

Особенности поведения теплоемкости распадающихся твердых растворов ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$

© Т.Н. Анцыгина, В.А. Слюсарев, К.А. Чишко

Физико-технический институт низких температур Академии наук Украины,
310164 Харьков, Украина

(Поступила в Редакцию 14 апреля 1997 г.
В окончательной редакции 8 августа 1997 г.)

В рамках модели решеточного газа построена теория, существенно учитывающая вклад корреляционных эффектов в теплоемкость распадающихся твердых растворов ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$. Эта теория позволяет с единой точки зрения описать температурный ход теплоемкости указанных систем в широкой области концентраций n_0 примесной компоненты ${}^4\text{He}$ ($0.1\% < n_0 < 50\%$). Показано, что для получения количественного согласия предложенной теории с известными из литературы экспериментальными данными эффективное координационное число z для примеси в растворе следует считать подгоночным параметром. Для концентрированных растворов ($5\% < n_0 < 50\%$) оптимальная величина $z \simeq 250$ не зависит от концентрации, в то время как для слабых растворов ($n_0 < 5\%$) она уменьшается с уменьшением n_0 . В частности, $z = 5$ для $n_0 = 0.28\%$ и $z = 3$ для $n_0 = 0.11\%$. Это позволяет предположить, что при распаде слабых растворов вторая фаза может выпадать в виде низкоразмерных фрактальных структур.

Известно [1], что твердые растворы изотопов гелия при любой концентрации компонентов претерпевают распад, если они охлаждены ниже температуры расслоения T_s , значение которой зависит как от состава смеси, так и от внешнего давления. Распад представляет собой переход первого рода, в результате которого в кристалле формируется двухфазная гетероструктура. При распаде слабых растворов каждая из фаз состоит практически из чистой компоненты ${}^3\text{He}$ или ${}^4\text{He}$ [1]. Таким же свойством обладают фазы при распаде концентрированных растворов, если температура системы достаточно низка. Наличие структурных превращений в твердом растворе существенно влияет на его термодинамические свойства. В частности, теплоемкость кристалла в двухфазной области содержит вклад (большой по сравнению с теплоемкостью однородной решетки), обусловленный дополнительными степенями свободы гетерофазной системы. В однородном же растворе примесный вклад в теплоемкость оказывается весьма малым, так что при переходе в однофазную область полная теплоемкость скачкообразно падает до значений, практически совпадающих с теплоемкостью решетки. Именно такого рода поведение было впервые экспериментально наблюденно в работах [2,3], где измерены температурные зависимости теплоемкости твердых растворов ${}^4\text{He}$ в матрице ${}^3\text{He}$ при концентрациях n_0 компоненты ${}^4\text{He}$ в интервале $1.1 \cdot 10^{-3} < n_0 < 0.5$, и подтверждено более поздними исследованиями [4–6], проведенными в других экспериментальных условиях. Тем не менее именно опытные данные [2,3] оказываются наиболее полезными при разработке теории теплоемкости распадающихся твердых смесей изотопов гелия, поскольку они представляют собой результаты, полученные в неизменных условиях эксперимента для растворов с широким спектром концентраций ${}^4\text{He}$.

В работе [3] показано, что поведение интересующих нас систем в двухфазной области при $T \leq T_s$ мо-

жет быть удовлетворительно описано в приближении самосогласованного поля (ССП). Интерпретация их тепловых свойств при переходе к однородному раствору (при $T > T_s$) представляет собой более сложную задачу, поскольку в этой области примесная теплоемкость мала и определяется исключительно флуктуационными эффектами. В предположении, что флуктуации плотности примесной компоненты имеют гауссовский характер, в работе [7] получены зависимости теплоемкости раствора от температуры и концентрации ${}^4\text{He}$ при $T > T_s$. При этом предполагалось, что жесткость гауссовской моды пропорциональна $T - T_s$, в то время как в действительности она, как следует из микроскопического рассмотрения [8], должна быть пропорциональна $T - T_c$ (T_c — критическая температура смеси). На это важное обстоятельство было также обращено внимание в обзоре [9], однако соответствующее теоретическое рассмотрение в литературе отсутствует.

