

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ФІЗИКО-ТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ НИЗЬКИХ ТЕМПЕРАТУР
ім. Б. І. ВЕРКІНА**

РУБЕЦЬ Сергій Петрович



УДК 538.941

**ГОМОГЕНІЗАЦІЯ ТА ФАЗОВЕ РОЗШАРУВАННЯ
КОНЦЕНТРОВАНИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНІВ ^3He - ^4He**

01.04.09 – фізика низьких температур

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Харків – 2018

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Фізико-технічному інституті низьких температур ім. Б.І. Веркіна НАН України, м. Харків

Науковий керівник:

доктор фізико-математичних наук,
старший науковий співробітник
Майданов Володимир Андрійович,
Фізико-технічний інститут низьких температур
ім. Б. І. Веркіна НАН України,
провідний науковий співробітник відділу
квантових рідин та кристалів.

Офіційні опоненти:

доктор фізико-математичних наук,
старший науковий співробітник
Полуектов Юрій Матвійович,
Національний науковий центр
«Харківський фізико-технічний інститут
НАН України», завідувач відділу дифузійних
та електронних явищ у твердих тілах;

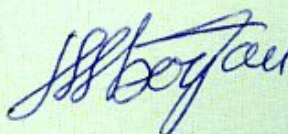
кандидат фізико-математичних наук, доцент,
Білецький Володимир Іванович,
Харківський національний університет
імені .В.Н. Каразіна, доцент кафедри фізики
низьких температур фізичного факультету.

Захист відбудеться «13» листопада 2018 року о 15⁰⁰ годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.175.02 при Фізико-технічному інституті низьких температур ім. Б. І. Веркіна НАН України (61103, м. Харків, пр. Науки, 47).

З дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Фізико-технічного інституту низьких температур ім. Б.І. Веркіна НАН України (61103, м. Харків, пр. Науки, 47).

Автореферат розісланий «12» жовтня 2018 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради Д 64.175.02,
доктор фізико-математичних наук

 М. М. Богдан

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Фазові переходи першого роду відбуваються у багатьох системах, але в твердих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ їх можливо спостерігати у найбільш чистому вигляді, тому що при дуже низьких температурах внеском теплових збуджень у термодинамічні та кінетичні процеси можна знехтувати. Зокрема, йдеться про флуктуаційні ефекти поблизу температури фазового переходу, що приводить до аномальної поведінки різних термодинамічних величин.

Ціле коло невирішених проблем виникає при дослідженні кінетичних процесів при фазовому переході. Перш за все зберігається актуальність дослідження кінетики та механізмів переносу речовини при фазовому розшаруванні розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ і їх наступній гомогенізації. При цьому особливо цікаві концентровані розчини, де домішкові атоми згідно сучасним уявленням повинні бути локалізованими, а в експерименті реєструється значна швидкість фазового розшарування. Окремого розгляду потребує питання про можливий вплив швидкості розшарування на кінетику наступної гомогенізації.

Кінетика фазових переходів у твердому тілі пов'язана з дифузійними процесами, що відбуваються в системі. У твердих розчинах ізотопів гелію відомості про коефіцієнт дифузії зазвичай одержують з ЯМР експериментів на ядрах ${}^3\text{He}$. Цей метод виявився дуже плідним для слабких розчинів ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$, але в концентрованих розчинах та в слабких розчинах ${}^4\text{He}$ в ${}^3\text{He}$ він не може бути застосований. У цих випадках потрібен альтернативний підхід, який дозволяв би одержувати інформацію про масову дифузію в системі. Це дуже важливо для розвитку фізики фазових переходів і кінетичних процесів у квантових кристалах.

Наявність відзначених вище невирішених питань зумовлює проведення систематичних досліджень термодинамічного стану твердого гелію і його властивостей при наднизьких температурах, що визначає тему даної дисертаційної роботи і її безсумнівну **актуальність**.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Дослідження, які склали дисертаційну роботу, були виконані у відділі квантових рідин та кристалів Фізико-технічного інституту низьких температур ім. Б. І. Веркіна НАН України відповідно до відомчих тем: «Неоднорідні та низьковимірні системи у рідкому та твердому гелії» (номер державної реєстрації 0103U000331, термін виконання 2003–2005 рр.), «Нові ефекти у квантових рідинах та кристалах при низьких та наднизьких температурах» (номер державної реєстрації 0106U002557, термін виконання 2006–2010 рр.), «Об'ємні і поверхневі наносистеми у квантових рідинах та кристалах» (номер державної реєстрації 0110U007894, термін виконання 2011–2015 рр.). Робота також частково проводилась в рамках проектів Українського науково-технологічного центру (УНТЦ): «Нейтральні та заряджені наноструктури у рідкому та твердому гелії» (номер 3718, термін виконання 2008–2010 рр.) та

«Пошук та моделювання нових наносистем у конденсованому гелії» (номер 5211, термін виконання 2010–2012 рр.).

Мета дослідження. Метою дисертаційної роботи є експериментальне виявлення особливостей фазового розшарування твердих концентрованих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ та зворотного переходу – гомогенізації розчину.

Для досягнення поставленої в роботі мети необхідно було вирішити наступні **завдання**:

- використати методику прецизійного вимірювання тиску для пошуку нових особливостей термодинамічної поведінки системи поблизу фазового переходу.
- проаналізувати одержані результати вимірювання тиску поблизу температури розшарування і порівняння результатів експерименту з моделлю, яка враховує флуктуаційні ефекти у домішковій підсистемі розчину.
- дослідити кінетику розшарування і наступну гомогенізацію концентрованих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$, а також взаємний вплив цих процесів.
- дослідити зв'язок між кінетикою розшарування і дифузійними процесами у концентрованих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ та одержати перші відомості про коефіцієнт масової дифузії.
- вдосконалити техніку високочутливих вимірювань температури та тиску при наднизьких температурах за рахунок використання низькотемпературного генератора на польовому транзисторі.

Об'єкт дослідження – явища фазового розшарування та гомогенізації твердих концентрованих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$.

Предмет дослідження – кінетика цих фазових переходів у розчинах різної концентрації та її зв'язок з відповідними дифузійними процесами у системі.

Методи дослідження. Для дослідження явищ у твердих розчинах ізотопів гелію були використані такі методи: метод отримання наднизьких температур за допомогою рефрижератора розчинення, метод прецизійного вимірювання тиску твердих розчинів при постійному об'ємі, метод автоматизації збору і обробки експериментальних даних.

Наукова новизна отриманих результатів:

1. Вперше виявлено новий ефект у термодинамічній поведінці твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ поблизу фазового розшарування – великомасштабні флуктуації концентрації розчину. Показано, що при охолодженні розчину поблизу температури розшарування, його тиск помітно зростає за рахунок флуктуаційних ефектів, а не зменшується разом з фононним внеском.
2. Вперше встановлено, що при наближенні до температури розшарування за рахунок флуктуацій у домішковій підсистемі розчинів утворюються зародки нової фази у вигляді кластерів, які містять сотні атомів, що погоджується з теорією.
3. Вперше експериментально зареєстрована у концентрованих розчинах гігантська асиметрія процесів розшарування та гомогенізації. Встановлено, що швидкість початкового етапу гомогенізації може перевищувати

швидкість розшарування більше, ніж у 500 разів. При цьому, швидкість гомогенізації суттєво залежить від кінетики попереднього розшарування розчинів.

4. Вперше знайдено коефіцієнт масової дифузії та побудовано картину еволюції дифузійних процесів із зростанням концентрації.

Практичне значення отриманих результатів. Результати роботи мають фундаментальний характер і поширюють уявлення про природу термодинамічних та кінетичних властивостей твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$, які можуть бути використані при дослідженні фазових переходів в інших розчинах. Специфіка та унікальність твердих розчинів ізотопів гелію дозволила у більш чистому вигляді виявити та дослідити такі явища, як внесок флуктуаційних ефектів в термодинаміку розчинів при фазовому переході, асиметрію кінетики розшарування та наступної гомогенізації розчину, зв'язок фазового переходу з відповідними дифузійними процесами. Всі ці явища повинні спостерігатись і в розчинах класичних кристалів. Розроблений в дисертації високочутливий резонансний метод вимірювання температури та тиску з охолоджуванним генератором на польовому транзисторі в області наднизьких температур може бути використаний в інших експериментах при наднизьких температурах, де потрібна висока чутливість та точність вимірювань.

Особистий внесок здобувача. Всі результати, узагальнені в дисертаційній роботі, отримані в співавторстві при безпосередній участі автора. Дисертант підготував та прийняв участь у складних та трудомістких експериментах по прецизійному вимірюванні тиску твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ поблизу температури розшарування. Автор виявив новий ефект у термодинамічній поведінці твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ поблизу фазового розшарування – великомасштабні флуктуації концентрації розчину. Здобувач вперше зареєстрував гігантську асиметрію процесів розшарування та гомогенізації у концентрованих твердих розчинах і показав, що швидкість гомогенізації суттєво залежить від кінетики попереднього розшарування розчинів. Дисертант особисто знайшов коефіцієнт масової дифузії та побудував картину еволюції дифузійних процесів при зміні концентрації розчину. Таким чином, особистий внесок автора є визначальним.

