

## Релаксация давления и диффузия вакансий в быстро выращенных кристаллах гелия

А.П. Бирченко, Н.П. Михин, Э.Я. Рудавский, С.Н. Смирнов, Я.Ю. Фисун

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина*

E-mail: mikhin@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 16 ноября 2017 г., опубликована онлайн 26 февраля 2018 г.

При температурах выше 1,3 К проведено экспериментальное исследование особенностей релаксации давления в быстро выращенных кристаллах слабого твердого раствора  $^3\text{He}$ – $^4\text{He}$ . Использовалась цилиндрическая измерительная ячейка, на торцах которой располагались емкостные датчики давления. Обнаружено, что при выращивании кристаллов гелия со скоростями охлаждения  $\approx 4$  мК/с разность давлений  $\Delta P$ , регистрируемая датчиками при 1,3 К, достигала 2,4 бар. При последующем ступенчатом повышении температуры величина  $\Delta P$  уменьшалась, но достигала нуля лишь после тщательного отжига при предплавильных температурах. Зарегистрирована кинетика изменения давлений на торцах образца при разных температурах. Полученные результаты интерпретируются в рамках моновакансионной модели диффузионного механизма структурной релаксации. Предложенная модель позволила объяснить зарегистрированную в эксперименте зависимость  $\Delta P$  от времени и температуры, найти энергию активации процесса структурной релаксации и коэффициент диффузии вакансий. Детали вакансионной модели описаны в приложении.

При температурах вище 1,3 К проведено експериментальне дослідження особливостей релаксації тиску у швидко вирощених кристалах слабого твердого розчину  $^3\text{He}$  у  $^4\text{He}$ . Було використано циліндричну вимірювальну комірку, на торцях якої розміщувались ємнісні датчики тиску. Виявлено, що при вирощуванні кристалів гелію зі швидкістю охолодження  $\approx 4$  мК/с різниця тисків  $\Delta P$ , що реєструється датчиками при 1,3 К, досягала 2,4 бар. При наступному ступінчастому підвищенні температури величина  $\Delta P$  зменшувалась, але досягала нуля лише після ретельного відпалу за передплавильних температур. Зареєстрована кінетика зміни тисків на торцях кристалу при різних температурах. Одержані результати інтерпретуються у рамках моновакансійної моделі дифузійного механізму структурної релаксації. Запропонована модель дозволила пояснити зареєстровану в експерименті залежність  $\Delta P$  від часу та температури, знайти енергію активації процесу структурної релаксації та коефіцієнт дифузії вакансій. Деталі вакансійної моделі приведені у додатку.

PACS: 67.80.dj Дефекты, включения и диффузия;  
67.60.-g Смешанные системы; жидкие смеси  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ;  
67.80.-s Твердый гелий и аналогичные квантовые кристаллы.

Ключевые слова: твердый гелий, структурная релаксация, диффузия, вакансия.

### Введение

Кристаллы гелия, выращенные при достаточно быстром охлаждении, представляют собой неравновесную неупорядоченную систему с весьма сложной фазовой структурой. Для идентификации фазового состава такой системы использовался метод ядерного магнитного резонанса (ЯМР) на ядрах  $^3\text{He}$  в слабом твердом растворе

$^3\text{He}$  в  $^4\text{He}$  [1–4]. Измерения коэффициента диффузии и времен ядерной магнитной релаксации показали, что образцы твердого гелия, полученные при быстром охлаждении, представляют собой двухфазную систему, состоящую из ГПУ матрицы и неравновесных включений жидкой фазы. Со временем такие включения претерпевают эволюцию, уменьшаются в размере и в итоге затвердевают с образованием аморфного состояния [5].

В работе [6] свойства кристаллов  ${}^4\text{He}$ , полученных охлаждением с разной скоростью, изучались методом барометрических измерений. Исследовалось поведение градиента давления в образце при отжиге и охлаждении. Для увеличения градиента давления использовался специально замороженный в кристалл нагреватель, который в импульсном режиме позволял за несколько секунд повысить температуру части образца до температуры, близкой к температуре плавления. Затем ячейка с образцом быстро охлаждалась до начальной температуры (ниже 0,5 К, а в некоторых случаях до 50 мК) и изучалось поведение давления при последующем изменении температуры. В таких экспериментах была обнаружена релаксация градиента давления, скорость которой возрастала при увеличении температуры. Обсуждаются также причины возникновения и физические механизмы релаксации градиентов давления. Однако в [6] недостаточно детально изучена кинетика релаксации градиента давления, исследование которой необходимо для корректной трактовки экспериментальных результатов.

Целью данной работы является получение новой информации о неравновесных процессах в кристаллах гелия с помощью двух прецизионных датчиков давления, расположенных на торцах цилиндрического образца. Основное внимание уделяется изучению зависимости возникающей разности давлений от времени при различных условиях. Поскольку измерения проводились при относительно высоких температурах (выше 1,3 К), то полученные результаты рассматриваются в рамках предложенной в работе вакансионной модели релаксации давления.

### 1. Методика эксперимента

В работе исследовались образцы твердого раствора  ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$ , содержащего  $(1,0 \pm 0,05)\%$   ${}^3\text{He}$ , с молярными объемами  $V_m$ , равными 19,86 – 20,32 см<sup>3</sup>/моль. Образцы выращивали методом блокировки капилляра в цилиндрической полости медной ячейки длиной 1,2 см и диаметром 0,8 см, описанной ранее применительно к ЯМР измерениям в этой системе [4]. На рис. 1(а) приведена схема измерительной ячейки, которая для измерения давления была снабжена двумя емкостными датчиками  $C_1$  и  $C_2$  (точность измерений  $\pm 2$  мбар), чувствительными элементами которых служили торцевые стенки цилиндра. Заполнение ячейки исследуемым раствором осуществлялось через капилляр диаметром 0,1 мм, входивший в полость ячейки вблизи одного из датчиков давления.

Калибровку емкостных датчиков давления проводили в жидком гелии при температуре 2,65 К. В конце эксперимента проводили аналогичную контрольную калибровку, которая совпадала с исходной калибровкой.

Измерения проводили в интервале температур 1,3 – 2,65 К, которые достигались откачкой специальной

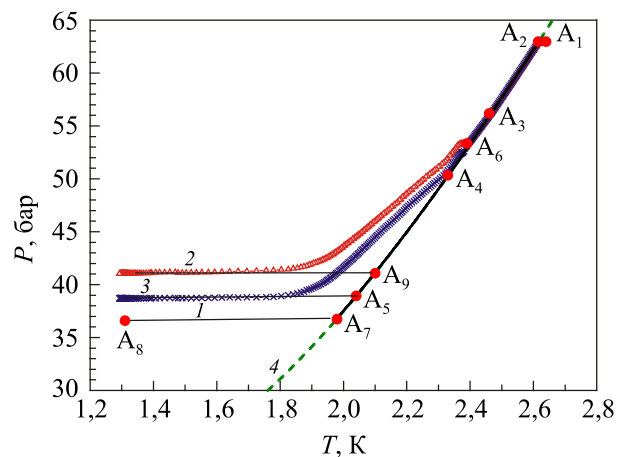
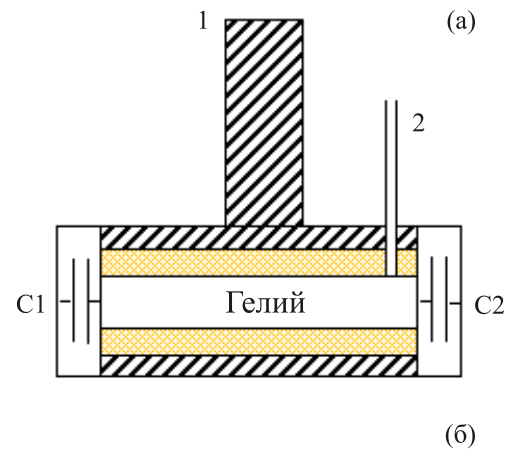


Рис. 1. (Онлайн в цвете) Схема расположения датчиков давления в измерительной ячейке, 1 — хладопровод, 2 — капилляр заполнения (описание в тексте) (а); зависимости  $P(T)$ , соответствующие образцам, полученным при различных скоростях охлаждения  $V_T$ . 1 — при  $V_T = 0,3$  мК/с показания датчиков  $C_1$  и  $C_2$  совпадают; 2, 3 — показания датчиков соответственно  $C_1$  и  $C_2$  при  $V_T = 4,1$  мК/с; 4 — равновесная кривая кристаллизации раствора. Точки  $A_1, A_2, \dots, A_9$  объяснены в тексте (б).

градусной камеры с  ${}^4\text{He}$ . Тепловой контакт корпуса ячейки с одноградусной камерой осуществлялся резьбовым соединением. Надежная тепловая связь капилляра с одноградусной камерой позволяла легко осуществить блокировку капилляра в самом начале выращивания кристалла. Таким образом, практически весь образец выращивался при постоянном объеме. Температуру образца  $T$  измеряли термометром сопротивления с точностью  $\pm 5$  мК и чувствительностью  $\pm 1$  мК, закрепленным на корпусе ячейки. На корпусе ячейки также крепилась пара «термометр–нагреватель», служившая для регулировки температуры и термостабилизации. Системы термометрии, термостабилизации, барометрии и ЯМР измерения были полностью автоматизированы.

На первом этапе эксперимента из жидкого раствора  ${}^3\text{He}$ - ${}^4\text{He}$  методом блокировки капилляра выращи-

вался образец твердого гелия, который охлаждался до температуры  $\approx 1,3$  К. Затем температуру ступенчато повышали и на каждой ступеньке при постоянной температуре регистрировали кинетику релаксации давлений, измеренных на торцах цилиндрической ячейки. Закономерности релаксации давления исследовались в образцах, полученных при различных скоростях охлаждения на первом этапе от 0,3 до 14 мК/с.

