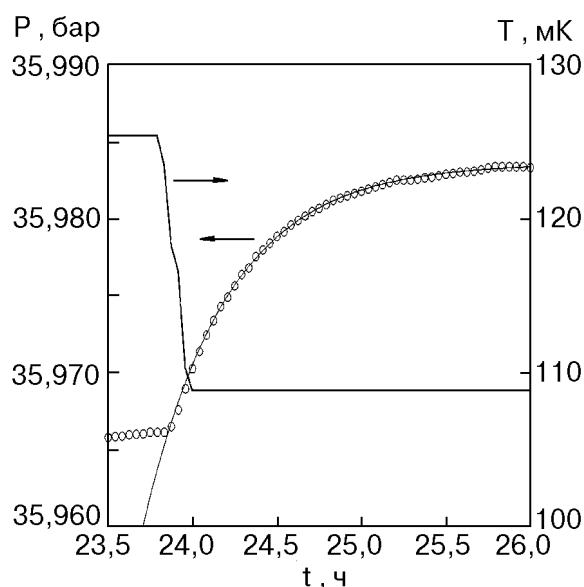


Рис. 4. Изменение давления кристалла при его охлаждении в пределе одной ступеньки ($T_i = 100$ мК; $T_f = 125$ мК): \circ — эксперимент; точки соединены сплошной линией согласно формуле (1).

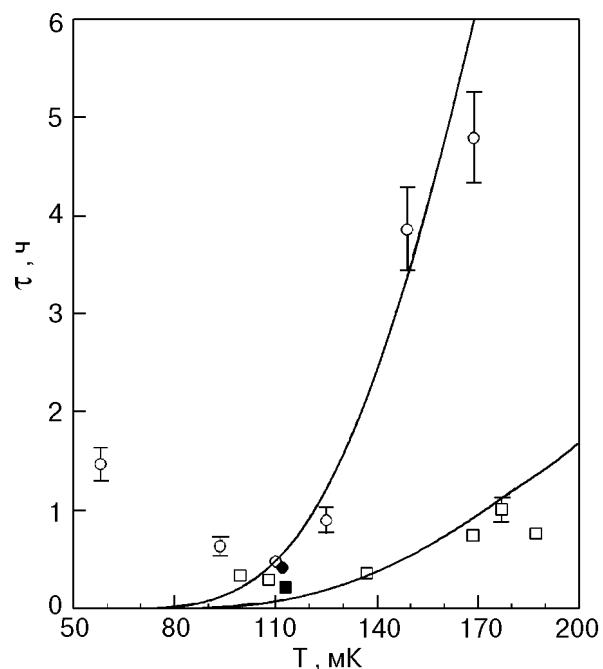


Рис. 5. Температурная зависимость характеристического времени изотопического фазового разделения для разных молярных объемов, $\text{см}^3/\text{моль}$: 20,54 (\circ), 20,28 (\square); \bullet , \blacksquare соответствуют одноступенчатому охлаждению. Сплошные линии — расчет по (2).

| | | | |
|---------|--------|------|--------|
| 194–169 | 35,772 | 5,07 | 0,67 |
| 169–148 | 35,910 | 3,69 | 0,28 |
| 148–125 | 35,942 | 0,90 | 0,11 |
| 125–110 | 35,959 | 0,42 | 0,04 |
| 110–99 | 35,967 | 0,65 | 0,02 |
| 99–62 | 35,974 | 1,20 | 0,0002 |
| 62–95 | 35,968 | 0,73 | 0,015 |
| 95–107 | 35,958 | 0,54 | 0,035 |
| 107–124 | 35,937 | 0,33 | 0,11 |
| 124–143 | 35,907 | 0,37 | 0,26 |
| 143–169 | 35,842 | 0,67 | 0,7 |
| 169–294 | 35,672 | 0,61 | 2,0 |

Температурная зависимость полученных таким образом времен τ изотопического фазового разделения приведена на рис. 5. Как и предполагали, с ростом давления (уменьшением молярного объема) изотопическое фазовое разделение сильно замедляется. При изменении температуры в процессе фазового разделения концентрация разбавленной фазы изменяется в соответствии с равновесной фазовой диаграммой [22], что определяет концентрационную зависимость времени τ , которая, как показал анализ, является почти линейной и согласуется с результатами работы [13].