Таким образом, очевидно, что проблема разработки адекватных моделей для описания теплоемкости распадающихся твердых растворов ${}^4\text{He}-{}^3\text{He}$ выше температуры расслоения остается актуальной. Целью настоящей работы является построение теории теплоемкости таких систем при произвольной концентрации компонентов во всей области температур, включая окрестность T_s .

1. Постановка задачи

Будем предполагать, что гамильтониан рассматриваемой системы представим в рамках модели решеточного газа [10]

$$H = \varepsilon_0 \sum_{\mathbf{f}} n_{\mathbf{f}} - \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} V_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} n_{\mathbf{f}} n_{\mathbf{f}'}. \quad (1)$$

Здесь $n_{\mathbf{f}}$ — числа заполнения примесона ${}^4\text{He}$, находящегося в узле \mathbf{f} , ε_0 — энергия примесона, а $V_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} = V(|\mathbf{f} - \mathbf{f}'|)$ — энергия взаимодействия примесона,

находящихся в узлах \mathbf{f} и \mathbf{f}' . Поскольку кривая расслоения твердых растворов ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ в координатах $n-T$ (концентрация–температура) практически симметрична относительно точки $n = 0.5$ [11], мы будем пользоваться гамильтонианом, явно инвариантным относительно замены $n_{\mathbf{f}} \rightarrow 1 - n_{\mathbf{f}}$

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} V_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} n_{\mathbf{f}} (1 - n_{\mathbf{f}'}), \quad \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{f}} V_{\mathbf{f}\mathbf{f}} = \varepsilon_0. \quad (2)$$

Для дальнейших расчетов удобно ввести переменную $\sigma_{\mathbf{f}} = 1 - 2n_{\mathbf{f}}$, после чего с точностью до несущественной константы (2) переходит в

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} J_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} \sigma_{\mathbf{f}} \sigma_{\mathbf{f}'}, \quad J_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} = \frac{1}{4} V_{\mathbf{f}\mathbf{f}'}. \quad (3)$$

Простейшим методом, позволяющим качественно верно описать поведение примесной теплоемкости, представляется приближение самосогласованного поля (ССП). Оно является формально точным в пределе бесконечного радиуса взаимодействия примесонов при одновременном выполнении условия $\sum_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} J_{\mathbf{f}\mathbf{f}'} = \text{const}$. В конкретных расчетах часто используется модель, суть которой состоит в том, что взаимодействие атома, находящегося в некотором узле \mathbf{f} , с остальными примесями предполагается постоянным (равным J) вплоть до определенной координационной сферы, внутри которой содержится z соседей. Вне этой сферы взаимодействие считается равным нулю [8]. Таким образом, число z соседей, с которыми эффективно взаимодействует примесный атом, является характеристикой радиуса взаимодействия. Приближению СПП отвечает предел $z \rightarrow \infty$ при $Jz \rightarrow \text{const}$. Отметим также, что это приближение дает правильные асимптотики термодинамических функций в пределе низких температур, независимо от величины координационного числа.

В приближении СПП выражение для теплоемкости (здесь и ниже все экстенсивные термодинамические функции рассчитаны на один узел решетки) имеет вид

$$C^{\text{mf}} = -Jz\sigma \frac{d\sigma}{dT}, \quad (4)$$

где $\sigma = 1 - 2n$ — параметр порядка, связанный с концентрацией n ${}^4\text{He}$ в расслоившихся фазах. Параметр порядка как функция температуры должен находиться из уравнения [10]

$$\sigma = \text{th} \frac{Jz\sigma}{T} \quad (5)$$

до тех пор, пока с ростом температуры его значение не достигает предельной величины $\sigma_0 = 1 - 2n_0$, отвечающей однородному раствору со средней концентрацией n_0 . Температура, при которой σ становится равной σ_0 как раз и является температурой расслоения T_s ,

$$T_s^{-1} = \frac{1}{2Jz\sigma_0} \ln \frac{1 + \sigma_0}{1 - \sigma_0}.$$

При переходе в однофазную область при $T > T_s$ параметр порядка не зависит от температуры и сохраняет постоянное значение σ_0 . Тогда в приближении СПП для величины $d\sigma/dT$, входящей в (4), справедливо следующее выражение:

$$\frac{d\sigma}{dT} = \begin{cases} -(\sigma/T)[\lambda/(1-\lambda)], & T < T_s, \\ 0, & T > T_s, \end{cases} \quad (6)$$