Для иллюстрации особенностей приготовления образцов на рис. 1(б) показаны зависимости  $P(T)$  для двух образцов, полученных выращиванием с различными скоростями охлаждения. Зависимость 1 соответствует образцу, полученному медленным выращиванием со скоростью  $\approx 0,3$  мК/с. Точка  $A_1$  с координатами (2,64 К, 63 бар) соответствует начальному состоянию системы, заполненной жидким раствором  ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ . Вскоре после начала охлаждения образец переходил в состояние, отмеченное точкой  $A_2$ , лежащей на кривой кристаллизации (кривая 4) и соответствующей началу блокировки капилляра. При дальнейшем понижении температуры рост кристалла происходил вдоль кривой кристаллизации до точки  $A_7$  (1,98 К, 36,8 бар), где вся ячейка оказывается заполненной твердым образцом, что подтверждалось ЯМР измерениями. При последующем охлаждении до 1,3 К (линия, соединяющая точки  $A_7$  и  $A_8$ ) падение давления в ячейке составляло 0,08 бар, что соответствовало табличному значению термосжимаемости твердого гелия в этих условиях по данным [7,8]. Следует отметить, что в процессе такого медленного выращивания образца показания обоих датчиков давления совпадали между собой. При этом рассчитанный из показаний датчиков молярный объем твердого образца  $V_m$  между точками  $A_7$  и  $A_8$  составлял  $\approx 20,3$  см<sup>3</sup>/моль и с большой точностью совпадал с молярным объемом жидкого раствора в точке  $A_2$ , что соответствует условию кристаллизации образца при постоянном объеме. Кривые 2 и 3 соответствуют образцу, полученному при быстром охлаждении жидкого раствора  ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$  со скоростью 4,1 мК/с при тех же начальных условиях (точка  $A_1$ ). В этом случае результаты, зарегистрированные двумя датчиками давления, заметно отличались: кривая 2 была построена по данным датчика  $C_1$ , а кривая 3 по данным датчика  $C_2$ . Вскоре после начала охлаждения образец также переходил в состояние, отвечающее точке  $A_2$ , лежащей на кривой кристаллизации и соответствующей началу блокировки капилляра. При дальнейшем охлаждении показания обоих датчиков давления в ячейке вначале согласовались с кривой кристаллизации (линия 4) с точностью измерения температуры и давления. В точке  $A_3$  давление, регистрируемое датчиком  $C_2$ , становилось заметно выше равновесного. По мере охлаждения до точки  $A_6$  эта разница увеличивалась, а показания датчика  $C_1$  согласовались с кривой кристаллизации. В точке  $A_6$  показания датчика  $C_1$  сильно отклонились от

кривой кристаллизации и быстро превысили показания датчика  $C_2$ . При дальнейшем охлаждении разность показаний датчиков  $C_1$  и  $C_2$  увеличивалась и при температуре 1,3 К составляла  $\approx 2,4$  бар, что свидетельствует о неравновесном состоянии приготовленного образца. Как следует из [1–5], именно в таких образцах содержится значительное, порядка 5–10%, количество неравновесных жидких включений. Отметим, что при температурах ниже 1,8 К, регистрируемые обоими датчиками давления изменялись мало, это обстоятельство в масштабе рис. 1 отображается в виде плато на зависимостях  $P(T)$ , продолжающихся до самой низкой температуры измерений 1,3 К.

Дополнительная информация о структуре образцов, полученных при быстром и медленном охлаждении, показана на рис. 2, где данные представлены в координатах «молярный объем  $V_m$  – температура  $T$ » и «давление  $P$  – температура  $T$ ». Точки  $A_1$ – $A_9$  имеют координаты  $(T, P)$  и соответствуют рис. 1(б), а точки  $B_1$ – $B_9$  имеют координаты  $(T, V_m)$

Точки  $A_1$  и  $B_1$  соответствуют начальному состоянию системы, заполненной жидким раствором  ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ . Точки  $A_2$  и  $B_2$  соответствуют началу блокировки капилляра и расположены на кривой кристаллизации 3 и на кривой 1 соответственно. При этом точка  $B_2$  определяет молярный объем жидкого раствора  ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$  перед началом роста твердой фазы — 20,32 см<sup>3</sup>/моль. После блокировки ячейки кристаллизация образца происходила при постоянном объеме.

Для медленно выращенного образца в точке  $B_7$  вся полость ячейки была заполнена твердой фазой при давлении соответствующем точке  $A_7$ . Горизонтальность линии  $B_2$ – $B_7$ , соединяющей точки начала и окончания кри-

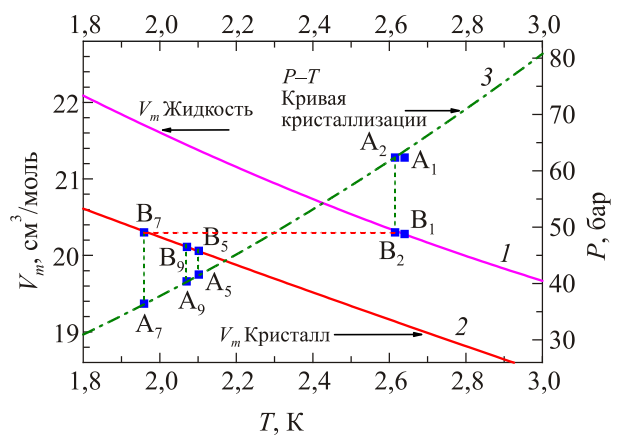


Рис. 2. (Онлайн в цвете) Схема приготовления исследуемых образцов раствора  ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ , содержащего 1%  ${}^3\text{He}$ , в координатах  $V_m(T)$  — левая шкала и  $P(T)$  — правая шкала. Линии 1 и 2 определяют молярные объемы соответственно жидкости и кристалла на кривой кристаллизации; 3 — линия кристаллизации. Штриховые линии показывают соответствие точек  $A_i$  и  $B_i$  в процессе роста образца (пояснения в тексте).

сталлизации свидетельствует об изохорном характере роста этого образца. При дальнейшем охлаждении до  $\approx 1,3$  К давление в образце медленно уменьшалось в соответствии с коэффициентом теплового расширения твердого раствора, с соответствующим молярным объемом [7,8]. Отметим, что при отжиге этого образца вблизи кривой кристаллизации не было замечено сколь-нибудь существенного уменьшения давления. Таким образом, можно полагать, что в пределах погрешности измерений медленно выращенные образцы представляют собой твердую фазу с малой степенью неоднородности и неравновесности.

Для быстро выращенного образца из рис. 1 и 2 следуют другие выводы. Обращает на себя внимание, что при температурах, соответствующих точкам  $A_5$  и  $A_9$ , давления на кривых 2 и 3 сильно отличаются от давления на кривой кристаллизации. Поэтому при этих температурах трудно корректно определить количественные характеристики фазового состава быстро выращиваемого образца. Очевидно, что в образце имеется большое количество жидкой фазы, поскольку при дальнейшем понижении температуры до 1,8 К давление продолжает сильно уменьшаться. В данном образце не проводилось исследование его фазового состава с помощью ЯМР, но в других образцах, так же выращенных при скорости охлаждения 4–6 мК/с, методом ЯМР было однозначно показано наличие 5–10 % жидкости. Можно предполагать, что и после окончания процесса выращивания при температуре  $\approx 1,3$  К в этом образце присутствует жидкая фаза. Об этом также свидетельствует тот факт, что при отжиге (после достижения температуры  $\approx 1,3$  К) быстро выращенного образца при температуре вблизи кривой кристаллизации давление в нем уменьшалось до значения, соответствующего этой кривой (рис. 1(б)). После отжига показания обоих датчиков давления совпадали. При дальнейшем охлаждении отожженный кристалл повторял траекторию роста медленно выращенного кристалла. Таким образом, при быстром выращивании получаются образцы со сложной неравновесной фазовой и дефектной структурой, детали которой нам пока не известны.

Как следует из рис. 1 и 2, давления в полученном при быстром охлаждении образце твердого гелия, измеренные датчиками на противоположных торцах ячейки, заметно отличались (их разность при температуре 1,3 К составляла  $\approx 2,4$  бар). Кроме того, как уже отмечалось, в таком образце, вероятно, содержится порядка 5–10% неравновесных жидких включений. Поэтому затруднительно определить с высокой точностью величину среднего молярного объема твердой фазы образца.

## 2. Релаксация давления в ячейке при повышении температуры

Кинетика релаксации давления, зарегистрированная датчиками  $C_1$  и  $C_2$ , оказалась существенно зависящей

от условий кристаллизации образцов и образующейся в итоге структуры. В данной статье анализируются экспериментальные результаты, когда показываемое датчиками изменение давления со временем происходило в разных направлениях — один датчик регистрировал рост давления, а другой — его уменьшение. Аналогичная релаксация и поведение давлений наблюдалось также в [6] на быстро выращенных в цилиндрической ячейке (с двумя датчиками давления на ее торцах) образцах чистого  $^4\text{He}$ . Отметим, что при исследовании некоторых образцов наблюдалась другая ситуация, когда регистрируемые датчиками изменения давлений, происходило в одну сторону, эти результаты будут рассмотрены в отдельной публикации.

Типичное поведение давления, измеренного на торцах цилиндрической ячейки в процессе ступенчатого повышения температуры быстро выращенных образцов, иллюстрирует рис. 3 на примере образца, полученного со скоростью охлаждения  $V_T = 8,6$  мК/с. Графики показывают, что в образцах твердого гелия, выращенных при быстром охлаждении, возникает разность давлений  $\Delta P = P_2 - P_1$  между значениями, регистрируемыми

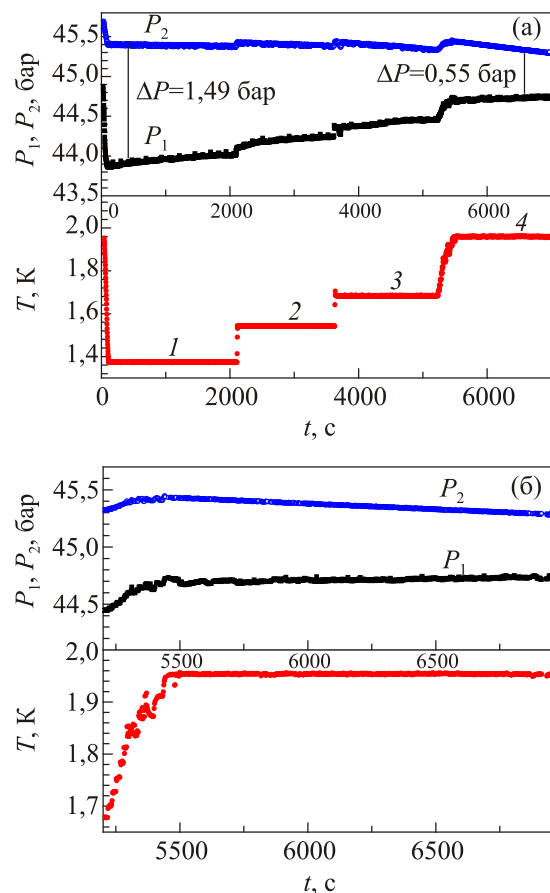


Рис. 3. (Онлайн в цвете) Ступенчатое повышение температуры и соответствующие зависимости давлений на торцах ячейки от времени. Скорость охлаждения при выращивании образца  $V_T = 8,6$  мК/с (а); 4-я ступенька при  $T = 1,95$  К в крупном масштабе.  $P_1$  и  $P_2$  — показания датчиков  $C_1$  и  $C_2$ , соответственно (б) (см. рис. 1(а)).

двумя датчиками, расположенными на торцах измерительной ячейки. С течением времени на каждой ступеньке нагрева давление  $P_2$  (датчик  $C_2$ ) уменьшается, а давление  $P_1$  (датчик  $C_1$ ) увеличивается, что в более крупном масштабе показано на рис. 3(б). Таким образом, со временем разность давлений  $\Delta P$  в образце уменьшается, причем тем быстрее, чем выше температура (рис. 4).