Отметим, что теплота фазового перехода [11], которая выделяется в процессе изотопического

фазового разделения, согласно оценочному расчету не оказывает существенного влияния на кинетику процесса. Предположим, что выделение теплоты перехода во времени определяется ростом новой фазы по формуле (1), а при отводе тепла самым узким местом является сопротивление Капицы. Тогда из уравнения теплового баланса следует, что зависимость температуры образца от времени вследствие выделения теплоты фазового перехода имеет небольшой максимум, составляющий $\sim 2,5$ мК при резком охлаждении и $\sim 0,5$ мК при ступенчатом охлаждении. Этот максимум соответствует первым минутам расслоения, когда температура образца еще не стабилизована. После максимума температура образца выравнивается по экспоненциальному закону.

Экспериментальные данные, приведенные на рис. 5, можно сравнить с развитой недавно теорией, описывающей подвижность межфазной границы в квантовом кристалле [14]. Согласно [14], рост новой фазы, наблюдаемый в эксперименте, связан с движением межфазной границы. Из скорости движения границы было рассчитано характеристическое время фазового разделения для случая, когда величина температурной ступеньки ΔT много меньше самой температуры T :

$$\tau = \frac{\pi \sqrt{2}}{6x_0 d} \frac{a R_0}{D_0} \left(\frac{T_c}{T} \right)^3 \exp \left(-\frac{2T_c}{T} \right), \quad (2)$$

где x_0 — исходная концентрация распавшегося раствора; a — межатомное расстояние; d — размерность кластеров (включений) концентрированной фазы; R_0 — размер кластеров, который для сферических включений ($d = 3$) равен радиусу сферы, для цилиндрических ($d = 1$) радиусу цилиндра, а для плоских ($d = 2$) включений равен половине их толщины; T_c — критическая температура расслоения; параметр D_0 , зависящий от давления, входит в выражение для коэффициента диффузии

$$D(x) = \frac{D_0}{x} \left(\frac{x_c - x}{x_c} \right)^v, \quad (3)$$

которое следует из теории [23] и было подтверждено ЯМР измерениями коэффициента квантовой спиновой диффузии в твердых растворах, содержащих 0,12–4,98 % ^3He в области молярных объемов 19,9–20,7 см³/моль [24]. Величина x_c в формуле (3) соответствует

критической концентрации, при которой подавляется зонное движение примесонов, приводящее к квантовой диффузии, и наступает локализация квазичастиц ^3He . Эксперимент [24] показал, что величина x_c растет с увеличением молярного объема и в соответствии с изменением давления составляет 3,2–7,0 % ^3He , а критический показатель v всюду равен $1,7 \pm 0,3$.

Сопоставление полученных экспериментальных данных с формулой (2) показывает, что качественно теория [14] может описать температурную зависимость τ . Сплошные линии на рис. 5 соответствуют расчету по (2) для обоих молярных объемов. При этом в качестве подгоночного параметра была взята величина $R_0/D_0 d$, которая равна $4,9 \cdot 10^{11}$ с/см для $V = 20,28$ см³/моль и $9,8 \cdot 10^{10}$ с/см для $V = 20,54$ см³/моль. Если принять, что для $d = 3$ радиус сферического кластера R_0 составляет $2 \cdot 10^{-4}$ см [5, 9, 25], то полученные значения подгоночного параметра соответствуют величине $D_0 \sim 10^{-15}$ см²/с. Это почти на три порядка меньше аналогичной константы, полученной из ЯМР измерений коэффициента спиновой диффузии $D(x)$ [24], для соответствующих значений молярного объема.