Апробація результатів дисертації.

Викладені в дисертації результати досліджень були представлені на таких міжнародних та вітчизняних наукових конференціях та симпозіумах:

- 5th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals CC2004, August 29 – September 4, 2004, Wroclaw, Poland;
- 5th International Conference on Low Temperature Chemistry, September 5–10, 2004, Berlin, Germany;
- Quantum Condensed Systems, (Kashiwa, Japan, November 16–19, 2004);
- Конференції молодих вчених „Фізика низьких температур”, 25–27 травня, 2004, Харків, Україна;

- 24th International Conference on Low Temperature Physics LT-24, August 10–17, 2005, Orlando, Florida, USA;
- Конференції молодих вчених „Фізика низьких температур”, 24–26 травня, 2005, Харків, Україна;
- 6th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals CC2006, September 3–8, 2006, Kharkiv, Ukraine;
- 34–м совещании по физике низких температур НТ–34, 26–30 сентября, 2006, п. Лоо, Ростов-на-Дону, Россия;
- International Symposium on Quantum Fluids and Solids QFS2006, August 1–6, 2006, Kyoto, Japan;
- International Symposium on Quantum Fluids and Solids. QFS2009, August 5–11, 2009, Evanston, Illinois, USA;
- 2–й Всеукраїнської конференції молодих вчених „Фізика низьких температур”, 1–5 червня, 2009, Харків, Україна;
- 35–м Совещании по физике низких температур НТ–35, 29 сентября – 2 октября, 2009, Черноголовка, Россия;
- International Conference for Young Scientists, “Low Temperature Physics”, June 7–11, 2010, Kharkiv, Ukraine;
- 8th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals CC2010, July 26–31, 2010, Chernogolovka, Moscow region, Russia;
- II International Conference for Young Scientists, “Low Temperature Physics”, June 6–10, 2011, Kharkiv, Ukraine;
- International Conference for Professionals & Young Scientists “Low Temperature Physics”, May 29 – June 2, 2017, Kharkiv, Ukraine.

Публікації. Результати, які представлені в дисертації, опубліковані у 8 статтях у провідних фахових вітчизняних і зарубіжних журналах [1–8], а також у 23 тезах доповідей на наукових конференціях [9–31].

Структура дисертації. Дисертаційна робота складається з анотацій, вступу, п’яти розділів, висновків, списку використаних джерел. Повний обсяг дисертації становить 152 сторінок, містить 50 рисунків, 8 таблиць, список використаних джерел (97 найменувань) займає 11 сторінок.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ ДИСЕРТАЦІЇ

В **анотаціях** державною і англійською мовами стисло викладено основний зміст і висновки дисертації. Представлено основні результати досліджень із зазначенням наукової новизни та практичного значення. Сформульовано найсуттєвіші положення по кожному із розділів дисертації.

У **вступі** наведена коротка характеристика області досліджень, визначено стан наукової проблеми, обґрунтовується актуальність обраної теми досліджень, сформульовані мета, основні завдання досліджень та методи їх проведення, визначена наукова новизна та практична значимість отриманих результатів, подані відомості щодо публікацій і апробації роботи здобувача та описано структуру дисертації.

Перший розділ, що містить огляд літератури за темою дисертації, присвячено аналізу сучасного стану вивчення фазового розшарування та гомогенізації твердих розчинів ${}^3\text{He}\text{--}{}^4\text{He}$ при наднизьких температурах. Аналізується аномальна поведінка теплоємності поблизу фазового розшарування, яка ініціювала розвиток термодинамічної теорії, що пояснила аномалію впливу флуктуаційних ефектів. Відзначається, що в цьому питанні залишалась відкритою поведінка тиску в таких умовах, що стимулювало проведення відповідних експериментів. Що стосується гомогенізації, то перші експерименти з слабкими розчинами ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$ показали, що при цьому реалізується аномально швидкий переніс речовини, що передбачало наявність недифузійного балістичного переносу домішкових атомів. Тому було принципово важливим проведення експериментів у концентрованих розчинах ${}^3\text{He}\text{--}{}^4\text{He}$, де балістичний режим неможливий. Інше цікаве коло питань пов'язано із зв'язком між кінетикою розшарування і дифузійними процесами в системі. За допомогою прецизійних вимірювань тиску були одержані перші відомості про ефективну масову дифузію домішок ${}^3\text{He}$. Виявилось, що коефіцієнт масової дифузії співпадає з одержаним раніше в ЯМР експериментах коефіцієнтом квантової дифузії лише при високих температурах. При низьких температурах квантова дифузія значно пригнічується після фазового розшарування. Тому залишалось актуальним питання про масову дифузію у концентрованих розчинах і про механізм переносу при розшаруванні концентрованих розчинів.

Другий розділ містить опис експериментальної методики для дослідження кінетики фазового розшарування та гомогенізації твердих концентрованих розчинів ${}^3\text{He}\text{--}{}^4\text{He}$, а також відповідних дифузійних процесів.

Третій розділ присвячений виявленню та дослідженню нового ефекту у термодинамічній поведінці твердих розчинів ${}^3\text{He}\text{--}{}^4\text{He}$ поблизу температури фазового розшарування – великомасштабних флуктуацій концентрації розчину. Було доведено, що метод прецизійної барометрії тут є дуже зручним, тому що при температурах розчинів ізотопів гелію флуктуаційний внесок до тиску системи набагато перевищує фононний внесок. Типова зміна тиску розчину в процесі його охолодження від початкової температури T_i приведена на рис.1.

Якщо в однорідному розчині при низьких температурах тиск зумовлений фононами, то при зниженні температури тиск повинен падати порівняно с початковим тиском P_i за законом $\sim T^4$. Але, як видно з рис.1, при наближенні до температури розшарування T_S тиск починає зростати. Хоча зростання тиску становить менше 1% від повного скачка тиску при розшаруванні, цей ефект чітко виявляється і добре відтворюється. Таку поведінку ми назвали аномальною, і нижче обговорюється її причина.

Для аналізу одержаних температурних залежностей тиску розчинів та їх порівняння з теорією флуктуаційних явищ повний тиск системи зручно записати у вигляді суми

$$P_0 + \Delta P_{fl} + \Delta P_{ph} , \quad (1)$$

де P_0 – тиск розчину при $T=0$, P_{fl} – тиск, зумовлений флуктуаційними ефектами, P_{ph} – фононний внесок до тиску, який може бути адекватно описаний в рамках

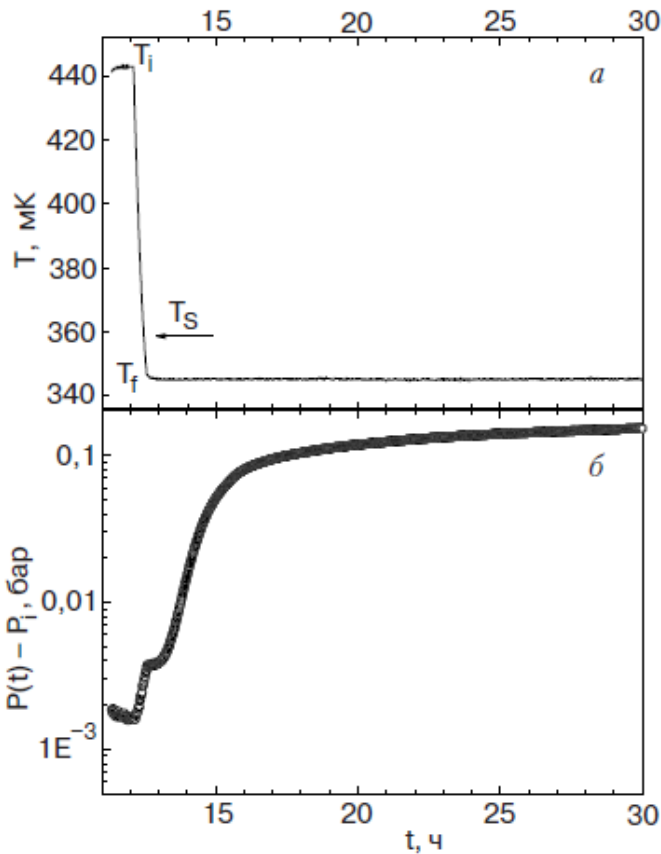


Рис.1. Термограма охолодження твердого розчину з концентрацією 29,6 % ^3He і молярним об'ємом 21,22 см 3 /моль в область фазового розширення (а) і відповідна зміна тиску (б).

Стрілка показує температуру фазового розширення T_s .