Наблюдаемую в эксперименте релаксацию давления в быстро выращенных кристаллах гелия естественно связать со структурными релаксационными процессами, происходящими в образцах. Однако адекватное теоретическое описание этих процессов существенно осложняется тем обстоятельством, что характеристики реальной дефектной структуры образцов фактически не известны. В такой ситуации актуальной задачей является развитие теоретических алгоритмов идентификации вкладов в релаксацию давления различных подсистем структуры образца (вакансий, фононов, стекольной фазы, дислокаций точечных дефектов и др.). Учитывая достижения современной физики пластичности традиционных материалов, можно ожидать, что и в твердом гелии возможны ситуации, когда в некоторых условиях эксперимента один из физических механизмов пластичности является контролирующим. Поэтому на первом этапе теоретического анализа оправдано рассмотрение достаточно простых моделей отдельных механизмов, в рамках которых можно описать основные закономерности экспериментальных наблюдений. При этом очевидно, что такие модели должны учитывать основные особенности изученных образцов. В работе сделана попытка объяснить наблюдаемые процессы в рамках модели диффузионного течения по моновакансионному механизму.

Зарегистрированное в эксперименте отличие значений давления на торцах ячейки свидетельствует о неоднородном характере упруго-напряженного состояния в

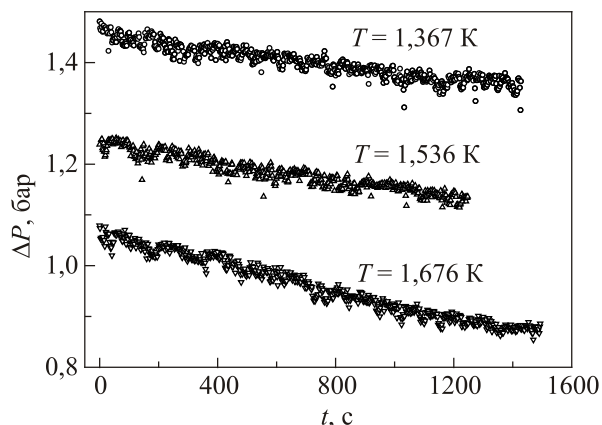


Рис. 4. Временная зависимость разности давлений  $\Delta P = P_2 - P_1$  на торцах измерительной ячейки при различных температурах, которые указаны на графиках, для образца, выращенного со скоростью охлаждения  $V_T = 8,6$  мК/с.

образце, которое может быть обусловлено неоднородностью фазового состава, присутствием поликристаллической твердой фазы со сложным распределением размеров зерен, их кристаллографических ориентаций и структурой межзеренных границ, а также неоднородностью дефектной структуры в отдельных зернах. Термодинамическая неравновесность быстро выращенных кристаллов гелия подтверждается также ЯМР измерениями времени магнитной релаксации и коэффициента самодиффузии  $^3\text{He}$  в таких образцах [1–5]. При этом при температуре 1,3 К неравновесной является как фазовая структура образца, так и дефектная структура кристаллической фазы.

Как видно на рис. 1(б), процесс кристаллизации образцов фактически завершается при  $T \approx 1,8$  К, поскольку при дальнейшем понижении температуры величины давления на торцах ячейки практически не изменяются. Поэтому можно ожидать, что концентрация вакансий в образце при  $T = 1,3$  К будет заметно выше термодинамически равновесной, а их роль в релаксации давления весьма существенной. Это дает дополнительные основания для обсуждения диффузионного механизма структурной релаксации.

### 3. Анализ и обсуждение экспериментальных результатов

Отметим, что при корректном обсуждении экспериментальных результатов и идентификации физических механизмов релаксации давления следует учитывать присутствие в исследованных образцах жидких включений. Вероятно, что величина давления в жидких каплях близка к давлению, которое при заданной температуре соответствует кривой кристаллизации, и заметно ниже давления, регистрируемого датчиками на торцах образца. Это обстоятельство приводит к появлению градиентов внутренних напряжений в кристаллической фазе на пространственных масштабах порядка расстояний между жидкими включениями. Границы раздела жидкой и твердой фаз имеют специфическую структуру и могут являться источниками и стоками вакансий. Следовательно, можно ожидать протекания пространственно неоднородных диффузионных процессов между каплями жидкой фазы. При этом не исключено, что в быстро выращенных образцах твердого гелия жидкая фаза распределена неоднородно. Отметим также, что присутствующая в образце жидкая фаза является метастабильной и с течением времени происходит ее переход в твердую фазу, а скорость этого процесса увеличивается с повышением температуры [3]. Отмеченные особенности протекания структурной релаксации, очевидно, должны отразиться в кинетике изменения давлений, регистрируемых датчиками на торцах образца.

Поскольку, как уже отмечалось, реальная структура образцов не известна, а доля жидкой фазы относительно

невелика, в данной работе мы ограничимся обсуждением экспериментальных результатов в рамках модели структурной релаксации по моновакансионному диффузионному механизму, которая не учитывает присутствие в образце жидкой фазы. Подробности теории изложены в Приложении, а здесь мы опишем основные положения предложенной модели.

Рассмотрение диффузионного механизма структурной релаксации проведено в рамках классической континуальной теории диффузии точечных дефектов. При этом учитывалось, что объекты исследования представляют собой поликристаллы с ГПУ кристаллической структурой, которая обладает анизотропными упругими свойствами, а точечный дефект является локальной неоднородностью и источником параупругих свойств упругой среды. Предполагается, что контролирующим механизмом обсуждаемой релаксации является диффузионное движение вакансий в неоднородном поле упругих напряжений, а в начальный момент релаксации вакансии распределены в образце с постоянной атомной концентрацией  $c_{v0}$ .

Поскольку величины параметров этих процессов неизвестны, анализ экспериментальных результатов проведен в два этапа. На первом этапе с использованием формулы (П.35) получены предварительные оценки физических параметров модели, в том числе характерного времени структурной релаксации  $\tau_1$ . На втором этапе анализа значения параметров уточнены с помощью более общей формулы (П.34).

Зависимость от времени разности давлений  $\Delta P(t) = P_2(t) - P_1(t)$ , согласно (П.35), имеет вид

$$\Delta P(t) = \frac{\Delta P(0)}{1+\beta} + \frac{\beta \Delta P(0)}{1+\beta} \exp \left[ -D_v (1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 t \right], \quad (1)$$

где  $D_v$  — коэффициент диффузии вакансий,  $L$  — длина цилиндрической ячейки,  $\Delta P(0)$  — разность давлений в начальный момент релаксации (при  $t = 0$ ). Безразмерный положительный параметр  $\beta$  определяется соотношением

$$\beta = \frac{\eta c_{v0} (\Omega^v)^2 K}{k_B T \Omega_a}, \quad (2)$$

где  $c_{v0} = \text{const}$  — поле атомной концентрации вакансий в образце в начальный момент релаксации;  $\Omega_a$  — атомный объем;  $\Omega^v$  — объем, характеризующий вакансию как точечный дефект в теории упругости в модели центра дилатации ( $\Omega^v < 0$ ,  $|\Omega^v| \approx \Omega_a$ );  $\eta = (1+\nu)/[3(1-\nu)]$ ,  $\nu$  — коэффициент Пуассона;  $K$  — модуль всестороннего сжатия;  $k_B$  — постоянная Больцмана. По порядку величины параметр  $\beta$  определяется отношением энергии упругого поля вакансий к кинетической энергии системы.

Анализ экспериментальных результатов был проведен путем сопоставления теоретической формулы (1) экспериментальным зависимостям  $\Delta P(t)$ , представленным на рис. 3 и 4 с учетом условий применимости предложенной модели структурной релаксации. При этом было принято во внимание, что условия применимости модели, по-видимому, выполняются не на всех этапах проведенных экспериментальных измерений. Очевидно, что структурная релаксация, зарегистрированная при  $T \approx 1,95$  К, протекает в условиях, когда действуют одновременно несколько механизмов, и весьма вероятно, что механизм диффузии вакансий не является контролирующим. Это обстоятельство отражается в значительном изменении давления и подтверждается рис. 1(б) и рис. 3. Обработка результатов, полученных при  $T = 1,676$  К, требует более детального анализа, который должен учитывать следующее важное обстоятельство. В процессе релаксации структурное состояние образца изменяется, и начальные условия для каждого этапа определяются структурой, которая сформировалась в конце предыдущего. С увеличением температуры изменения в структуре усиливаются, поэтому для обработки измерений при  $T = 1,676$  К следует учесть изменение пространственного распределения вакансий на двух предыдущих этапах. Эту процедуру предполагается выполнить в дальнейшем.

С учетом вышеизложенных обстоятельств, по методу наименьших квадратов выражением (1) были аппроксимированы экспериментальные зависимости  $\Delta P(t)$  только при  $T = 1,367$  К и  $1,536$  К и найдены эмпирические значения параметров

$$\Lambda_1 = \frac{1}{1+\beta} \Delta P(0), \quad \Lambda_2 = \frac{\beta}{(1+\beta)} \Delta P(0),$$

$$\frac{1}{\tau_1} = D_v (1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2, \quad (3)$$

с помощью которых затем были вычислены величины  $\beta = \Lambda_2 / \Lambda_1$ ,  $\Delta P(0) = \Lambda_1 + \Lambda_2$  и  $D_v = L^2 / [\pi^2 (1+\beta) \tau_1]$ . Аппроксимация каждой из зависимостей  $\Delta P(t)$  выполнялась на всем временном интервале  $[0, t_{\max}(T)]$ , где  $t_{\max}(T)$  — продолжительность экспериментальной регистрации кинетики давления при заданной температуре. На рис. 5 приведены те же зависимости  $\Delta P(t)$ , что и на рис. 4 (две верхние зависимости), но в более крупном масштабе. Аппроксимирующие теоретические кривые изображены на них плавными сплошными линиями, а найденные значения параметров приведены в табл. 1.

Используя формулу (2), можно оценить величину атомной концентрации вакансий  $c_{v0}$  в образце в начальный момент релаксации

$$c_{v0} = \frac{\beta k_B T \Omega_a}{\eta (\Omega^v)^2 K}. \quad (4)$$

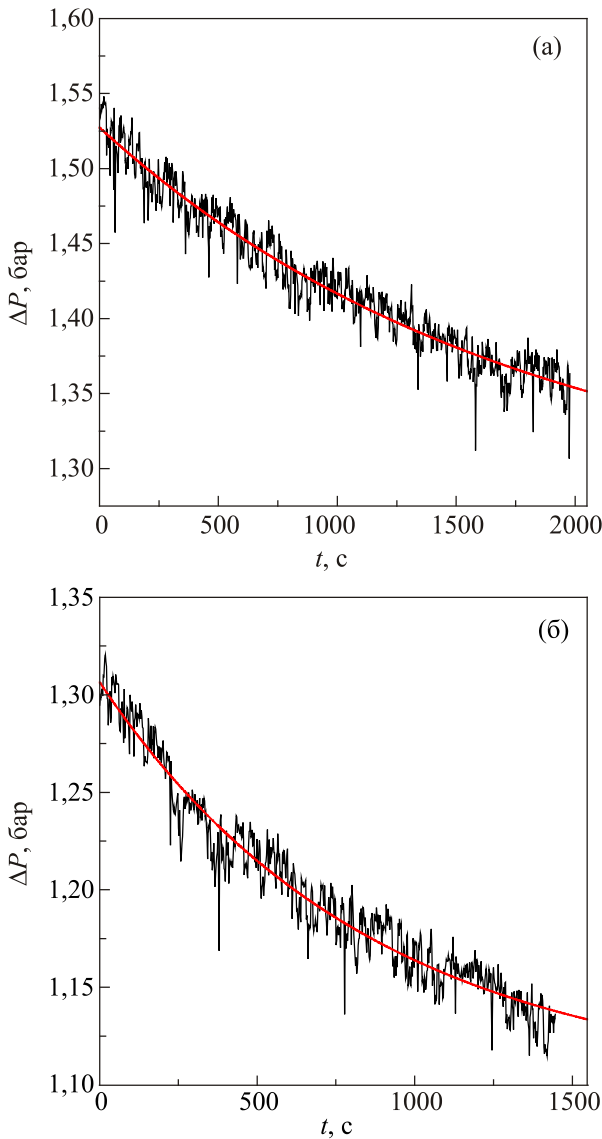


Рис 5. Аппроксимация экспериментальных зависимостей  $\Delta P(t)$  формулой (1):  $T = 1,367$  К (а);  $T = 1,536$  К (б). Сплошные гладкие линии — теоретические зависимости.