Отметим, что при температурах ниже ~ 110 мК время τ практически не изменяется с понижением температуры, а в отдельных случаях было зарегистрировано даже некоторое увеличение времени распада. Такое низкотемпературное п

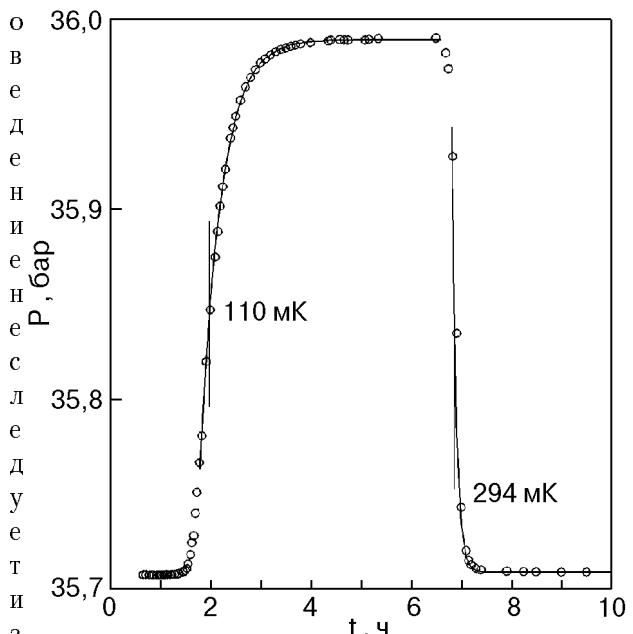


Рис. 6. Изменение давления кристалла при одноступенчатом охлаждении и отогреве образца 9 (молярный объем 20,28 см³/моль). Сплошная линия соответствует расчету по формуле (1).

рии [14].

Что же касается зависимости времени фазового распада τ от давления, то теория [14] также только качественно соответствует этой зависимости (рис. 5). Количественное расхождение, по-видимому, связано с тем, что значение параметра D_0 , входящего в (2), следует брать не из ЯМР измерений. Это означает, что рост новой фазы во время изотопического фазового разделения определяется диффузионным процессом, происходящим в иных условиях, чем в ЯМР экспериментах. Вероятно, следует использовать значения коэффициента гетеродиффузии, происходящей в двухфазном твердом растворе при наличии градиента концентрации. В работе [15] было отмечено, что на границе существующих фаз могут возникать сильные упругие напряжения, обусловленные разной кристаллической структурой и молярным объемом этих фаз. В таких условиях коэффициент диффузии также должен заметно измениться. К сожалению, этот круг вопросов для растворов квантовых кристаллов пока не изучен ни экспериментально, ни теоретически.

Фазовое разделение при быстром охлаждении

На рис. 6 приведен пример изменения давления при резком охлаждении образца после его термоциклизации (одна большая ступенька) и последующем отогреве его в гомогенное состояние. В этом случае очень четко видна асимметрия в изменении давления при охлаждении и отогреве. Отметим, что такая же асимметрия проявляется и при ступенчатом охлаждении и отогреве (рис. 3).

Анализ кинетики изменения давления в процессе изотопического фазового разделения, приведенного на рис. 6, показывает, что и в этом случае процесс достижения равновесия между существующими фазами хорошо описывается одной экспонентой. Соответствующие значения характеристического времени фазового разделения τ для этого и других образцов при быстром охлаждении приведены в табл. 3. Здесь же указано характеристическое время τ^* при обратном переходе из двухфазного расщепившегося раствора в однофазное гомогенное состояние. Из таблицы видно, что τ^* всегда заметно меньше, чем τ .

Таблица 3

Одноступенчатое охлаждение и отогрев образцов

| № образца | Начальная и конечная температура ступеньки | Время распада, ч | | Примечание |
|-----------|--|-------------------------|-------------------------|--------------------------------------|
| | | τ , при охлаждении | τ^* , при отогреве | |
| 1 | 184–113 | 0,33 | | После отжига в течение 3 суток |
| 2 | 216–198 | 0,76 | | После гомогенизации образца 1 |
| | 198–103 | 0,20 | | |
| 5 | 207–112,5 | 0,64 | | Без отжига |
| | 112,5–300 | | 0,10 | |
| 6 | 84–300 | | 0,12 | Измерение τ только при отогреве |
| 7 | 200–115 | 0,30 | | Без отжига |
| 9 | 230–110 | 0,42 | | После гомогенизации образца 8 |
| | 110–296 | | 0,11 | |

Значения времени фазового разделения при быстром охлаждении приведены также на рис. 5, где их можно сравнить с соответствующими значениями, полученными при ступенчатом охлаждении. Эксперименты показали, что при одной и той же конечной температуре в обоих случаях значения τ совпадают.

