

## Аномально быстрый перенос вещества в процессе растворения твердых кластеров ${}^3\text{He}$ в расслоившемся растворе ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$

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 7 июля 1998 г.

Проведены экспериментальные исследования кинетики роста и растворения новой фазы в процессе расслоения и гомогенизации твердых растворов  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ . Обнаружено, что оба эти процесса имеют различную кинетику, а процесс гомогенизации обеспечивается аномально быстрым переносом вещества в кристалле. Полученные результаты не могут быть объяснены в рамках имеющихся представлений о диффузионных процессах в квантовом кристалле.

Проведено експериментальні дослідження кінетики росту та розчинення нової фази в процесі розшарування та гомогенізації твердих розчинів  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ . Установлено, що обидва ці процеси мають різну кінетику, а процес гомогенізації супроводжується аномально швидким переносом речовини в кристалі. Одержані результати не можуть бути пояснені в межах існуючих уявлень про дифузійні процеси в квантовому кристалі.

PACS: 67.80.Gb, 64.70.Kb

Фазовый переход I рода, приводящий к изотопическому фазовому расслоению растворов квантовых кристаллов  ${}^3\text{He}$  в  ${}^4\text{He}$ , был открыт в 1962 г. [1], однако кинетика такого перехода остается невыясненной. Различные особенности кинетики фазового расслоения в этой системе изучались в работах [2–12] с помощью разных экспериментальных методик, но в большинстве случаев результаты измерений плохо воспроизводились и зависели от предыстории образца.

Лишь сравнительно недавно [11–12] удалось получить хорошую воспроизводимость экспериментальных данных, что позволило связать кинетику фазового перехода со своеобразными диффузионными процессами, обусловленными наличием делокализованных примесных возбуждений. Следует отметить, что до сих пор практически не был изучен обратный процесс — фазовый переход расслоившихся твердых растворов в однородное состояние (гомогенизация).

В настоящей работе продолжена серия экспериментов, начатых в [12], причем основное внимание уделяется изучению процесса гомогенизации и его сравнению с процессом фазового расслоения. Асимметричность этих процессов была отмечена еще в [12], но различие между ними проявляется более четко и наглядно в условиях сильного переохлаждения и сильного перегрева кристалла, создаваемых в настоящей работе.

Использованная измерительная ячейка и методика эксперимента описаны ранее [12]. Отметим, что кристалл имел форму цилиндра диаметром 9 мм и высотой 1,5 мм, а ячейка не содержала никаких мелкопористых спеченных теплообменников, которые могли бы исказить кинетику фазового перехода.

Фазовое расслоение инициировалось с помощью быстрого охлаждения кристалла из однородной области в область распада со скоростью около 3 мК/мин, определяемой хладопроизводительностью рефрижератора.

Обратный переход в однородное состояние возбуждался путем быстрого отогрева (за 1–2 с), а самым узким местом для отогрева кристалла было сопротивление Капицы между кристаллом и корпусом ячейки. По оценкам, постоянная времени, связанная с сопротивлением Капицы, составляла 20–50 с.

Для регистрации фазового перехода использовалось прецизионное измерение давления кристалла при постоянном объеме в процессе перехода. Разрешение емкостного датчика давления Страти – Адамса составляло около 8 Па. Полученная временная зависимость давления отражала кинетику как фазового расслоения, так и гомогенизации раствора.

В работе была исследована кинетика фазового перехода в процессе нескольких циклов охлаждения – отогрев для кристаллов различной плотности, соответствующей молярным объемам  $20,266 \text{ см}^3/\text{моль}$  (давление в однородной области 35,99 бар) и  $20,435 \text{ см}^3/\text{моль}$  (давление в однородной области 33,445 бар).

Известно, что изотопическое фазовое расслоение однородного твердого раствора  $^3\text{He}$ – $^4\text{He}$ , как и всякий фазовый переход I рода, начинается с образования устойчивых критических зародышей новой фазы. Затем происходит второй этап фазового перехода – рост этих зародышей и их превращение в ОЦК включения концентрированной фазы, расположенные в матрице ГПУ кристалла. Нами изучался лишь второй этап фазового перехода, который обеспечивается переносом примесных атомов из окружающего раствора к включениям новой фазы. Обратный процесс перехода двухфазного раствора в гомогенное состояние связан с растворением включений ОЦК фазы, что происходит также вследствие процессов переноса.