дебаєвського наближення:

$$\Delta P_{ph} = -\frac{3\pi^4}{5V} \gamma_{\theta} T \left(\frac{T}{\theta}\right)^3 \quad (2)$$

де θ – температура Дебая, γ_{θ} – константа Грюнайзена, яка для умов нашого експерименту дорівнює 2.8. Щодо флуктуаційного внеска до тиску, то, як показали спеціальні розрахунки [3], він має такий вигляд:

$$\Delta P_{fl} = \frac{32T}{9\pi^2 T_c V_0 \beta_0} \frac{\partial A}{\partial P} \varphi(\lambda_0), \quad (3)$$

$$\varphi(\lambda_0) = \left\{ 3\lambda_0 \left(1 - \sqrt{\lambda_0 - 1} \operatorname{arctg} \frac{1}{\sqrt{\lambda_0 - 1}} \right) - 1 - \frac{2}{5\lambda_0} \right\}. \quad (4)$$

де $\lambda_0^{-1} = 4x_0(1-x_0)\frac{T_c}{T}$, V_0 та β_0 – відповідно молярний об'єм та стисливість розчину. З (4) випливає, що при будь-якій фіксованій температурі флуктуаційний внесок до тиску буде тим більше, чим вище концентрація розчину. Для розрахунку флуктуаційного внеску до тиску згідно (3)–(4) необхідно обчислити значення функції $\varphi(\lambda_0(x_0))$, яка входить до цих формул. Проведений аналіз [1] показав, що ця функція добре апроксимується залежністю $\varphi(\lambda_0(x_0)) = A(x_0)^B$, де параметри A і B слабо залежать від температури та при $T = T_c$ величина $A = 5.46$, а $B = 2.11$.

На рис.2 приведені значення флуктуаційного та фононного тисків, розраховані за формулами (3)–(4), для одного з розчинів, досліджених у першій серії експериментів, при двох молярних об'ємах, а також сумарна зміна тиску (криві 1) разом з одержаними експериментальними даними. З рис.2 видно добре

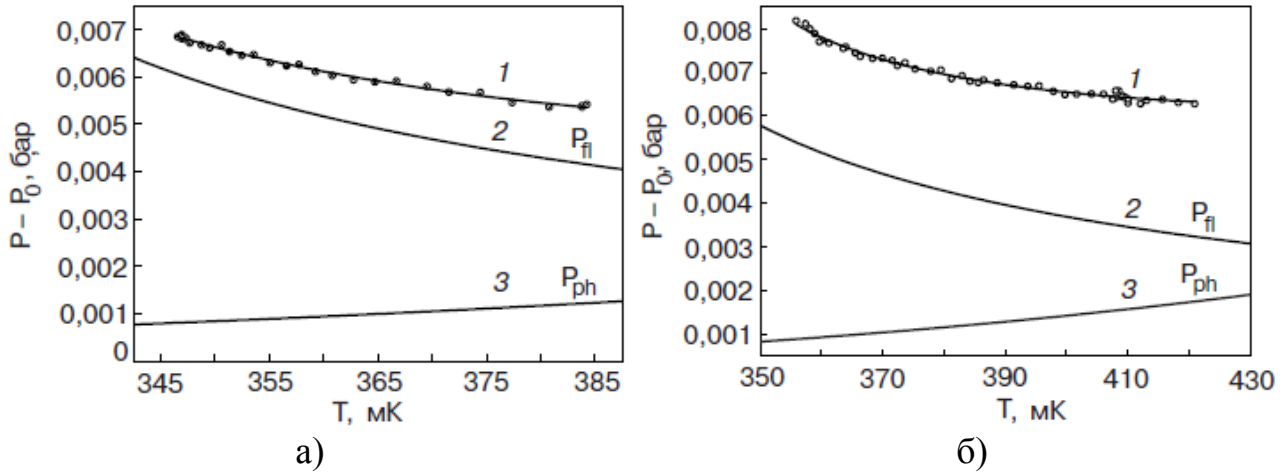


Рис.2. Температурна залежність зміни тиску у розчині з концентрацією 32,3% ^3He і молярному об'ємі $21,22 \text{ см}^3/\text{моль}$ (а) та $21,84 \text{ см}^3/\text{моль}$ (б). 1 – сумарна зміна тиску; 2 – розрахунок флуктуаційного тиску згідно (3); 3 – розрахунок фононного внеску згідно (2).

узгодження експерименту та теорії в усій області температур. Звертає також увагу, що при всіх температурах, де проводилися вимірювання, флуктуаційний внесок є домінуючим і зростає при наближенні до температури фазового переходу. Зазначимо, що такий ефект можна було б очікувати і в класичних системах, наприклад, в металічних твердих розчинах. Однак у класичних системах фазовий перехід спостерігається при досить високих температурах, де флуктуаційний внесок пригнічується більш сильним фононним внеском.

Для порівняння експерименту з теорією були використані три підгоночні параметри P_0 , θ та z . Одержані значення P_0 дуже близькі до експериментальних значень початкового тиску P_i , що цілком природньо, оскільки вимірювання проводились при достатньо низьких температурах. Одержані значення Дебаяєвських температур θ співпадають зі значеннями, розрахованими в припущенні, що для температури Дебая розчинів виконується правило адитивності. Третій підгоночний параметр – координатне число z має сенс радіуса флуктуаційного кластера і визначає просторовий масштаб взаємодії. Середнє значення цього параметра виявилось близько 800.

У серії експериментів, де досліджувались концентровані розчини ^3He – ^4He , для аналізу одержаних результатів використовувався той же підхід з тією лише різницею, що тепер був один підгоночний параметр – величина z . Значення температури Дебая були взяті з роботи [3], де проведено ретельний аналіз цієї температури для ізоотопів гелію та їх розчинів. Ще один параметр P_0 був взятий рівним P_i , оскільки показано, що ці значення дуже близькі. Одержані в експерименті значення параметра z представлені на рис.3.

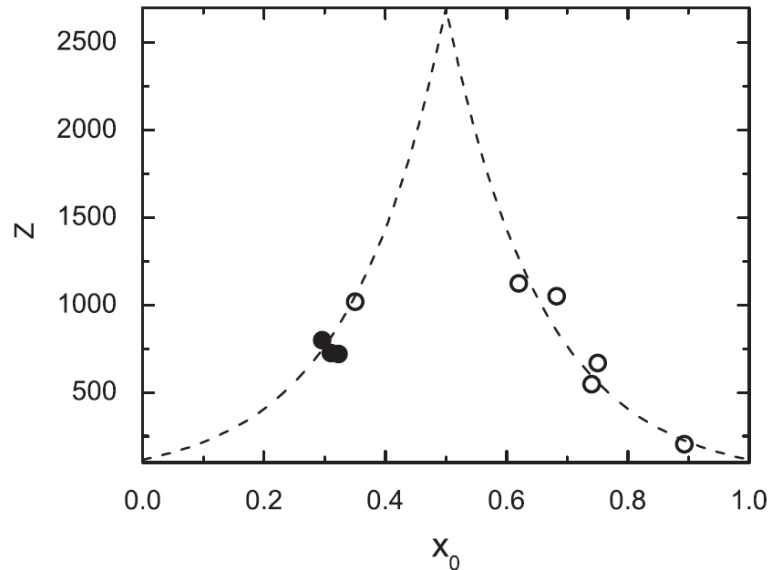


Рис.3. Середня кількість атомів у флуктуаційному нанокластері в залежності від концентрації. Пунктир – апроксимація – див. текст.

Флуктуаційні кластери утворюються і розчинюються спонтанно в однорідному твердому розчині. Як видно з рис.3, їхній характеристичний розмір залежить від концентрації розчину x_0 і досягає максимуму при $x_0=0.5$. Нижче температурної спінодалі флуктуаційні кластери перетворюються в стабільні зародки нової фази у розшарованому твердому розчині. Проведений аналіз показав, що концентраційна залежність $z(x_0)$ може бути апроксимована простим аналітичним виразом $z = Q \exp[-B(1 + |1 - 2x_0|)]$, де $Q=62921$, $B=3,15$. Розрахунок величини z показаний пунктиром на рис.3.

Одержані значення параметра z добре узгоджуються з незалежною оцінкою розміру критичного зародка, що виникає при розпаді твердого розчину ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ відповідної концентрації, в рамках феноменологічної теорії гомогенного зародкоутворення (V.V. Slezov, J. Schmelzer, 1997). Підкреслимо, що можливість впевнено спостерігати флуктуаційні ефекти в твердих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ пов'язана, з одного боку, з малим фононним внеском до тиску при наднизьких температурах, а з другого боку, зі слабкістю взаємодії домішкових атомів з фононами, яка могла б обмежити рухомість домішок.

Четвертий розділ присвячений вивченню кінетики двох фазових переходів першого роду у твердих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ – фазового розшарування та зворотного переходу від розшарованого до гомогенного стану. При цьому головна увага приділяється концентрованим розчинам, де згідно з сучасним уявленням домішкові атоми у квантових кристалах повинні бути локалізованими. Не дивлячись на це, у концентрованих розчинах спостерігається помітна швидкість фазового розшарування, а також швидка гомогенізація.