Оценку величины  $c_{v0}$  естественно проводить по данным первого этапа релаксации при температуре 1,367 К. Приняв для оценок:  $\Omega^v = \Omega_a = 3,32 \cdot 10^{-29} \text{ м}^3$ ,  $K = 5,52 \cdot 10^7 \text{ Па}$  (по данным из [7]),  $\eta = 0,62$  (при  $\nu = 0,3$ ),  $\beta = 0,201$ ,  $T = 1,367 \text{ К}$ , в результате получаем  $c_{v0} \approx 3,3 \cdot 10^{-3}$ . Это значение приведено в таблице 1.

Из соотношения (2) следует (если пренебречь зависимостью модуля  $K$  от температуры), что для температур  $T_1$  и  $T_2$  должно выполняться соотношение

$\beta(T_1)/\beta(T_2) = T_2/T_1$ . Согласно данным из табл. 1, для температур 1,367 и 1,536 К величины этих отношений составляют:  $\beta(1,367)/\beta(1,536) = 1,07$  и  $1,536/1,367 = 1,12$ , а относительное отличие этих величин не превышает 0,05, что подтверждает температурную зависимость параметра  $\beta$ , определяемую формулой (2).

В рассматриваемом случае максимальное изменение концентрации вакансий в процессе релаксации достигается на торцах образца. Оценим изменение концентрации вакансий вблизи торцов образца  $|\tilde{c}_v(x,t)|_{x=0,L}$  (обозначения введены в разделе П.3), достигнутое в конце релаксации при  $T = 1,367 \text{ К}$ . Используя формулы (П.20) и учитывая, что в рассматриваемом случае  $\tilde{c}_v(L,t) = -\tilde{c}_v(0,t)$ , получаем

$$|\tilde{c}_v(x,t)|_{x=0,L} \approx \frac{1}{2K} [\Delta P(0) - \Delta P(t)]. \quad (5)$$

Согласно результатам, представленным на рис. 5(а), в конце этого этапа релаксации  $\Delta P(0) - \Delta P(t) \approx 1,7 \cdot 10^4 \text{ Па}$ , и оценка по формуле (5) дает значение  $|\tilde{c}_v(x,t)|_{x=0,L} \approx 1,5 \cdot 10^{-4}$ , так что максимальное относительное изменение концентрации вакансий составляет 0,046. Следовательно, на этапе релаксации при  $T = 1,367 \text{ К}$  условие  $|\tilde{c}_v| \ll c_{v0}$  хорошо выполняется. Поэтому можно считать, что в начале второго этапа релаксации условие применимости модели  $c_{v0} = \text{const}$  выполняется и формула (1) применима и при  $T = 1,536 \text{ К}$ . Отметим, что аналогичная оценка изменения концентрации вакансий в процессе релаксации при температуре 1,536 К показала, что условие  $|\tilde{c}_v| \ll c_{v0}$  выполняется и в конце второго этапа структурной релаксации. Проведенные выше оценки показывают, что условия применимости модели хорошо выполняются при температурах 1,367 и 1,536 К.

На начальных интервалах времени каждого этапа (при заданной температуре) процесса релаксации ее характер может отличаться от зависимости, описываемой формулой (1). Это может свидетельствовать о наличии начальной стадии до перехода к установившемуся диффузионному течению, временная зависимость которого определяется характерным временем структурной релаксации  $\tau_1$ . Чтобы исключить эту неопределенность и уточнить эмпирические значения параметров модели, мы воспользуемся формулой (П.34), которую запишем в виде

$$\Delta P(t) = \frac{1}{1+\beta} \Delta P(0) + \Lambda_3 \exp \left[ -D_v(1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 t \right], \quad (6)$$

Таблица 1. Эмпирические значения параметров, полученные с помощью формулы (1)

$T, \text{ К}$	$\frac{\Delta P(0)}{1+\beta}, \text{ бар}$	$\frac{\beta \Delta P(0)}{(1+\beta)}, \text{ бар}$	$D_v(1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2, 1/\text{с}$	$\beta$	$\Delta P(0), \text{ бар}$	$\tau_1, \text{ с}$	$D_v, \text{ см}^2/\text{с}$	$c_{v0}$
1,367	1,27	0,256	$5,68 \cdot 10^{-4}$	0,201	1,526	1762	$6,92 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$
1,536	1,10	0,207	$1,13 \cdot 10^{-3}$	0,188	1,307	883	$1,39 \cdot 10^{-4}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$

где  $\Lambda_3$  — коэффициент, имеющий размерность давления. Эта формула, как показано в Приложении, имеет общий характер, но применима для описания структурной релаксации не сначала, а при временах больших некоторого времени  $t_0(T)$ . Это время можно оценить по найденным выше с помощью формулы (1) значениям характерного времени структурной релаксации  $\tau_1$  (см. табл. 1). Используя формулу (П.31), нетрудно показать, что при аппроксимации зависимостей  $\Delta P(t)$  формулой (6) начальная переходная стадия исключается: с максимальной относительной погрешностью 0,07 при  $T = 1,367$  К для времен  $t > t_0 \approx 530$  с и с максимальной относительной погрешностью 0,05 при  $T = 1,536$  К для времен  $t > t_0 \approx 295$  с. Отметим, что с увеличением  $t_0$  точность формулы (6) увеличивается.

Аппроксимации зависимостей  $\Delta P(t)$  по методу наименьших квадратов с помощью формулы (6) были проведены на временных интервалах  $[t_0(T), t_{\max}(T)]$  при нескольких значениях  $t_0$ , удовлетворяющих приведенным выше условиям, и найдены эмпирические значения параметров  $\Lambda_1 = \Delta P(0) / (1 + \beta)$ ,  $1 / \tau_1 = \pi^2 D_v (1 + \beta) / L^2$  и  $\Lambda_3$ . Затем, с использованием значений  $\Delta P(0)$  из табл. 1, вычислялись величины параметра  $\beta = \Delta P(0) / \Lambda_1 - 1$  и коэффициента диффузии  $D_v = L^2 / [\pi^2 (1 + \beta) \tau_1]$ .

Результаты аппроксимации показаны на рис 6 и 7, на которых теоретические кривые изображены плав-

ными сплошными линиями, а найденные значения параметров приведены в табл. 2.

Таблица 2. Эмпирические значения параметров, полученные с помощью формулы (6) при различных значениях  $t_0(T)$

$T, \text{ К}$	$t_0, \text{ с}$	$\beta$	$\tau_1, \text{ с}$	$D_v, 10^{-5} \text{ см}^2/\text{с}$
1,367	0	0,201	1762	6,89
1,367	530	0,222	2035	5,87
1,367	680	0,282	2898	3,93
1,367	806	0,270	2858	3,99
1,536	0	0,188	883	13,9
1,536	440	0,241	1386	8,48
1,536	544	0,271	1691	6,79

Отметим, что, согласно данным из табл. 2, можно считать  $\beta \ll 1$ , напомним, что по порядку величины параметр  $\beta$  определяется отношением энергии упругого поля вакансий к кинетической энергии системы.

Из таблицы видно, что при  $T = 1,367$  К величина характерного времени релаксации  $\tau_1$  сначала увеличивается с увеличением  $t_0$ , а при  $t_0 = 680 - 806$  практически не изменяется, что свидетельствует об окончании начальной стадии и о выходе на установившийся режим структурной релаксации. При  $T = 1,536$  К величина характерного времени  $\tau_1$  также увеличивается с увеличением  $t_0$ , но точность аппроксимации при этом, по видимому, уменьшается по следующим причинам. Во-первых, с увеличением  $t_0$  уменьшается интервал аппроксимации

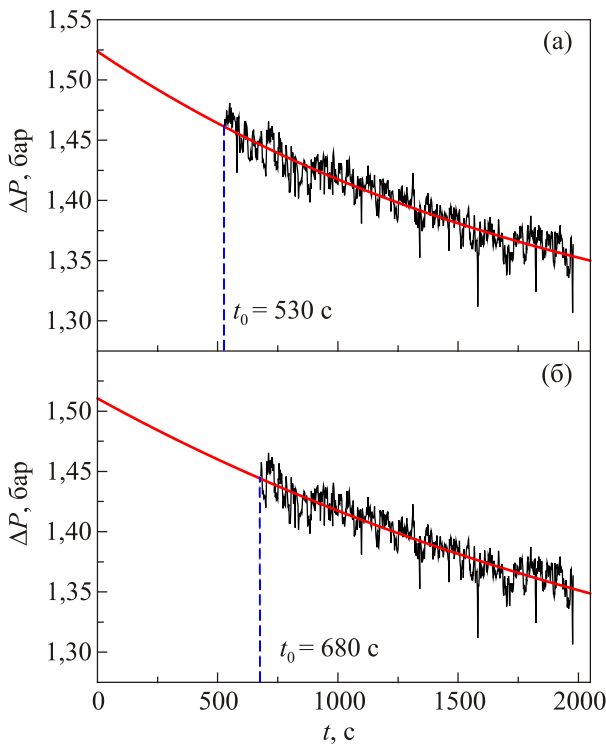


Рис. 6. Аппроксимация экспериментальных зависимостей  $\Delta P(t)$  формулой (6) при  $T = 1,367$  К: для времен  $t > t_0 = 530$  с (а); для времен  $t > t_0 = 680$  с (б). Сплошные гладкие линии — теоретические зависимости.