где

$$\lambda = \frac{Jz}{T} (1 - \sigma^2). \quad (7)$$

Приближение СПП полностью игнорирует наличие флуктуаций в системе, так что при температурах $T > T_s$ примесный вклад в теплоемкость в точности равен нулю. Таким образом, несмотря на то что в модели СПП удается удовлетворительно объяснить ход теплоемкости в двухфазной области [1,2], оно неприменимо в области гомогенного раствора ($T > T_s$). Возможные пути учета корреляций в рассматриваемой системе могут состоять, во-первых, в использовании различных вариантов кластерных приближений (например, квазикимического приближения [10] или метода Кикучи [11]) и, во-вторых, различных вариантов приближения хаотических фаз [8]. Далее, в области малых концентраций применимы точные методы, основанные на вириальных разложениях [10]. И, наконец, в частном случае, когда концентрация примеси составляет 50%, можно воспользоваться экстраполяцией высоко- и низкотемпературных разложений теплоемкости в окрестности критической температуры [12,13].

2. Получение теплоемкости методом экстраполяции рядов

Обсуждения применимости различных приближений для описания теплоемкости $C(T)$ мы начинаем с рассмотрения последней из перечисленных в предыдущем разделе возможностей. При концентрации $n_0 = 0.5$ температура расслоения $T_s = T_c$. В работе [14] приведены низкотемпературные (по степеням $u = \exp(-4J/T)$) и высокотемпературные (по степеням $v = \text{th}(J/T)$) разложения теплоемкости для системы, описываемой гамильтонианом (3) в приближении взаимодействия ближайших соседей, для трех типов кубических решеток (ПК, ОЦК и ГЦК). Как известно [1], твердый раствор изотопов гелия с равной концентрацией компонентов имеет ОЦК решетку. Относящийся к этому случаю низкотемпературный ряд [14] является нерегулярно знакопеременным, и его коэффициенты резко различаются по абсолютной величине. Непосредственное использование указанного ряда для интерпретации экспериментально наблюдаемой теплоемкости смеси ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ [2] неэффективно, поскольку область его применимости ограничена предельно низкими температурами. Кроме того, уже начиная с $T \simeq 0.3T_c$ вычисленная с его помощью

теплоемкость становится отрицательной. Такое поведение связано с тем, что радиус сходимости этого ряда определяется нефизическими особенностями, лежащими в комплексной плоскости переменной u ближе к началу координат, чем физическая особенность [15,16].

Указанную трудность можно обойти, если, следуя работе [15], выполнить переразложение ряда, предложенного в [14], по переменной y , связанной с u соотношением

$$u = \left(\frac{y}{1-y}\right)^2.$$

В результате мы получаем новое представление для низкотемпературной ($T < T_c$) теплоемкости $C^{LT}(T)$ в виде знакопостоянного разложения

$$G^{LT}(T) = 16 \left(\frac{J}{T}\right)^2 y^8 \sum_{n=0}^{26} b_n y^n. \quad (8)$$

Коэффициенты этого ряда выписаны в Приложении. Для полученного ряда ближайшая к началу координат особенность лежит на положительной вещественной полуоси и соответствует истинной физической сингулярности.

Разложение теплоемкости $C^{HT}(T)$ для ОЦК решетки в области высоких температур ($T > T_c$) является знакопостоянным и зависит лишь от переменной $w = v^2$ [14]

$$C^{HT} = \left(\frac{J}{T}\right)^2 \sum_{n=0}^4 d_n w^n, \quad (9)$$

где коэффициенты d_n равны: $d_0 = 4$, $d_1 = 140$, $d_2 = 4056$, $d_3 = 129\,360$, $d_4 = 4\,381\,848$. Как показано в [13], высокотемпературные разложения сходятся во всей области температур $T > T_c$, и при этом отношение коэффициентов d_n/d_{n-1} быстро приближается к асимптотическому значению $w_c^{-1}[1 + (\alpha - 1)/n]$ ($\alpha \simeq 1/8$ — критический индекс для теплоемкости, $w_c = \text{th}^2(J/T_c)$).