У роботі досліджувались зразки трьох типів: зразки А – слабкі розчини ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$, зразки В – слабкі розчини ${}^4\text{He}$ в ${}^3\text{He}$ та зразки С – концентровані розчини. Крім початкової концентрації x_0 , зразки також відрізнялись кристалографічною структурою. Слабкі розчини ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$ в однорідному стані мали ГЦП структуру,

а нова фаза – ОЦК, а для слабких розчинів ^4He в ^3He реалізовувалась зворотня ситуація. У концентрованих розчинах в умовах експерименту як початковий однорідний розчин, так і обидві розшировані фази мали ОЦК структуру. В експериментах реєструвалась зміна тиску розчину $\Delta P(t)$ з часом при зниженні або підвищенні температури, а відповідні концентрації визначались по фазовій діаграмі.

На рис.4 приведені одержані типові залежності $\Delta P(t)$, які відображають кінетики розширування та наступної гомогенізації для зразків типу А, Б., В.

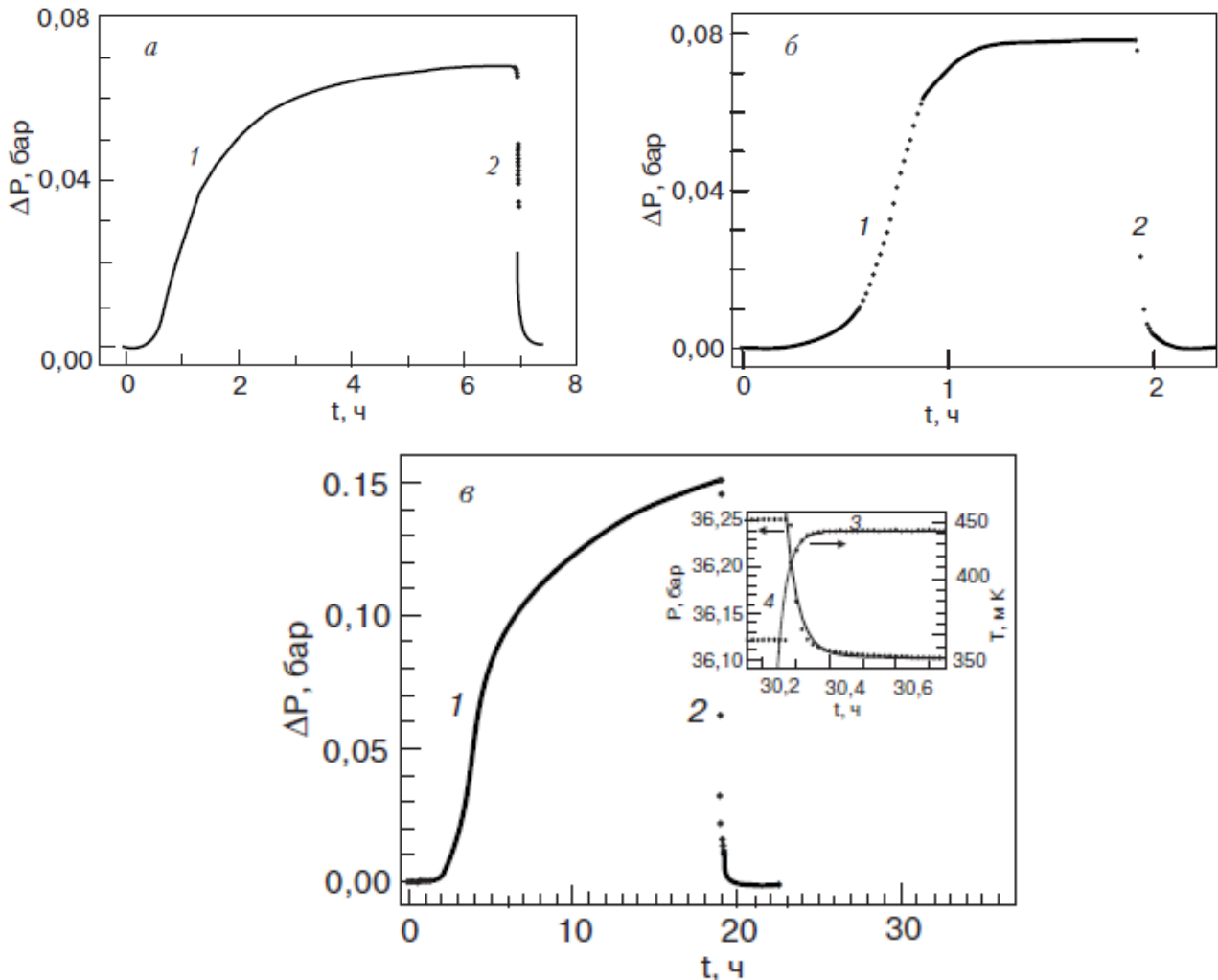


Рис.4. Кінетика зміни тиску в процесі фазового розширування (1) та наступної гомогенізації. а – зразок А, $P_0=35,9867$ бар; б – зразок Б, $P_0=31,4368$ бар; в – зразок В, $P_0=35,4368$ бар; вставка – див. текст.

Представлені на рис.4 залежності $\Delta P(t)$ при досить значних t добре описуються експоненціальною залежністю

$$\Delta P(t) = P_f - P(t) = (P_f - P_i) \exp(-t/\tau), \quad (5)$$

де P_i та P_f – відповідно, початковий та кінцевий тиск у кристалі, τ – характеристична постійна часу, яка визначає кінетику процесу. Як видно з рис.4,

кінетика розшарування для зразків всіх трьох типів описується залежністю (5). Складною виявилась ситуація щодо описання кінетики гомогенізації. У ряді випадків це можливо зробити за допомогою двох характерних часів, які відповідають двом стадіям процесу – швидкій стадії з характерним часом τ_1 та повільній стадії з часом τ_2 . На вставці рис.4 представлена кінетика гомогенізації одного із зразків разом з кінетикою зміни температури. У цьому випадку постійна часу зміни температури τ_T виявилась ~ 50 с, що близько до значення характерного часу швидкої гомогенізації τ_1 . Це означає, що швидкість гомогенізації в таких умовах визначається швидкістю зміни температури, нижня границя якої визначається тепловим опором Капіци на кордоні твердий гелій – стінка комірки. Якщо температура змінюється за час, менший 50с, то описання гомогенізації формулою (5) стає неможливим. Щодо повільного етапу гомогенізації, то його характерний час τ_2 виявляється на порядок більшим. Описання кінетики гомогенізації формулою (5) та одержання значення τ_1 , яке перевищує τ_T , виявилось можливим лише для концентрованих розчинів при малих пересиченнях.

Вплив кінетики фазового розшарування на кінетику наступної гомогенізації вивчався на зразках з початковою концентрацією 90% ^3He , при цьому використовувались два засоби охолодження – повільний та швидкий. Рис.5 відповідає умовам повільного охолодження від початкової температури $T_i \approx 420$ мК за допомогою ступінчатого зниження температури на 10–15 мК у кожній сходинці. В таких умовах зародки нової фази виникають на першій сходинці, а при наступному охолодженні відбувається дифузійне зростання зародків. Розшарування закінчувалось приблизно через 6 годин, а потім в результаті різкого нагрівання відбувалась гомогенізація розчину за дуже короткий час.

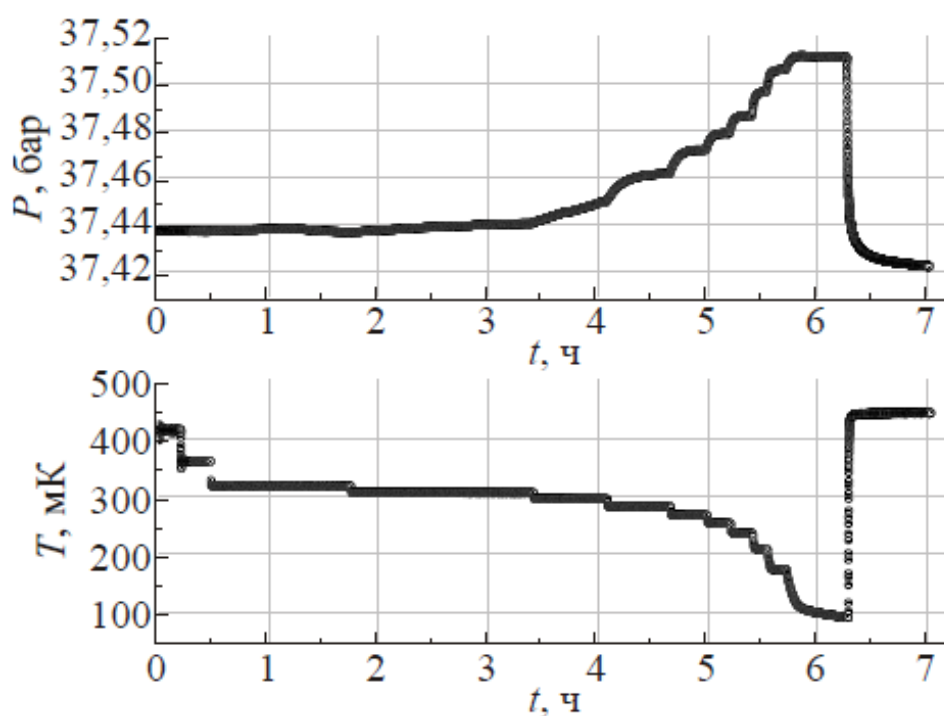


Рис.5. Зміна температури та тиску в процесі повільного охолодження і наступної гомогенізації.