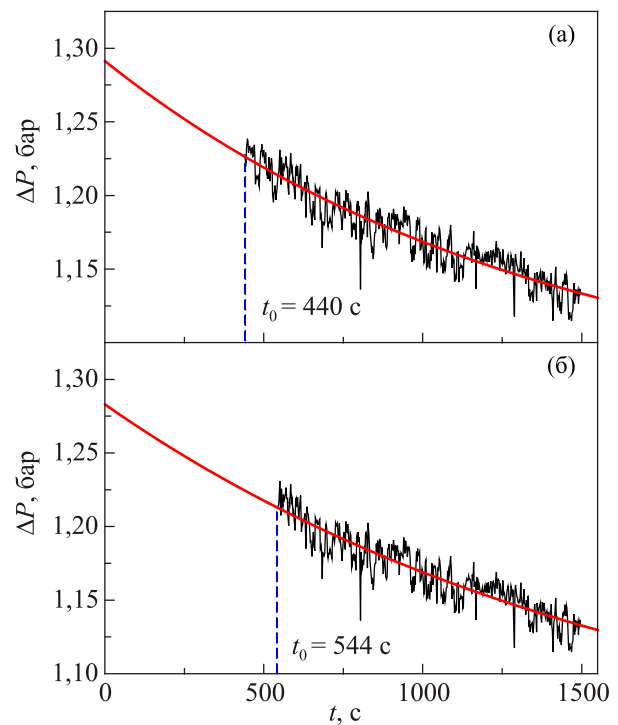


Рис. 7. Аппроксимация экспериментальных зависимостей  $\Delta P(t)$  формулой (3) при  $T = 1,536$  К: для времен  $t > t_0 = 440$  с (а); для времен  $t > t_0 = 544$  с (б). Сплошные гладкие линии — теоретические зависимости.



$[t_0(T), t_{\max}(T)]$ , что вносит дополнительную погрешность, поскольку уменьшается также интервал изменения величины  $\Delta P(t)$  при той же интенсивности шума. Во-вторых, увеличивается погрешность обусловленная нерегулярностью шума, имеющей вид ступенек, которые заметны на рис. 7(б).

Для определения температурной зависимости коэффициента диффузии вакансий, полученные при  $T = 1,367$  К и  $1,536$  К значения  $D_v$  из табл. 2, представлены на рис. 8.

В предположении, что зависимость  $D_v(T)$  описывается стандартным выражением аррениусовского типа

$$D_v(T) = D_{v0} \exp\left(-\frac{E_v}{k_B T}\right), \quad (7)$$

получены эмпирические значения  $E_v = 7,64$  К и  $D_{v0} = 1,34 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{с}$ .

Отметим, что найденная зависимость  $D_v(T)$  может быть использована в интервале температур, в котором движение вакансий определяется термически активированным процессом. Разумеется, определение зависимости  $D_v(T)$  по двум температурным точкам может иметь заметную погрешность, и для ее уменьшения и надежной идентификации зависимости  $D_v(T)$  необходимо проведение экспериментов с меньшим «шагом» по температуре. Однако важно, что, по-видимому, температуры  $1,367$  и  $1,536$  К попадают в температурный интервал, в котором структурную релаксацию в исследованном образце можно описать в рамках модели диффузионного течения по моновакансионному механизму. Именно это обстоятельство позволило получить температурную зависимость коэффициента диффузии вакансий.

Таким образом, проведенные выше оценки характеристик релаксации свидетельствуют о внутренней согласованности и непротиворечивости проведенного анализа

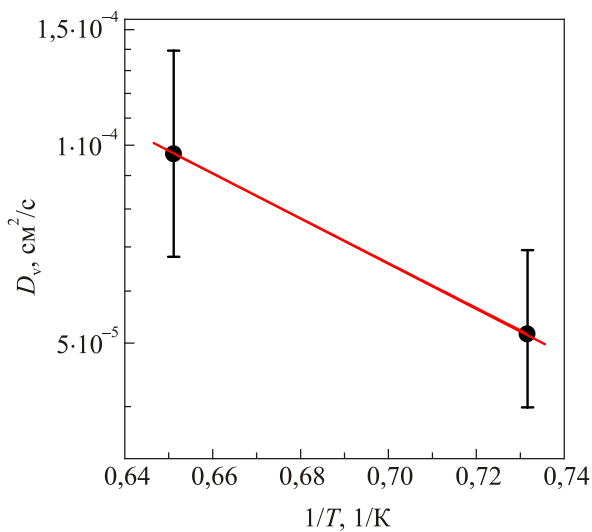


Рис. 8. (Онлайн в цвете) Зависимость коэффициента диффузии вакансий  $D_v$  от  $1/T$ .

и подтверждают выполнение основных предположений использованной модели.

Одной из важных физических величин, обсуждаемых в работе, является энергия активации  $E_v$ , которая в предложенной модели релаксации интерпретируется как энергия активации движения вакансий. Проведенный анализ показал, что, если в области температур  $1,3$ – $1,6$  К контролирующим механизмом структурной релаксации является диффузия по моновакансионному механизму, то оценка величины энергии активации движения вакансий дает значение  $(7,64 \pm 2)$  К. Следует подчеркнуть, что этот результат получен при изучении образцов с неоднородной неравновесной структурой. При сравнении полученных результатов с результатами других работ следует учитывать также, что определяемые из экспериментальных данных значения энергии активации существенно зависят от структуры исследованных образцов. Этим обстоятельством обусловлено как отличие результатов, опубликованных разными авторами, так и большой разброс значений, полученных в одной работе, но на разных образцах.

Полученное значение  $E_v$  в пределах погрешности согласуется с результатами работы [9], где были разделены вклады вакансий и фононов в термодинамические свойства твердого гелия, получен сводный график зависимости энергии активации от молярного объема. Однако это значение заметно меньше величин энергии образования тепловых вакансий в ГПУ фазе  $^4\text{He}$ , которые получены из рентгеновских измерений [10] при разных молярных объемах.

Имеющиеся в литературе данные о коэффициенте диффузии вакансий и его температурной зависимости были получены косвенными методами, путем обработки экспериментальных результатов в рамках априори принятых предположений. Так, в работе [11] значения коэффициента диффузии были получены из экспериментов по переносу вещества через перфорированную полимерную пленку, замороженную в кристалл  $^4\text{He}$ . При этом из скорости переноса определялся коэффициент самодиффузии  $D_s$  атома гелия, и затем в предположении моновакансионного механизма переноса был найден коэффициент диффузии вакансий  $D_v = D_s / c_v$ , где  $c_v$  — равновесная атомная концентрация вакансий. При этом эксперименты проводились при весьма малых механических напряжениях, что не позволило найти активационный объем процесса. Однако аналогичные эксперименты, проведенные недавно в широком интервале механических напряжений [12], показали, что в термоактивационной области предположение о моновакансионном механизме диффузии не выполняется, поскольку активационный объем оказался почти на два порядка больше атомного объема. Поэтому найденные в [11] значения  $D_v$  представляются ненадежными. Отметим, что в аналогичных экспериментах по переносу вещества через перфорированную полимерную пленку

в кристаллах  ${}^3\text{He}$  величина активационного объема также составляла нескольких десятков атомных объемов [13,14].

Проблема оценки величины коэффициента диффузии вакансий усугубляется еще и тем, что для получения данных о  $D_v$  из измеренных значений коэффициента самодиффузии по формуле  $D_s = c_v D_v$  необходимо знать концентрацию вакансий  $c_v$ . Хотя для расчета  $c_v$  было предложено несколько моделей [15–17], полученные значения  $c_v$  весьма сильно отличаются. Важной особенностью предложенной в данной работе модели, является то, что для определения коэффициента диффузии вакансий из измеренных экспериментально зависимостей  $\Delta P(t)$ , как видно из формул (1)–(5), не требуются предварительные данные о концентрации вакансий, а информация о концентрации вакансий получается в результате обработки экспериментальных результатов.

### Заключение

При достаточно быстром охлаждении жидкого раствора  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ , содержащего 1%  ${}^3\text{He}$ , были получены образцы твердого гелия, представляющие собой неравновесную неупорядоченную систему с весьма сложной фазовой структурой.

В быстро выращенных образцах обнаружен градиент давления и изучены закономерности его изменения при ступенчатом повышении температуры от 1,3 К. С помощью прецизионных измерений зарегистрирована кинетика изменения давлений на торцах образца, свидетельствующая о протекании процессов структурной релаксации.

Предложена модель структурной релаксации, описывающая релаксацию внутренних напряжений в образце вследствие диффузионного течения вакансий. При интерпретации экспериментальных результатов в рамках этой модели получена температурная зависимость коэффициента диффузии вакансий аррениусовского типа с энергией активации 7,64 К и предэкспоненциальным множителем  $1,34 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{с}$ . Получена оценка средней атомной концентрации вакансий в начале структурной релаксации, равная  $3,3 \cdot 10^{-3}$ .

Предложенная для описания диффузионного течения по моновакансионному механизму модель может послужить основой для развития теории структурной релаксации в кристаллах твердого гелия со сложной неравновесной структурой.

Авторы выражают благодарность А.С. Ковалеву, В.Д. Нацки и М.А. Стржемечному за интерес к работе и полезные обсуждения.

Работа частично поддержана грантом «Кинетические свойства нано-структурированных и мезоскопических квантовых систем, образованных конденсированными фазами гелия», договор № 2/Н-2017 в соответствии с конкурсом проектов научно-исследовательских работ

молодых ученых НАН Украины в 2017 г., номер государственной регистрации 0117U003472.

### Приложение

#### Модель структурной релаксации по моновакансионному диффузионному механизму

Обсудим механизм структурной релаксации в исследованных образцах твердых растворов  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ , обусловленный диффузией по моновакансионному механизму. Учитывая, что эксперименты выполнены при температурах  $T \geq 1,3 \text{ К}$ , рассмотрим диффузионного механизма структурной релаксации проведем в рамках классической континуальной теории диффузии точечных дефектов (см., например, [18,19]). При этом будем учитывать, что объекты исследования представляют собой поликристаллы с ГПУ кристаллической структурой, которая обладает анизотропными упругими свойствами, а точечный дефект является локальной неоднородностью и источником параупругих свойств упругой среды [20,21], которая имеет жестко закрепленную граничную поверхность (в таких условиях исследовались образцы  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$ ).

В подразделах П.1, П.2 изложены исходные положения модели и получено уравнение, описывающее диффузионное течение кристалла по моновакансионному механизму, учитывающее наличие неоднородного поля упругих напряжений и его эволюцию. Сформулированы граничные условия к этому уравнению, а также получены соотношения, позволяющие описать изменения давления на границах кристалла.

В подразделе П.3 рассмотрена модель трансверсально изотропного цилиндрического образца, позволяющая выяснить основные закономерности диффузионной релаксации по моновакансионному механизму, в рамках которой получены формулы, описывающие релаксацию давления и позволяющие провести обработку и интерпретацию экспериментальных результатов.

#### П.1. Основные уравнения модели

В кристаллической фазе образца  ${}^4\text{He}$  могут присутствовать несколько типов точечных дефектов: вакансии, междоузельные атомы  ${}^4\text{He}$ , атомы примеси  ${}^3\text{He}$ . Если система точечных дефектов находится в слабонеравновесном состоянии, то при их малых концентрациях каждый тип точечных дефектов можно характеризовать своим химическим потенциалом

$$\mu^i = \psi^i(T) + k_B T \ln c^i + E_{\text{int}}^i, \quad (\text{П.1})$$

где  $\psi^i(T)$  — некоторая функция температуры,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $c^i$  — атомная концентрация точечных дефектов  $i$ -го типа,  $E_{\text{int}}^i$  — энергия взаимодействия точечного дефекта  $i$ -го типа с упругими полями в кристалле. В общем случае  $\mu^i$ ,  $c^i$ ,  $E_{\text{int}}^i$ ,  $T$  зависят от координат и времени  $t$ .