Для описания теплоемкости во всей области температур низко- и высокотемпературные ветви теплоемкости должны быть экстраполированы в окрестности критической температуры с учетом критического поведения функции $C(T)$ при $T \rightarrow T_c$.

Известно [17], что вблизи T_c теплоемкость расходится как $A_{\pm}|1 - T/T_c|^{-1/8}$ (где коэффициенты A_{\pm} относятся соответственно к температурам выше и ниже T_c). Эти коэффициенты связаны между собой приближенным соотношением [18]

$$\frac{A_+}{A_-} = 4 \left(\frac{\beta}{\gamma}\right)^2 \left[\frac{\gamma(1-2\beta)}{2\beta(\gamma-1)}\right]^{\gamma+2\beta}, \quad (10)$$

где $\beta = 5/16$ и $\gamma = 5/4$ — критические индексы [13]. Дополним теперь высокотемпературный ряд (9) чле-

ном вида

$$\delta C^{HT} = B_+ \left[\left|1 - \frac{w}{w_c}\right|^{-1/8} - \sum_{n=0}^3 a_n \left(\frac{w}{w_c}\right)^n \right], \quad (11)$$

где a_n — коэффициенты разложения в ряд Тейлора первого слагаемого в квадратных скобках (11)

$$a_n = \frac{\Gamma(n+1/8)}{\Gamma(n+1)\Gamma(1/8)}, \quad (12)$$

($\Gamma(x)$ — гамма-функция Эйлера). Таким образом, разложение (11) по степеням w/w_c начинается с члена пропорционального $(w/w_c)^4$. Далее, подберем коэффициент B_+ так, чтобы член разложения δC^{HT} , пропорциональный $(w/w_c)^4$, совпадал с последним членом исходного точного высокотемпературного разложения (9). Тогда

$$B_+ = \frac{73308}{425} (16w_c)^4.$$

В результате при $T > T_c$ теплоемкость описывается суммой слагаемых C^{HT} и δC^{HT} , в одном из которых опущен член, пропорциональный четвертой степени w , чтобы избежать повторного его учета.

Аналогичным образом к низкотемпературному разложению должно быть добавлено слагаемое δC^{LT} вида

$$\delta C^{LT} = B_- \left[\left|1 - \frac{y}{y_c}\right|^{-1/8} - \sum_{n=0}^{34} a_n \left(\frac{y}{y_c}\right)^n \right], \quad (13)$$

где коэффициенты a_n по-прежнему определяются соотношением (12), а $2y_c = 1 - \text{th}(J/T_c)$. Несмотря на то что переразложенный по y низкотемпературный ряд является знакопостоянным с более регулярным, чем у исходного ряда, поведением коэффициентов, эти коэффициенты, тем не менее, неравномерно сходятся к асимптоте

$$y_c^{-1} = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{b_n}{b_{n-1}}$$

в том смысле, что разность $y_c^{-1} - b_n/b_{n-1}$, нерегулярно меняет знак с ростом n . В связи с этим коэффициент B_- в (13) не может быть определен по аналогии с B_+ . Здесь необходимо воспользоваться соотношением между B_+ и B_- , которое может быть получено из (10), если в формулах (11) и (13) переразложить первые слагаемые соответственно по степеням $1 - (T/T_c)$. В результате находим

$$\frac{B_+}{B_-} = \frac{A_+}{A_-} \left[2 \left(\frac{1}{\sqrt{w_c}} - 1 \right) \right]^{-1/8}.$$

Для сравнения настоящей теории с экспериментальными данными к полученным выше выражениям должны быть добавлены слагаемые, учитывающие соответственно решеточный вклад в теплоемкость