Некоторые из исследованных образцов подвергались изотопическому фазовому разделению без предварительного отжига. В этом случае значения времени распада оказались заметно выше, чем для образцов после отжига.

Обратим внимание, что при быстром охлаждении или отогреве фазовый переход всегда происходит в условиях большого градиента концентрации, который, кроме того, быстро изменяется со временем. Это обстоятельство, по-видимому, должно оказывать заметное влияние на характер переноса ^{3}He из окружающего раствора к включениям концентрированной фазы. Если предположить, что этот перенос осуществлялся только диффузионным путем, то можно оценить, какой должен быть коэффициент диффузии, чтобы фазовое разделение прошло с характерным временем τ .

Пусть в ГПУ растворе, содержащем $x = 2,04\%$ ^{3}He при молярном объеме $20,28 \text{ см}^3/\text{моль}$, возникли устойчивые включения концентрированной ОЦК фазы со средним радиусом $2 \cdot 10^{-4} \text{ см}$ [5, 9, 25]. Тогда средняя плотность включений составляет

$$n = \frac{3x}{4\pi R^3} \frac{V_c}{V_d}, \quad (4)$$

где V_c и V_d — молярные объемы соответственно концентрированной и разбавленной фаз. Если же за диффузионную длину принять половину среднего расстояния между включениями $l = n^{-1/3}$, то эффективный коэффициент диффузии равен

$$D_{\text{eff}} = \left(\frac{\pi V_d}{6 V_c} \right)^{2/3} \frac{R^2}{\tau x^{2/3}}. \quad (5)$$

Оценка согласно (5) дает значения $D_{\text{eff}} \sim 10^{-10} \text{ см}^2/\text{с}$, что почти на порядок превышает величину коэффициента диффузии в соответствующем твердом растворе ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$, измеренного методом ЯМР [24]. Это также свидетельствует в пользу того, что при фазовом расслоении квантовая диффузия примесей может происходить иначе, чем в ЯМР экспериментах в однородном растворе.

Не исключено, что в переносе атомов ${}^3\text{He}$ могут участвовать не только диффузионные, но и гидродинамические потоки квазичастиц ${}^3\text{He}$. Этот круг вопросов также требует дополнительного экспериментального и теоретического изучения.

Авторы выражают благодарность проф. Дж. Пикетту и И. Миллеру (Университет Ланкастер, Англия) за предоставленные спеченные теплообменники, сотрудникам метрологического института РТВ (Берлин, Германия) за помощь в приобретении моста переменного тока General Radio 1615-A, Г. А. Михайлову за изготовление цифрового моста переменного тока для измерения сопротивления, проф. В. Н. Григорьеву за интерес к работе и плодотворные дискуссии, а также И. Н. Адаменко, Т. Н. Анцыгиной, Н. П. Михину, К. Э. Немченко и К. А. Чишко за обсуждение результатов данной работы.