Общепринято считать, что междоузельные атомы  ${}^4\text{He}$  практически отсутствуют в кристаллах, поскольку энергия их образования велика. Известно также, что в слабых твердых растворах  ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$  атомы  ${}^3\text{He}$  в кристаллах  ${}^4\text{He}$  являются примесью замещения (в нашем случае средняя атомная концентрация атомов  ${}^3\text{He}$  составляет 0,01).

Таким образом, естественно предполагать, что все атомы  ${}^3\text{He}$  и  ${}^4\text{He}$  находятся в узлах кристаллической решетки, а их диффузия контролируется вакансионным механизмом. В этом случае плотности потоков атомов и вакансий равны по величине, но имеют противоположное направление. Поток вакансий направлен от менее сжатых областей кристалла в сторону более сжатых и переносит отрицательный избыточный объем, а поток атомов направлен в обратном направлении и переносит такой же по величине, но положительный избыточный объем [22]. Таким образом, для описания кинетики структурной релаксации достаточно рассмотреть диффузионное течение вакансий. В данной работе анализируются экспериментальные результаты, зарегистрированные только в условиях постоянной температуры образца, поэтому далее будем считать  $T = \text{const}$ .

Вектор плотности потока вакансий  $\mathbf{J}$  (размерность: (площадь·время) $^{-1}$ ) с учетом (1) определяется выражением

$$\mathbf{J} = -\frac{c_v}{\Omega_a k_B T} \hat{D} \cdot \nabla \mu^v = -\frac{1}{\Omega_a} \hat{D} \cdot \left( \nabla c_v + \frac{c_v}{k_B T} \nabla E_{\text{int}}^v \right), \quad (\text{П.2})$$

где  $c_v$  — атомная концентрация вакансий,  $\hat{D}$  — тензор коэффициентов диффузии вакансий (симметричный тензор второго ранга),  $\Omega_a$  — атомный объем,  $\nabla$  — набла-оператор. В области кристалла, где отсутствуют источники и стоки вакансий, справедливо уравнение сохранения числа дефектов, которое удобно записать в виде

$$\frac{\partial c_v}{\partial t} = -\Omega_a \text{div } \mathbf{J} = \text{div} \left[ \hat{D} \cdot \left( \nabla c_v + \frac{c_v}{k_B T} \nabla E_{\text{int}}^v \right) \right]. \quad (\text{П.3})$$

Конкретный вид выражения для  $E_{\text{int}}^v$  зависит от модели, которую в теории упругости выбирают для описания точечного дефекта. В простой модели точечному дефекту сопоставляется плотность объемных сил, эквивалентная трем взаимно ортогональным с равными нулю моментами силовым диполям, которые имеют разную мощность и приложены в точке расположения центра дефекта [21,23,24]. Для этой модели точечного дефекта в упругой среде в линейном приближении по упругим деформациям [21]

$$E_{\text{int}}^d = -\tilde{K} \Omega_{ik}^v \varepsilon_{ik} \quad (\text{П.4})$$

где  $\Omega_{ik}^v$  — симметричный тензор, который имеет размерность объема и является некоторой эффективной

характеристикой точечного дефекта; параметр  $\tilde{K}$  можно считать модулем всестороннего сжатия;  $\varepsilon_{ik}$  — поле упругих деформаций, которое существовало бы в точке расположения дефекта при его отсутствии (как отмечено в работе [25]). По повторяющимся индексам в (П.4) и последующих формулах производится суммирование ( $i, k = 1, 2, 3$ ). Эта модель дефекта позволяет в некоторой мере учесть симметрию кристаллической решетки, но при этом величины  $\Omega_{ik}^v$  не имеют простого физического смысла [21].

После подстановки соотношения (П.4) формула (П.2) принимает вид

$$\mathbf{J} = -\frac{1}{\Omega_a} \hat{D} \cdot \left( \nabla c_v - \frac{c_v \tilde{K}}{k_B T} \Omega_{ik}^v \nabla \varepsilon_{ik} \right). \quad (\text{П.5})$$

Первый член правой части соотношения (П.5) учитывает влияние на диффузионное течение градиента концентрации, а второй член учитывает влияние неоднородности упругого состояния кристалла (восходящая диффузия [22]). Этот член равен нулю в кристалле, испытывающем однородную деформацию.

Уравнение (П.3), при использовании соотношения (П.4), принимает вид

$$\frac{\partial c_v}{\partial t} = \text{div} \left[ \hat{D} \cdot \left( \nabla c_v - \frac{c_v \tilde{K} \Omega_{ik}^v}{k_B T} \nabla \varepsilon_{ik} \right) \right], \quad (\text{П.6})$$

Подразумевается, что в формулах (П.4)–(П.6)  $c_v$  и  $\varepsilon_{ik}$  являются средними значениями полей концентрации вакансий и упругих деформаций в физически «бесконечно малых» элементах объема образца, которые малы по сравнению с размерами упругого тела, но содержат большое число точечных дефектов. В рамках линейной теории упругости в общем случае можно записать

$$\varepsilon_{ik} = \varepsilon_{ik}^v + \varepsilon_{ik}^I, \quad (\text{П.7})$$

где слагаемое  $\varepsilon_{ik}^v$  обусловлено присутствием вакансий, а  $\varepsilon_{ik}^I$  — другими источниками напряжений в образце. Деформации  $\varepsilon_{ik}^I$  связаны с напряжениями  $\sigma_{ik}^I$  законом Гука  $\sigma_{ik}^I = \lambda_{iknm}^0 \varepsilon_{nm}^I$ , где  $\lambda_{iknm}^0$  — модули упругости кристаллической матрицы. Подробное обсуждение этих важных аспектов диффузии точечных дефектов проведено в [25].

Для описания процессов кинетики диффузии представим поля  $c_v$  и деформаций в точке  $\mathbf{r}$  образца в виде

$$c_v(\mathbf{r}, t) = c_{v0}(\mathbf{r}) + \tilde{c}(\mathbf{r}, t),$$

$$\varepsilon_{ik}^v(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_{ik}^{v0}(\mathbf{r}) + \tilde{\varepsilon}_{ik}^v(\mathbf{r}, t), \quad (\text{П.8})$$

$$\varepsilon_{ik}^I(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_{ik}^{I0}(\mathbf{r}) + \tilde{\varepsilon}_{ik}^I(\mathbf{r}, t),$$

где  $c_{v0}(\mathbf{r})$ ,  $\varepsilon_{ik}^{v0}(\mathbf{r})$  и  $\varepsilon_{ik}^{I0}(\mathbf{r})$  — распределения концентрации вакансий и упругих деформаций в начальный

момент времени, а  $\tilde{c}(\mathbf{r}, t)$ ,  $\tilde{\varepsilon}_{ik}^v(\mathbf{r}, t)$  и  $\tilde{\varepsilon}_{ik}^I(\mathbf{r}, t)$  их изменения в процессе диффузии. Пусть, для определенности, в начальный момент релаксации  $t = 0$ , тогда  $\tilde{c}$  и  $\tilde{\varepsilon}_{ik}$  удовлетворяют условиям

$$\tilde{c}(\mathbf{r}, 0) = 0, \quad \tilde{\varepsilon}_{ik}^v(\mathbf{r}, 0) = 0, \quad \tilde{\varepsilon}_{ik}^I(\mathbf{r}, 0) = 0. \quad (\text{П.9})$$

Используя соотношения (П.7) и (П.8) и считая добавки к начальным значениям полей малыми, линеаризуем по ним уравнение (П.6):

$$\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} = \text{div} \left[ \hat{D} \cdot \left( \nabla c_{v0} - \gamma_{ik} \nabla (\varepsilon_{ik}^{I0} + \varepsilon_{ik}^{v0}) + \nabla \tilde{c} - \gamma_{ik} \nabla (\tilde{\varepsilon}_{ik}^I + \tilde{\varepsilon}_{ik}^v) \right) \right]. \quad (\text{П.10})$$

$$\text{где } \gamma_{ik}(\mathbf{r}) = \frac{c_{v0}(\mathbf{r}) \Omega^v \tilde{K}}{k_B T}.$$

Далее будем предполагать, что контролирующим механизмом обсуждаемой релаксации является диффузионное движение вакансий, и положим  $\tilde{\varepsilon}_{ik}^I(\mathbf{r}, t) \equiv 0$ , считая источники упругого поля  $\varepsilon_{ik}^I$  фиксированными. Для описания вакансии используем модель центра дилатации [21,23,24], положив  $\Omega_{ik}^v = \Omega^v \delta_{ik}$  (для вакансии  $\Omega^v < 0$ ). При этих предположениях (П.10) принимает вид

$$\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} = \text{div} \left[ \hat{D} \cdot \left( \nabla c_{v0} - \gamma \nabla \varepsilon_{kk}^{I0} - \gamma \nabla \varepsilon_{kk}^{v0} + \nabla \tilde{c} - \gamma \nabla \tilde{\varepsilon}_{kk}^v \right) \right], \quad (\text{П.11})$$

$$\text{где } \gamma(\mathbf{r}) = \frac{c_{v0}(\mathbf{r}) \Omega^v \tilde{K}}{k_B T}.$$

Обсудим граничные условия к уравнению (П.11). На границе кристалла и ячейки нормальная к поверхности раздела компонента плотности потока вакансий  $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J}$  ( $\mathbf{n}$  — единичный вектор внешней нормали к поверхности образца) всегда должна быть равна нулю. Соотношение  $\mathbf{n} \cdot \mathbf{J} = 0$  должно выполняться при  $t \geq 0$ , а поскольку, согласно (П.9),  $\nabla \tilde{c}(\mathbf{r}, 0) = 0$  и  $\nabla \tilde{\varepsilon}_{ik}^v(\mathbf{r}, 0) = 0$ , то из него вытекают следующие граничные условия

$$\mathbf{n} \cdot \hat{D} \cdot \left( \nabla c_{v0} - \gamma \nabla \varepsilon_{kk}^{I0} - \gamma \nabla \varepsilon_{kk}^{v0} \right) \Big|_S = 0, \quad (\text{П.12})$$

$$\mathbf{n} \cdot \hat{D} \cdot \left( \nabla \tilde{c} - \gamma \nabla \tilde{\varepsilon}_{kk}^v \right) \Big|_S = 0. \quad (\text{П.13})$$

Условию (П.12) (условие согласованности) должны быть подчинены функции  $c_{v0}$ ,  $\varepsilon_{kk}^{I0}$  и  $\varepsilon_{kk}^{v0}$ , которые в уравнении (П.11) считаются заданными, а (П.13) является граничным условием для скалярных полей  $\tilde{c}$  и  $\tilde{\varepsilon}_{kk}^v$ , которые подлежат определению путем решения этого уравнения. Отметим, что поля  $c_{v0}$  и  $\varepsilon_{kk}^{v0}$ , а также поля  $\tilde{c}$  и  $\tilde{\varepsilon}_{kk}^v$  не являются взаимно независимыми, между ними имеется связь.