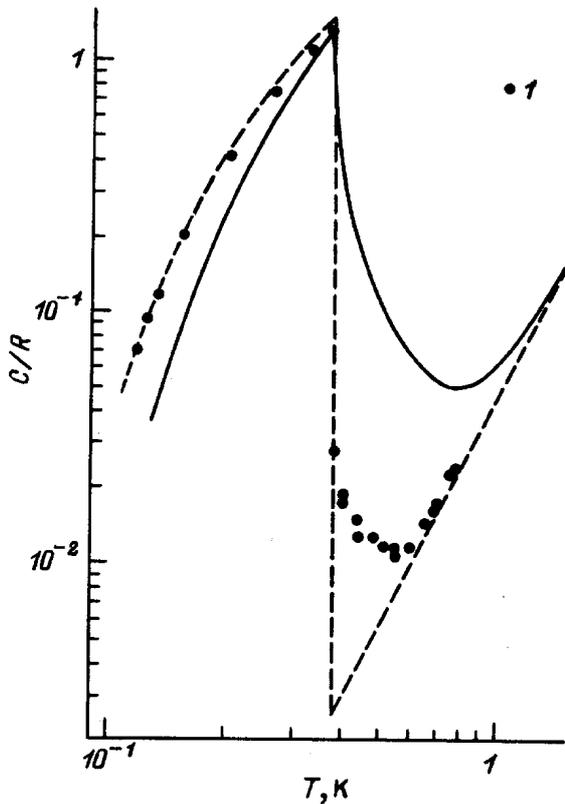


Рис. 1. Температурная зависимость теплоемкости смеси ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$ с концентрацией 50%. Сплошная кривая — теория, полученная экстраполяцией степенных рядов. Штриховая линия — приближение ССП. I — экспериментальные данные работы [2]. Здесь и на следующих рисунках теплоемкость нормирована на универсальную газовую постоянную R .

$C_{\text{ph}} = (12\pi^4/5)(T/\Theta_D)^3$ (где Θ_D — дебаевская температура) и вклад C_{ex} , обусловленный обменным взаимодействием атомов ${}^3\text{He}$. Последний может быть представлен в виде [11]

$$C_{\text{ex}} = 3(1-n)^2 \left(\frac{I}{T}\right)^2 \left[1 - \frac{I}{T} + \frac{7}{4} \left(\frac{I}{T}\right)^2\right],$$

где I — обменный интеграл. При сравнении всех приведенных в настоящей работе выражений для теплоемкости с экспериментальными данными, мы всегда будем учитывать указанные добавки. Следует отметить, что ввиду малости этих добавок в наших расчетах мы пренебрегли зависимостью I от давления, выбрав для него максимальное значение, отвечающее молярному объему $24.2 \text{ cm}^3/\text{mol}$. По различным литературным данным [11] экспериментально определенная величина I при таких условиях составляет $0.88-1.22 \text{ mK}$. Мы используем усредненное численное значение $I \simeq 1 \text{ mK}$. Кроме того, мы пренебрегаем зависимостью Θ_D от температуры, поскольку связанные с этим обстоятельством поправки оказываются несущественными в том температурном интервале, где проявляются интересующие нас эффекты.

На рис. 1 представлены результаты сравнения полученных экстраполяционных формул для теплоемкости с экспериментальными данными [2], а также вычислениями в приближении ССП для растворов с $n_0 = 0.5$. При этом величина J определялась по реальному экспериментальному значению $T_c = 0.38 \text{ K}$ [2,9], так что для выражений (9)–(13) $J = -0.25T_c \ln(0.5327) \simeq 0.15 \text{ K}$ [14], а для приближения ССП $J = T_c/z$. В области высоких температур теория лишь качественно согласуется с экспериментом, и пути ее улучшения будут обсуждены ниже. Что же касается низкотемпературной ветви теплоемкости, то, как видно из рис. 1, приближение ССП (4) дает несколько лучшее согласие с экспериментом, чем экстраполяция степенного ряда. Причина рассогласования теории и эксперимента по нашему мнению заключается в следующем. Хотя в принципе степенные ряды дают формально точные решения в соответствующих температурных интервалах, однако при их выводе учтено взаимодействие только ближайших соседей [14]. Это позволяет однозначно предположить, что при описании рассматриваемой системы недостаточно ограничиться приближением ближайших соседей, и мы, по-видимому, имеем дело с ситуацией, когда необходимо учитывать вклад далеких координационных сфер.