Рис.6 відповідає умовам швидкого охолодження, яке було реалізовано, як відзначалось вище, завдяки слабкому тепловому зв'язку вимірювальної комірки з камерою розчинення. При цьому система переходила в область розшарування за допомогою одної великої сходинки з $T_{PS} - T_f \sim 40\text{--}50\text{ mK}$ за короткий час.

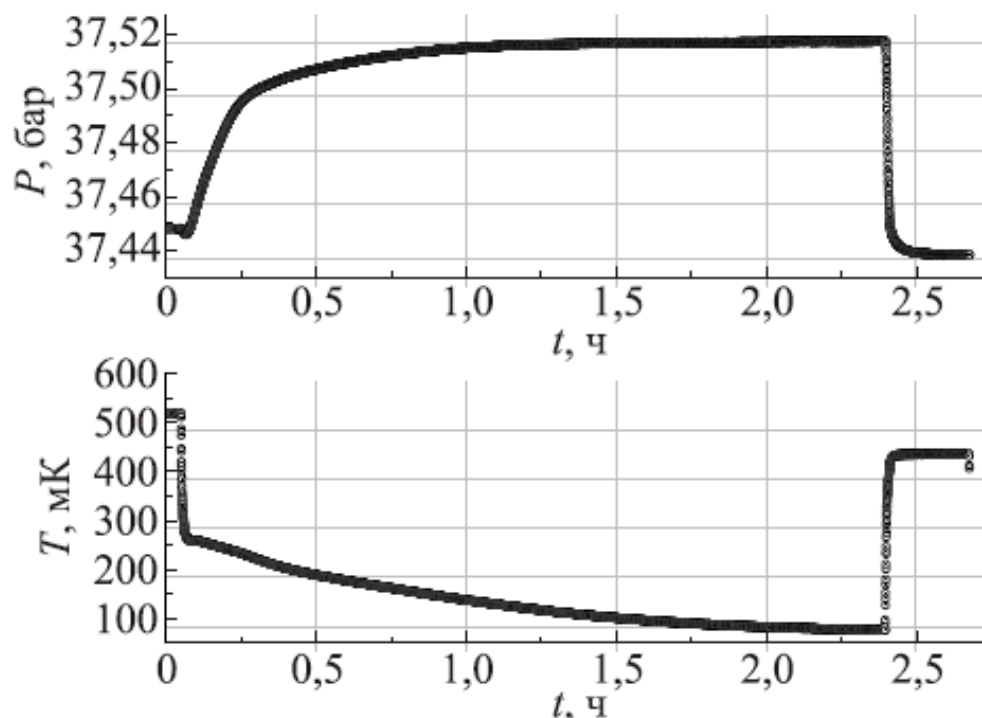


Рис.6. Кінетика розшарування і наступної гомогенізації при швидкому охолодженні.

У цьому випадку у розчині досягається велике пересичення від концентрації c_0 в однорідному розчині до концентрації c_f у розшарованому розчині, який охолоджений до температури T_f . Розшарування завершується вже практично через час від початку нагрівання. Відзначимо, що при швидкому охолодженні стає помітним виділення теплоти фазового переходу (рис.6), тому що завдяки слабкому тепловому зв'язку ускладнюється відведення теплоти переходу.

Вплив кінетики фазового розшарування на кінетику наступної гомогенізації більш наглядно демонструється на рис.7, де приведена відносна зміна тиску $\Delta P(t)/\Delta P_{max}$ у процесі гомогенізації. Тут ΔP_{max} – повна зміна тиску після завершення гомогенізації. Графіки показують, що для швидкого охолодження (крива 2) гомогенізація розчину практично завершується через ≈ 200 с, а при повільному охолодженні (крива 1) гомогенізація продовжується навіть через ≈ 1000 с після початку переходу. Причину такого сильного впливу кінетики розшарування на кінетику наступної гомогенізації якісно можна зрозуміти в рамках моделі гомогенного зародкоутворення (V.V. Slezov, J. Schmelzer, 1997). Справа в тому, що при фазовому переході швидкість зародкоутворення експоненційно залежить від ступеню пересичення розчину. Ця величина c_0/c_f при фазовому розшаруванні досягає великих значень, що означає високу концентрацію зародків і суттєво полегшує зворотній фазовий перехід до гомогенного стану.

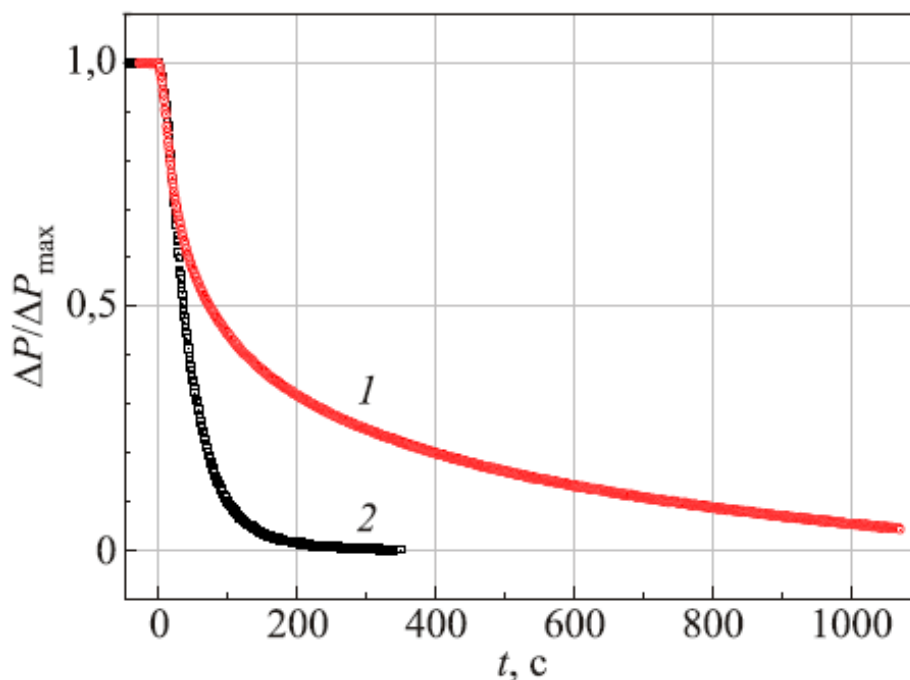


Рис.7. Порівняння кінетики гомогенізації у зразках, де попереднє фазове розшарування відбувалось при повільному охолодженні (крива1) та швидкому охолодженні (крива2).

П'ятий розділ присвячений вивченню дифузійних процесів у концентрованих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$, які відбуваються при фазовому розшаруванні. Нові експерименти з кінетики розшарування у таких розчинах та їх порівняння з теорією, де рішення дифузійної задачі адекватно відповідає умовам експерименту, дозволили одержати відомості про масову дифузію в твердих розчинах гелію.

В експериментах досліджувались тверді розчини з початковими концентраціями 34,0; 61,3 та 89,9% ${}^3\text{He}$ в області температур 100–400 мК і тисків 30–35 бар. В таких умовах виключався вплив структурного переходу ОЦК–ГЦП.

Проводились прецизійні вимірювання тиску $P(t)$ в процесі ступінчастого охолодження, а для реєстрації малих змін тиску використовувався спеціальний прецизійний ємнісний міст, який забезпечував роздільну здатність по тиску ± 3 Па. Одержана в експерименті залежність $P(t)$ аналізувалась в рамках проведеного в роботі [6] дифузійного описання кінетики розшарування. У цієї моделі припускається, що на першій сходинці охолодження народжуються зародки з концентрацією, яка відповідає рівноважній фазовій діаграмі. Для наступних маленьких сходинок концентрація зародків залишається постійною, відбувається лише їхнє дифузійне зростання. Припускається також, що зародки рівномірно розподілені по об'єму, і кожний з них характеризується еквівалентною сферою радіуса R , яка обмежує область зростання зародка. Оскільки при фазовому розшарування дифузійні процеси відбуваються по-різному всередині включення нової фази (in) і зовні (out), то потрібно вводити два коефіцієнта дифузії $D^{(in)}$ та $D^{(out)}$ для внутрішньої та зовнішньої областей. Ситуація спрощується для першої сходинки охолодження, коли враховуються тільки дифузійні процеси зовні включення. У цьому випадку для порівняння теорії з експериментом використовується лише один підгінний параметр розмірністю часу:

$$\Delta t = R^2 / D^{(out)} \quad (7)$$

Цей параметр переводить безрозмірний узагальнений час τ у реальний час $t = \Delta t$, який реєструється в експерименті. Для другої та наступних сходинок потрібно враховувати обидва дифузійних процеси $D^{(in)}$ та $D^{(out)}$. Тоді з'являється другий підгінний параметр a і згідно [6] радіус еквівалентної сфери, який визначає розмір області, в якій формуються та зростають зародки нової фази:

$$R = (a^3 / N_m)^{1/3}, \quad (8)$$

де N_m концентрація зародків нової фази. Формули (7)–(8) дозволяють знайти коефіцієнт масової дифузії зовні зародка. Одержані таким чином значення коефіцієнта $D^{(out)}$ представлені на рис.8, де права частина містить одержані значення коефіцієнта масової дифузії ${}^4\text{He}$ у твердому ${}^3\text{He}$, а ліва частина – дані для дифузії ${}^3\text{He}$ у ${}^4\text{He}$. На рис.8 приведені також результати робіт (V. Grigorev, Ye. Vekhov, 2007) та (В.Н. Григорьев та ін., 2003), одержані раніше для слабких розчинів і перерахованих у рамках даного підходу.