Уравнение (П.11) должно удовлетворяться во всех точках кристалла, в которых отсутствуют источники и

стоки вакансий. Если образец является поликристаллом, то оно справедливо в пределах каждого зерна и должно быть дополнено описанием процессов на границах зерен. Описание макроскопических диффузионных потоков в сплошных поликристаллах является сложной задачей, при решении которой должны быть учтены важные нетривиальные обстоятельства [26], включающие процедуру пространственного усреднения. Учет неоднородности фазовой структуры образцов твердого гелия с включениями жидкой фазы еще более усложняет анализ и требует специального обсуждения.

## П.2. Внутренние напряжения в образце твердого гелия

В формулы (П.4)–(П.13) входят тензорные поля упругих деформаций  $\varepsilon_{ik}$  и напряжений  $\sigma_{ik}$ . В теории упругости для их корректного определения вводится рассмотрение натурального состояния среды — состояние, в котором среда не напряжена [27]. Определение натурального состояния для твердого гелия требует специального рассмотрения, поскольку, как правило, гелий кристаллизуется из жидкости, находящейся под давлением в замкнутом объеме измерительной ячейки. Образцы твердого гелия получались стандартным методом блокировки капилляра, т.е. фактически кристаллизация происходила при постоянном объеме. По определению, в натуральном состоянии кристалл должен иметь идеальную кристаллическую структуру и не содержать дефекты. Реально вырастить такой кристалл гелия, по-видимому, очень проблематично. Поскольку эталон натурального состояния твердого гелия пока не получен, условно будем считать, что это состояние в проведенных экспериментах реализуется в образцах, полученных медленным охлаждением (например, на зависимости  $I$  рис. 1(б)). Далее будем полагать, что образец в натуральном состоянии характеризуется давлением  $P_N(T)$ , которое было зарегистрировано датчиками и представлено на рис. 1(б) отрезком зависимости  $I$  между точками А<sub>8</sub>–А<sub>9</sub>. Во избежание недоразумений при записи граничных условий уточним, что экспериментально измеряемые  $P_1$ ,  $P_2$  и  $P_N$  являются положительными величинами. При наличии в образце точечных дефектов и неоднородного поля упругих напряжений значения давлений  $P_1$  и  $P_2$ , которые регистрируют датчики давления на торцах ячейки, согласно известным формулам теории упругости [28], определяются соотношениями

$$P_\alpha = P_N - \left\langle n_k^\alpha \tau_{ik}^* n_i^\alpha \right\rangle_{S^\alpha}, \quad \alpha = 1, 2. \quad (\text{П.14})$$

где  $\mathbf{n}^\alpha$  — единичные векторы внешней нормали к поверхностям торцов образца ( $\alpha = 1, 2$ ); символ  $\langle \rangle_{S^\alpha}$  означает усреднение по площади соответствующей

поверхности;  $\tau_{ik}^*$  — тензор эффективных средних внутренних напряжений в образце, который определяется формулой [21]

$$\tau_{ik}^* = \sigma_{ik}^* - \tilde{K} \frac{\Omega_{ik}^v}{\Omega_a} c_v = \lambda_{iknm}^* \varepsilon_{nm}^* - \tilde{K} \frac{\Omega_{ik}^v}{\Omega_a} c_v. \quad (\text{П.15})$$

Здесь  $\sigma_{ik}^*$  и  $\varepsilon_{ik}^*$  — тензоры средних упругих напряжений и деформаций в образце,  $\lambda_{iknm}^*$  — модули упругости, расчет которых должен производиться с учетом пространственного распределения в образце вакансий и атомов примеси  $^3\text{He}$ , а также их свойств как локальных неоднородностей и источников напряжений в упругой среде [21,25].

Зависимость от времени давлений  $P_1$  и  $P_2$ , регистрируемых датчиками на торцах ячейки, с учетом соотношений (П.8), (П.17) и (П.18), определяется формулами

$$P_\alpha(t) = P_\alpha(0) + \frac{\tilde{K}}{\Omega_a} \left\langle n_k^\alpha \Omega_{ik}^v n_i^\alpha \tilde{c} \right\rangle_{S^\alpha}, \quad \alpha = 1, 2. \quad (\text{П.16})$$

Согласно (П.16) зависимости  $P_1(t)$  и  $P_2(t)$  определяются зависимостями от времени изменений средних (по площади поверхности) концентраций вакансий на торцах образца.

### П.3. Релаксация по моновакансионному диффузионному механизму в цилиндрическом образце с трансверсально изотропной структурой

Рассмотрим кристаллический образец цилиндрической формы длины  $L$ , заполняющий всю измерительную ячейку. Направим ось  $x$  вдоль оси цилиндра в направлении от датчика давления  $S_1$  к датчику  $S_2$  и положим  $x = 0$  на торцевой поверхности образца, контактирующей с датчиком давления  $S_1$ .

Чтобы выяснить основные закономерности диффузионной релаксации по вакансионному механизму, предположим, что проведена процедура полного пространственного усреднения всех полей с учетом упругой анизотропии отдельных зерен (в нашем случае кристаллиты твердого  $^4\text{He}$  имеют ГПУ структуру) и структуры образца. Предполагаем, что в результате усреднения можно свести (П.14) к уравнению такого же вида, которое формально в макроскопическом масштабе описывает диффузию в некоторой однородной среде с эффективным коэффициентом диффузии  $D_v$ . Считаем также, что проведено усреднение всех характеристик в каждом поперечном слое образца и будем считать, что при  $t \geq 0$  структура образца изотропна и однородна в каждом его поперечном сечении (трансверсально изотропная однородная структура). В этом случае все поля зависят только от одной координаты  $x$  и формула (П.11) принимает вид

$$\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[ D_v \left( \frac{dc_{v0}}{dx} - \gamma \frac{d\varepsilon_{kk}^{I0}}{dx} - \gamma \frac{d\varepsilon_{kk}^{v0}}{dx} + \frac{\partial \tilde{c}}{\partial x} - \gamma \frac{\partial \tilde{\varepsilon}_{kk}^v}{\partial x} \right) \right]. \quad (\text{П.17})$$

Поскольку в упругой изотропной среде прямое взаимодействие между центрами дилатации отсутствует (в линейном приближении по деформациям), они взаимодействуют вследствие наличия поля дополнительной дилатации, которую вызывают так называемые силы изображения, обеспечивающие выполнение граничных условий на поверхности образца при расчете упругих полей, создаваемых точечным дефектом [21,23,24]. В уравнении (П.17) поле  $\varepsilon_{kk}^{v0} + \tilde{\varepsilon}_{kk}^v$  является полем дополнительной дилатации. В рассматриваемой модели, когда упругое тело имеет форму цилиндра с жестко закрепленной поверхностью (поскольку модули упругости твердого  $^4\text{He}$  (приведены в [7]) на три порядка меньше модулей упругости меди (см., например, [29])), можно ожидать, что эта дилатация определяется соотношением

$$\varepsilon_{kk}^v(x, t) = \varepsilon_{kk}^{v0}(x) + \tilde{\varepsilon}_{kk}^v(x, t) = -\eta \frac{\Omega^v}{\Omega_a} c_{v0}(x) - \eta \frac{\Omega^v}{\Omega_a} \tilde{c}_v(x, t), \quad (\text{П.18})$$

где  $\eta = (1 + \nu) / [3(1 - \nu)]$ ,  $\nu$  — коэффициент Пуассона.

Далее будем рассматривать случай, когда  $D_v = \text{const}$  и  $c_{v0} = \text{const}$ , т.е. в начальном состоянии вакансии распределены в образце с постоянной средней плотностью. Поскольку концентрации точечных дефектов в образце малы, далее не будем учитывать их влияние на величину модулей упругости. Согласно [25], величина  $\varepsilon_{kk}^{I0}$  может быть представлена в виде  $\varepsilon_{kk}^{I0} = \sigma_{kk}^{I0} / 3K$ , где  $K$  — модуль всестороннего сжатия  $\sigma_{kk}^{I0}$  — вклад в  $\sigma_{kk}^*$ , обусловленный источниками напряжений в образце за исключением вакансий. Учитывая, что при простом растяжении стержня с боковой поверхностью, которая закреплена так, что поперечные размеры стержня не могут изменяться, имеет место связь  $\sigma_{kk} = 3\eta\sigma_{xx}$  [28], получаем соотношение  $\varepsilon_{kk}^{I0} = \eta\sigma_{kk}^{I0} / K$ .

Подставив это соотношение, а также (П.18) в (П.17), и приняв  $\tilde{K} \approx K$ , получим уравнение относительно функции  $\tilde{c}(x, t)$

$$\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} = D_v \left[ -\frac{\eta\gamma}{K} \frac{d^2\sigma_{xx}^{I0}}{dx^2} + \left( 1 + \eta\gamma \frac{\Omega^v}{\Omega_a} \right) \frac{\partial^2 \tilde{c}}{\partial x^2} \right], \quad (\text{П.19})$$

В рассматриваемом случае, согласно (П.16), давления на торцах ячейки  $P_1$  и  $P_2$  определяются соотношениями

$$P_1(t) = P_1(0) + K \frac{\Omega^v}{\Omega_a} \tilde{c}(0, t),$$

$$P_2(t) = P_2(0) + K \frac{\Omega^v}{\Omega_a} \tilde{c}(L, t), \quad (\text{П.20})$$

где

$$P_1(0) = P_N - \sigma_{xx}^{I0}(0) + K \frac{\Omega^v}{\Omega_a} c_{v0},$$

$$P_2(0) = P_N - \sigma_{xx}^{I0}(L) + K \frac{\Omega^v}{\Omega_a} c_{v0}. \quad (\text{П.21})$$

Для анализа кинетики релаксации давления в объеме, учитывая соотношения (П.20), удобно использовать функцию

$$p(x, t) = K \frac{\Omega^v}{\Omega_a} \tilde{c}(x, t). \quad (\text{П.22})$$

Используя (П.19), (П.22), (П.9) и (П.13), легко показать, что функция  $p(x, t)$  является решением уравнения

$$\frac{\partial p}{\partial t} = D_v \left[ -\beta \frac{d^2 \sigma_{xx}^{I0}}{dx^2} + (1 + \beta) \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} \right] \quad (\text{П.23})$$

при начальном условии

$$p(x, 0) = 0 \quad (\text{П.24})$$

и граничных условиях

$$\left. \frac{\partial p(x, t)}{\partial x} \right|_{x=0, L} = 0, \quad t \geq 0. \quad (\text{П.25})$$

Безразмерный положительный параметр  $\beta$  определяется соотношением

$$\beta = \frac{\eta c_{v0} (\Omega^v)^2 K}{k_B T \Omega_a}. \quad (\text{П.26})$$

С формальной точки зрения функция  $p(x, t)$  является решением смешанной краевой задачи для линейного неоднородного дифференциального уравнения с частными производными параболического типа (П.23) при начальном условии (П.24) и граничных условиях (П.25) [30].