3. Поправки к приближению ССП, обусловленные корреляционными эффектами

Для решеток с большими координационными числами z естественный способ получения корреляционных поправок к ССП состоит в разложении термодинамических функций по степеням $1/z$. Первый член этого разложения отвечает так называемому приближению хаотических фаз (ПХФ) [8]. Добавка к средней энергии системы в этом приближении равна

$$\Delta E^{\text{RPA}} = -\frac{1}{2NT} \sum_q \frac{J^2(\mathbf{q})(1-\sigma^2)^2}{1-J(\mathbf{q})(1-\sigma^2)/T}. \quad (14)$$

Здесь $J(\mathbf{q})$ — Фурье-образ функции J_{fr} , N — полное число узлов в системе, а параметр порядка σ удовлетворяет уравнению (5). Обратим внимание на то, что радиус взаимодействия между примесями имеет порядок $z^{1/3}$. Поэтому основной вклад в сумму (14) дают слагаемые с $0 < q < q_0$, где $q_0 \sim z^{-1/3}$. Для оценки суммы в (14) аппроксимируем потенциал $J(\mathbf{q})$ следующим выражением [8]

$$J(\mathbf{q}) = \begin{cases} Jz(1-q^2/q_0^2), & q < q_0, \\ 0, & q > q_0. \end{cases} \quad (15)$$

Переходя в (14) от суммирования к интегрированию, находим

$$\Delta E^{\text{RPA}} = \frac{Tq_0^3v_0}{12\pi^2} \left\{ 1 - \frac{3}{\lambda} \left(1 - \sqrt{\frac{1-\lambda}{\lambda}} \right) \times \arctg \sqrt{\frac{\lambda}{1-\lambda}} + \frac{2}{5} \lambda \right\}, \quad (16)$$

где λ определяется соотношением (7), а v_0 — объем элементарной ячейки.

В модели со взаимодействием, постоянным (и равным J) вплоть до координационной сферы, внутри которой заключено z соседей, первая поправка по параметру J/T к теплоемкости равна [19]

$$\Delta E = -\frac{J^2z}{2T} (1 - \sigma^2)^2 = -\frac{\lambda^2T}{2z}. \quad (17)$$

С другой стороны, первый член в разложении (16) по степеням обратной температуры должен совпадать с (17). Это позволяет связать параметр обрезания q_0 с величиной эффективного координационного числа. В результате имеем

$$q_0^3v_0 = \frac{105\pi^2}{4z}. \quad (18)$$

Соответствующая поправка к теплоемкости имеет вид

$$\Delta C^{\text{RPA}} = \frac{\Delta E^{\text{RPA}}}{T} + \frac{1}{1-\lambda} \left[\left(\frac{3}{2} - \lambda \right) \frac{\Delta E^{\text{RPA}}}{T} + \frac{7}{4z} \lambda^2 \right] \left(1 + 2 \frac{Jz\sigma}{\lambda} \frac{d\sigma}{dT} \right). \quad (19)$$

Здесь $d\sigma/dT$ по-прежнему определяется формулой (6).

При сравнении полученного результата с экспериментальными данными [2] для концентраций ${}^4\text{He}$ $n_0 = 0.5, 0.21$ и 0.05 оказалось, что для достижения хорошего согласия теории и эксперимента в полученных выше формулах координационное число z следует считать подгоночным параметром, величина которого оказывается неожиданно большой. Так, для всех перечисленных концентраций $z = 250$. Это означает, что приближение ближайших соседей не дает адекватного описания наблюдаемой теплоемкости в рассмотренной области концентраций, и взаимодействие между примесями распространяется по крайней мере на несколько (четыре-пять) координационных сфер. То что найденные здесь оптимальные с точки зрения согласия с экспериментом значения параметра z оказались сравнительно велики, должно означать, с одной стороны, малость рассчитанных выше флуктуационных поправок (пропорциональных $1/z$), а с другой — выполнение условий применимости приближения ССП (формально отвечающих пределу $z \rightarrow \infty$). В действительности же выше температуры расслоения $T > T_s$ в области однородного раствора избыточная теплоемкость в приближении ССП в точности равна