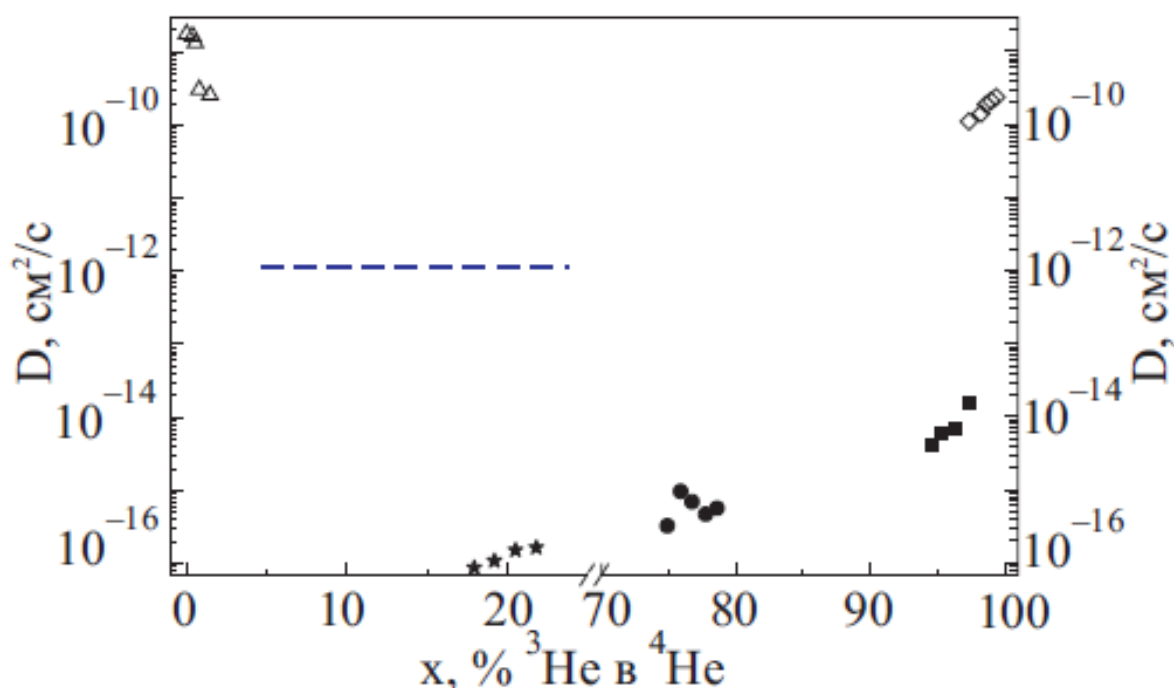


Рис.8. Концентраційна залежність коефіцієнта масової дифузії у твердих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$. Експериментальні точки: (★), (●), (■) – дана робота; (△) – (V.N. Grigorev, Ye.O. Vekhov, 2007), (◇) – (В.Н. Григорьев та ін., 2003).

Розшаровані розчини ${}^4\text{He}$ у ${}^3\text{He}$ являють собою матрицю з майже чистого ${}^3\text{He}$ та включень з майже чистого ${}^4\text{He}$. Оскільки в експерименті температура була набагато вище температури ядерного упорядкування у твердому ${}^3\text{He}$, то зонний рух домішок у такій матриці неможливий. В дуже слабких розчинах ${}^4\text{He}$ у ${}^3\text{He}$ коефіцієнт масової дифузії не може перевищувати коефіцієнт самодифузії у

твердому ${}^3\text{He} \sim 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$ (Б.Н. Єсельсон та ін., 1976). При наявності домішок коефіцієнт дифузії зменшується під впливом пружних напружень і взаємодії між домішками. Із зростанням концентрації ${}^4\text{He}$ коефіцієнт дифузії зменшується до $\sim 10^{-16} \text{ см}^2/\text{с}$ (рис.8).

Зовсім інший характер мають дифузійні процеси у слабких розчинах ${}^3\text{He}$ в ${}^4\text{He}$. Домішки ${}^3\text{He}$ перетворюються у квазічастинки, які можуть рухатись по кристалу майже вільно у межах своєї енергетичної зони. Це призводить до реалізації квантової дифузії і незвичайній поведінці коефіцієнта дифузії. При дуже малій концентрації атомів ${}^3\text{He}$ їхній рух визначається зіткненням з фононами, що призводить до сильного зростання коефіцієнта дифузії із зниженням температури ($T \sim T^{-9}$). Із зростанням концентрації x стає суттєвою взаємодія домішкових збуджень між собою, а коефіцієнт дифузії стає обернено пропорційним концентрації і незалежним від температури.

При подальшому зростанні концентрації x настає локалізація домішок, що призводить до різкого падіння коефіцієнта дифузії. В той же час в реальних умовах розшарування дифузійні процеси відіграють визначальну роль у всьому діапазоні концентрацій. Очевидно, що це пов'язано з градієнтом концентрації, який виникає при розшаруванні і який ліквідує саму локалізацію домішкових збуджень. І хоча коефіцієнт дифузії в таких умовах дуже малий $10^{-15} - 10^{-16} \text{ см}^2/\text{с}$ (рис.8), фазове розшарування іде досить інтенсивно, оскільки із зростанням концентрації збільшується число центрів зародкоутворення, тобто зменшується дифузійна довжина домішкових атомів.

Пунктиром на рис.8 показана нижня границя коефіцієнта спінової магнітодипольної дифузії, яка була розрахована в (В.А. Слюсарев, М.А. Стржемечный, 1983) і яка може бути виявлена методом ЯМР. Видно, що коефіцієнт масової дифузії, одержаний в даній роботі при вимірюванні тиску, на кілька порядків нижче цієї границі. Це означає, що дана методика дозволяє реєструвати більш повільні дифузійні процеси, ніж ЯМР методика.

ВИСНОВКИ

В дисертаційній роботі вирішено важливу задачу в області фізики низьких температур, а саме: експериментально виявлені особливості фазового розшарування твердих концентрованих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ та зворотного переходу – гомогенізації розчину.

Метою дисертаційної роботи є експериментальне виявлення особливостей фазового розшарування твердих концентрованих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ та зворотного переходу – гомогенізації розчину.

Основні результати, які були отримані в дисертаційній роботі, можна сформулювати наступним чином:

1. Виявлено новий ефект у термодинамічній поведінці твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ поблизу фазового розшарування – великомасштабні флуктуації концентрації розчину. Показано, що при охолодженні розчину поблизу

температури розшарування, його тиск помітно зростає за рахунок флуктуаційних ефектів, а не зменшується разом з фононним внеском.