Чтобы исключить влияние первого этапа фазового перехода, связанного с зародышеобразованием, процесс термоциклирования проводился в области фазового расслоения, так что температура, с которой начиналось охлаждение кристалла, была немного ниже равновесной температуры фазового расслоения. Таким образом, при термоциклировании осуществлялась неполная гомогенизация распавшегося раствора, однако рост и исчезновение включений новой фазы в процессе перехода полностью отражали ответственный за эти процессы перенос вещества в кристалле.

Типичная временная зависимость изменения давления образца с молярным объемом  $20,266 \text{ см}^3/\text{моль}$

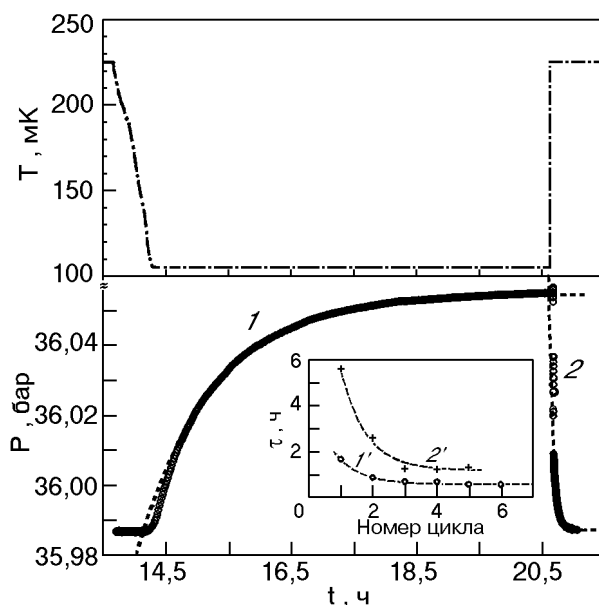


Рис. 1. Изменение температуры и соответствующее изменение давления кристалла в процессе фазового расслоения при охлаждении от температуры  $T_i = 225 \text{ мК}$  до  $T_f = 105 \text{ мК}$  (кривая 1) и последующей гомогенизации при отогреве до температуры  $T_i$  (молярный объем  $20,266 \text{ см}^3/\text{моль}$ ) (кривая 2). Пунктир соответствует аппроксимации по формуле (1). Вставка – зависимость времени фазового расслоения от номера цикла охлаждения – отогрев ( $2'$  –  $V = 20,266 \text{ см}^3/\text{моль}$ ;  $1'$  –  $V = 20,435 \text{ см}^3/\text{моль}$ ).

при обоих фазовых переходах – расслоении и гомогенизации – приведена на рис. 1. Анализ показал, что увеличение давления в процессе фазового расслоения (кривая 1) может быть описано экспоненциальным законом

$$P = P_0 - A \exp(-t/\tau), \quad (1)$$

где  $P_0$  – конечное равновесное давление;  $A$  – разность давлений до и после расслоения. При этом характерное время фазового расслоения  $\tau$  составило 1,2 ч.

Было обнаружено, что  $\tau$  уменьшается при термоциклировании образца, что показано на вставке на рис. 1 для двух молярных объемов. Начиная примерно с третьего цикла постоянная времени расслоения перестает изменяться, что, по-видимому, связано с улучшением качества кристалла после первых охлаждений и отогревов. Кинетика изменения давления, изображенная на рис. 1, соответствует четвертому циклу охлаждения и отогрева.

Как видно на рис. 1, кинетика гомогенизации (кривая 2) резко отличается от кинетики фазового расслоения. Более детально кинетика гомогенизации расслоившегося раствора показана на рис. 2. Полученное изменение давления со временем не удается аппроксимировать единой