нулю, а решеточная теплоемкость матрицы непосредственно вблизи T_s еще весьма мала. Поэтому флуктуации дают основной вклад в теплоемкость твердого раствора при $T \sim T_s$.

Отметим, однако, что в случае малых концентраций приведенная выше поправка (16) оказывается пренебрежимо малой даже по сравнению с решеточным вкладом. Очевидно, это связано с тем, что ПХФ описывает взаимодействие, обусловленное существенно коллективными эффектами, но при условии, что взаимодействие внутри каждой пары узлов определяется в первом исчезающем порядке теории возмущений.

Для малых концентраций более эффективным является подход, основанный на разложении термодинамических функций с помощью метода майеровских групп [10]. Соответствующая поправка к энергии в приближении второго вириального коэффициента ΔE_2 зависит только от координационного числа и не зависит от типа решетки. В нашем случае

$$\Delta E_2 = -\frac{Jz}{8} (1 - \sigma^2)^2 [\exp(4J/T) - 1]. \quad (20)$$

Объединим оба приближения (16) и (20), чтобы получить единообразное описание как при малых, так и при больших концентрациях. Из диаграммного анализа модели Изинга [8], следует, что поправка (17) учитывается как в соотношении (16), так и в (20). Поэтому из суммы

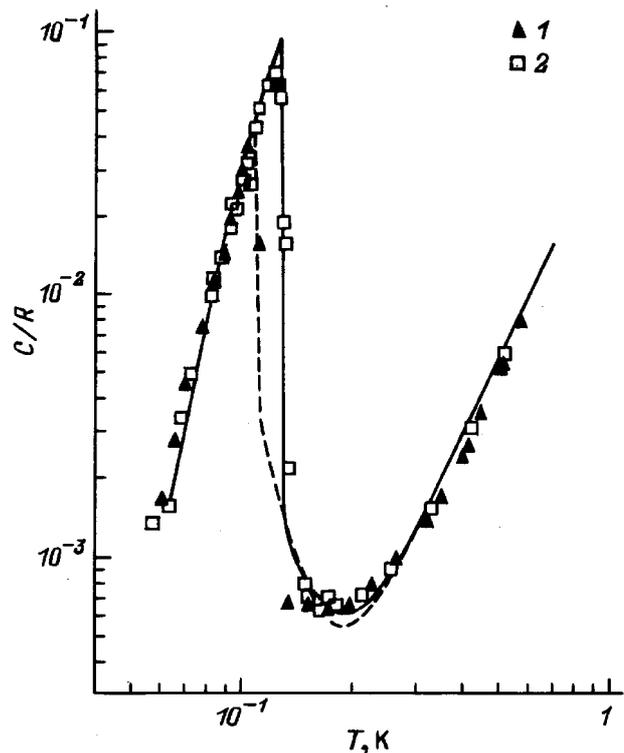


Рис. 2. Температурная зависимость теплоемкости слабых твердых растворов ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$. Экспериментальные данные [2]: 1 — 0.11% ${}^4\text{He}$, 2 — 0.28% ${}^4\text{He}$. Кривые — результаты теоретического расчета настоящей работы.