1. D. O. Edvards, A. S. McWilliams, and J. G. Daunt, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 195 (1962).
2. M. F. Panczyk, R. A. Scribner, J. R. Gorano, and E. D. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 594 (1968).
3. W. J. Mullin, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 254 (1968).
4. P. N. Henriksen, M. F. Panczyk, and E. D. Adams, *Solid State Commun.* **8**, 735 (1970).
5. A. S. Greenberg, W. C. Thomlinson, and R. C. Richardson, *J. Low Temp. Phys.* **8**, 3 (1972).
6. M. Uwaha, *J. Phys. Soc. Jpn.* **48**, 1921 (1980).
7. I. Iwasa and H. Suzuki, *Proc. of LT-17*, North-Holl. Phys. Publ., v. 1, p. 531 (1984).
8. В. А. Михеев, В. А. Майданов, Н. П. Михин, *ФНТ* **12**, 658 (1986).
9. В. А. Михеев, В. А. Майданов, Н. П. Михин, С. Е. Кальной, Н. Ф. Омелаенко, *ФНТ* **14**, 563 (1988).
10. В. А. Михеев, А. А. Голуб, В. А. Гончаров, В. П. Руснак, В. А. Шварц, *ФНТ* **15**, 540 (1989).
11. R. Schrenk, O. Friz, Y. Fujii, F. Syskakis, and F. Pobell, *J. Low Temp. Phys.* **84**, 133 (1991).

12. S. C. J. Kingsley, I. Kosarev, L. Roobol, V. Maidanov, J. Saunders, and B. Cowan, *J. Low Temp. Phys.* **110**, 359 (1998).
13. В. А. Шварц, Н. П. Михин, Э. Я. Рудавский, А. М. Усенко, Ю. А. Токарь, В. А. Михеев, *ФНТ* **21**, 717 (1995).
14. Т. Н. Анцыгина, В. А. Слюсарев, К. А. Чишко, *ФНТ* **38**, 1906 (1996).
15. T. N. Antsygina, K. A. Chishko, N. P. Mikhin, E. Ya. Rudavskii, V. A. Shvarts, and V. A. Slusarev, *J. Low Temp. Phys.* **111**, № 1/2 (1998).
16. В. Н. Григорьев, Б. Н. Есельсон, В. А. Михеев, Ю. Е. Шульман, *Письма в ЖЭТФ* **17**, 25 (1973); В. Н. Григорьев, *ФНТ* **23**, 5 (1997).
17. В. А. Михеев, В. А. Майданов, Н. П. Михин, в кн.: 23 Всесоюз. конф. по физике низких температур (тез. докл.), Тарту (1984), с. 46.
18. А. С. Рыбалько, М. Б. Стерин, *ФНТ* **22**, 1095 (1996).
19. D. N. Bittner and E. D. Adams, *J. Low Temp. Phys.* **97**, 519 (1994).
20. G. Schuster, A. Hoffmann, and D. Hechtfishher, vol. 19, doc. CCT/96-25 Bureau International des Poids et Mesures, Comit Consultativ de Thermomtrie, S vres, France (1996).
21. G. A. Mikhailov, *Forteenth International Cryogenic Engineering Conference and International Cryogenic Materials Conference*, Kiev (1992), p. 130.
22. В. А. Шварц, Н. П. Михин, Э. Я. Рудавский, Ю. А. Токарь, А. М. Усенко, В. А. Михеев, *ФНТ* **20**, 645 (1994).
23. Yu. Kagan and L. A. Maksimov, *Phys. Lett.* **A95**, 242 (1983).
24. В. А. Михеев, Н. П. Михин, В. А. Майданов, *ФНТ* **9**, 901 (1983).
25. A. E. Burgess and M. J. Crooks, *Phys. Lett.* **A39**, 183 (1972).

Study into phase separation kinetics of solid ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ solutions by measuring pressure precisely

А. Н. Ганшин, В. А. Майданов, Н. Ф. Омелаенко, А. А. Пензев, Э. Я. Рудавский, и А. С. Рыбалько

The kinetics of the isotopic phase separation in solid ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ mixtures for various molar volumes has been studied by precise pressure measurements at a constant volume. It is found that the establishment of equilibrium between the co-existing phases generated due to the separation, is well described by the exponential law at different ways of cooling and warming of the crystal. The corresponding characteristic time of the phase separation decreases with lowering temperature, confirming a non-thermal quantum nature of the growth of a new phase during the phase transition. It is found that the phase separation time increases essentially with rise in pressure. The existing theory is shown to describe only qualitatively the relations found. The quantitative treatment of the experimental reparation times calls for investigation of diffusion processes in a gas of

impuriton quasiparticles with a concentration gradient.