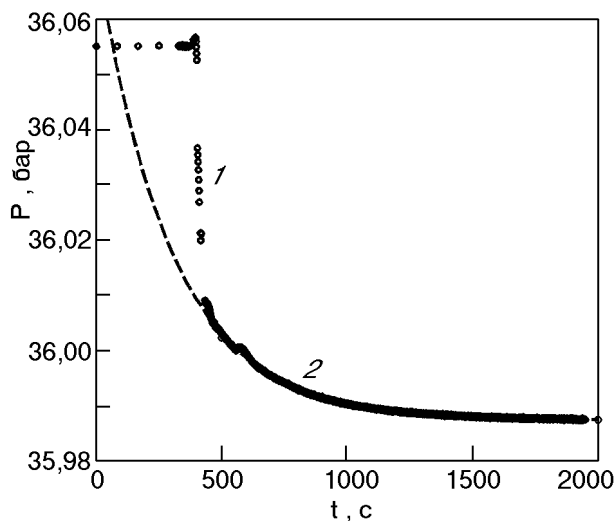


Рис. 2. Кинетика фазового перехода двухфазного расслоившегося раствора в однородное состояние. Молярный объем  $V = 20,266 \text{ см}^3/\text{моль}$ . Участки 1 и 2 соответствуют различным режимам гомогенизации (см. текст). Пунктир соответствует аппроксимации по формуле (1) с положительным знаком коэффициента  $A$ .

экспоненциальной зависимостью. Можно выделить два режима гомогенизации — быстрое неэкспоненциальное уменьшение давления в течение первых 30 с после начала фазового перехода (рис. 2, участок 1) и затем экспоненциальное убывание давления с характерной постоянной времени  $\tau^* \sim 200 \text{ с}$ . Величина  $\tau^*$  уменьшается при термоциклировании, так же как и в случае фазового расслоения. Скорость первого процесса, по-видимому, определяется временем тепловой релаксации образца, обусловленной сопротивлением Капицы. Можно полагать, что если бы удалось быстрее отогреть кристалл за счет уменьшения сопротивления Капицы, то процесс гомогенизации прошел бы еще быстрее.

Для выяснения возможной причины такого anomalно быстрого переноса вещества при гомогенизации двухфазного раствора оценим, какой эффективный коэффициент диффузии может обеспечить столь быстрый транспорт атомов  $^3\text{He}$  на первом участке кривой на рис. 2. Исходя из экспериментальных данных о кинетике расслоения, полученных в работе [12] при ступенчатом охлаждении, можно оценить, что изменение режимов, показанное на рис. 2, соответствует равновесной концентрации 1,6%  $^3\text{He}$ . Это означает, что за первые 30 с фазового перехода был осуществлен перенос  $4,7 \cdot 10^{20}$  атомов  $^3\text{He}$  в каждом кубическом сантиметре кристалла. При диаметре включений

концентрированной фазы 4,5 мкм [13] это соответствует их плотности  $\rho = 3,9 \cdot 10^{-8} \text{ см}^{-3}$ . Тогда среднее расстояние между включениями  $l$  можно определить по формуле

$$l = \rho^{-1/3} = 13,7 \text{ мкм} . \quad (2)$$

Если положить величину  $l$  равной диффузионной длине, то эффективный коэффициент диффузии

$$D_{\text{eff}} = l^2/\tau = 6,2 \cdot 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с} , \quad (3)$$

что на несколько порядков больше, чем значения коэффициента квантовой диффузии, измеренной в ЯМР-экспериментах [14–15]. Значение эффективного коэффициента диффузии, соответствующего более медленному участку 2 на рис. 2, составляет  $10^{-8}–10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$ , что также существенно превышает имеющиеся данные ЯМР для образцов такой плотности и концентрации.

Отметим, что при ЯМР-измерениях, когда были получены основные экспериментальные данные о квантовой диффузии примесных возбуждений  $^3\text{He}$  в кристаллах  $^4\text{He}$ , распределение атомов было однородным и изотропным. Поэтому коэффициент спиновой диффузии, измеренный в таких условиях, можно отождествить с коэффициентом самодиффузии атомов  $^3\text{He}$ .

Совершенно иная ситуация реализуется при изотопическом фазовом разделении твердых растворов и их гомогенизации. В этих условиях движение атомов  $^3\text{He}$  осуществляется при наличии значительных градиентов концентрации, что может существенно изменить характер переноса вещества в кристалле. Обратим внимание на то, что наряду с транспортом атомов  $^3\text{He}$  возможно также существенное влияние переноса атомов  $^4\text{He}$  из окружающей матрицы внутрь включений. Поскольку в этом случае диффузионная длина, определяемая размером включений, очень мала, а молярный объем включений значительно больше, чем молярный объем матрицы, этот процесс может быть весьма эффективным.