2. Встановлено, що при наближенні до температури розшарування за рахунок флуктуацій у домішковій підсистемі розчинів утворюються зародки нової фази у вигляді кластерів, які містять сотні атомів, що погоджується з теорією.
3. Експериментально зареєстрована у концентрованих розчинах гігантська асиметрія процесів розшарування та гомогенізації. Встановлено, що швидкість початкового етапу гомогенізації може перевищувати швидкість розшарування більше, ніж у 500 разів. При цьому, швидкість гомогенізації суттєво залежить від кінетики попереднього розшарування розчинів.
4. Знайдено коефіцієнт масової дифузії та побудовано картину еволюції дифузійних процесів із зростанням концентрації. Також показано, що в кожній з областей концентрацій, дифузія має зовсім різну природу.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Гигантская асимметрия процессов расслоения и гомогенизации твердых астворов ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ / В.Н.Григорьев, В.А.Майданов, А.А.Пензев, А.В.Полев, **С.П.Рубец**, Э.Я.Рудавский, А.С.Рыбалко, Е.В.Сырников // ФНТ. – 2005. – Т.31, №1. – С.43–49.
2. Кристаллизационный термометр для сверхнизких температур с охлаждаемым генератором на полевом транзисторе / В.А.Майданов, М.И.Мильченко, Н.П.Михин, А.С.Неонета, А.В.Полев, В.Н.Репин, **С.П.Рубец**, А.С.Рыбалко, С.Ф.Семенов, Е.В.Сырников, В.А.Шилин, Е.О.Вехов // ФНТ. – 2005. – Т.31, №11. – С.1312–1316.
3. Обнаружение флуктуационных эффектов вблизи температуры фазового расслоения концентрированных твердых растворов ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ / Т.Н.Анцыгина, В.Н.Григорьев, В.А.Майданов, А.А.Пензев, **С.П.Рубец**, Э.Я.Рудавский, А.С.Рыбалко, Е.В.Сырников, К.А.Чишко // ФНТ. – 2005. – Т.31, №12. – С. 1395–1404.
4. Gigant asymmetry of phase separation and homogenization kinetics in solid ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ mixtures / V.Grigoirev, V.Maidanov, A.Penzev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, Ye.Syrnikov // J. Phys. and Chem. of Solids. – 2005. – V.66, No 8/9. – P. 1471–1474.
5. Fluctuation effects at pre-separation region in solid ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ mixtures / T.Antsygina, R.Chishko, V.Grigoirev, V.Maidanov, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, Y.Syrnikov, A.Penzev // J. Low Temp.Phys. – 2007. – V.148, No5/6. – P.719–724.
6. Фазовое расслоение и диффузионные процессы в концентрированных твердых растворах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ / В.Н.Григорьев, И.А.Дегтярев, А.А.Лисунов, В.А.Майданов, В.Ю.Рубанский, **С.П.Рубец**, Э.Я.Рудавский, А.С.Рыбалко, В.А.Тихий // ФНТ. – 2009. – Т.35, №11. – С.1063–1072.
7. Homogeneous ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ solid solutions in the pre-separation region / T.N.Antsygina, A.A.Lisunov, V.A.Maidanov, V.Yu.Rubanskyi, **S.P.Rubets**,

Е.Ya.Rudavskii, K.A.Chishko // *Physica B: Condensed Matter* – 2011. – V.406, No20. – P.3870–3875.

8. Влияние кинетики фазового расслоения на кинетику гомогенизации твердых растворов ^3He – ^4He И.А.Гриценко, В.А.Майданов, **С.П.Рубец**, Э.Я.Рудавский. А.С.Рыбалко // *ФНТ*. – 2018. – Т.44, № 4. – С.398–401.

9. Фононный и вакансионный вклады в температурную зависимость давления твердых растворов ^3He – ^4He / **С.П.Рубец**, А.А.Пензев, Е.В.Сырников // Конференція молодих вчених „Фізика низьких температур”, 25–27 травня, – 2004: тези доповідей – Україна, Харків, 2004. – С.28.

10. Корреляционные и флуктуационные эффекты при изотопическом фазовом расслоении твердых растворов гелия / А.А.Пензев, **С.П.Рубец**, Е.В.Сырников// Конференція молодих вчених „Фізика низьких температур”, 25–27 травня, 2004: тези доповідей – Україна, Харків, 2004. – С.30.

11. Определение концентрации твердого раствора ^3He – ^4He in-situ / А.В.Полев, А.А.Пензев, **С.П.Рубец**, Е.В.Сырников // Конференція молодих вчених „Фізика низьких температур”, 25–27 травня, 2004: тези доповідей – Україна, Харків, 2004. – С.31.

12. Kinetics of nucleation and phase separation of solid ^3He – ^4He mixtures / V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, V.Slezov, Ye.Syrnikov // 5th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals (CC2004), Aug 29.– Sept 4, 2004: book of abstr. – Poland, Wroclaw, 2004. – P.56.

13. Anomalously fast homogenization rate of phase-separated solid ^3He – ^4He mixtures / V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, A.Polev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, Ye.Syrnikov// 5th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals (CC2004), Aug 29.– Sept 4, 2004: book of abstr. – Poland, Wroclaw, 2004. – P.87.

14. Phase separation and homogenization of ^3He – ^4He solid mixtures / V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, A.Polev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, Ye.Syrnikov // 5th Intern.Conf. on Low Temp.Chemistry, Sept. 5–10, Aug 29.– Sept 4, 2004: book of abstr. – Germany, Berlin, 2004. – P.93.

15. Gigantic asymetry of phase separation and homogenization kinetics in solid ^3He – ^4He mixtures / V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, A.Polev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, Ye.Syrnikov // *Quantum Condensed Systems*, Nov.16–19, 2004: book of abstr. – Japan, Kashiwa, 2004. – P.135.

16. Измерение сверхнизких температур с помощью кристаллизационного термометра резонансным методом / **С.П.Рубец**, А.А.Пензев, А.В.Полев, Е.В.Сырников // Конференція молодих вчених „Фізика низьких температур”, 24–26 травня, 2005: тези доповідей – Україна, Харків, 2005. – С.25.

17. Аномальное поведение давления вблизи температуры фазового расслоения концентрированных твердых растворов ^3He – ^4He / **С.П.Рубец**, А.А.Пензев, Е.В.Сырников // Конференція молодих вчених „Фізика низьких температур”, 24–26 травня, 2005: тези доповідей – Україна, Харків, 2005. – С.25.

18. Pressure anomaly and fluctuation effects near phase separation of solid ^3He – ^4He mixtures / T.Antsygina, K.Chishko, V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, **S.Rubets**,

E.Rudavskii, A.Rybalko // 24 Intern. Conf. On Low Temp.Phys. (LT-24), Aug.10–17, 2005: book of abstr. – USA, Florida, Orlando, 2005. – P. 223.

19. Fluctuation effects at pre-separation region in solid ^3He – ^4He mixtures / T.Antsygina, K.Chishko, V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, Ye.Syrnikov // Intern. Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS–2006), Aug. 1–6, 2006: book of abstr. – Japan, Kyoto, 2006, – P.20.

20. The anomalous fast homogenization of phase-separated solid ^3He – ^4He mixtures / V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, E.Rudavskii, **S.Rubets**, A.Rybalko, Ye.Syrnikov // Intern. Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS–2006), Aug. 1–6, 2006: book of abstr. – Japan, Kyoto, 2006. – P.21.

21. Fluctuation effects at pre-separation region in solid ^3He – ^4He mixtures / T.Antsygina, K.Chishko, V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko // 6th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals, Sept. 3–8, 2006: book of abstr. – Ukraine, Kharkiv, 2006. – P.69.

22. The anomalous mass transport under homogenization of solid ^3He – ^4He mixtures / V.Grigorev, V.Maidanov, A.Penzev, E.Rudavskii, **S.Rubets**, A.Rybalko, Ye.Syrnikov / 6th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals, (CC2006), Sept. 3–8, 2006: book of abstr. – Ukraine, Kharkiv, 2006. – P.71.

23. Аномально быстрый перенос вещества при гомогенизации расслоившихся твердых растворов ^3He – ^4He / В.Н.Григорьев, В.А.Майданов, А.А.Пензев, Э.Я.Рудавский, **С.П.Рубец**, А.С.Рыбалко, Е.В.Сырников // 34-е Собрание по физике низких температур (НТ-34), 26–30 сентября, 2006: тезисы докладов. – Россия, Ростов-на-Дону, п. Лоо, 2006. – С.189.

24. Флуктуационные эффекты в области фазового расслоения концентрированных твердых растворов ^3He – ^4He / Т.Н.Анцыгина, В.Н.Григорьев, В.А.Майданов, А.А.Пензев, Э.Я.Рудавский, **С.П.Рубец**, А.С.Рыбалко, Е.В.Сырников, К.А.Чишко // 34-е Собрание по физике низких температур (НТ-34), 26–30 сентября, 2006: тезисы докладов – Россия, Ростов-на-Дону, п. Лоо, 2006. – С.222.

25. Phase separation kinetics and mass diffusion in concentrated solid ^3He – ^4He / V.Grigorev, I.Degtyarev, A.Lisunov, V.Maidanov, V.Rubansky, **S.Rubets**, .Rudavskii, A.Rybalko, V.Tikhii // International Symposium on Quantum Fluids and Solids (QFS–2009), August 5–11, 2009: book of abstr. – USA, Illinois, Evanston, Northwestern University, 2009. – P.57.

26. Массовая диффузия в концентрированных твердых растворах ^3He – ^4He / В.Н.Григорьев, И.А.Дегтярев, А. А. Лисунов, В.А.Майданов, В.Ю.Рубанский, **С.П.Рубец**, Э.Я.Рудавский, А.С.Рыбалко, В.А. Тихий // 35-е Собрание по физике низких температур (НТ-35), 29 сентября – 2 октября, 2009: тезисы докладов – Россия, Черноголовка, 2009. – С. 18.