Функция  $\sigma_{xx}^{I0}(x)$  в уравнении (П.23) считается заданной и удовлетворяющей условию согласованности, вытекающему из (П.12)

$$\left. \frac{d\sigma_{xx}^{I0}(x)}{dx} \right|_{x=0, L} = 0. \quad (\text{П.27})$$

Решение этой задачи можно получить методом Фурье (методом разделения переменных) [30,31]. Будем предполагать, что функция  $\sigma_{xx}^{I0}(x)$ , заданная на интервале  $[0, L]$  и удовлетворяющая условиям (П.27), может быть представлена в виде ряда Фурье

$$\sigma_{xx}^{I0}(x) = b_0 / 2 + \sum_{n=1}^{\infty} b_n \cos \frac{n\pi x}{L}, \quad (\text{П.28})$$

где

$$b_n = \frac{2}{L} \int_0^L \sigma_{xx}^{I0}(x) \cos \frac{n\pi x}{L} dx, \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (\text{П.29})$$

Решение задачи (П.23)–(П.28) находится стандартной процедурой [30,31] и может быть представлено в виде

$$p(x, t) = \frac{\beta}{(1 + \beta)} \sum_{n=1}^{\infty} b_n \left\{ 1 - \exp \left[ -D_v (1 + \beta) \left( \frac{n\pi}{L} \right)^2 t \right] \right\} \cos \frac{n\pi x}{L}. \quad (\text{П.30})$$

Отметим, что временная зависимость каждого члена в (П.30) определяется своим характерным временем  $\tau_n = \tau_1 / n^2$ , где  $\tau_1 = L^2 / [D_v (1 + \beta)]$  — характерное время структурной релаксации.

Подстановкой (П.22) и (П.30) в (П.20) получаются выражения, описывающие кинетику давлений на торцах ячейки. При анализе экспериментальных результатов удобно использовать зависимости от времени разности давлений  $\Delta P(t) = P_2(t) - P_1(t)$  и их полусуммы  $\bar{P}(t) = [P_1(t) + P_2(t)] / 2$  (или суммы)

$$\Delta P(t) = \Delta P(0) - \frac{2\beta}{1 + \beta} \sum_{m=0}^{\infty} b_{2m+1} \left\{ 1 - \exp \left[ -D_v (1 + \beta) \left( \frac{(2m+1)\pi}{L} \right)^2 t \right] \right\}, \quad (\text{П.31})$$

$$\bar{P}(t) = \bar{P}(0) + \frac{\beta}{1 + \beta} \sum_{m=1}^{\infty} b_{2m} \left\{ 1 - \exp \left[ -D_v (1 + \beta) \left( \frac{2m\pi}{L} \right)^2 t \right] \right\}. \quad (\text{П.32})$$

Из (П.31) видно, что функция  $\Delta P(t)$  определяется членами с нечетными номерами  $n = 2m + 1$ ,  $m = 0, 1, 2, \dots$ , с соответствующими им характерными временами  $\tau_1, \tau_3, \tau_5, \dots$ . При этом характерное время  $\tau_3 = \tau_1 / 9$  поч-

ти на порядок меньше чем  $\tau_1$ , а  $\tau_5 = \tau_1 / 25$ , и т.д. Поэтому, если  $b_1 \neq 0$ , то через некоторое время после начала релаксации для описания зависимости  $\Delta P(t)$  в общем случае можно использовать формулу

$$\Delta P(t) \approx \Delta P(0) - \frac{2\beta}{1+\beta} \sum_{m=1}^{\infty} b_{2m+1} - \frac{2\beta}{1+\beta} b_1 \left\{ 1 - \exp \left[ -D_v(1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 t \right] \right\}, \quad (\text{П.33})$$

С помощью формул (П.21) и (П.28) можно получить соотношение  $\Delta P(0) = 2 \sum_{m=0}^{\infty} b_{2m+1}$ , используя которое можно записать формулу (П.33) в следующем виде

$$\Delta P(t) \approx \frac{\Delta P(0)}{1+\beta} + \frac{2\beta}{1+\beta} b_1 \exp \left[ -D_v(1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 t \right], \quad (\text{П.34})$$

В простейшем случае антисимметричная добавка к основному однородному упругому состоянию образца реализуется в случае, когда сумма в (П.31) содержит только первый член ( $b_1 \neq 0$  и  $b_n = 0$  при  $n = 2, 3, \dots$ ). В этом случае величина  $P$  на одном торце увеличивается, а на другом уменьшается, а зависимость  $\Delta P(t)$  определяется выражением

$$\Delta P(t) = \frac{\Delta P(0)}{1+\beta} + \frac{\beta \Delta P(0)}{1+\beta} \exp \left[ -D_v(1+\beta) \left( \frac{\pi}{L} \right)^2 t \right]. \quad (\text{П.35})$$

Формулы (П.34) и (П.35) используются в разд. 4 при анализе экспериментальных данных.

1. Y.O. Vekhov, A.P. Birchenko, N.P. Mikhin, and E.Ya. Rudavskii, *J. Low Temp. Phys.* **158**, 496 (2010).
2. N.P. Mikhin, A.P. Birchenko, A.S. Neoneta, E.Ya. Rudavskii, and Ye.O. Vekhov, *J. Phys. Conf. Ser.* **400**, 012040 (2012).
3. А.П. Бирченко, Е.О. Вехов, Н.П. Михин, Э.Я. Рудаковский, *ФНТ* **39**, 1031 (2013) [*Low Temp. Phys.* **39**, 801 (2013)].
4. N.P. Mikhin, A.P. Birchenko, Ya.Yu. Fysun, and E.Ya. Rudavskii, *J. Low Temp. Phys.* **185**, 305 (2016).
5. А.П. Бирченко, Н.П. Михин, А.С. Неонета, Э.Я. Рудаковский, Я.Ю. Фисун, *ФНТ* **42**, 929 (2016) [*Low Temp. Phys.* **42**, 729 (2016)].
6. A. Suhel and J. R. Beamish, *Phys. Rev. B* **84**, 094512 (2011).
7. Б.Н. Есельсон, В.Н. Григорьев, В.Г. Иванцов, Э.Я. Рудаковский, *Свойства жидкого и твердого гелия*, Изд-во стандартов, Москва (1978).
8. Б.Н. Есельсон, В.Н. Григорьев, В.Г. Иванцов, Э.Я. Рудаковский, *Свойства жидкого и твердого гелия. Растворы  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$* , Наукова думка, Киев (1981).
9. Е.О. Вехов, В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, Н.П. Михин, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудаковский, А.С. Рыбалко, Е.В. Сырников, В.А. Тихий, *ФНТ* **33**, 835 (2007) [*Low Temp. Phys.* **33**, 635 (2007)].
10. В.А. Fraass, H.R. Granfors, and R.O. Simmons, *Phys.Rev. B* **39**, 124 (1989).
11. Н.Е. Дюмин, Н.В. Зуев, В.Н. Григорьев, *ФНТ* **16**, 863 (1990) [*Sov. J. Low Temp.* **16**, 507 (1990)]; *ФНТ* **19**, 33 (1993) [*Low Temp. Phys.* **19**, 23 (1993)].
12. В.А. Жучков, А.А. Лисунов, В.А. Майданов, А.С. Неонета, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудаковский,

- С.Н. Смирнов, *ФНТ* **41**, 223 (2015) [*Low Temp. Phys.* **41**, 169 (2015)].
13. A. Lisunov, V. Maidanov, V. Rubanskyi, S. Rubets, E. Rudavskii, S. Smirnov, and V. Zhuchkov, *Phys.Rev. B* **92**, 140505(R) (2015).
14. А.А. Лисунов, В.А. Майданов, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудаковский, С.Н. Смирнов, *ФНТ* **42**, 1396 (2016) [*Low Temp. Phys.* **42**, 1075 (2016)].
15. В.Н. Григорьев, *ФНТ* **23**, 5 (1997) [*Low Temp. Phys.* **23**, 3 (1997)].
16. S.M. Heald, D.R. Baer, and R.O Simmons, *Phys.Rev. B* **30**, 2531 (1984).
17. M.E.R. Bernier and J.H. Netherington, *Phys.Rev. B* **39**, 11285 (1989).
18. Дж. Маннинг, *Кинетика диффузии атомов в кристаллах*, Мир, Москва (1971).
19. Б.Я. Любов, *Диффузионные процессы в неоднородных твердых телах*, Наука, Москва (1981).
20. Э. Кренер, *Общая континуальная теория дислокаций и собственных напряжений*, Мир, Москва (1965).
21. А.М. Косевич, *Физическая механика реальных кристаллов*, Наукова думка, Киев, (1981).
22. А.М. Косевич, *УФН* **114**, 509 (1974).
23. К. Теодосиу, *Упругие модели дефектов в кристаллах*, Мир, Москва (1985).
24. Дж. Эшелби, *Континуальная теория дислокаций*, Изд-во ин. лит., Москва (1963).
25. А.М. Косевич, А.С. Ковалев, *ФТТ* **13**, 218 (1971).
26. И.М. Лифшиц, *ЖЭТФ* **44**, 1349 (1963).
27. А.И. Лурье, *Теория упругости*, Наука, Москва (1970).
28. Л.Д. Ландау, И.М. Лифшиц, *Теория упругости*, Наука, Москва (1965).
29. Дж. Хирт, И. Лоте, *Теория дислокаций*, Атомиздат, Москва (1972).
30. В.С. Владимиров, *Уравнения математической физики*, Наука, Москва (1988).
31. Н.С. Кошляков, Э.Б. Глинер, М.М. Смирнов, *Уравнения в частных производных математической физики*, Высшая школа, Москва (1970).

Pressure relaxation and diffusion of vacancies in rapidly grown helium crystals

A.P. Birchenko, N.P. Mikhin, E.Ya. Rudavskii, S.N. Smirnov, and Ya.Yu. Fysun

An experimental study of the features of pressure relaxation in rapidly grown crystals of a dilute solution of  $^3\text{He}$  in  $^4\text{He}$  was carried out at temperatures above 1.3 K.

A cylindrical cell with capacitive pressure sensors at the ends was used for measuring. It was found that at the growth of the helium crystals at the cooling rate higher 4 mK/s, the pressure difference  $\Delta P$  detected by the sensors at 1.3 K reached 2.4 bar. With a subsequent stepwise increase in temperature, the  $\Delta P$  value decreased, but disappeared only after careful annealing at the pre-melting temperatures. The kinetics of pressure change at the ends of the sample at different temperatures is recorded. The obtained results are interpreted within the framework of the monovacancy model of the diffusion mechanism of structural relaxation. The proposed model made it possible to explain

the dependence of  $\Delta P$  on the time and temperature recorded in the experiment, to find the activation energy of the structural relaxation process and the diffusion coefficient of vacancies. Details of the vacancy model are described in a special appendix.

PACS: 67.80.dj Defects, impurities, and diffusion;  
67.60.-g Mixtures of  $^3\text{He}$  and  $^4\text{He}$ ;  
67.80.-s Quantum solids.

Keywords: solid helium, structural relaxation, diffusion, vacancy.