С другой стороны, можно оценить нижний предел постоянной времени фазового перехода при баллистическом движении квазичастиц  $^3\text{He}$  с характерной скоростью [16]

$$v = a\Delta/h , \quad (4)$$

где  $a$  — межатомное расстояние;  $\Delta$  — ширина зоны примесных частиц  $^3\text{He}$  в твердом  $^4\text{He}$ ;  $h$  — постоянная Планка. Оценка, согласно (4), дает

$v \sim 10^{-1}$  см/с, что соответствует постоянной времени  $\tau^* \sim 10^{-2}$  с. Наблюдаемые в эксперименте значения  $\tau^*$  превышают этот нижний предел.

Полученные результаты свидетельствуют в пользу того, что по крайней мере в начале процесса гомогенизации перенос атомов  ${}^3\text{He}$  может осуществляться не путем диффузии.

Открытым пока остается вопрос и о возможности гидродинамического переноса квазичастиц  ${}^3\text{He}$  в условиях данного эксперимента.

Авторы выражают благодарность В. Н. Григорьеву за полезные дискуссии.

1. D. O. Edwards, 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. P. N. Henriksen, M. F. Panczyk, and E. D. Adams, *Solid State Comm.* **8**, 735 (1970).
4. A. S. Greenberg, W. C. Thomlinson, and R. C. Richardson, *J. Low Temp. Phys.* **8**, 3 (1972).
5. I. Iwasa and H. Suzuki, *Proc. LT-17. North-Holl. Phys. Publ.* **1**, 531 (1984).
6. В. А. Михеев, В. А. Майданов, Н. П. Михин, *ФНТ* **12**, 658 (1986).
7. В. А. Михеев, В. А. Майданов, Н. П. Михин, С. Е. Кальной, Н. Ф. Омелаенко, *ФНТ* **14**, 563 (1988).
8. В. А. Михеев, А. А. Голуб, В. А. Гончаров, В. П. Руснак, В. А. Шварц, *ФНТ* **15**, 540 (1989).
9. R. Schrenk, O. Friz, Y. Fujii, F. Syskakis, and F. Pobell, *J. Low Temp. Phys.* **84**, 133 (1991).
10. S. C. J. Kingsley, I. Kosarev, L. Roobol, V. Maidanov, J. Saunders, and B. Cowan, *J. Low Temp. Phys.* **110**, 359 (1998).
11. В. А. Шварц, Н. П. Михин, Э. Я. Рудавский, А. М. Усенко, Ю. А. Токарь, В. А. Михеев, *ФНТ* **21**, 717 (1995).
12. А. Н. Ганьшин, В. А. Майданов, Н. Ф. Омелаенко, А. А. Пензев, Э. Я. Рудавский, А. С. Рыбалко, *ФНТ* **24**, 815 (1998).
13. S. C. J. Kingsley, V. Maidanov, J. Saunders, and B. Cowan, *J. Low Temp. Phys.* (1998), in press.
14. A. R. Allen, M. G. Richards, and J. Schratton, *J. Low Temp. Phys.* **47**, 89 (1982).
15. В. Н. Григорьев, Б. Н. Есельсон, В. А. Михеев, Ю. Е. Шульман, *Письма в ЖЭТФ* **17**, 25 (1973); (см. также обзор В. Н. Григорьев, *ФНТ* **23**, 5 (1997)).
16. А. Ф. Андреев, И. М. Лифшиц, *ЖЭТФ* **56**, 2057 (1969).

### Anomalous fast transport of substance on dissolving of solid ${}^3\text{He}$ clusters in separated ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ mixture

A. N. Ganshin, V. A. Maidanov, N. F. Omelaenko, A. A. Penzev', E. Ya. Rudavskii, and A. S. Rybalko

The investigation of growth and dissolution kinetics of a phase on separation and homogenization of solid  ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$  mixtures were carried out. It was discovered that both processes have different kinetics. The homogenization is provided by anomalous fast transport of the substance in a crystal. The results cannot be explained by the current ideas about diffusion processes in a quantum crystal.