27. Наблюдение флуктуационных эффектов в твердых растворах ^3He – ^4He различной концентрации **С.П.Рубец**, А.А.Лисунов, В.Ю.Рубанский, 2-а всеукраїнська конференція молодих вчених „Фізика низьких температур”, 1–5 червня, 2005: тези доповідей – Україна, Харків, 2009. – С.132.

28. Concentration dependence of fluctuation effects in solid ^3He – ^4He mixtures / **S.Rubets**, A.Lisunov, V.Rubanskyi // International Conference for Young Scientists, “Low Temperature Physics”, June 7–1, 2010: book of abstr. – Ukraine, Kharkiv, 2010. – P.108.

29. Concentration dependence of fluctuation effects in solid ^3He – ^4He mixtures / T.Antsigina, K.Chishko, A.Lisunov, V.Maidanov, V.Rubanskyi, **S.Rubets**, E.Rudavskii, A.Rybalko, V.Tikhii // 8th International Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals (CC2010), July 26–31, 2010: book of abstr. – Russia, Chernogolovka, 2010. – P.71.

30. Fluctuation effects in concentrated ^3He – ^4He solid mixtures near the phase separation temperature / T.Antsigina, K.Chishko, A.Lisunov, V.Maidanov, V.Rubanskyi, **S.Rubets**, E.Rudavskii // II International Conference for Young Scientists, “Low Temperature Physics”, June 6–10, 2011: book of abstr. – Ukraine, Kharkiv, 2011. – P.106.

31. Kinetics of phase separation and homogenization of solid solutions ^4He in ^3He / **S.P.Rubets**, I.A.Gritsenko, O.O.Lisunov, V.A.Maidanov, V.Yu.Rubanskyi, E.Ya Rudavskii, O.S.Rybalko, D.A.Shepilov, S.M.Smirnov // International Conference for Professionals & Young Scientists “Low Temperature Physics”, May 29 – June 2, 2017: book of abstr. – Ukraine, Kharkiv, 2017. – P.122.

АНОТАЦІЯ

Рубець С.П. Гомогенізація та фазове розшарування концентрованих твердих розчинів ^3He – ^4He . – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за фахом 01.04.09 – фізика низьких температур. – Фізико-технічний інститут низьких температур ім. Б.І. Веркіна НАН України, Харків, 2018.

В дисертаційній роботі проведено пошук та дослідження нових ефектів в процесі двох фазових переходів першого роду – фазового розшарування концентрованих твердих розчинів ^3He – ^4He та зворотного переходу розшарованого розчину до гомогенного стану. Виявлено вплив великомасштабних флуктуацій концентрації на поведінку тиску поблизу фазового переходу. При охолодженні розчину його тиск не зменшується в міру фононного внеску, а помітно зростає. Встановлено, що при наближенні до температури розшарування за рахунок флуктуацій у домішковій підсистемі розчину утворюються зародки нової фази у вигляді кластерів, які містять сотні атомів. У концентрованих розчинах експериментально зареєстрована гігантська асиметрія процесів розшарування та гомогенізації. Показано, що швидкість початкового етапу гомогенізації може перевищувати швидкість розшарування більше, ніж у 500 разів. Виявлено, що швидкість гомогенізації суттєво залежить від кінетики попереднього розшарування розчинів. Результати експериментів з кінетики розшарування концентрованих розчинів ^3He – ^4He та їх порівняння з теорією зростання нової фази та відповідними дифузійними процесами дозволили знайти коефіцієнт масової дифузії в системі та побудувати картину

еволюції дифузійних процесів із зростанням концентрації. У концентрованих розчинах локалізація домішкових збуджень призводить до різкого падіння коефіцієнту масової дифузії. Фазове розшарування іде досить інтенсивно, оскільки із зростанням концентрації збільшується число центрів зародкоутворення, тобто зменшується дифузійна довжина домішкових атомів.

Ключові слова: твердий гелій, фазове розшарування, гомогенізація розчинів, флуктуаційні ефекти, кінетики фазових переходів, коефіцієнт масової дифузії.

АННОТАЦІЯ

Рубец С.П. Гомогенізація і фазове розшарування концентрованих твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$. – Рукопись.

Дисертація на соискание ученої ступені кандидата фізико–математических наук по спеціальності 01.04.09 – фізика низьких температур. – Фізико-технічний інститут низьких температур ім. Б.І. Веркіна НАН України, Харків, 2018.

В дисертаційній роботі проведено пошук і дослідження нових ефектів, виникаючих в процесі двох фазових переходів першого роду – фазового розшарування концентрованих твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ і зворотного переходу розшарованого розчину в гомогенне стан.

Основним методом фізических досліджень, використаним в даній роботі, був метод прецизійного вимірювання тиску твердого гелію при постійному об'ємі. Метод виявився дуже інформативним і зручним як для дослідження фазових переходів в твердих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$, так і для вивчення кінетических процесів і пошуку нових ефектів в розчинах квантових кристаллів.

Вперше виявлено аномальне поведіння тиску твердих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ поблизу фазового розшарування. При охолодженні розчину його тиск не зменшується в міру фононного вкладу, а помітно зростає. Проведений аналіз дозволив встановити, що при наближенні до температури розшарування за рахунок флуктуацій в примісній підсистемі розчину утворюються зародки нової фази в формі кластерів, що містять сотні атомів.

В концентрованих розчинах ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ вперше експериментально зареєстрована гігантська асиметрія процесів розшарування і гомогенізації. Встановлено, що швидкість початкового етапу гомогенізації може перевищувати швидкість розшарування більш, ніж в 500 раз. При цьому виявлена ще одна нова особливість – швидкість гомогенізації суттєво залежить від кінетики передшествуючого розшарування. Результати нових експериментів по кінетике розшарування концентрованих розчинів ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ і їх аналіз в рамках теорії росту нової фази з відповідними дифузійними процесами дозволили вперше знайти коефіцієнт масової дифузії і побудувати загальну картину еволюції дифузійних процесів з ростом концентрації. В концентрованих розчинах локалізація примісних збуджень при достатньо великих концентраціях приводить к

резкому падению коэффициента массовой диффузии. Несмотря на это, фазовое расслоение проходит весьма интенсивно за разумное время, поскольку с ростом концентрации увеличивается число центров зародышеобразования, т.е. уменьшается диффузионная длина примесных возбуждений. Усовершенствован метод измерения температуры и давления при сверхнизких температурах за счет использования резонансного колебательного контура, включающего в себя емкостной датчик давления и охлаждаемый генератор на полевом транзисторе. Метод позволил более чем на порядок повысить чувствительность и точность измерения температуры в области 0.9 мК – 1К.

Ключевые слова: твердый гелий, фазовое расслоение, гомогенизация растворов, флуктуационные эффекты, кинетика фазовых переходов, коэффициент массовой диффузии.

ABSTRACT

Rubets S.P. Homogenization and phase separation of concentrated solid ^3He – ^4He solutions. – Manuscript.

Thesis for a candidate's degree in physics and mathematics by specialty 01.04.09 – low temperature physics. – B.I. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering of NAS of Ukraine, Kharkov, 2018.

The dissertation presents the results of search and investigation of new effects arising during the two first kind phase transitions– the phase separation of concentrated solid ^3He – ^4He solutions and the reverse transition of the separated solution into a homogeneous state. Anomalous behavior of the solution pressure near the phase transition was observed. When the solution is cooled, its pressure does not decrease owing to decreasing in the phonon contribution, but increases noticeably. It was established that at approaching the phase separation temperature the nuclei of new phase are formed like a clusters containing hundreds of atoms due to fluctuations in the solution impurity subsystem. It is shown that the rate of the initial homogenization stage can exceed the velocity of the separation more than 500 times. In this case, new feature has been discovered: the homogenization rate essentially depends on the kinetics of the preceding separation. The results of experiments on the separation kinetics of concentrated ^3He – ^4He solutions and their analysis within the framework of the new–phase growth theory with the corresponding diffusion processes made it possible to find the mass diffusion coefficient and construct the general picture of the evolution of diffusion processes with increasing concentration. In concentrated solutions, the localization of impurity excitations at sufficiently high concentrations leads to a sharp drop in the mass diffusion coefficient. In spite of this, the phase separation process goes quite intensively, since with the increase in concentration the number of nucleation centers increases, that is, the diffusion length of impurity atoms decreases.

Keywords: solid helium, phase separation, homogenization of solution, fluctuation effects, kinetics of phase transitions, coefficient of mass diffusion.

Формат 60x84/16. Ум. друк. арк. 0.9. Тир. 100 прим. Зам. № 490-18.
Підписано до друку 08.10.2018. Папір офсетний.

Надруковано з макету замовника у ФОП Бровін О.В.
61022, м. Харків, вул. Трінклера, 2, корп.1, к.19. Т. (057) 758-01-08, (066) 822-71-30
Свідоцтво про внесення суб'єкта до Державного реєстру
видавців та виготовників видавничої продукції серія ДК 3587 від 23.09.09 р.

СТИЛЬ ®
ИЗДАТ 
ТИПОГРАФИЯ
www.stil-izdat.com