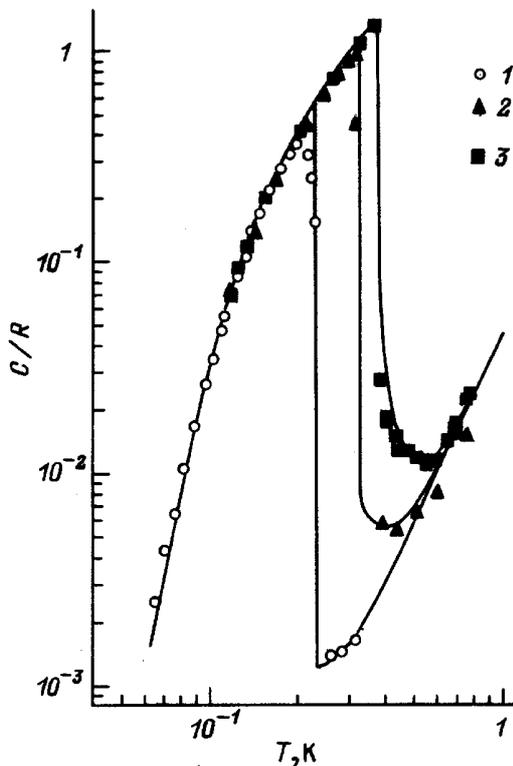


Рис. 3. Температурная зависимость теплоемкости концентрированных твердых растворов ${}^3\text{He}$ – ${}^4\text{He}$. Экспериментальные данные [2]: 1 — 5% ${}^4\text{He}$, 2 — 21% ${}^4\text{He}$, 3 — 50% ${}^4\text{He}$. Кривые — результаты теоретического расчета настоящей работы.

(16) и (20) ее следует вычесть. В результате полная поправка к теплоемкости имеет вид

$$\Delta C = \Delta C^{\text{RPA}} - \frac{4J}{T} \times \left[\frac{\Delta E_2}{T} + \frac{Tz\sigma}{\lambda} \frac{d\sigma}{dT} \left(\frac{\Delta E_2}{T} + \frac{\lambda^2}{2z} \right) \right]. \quad (21)$$

На рис. 2,3 представлены теоретические кривые и данные эксперимента для всех приведенных в [2] концентраций ${}^4\text{He}$. В предложенной теории имеется два подгоночных параметра — T_c и z . Первая из этих величин берется непосредственно из эксперимента (для рассматриваемой системы $T_c = 0.38$ К), а координационное число z для всех больших концентраций ($n_0 = 50$, 21 и 5%) следует брать равным 250, а для малых — соответственно $z = 5$ (при $n_0 = 0.28\%$) и $z = 3$ (при $n_0 = 0.11\%$). Величина J полагалась равной $J = T_c/z$ для всех концентраций на том основании, что при $T < T_c$ теплоемкости для всех растворов лежат на одной кривой.

4. Обсуждение результатов

Проведенное нами рассмотрение позволяет сделать однозначный вывод о том, что имеющиеся экспериментальные результаты могут быть интерпретированы толь-

ко в предположении о дальнедействующем характере взаимодействия между примесями. Указанное дальнедействие мы косвенно учитывали введением эффективного координационного числа. Таким образом, во всех обсужденных выше приближениях координационное число z необходимо считать подгоночным параметром. Весь интервал концентраций $n_0 \leq 50\%$ естественным образом разбивается на две части. В области больших концентраций (5% и выше) величина z практически не зависит от n_0 и хорошее согласие с экспериментом достигается при $z \approx 250$. Для каждой из малых концентраций ($n_0 = 0.28\%$; 0.11%) значения z , однако, различны и равны $z = 5$ и $z = 3$ соответственно. Отметим, что этот выбор является однозначным, то есть согласие с экспериментом не может быть получено при каких-либо других z , отличных от указанных выше. Действительно, основной член низкотемпературной асимптотики в теплоемкости зависит только от комбинации Jz . В то же время в однофазной области, где плотность примесной компоненты фиксирована, величина $C(T)$ определяется двумя независимыми параметрами: J и z . Последнее обстоятельство и позволяет однозначно определить величину координационного числа.

Подчеркнем, что при малых концентрациях применимость вириального приближения не вызывает сомнений. Более того, первая вириальная поправка не зависит от конкретного типа решетки, но в модели решеточного газа (модели Изинга) однозначное согласие с экспериментом достигается лишь при $z = 3$ или $z = 5$, что не отвечает какой-либо регулярной пространственной структуре. Это позволяет предположить, что в области малых концентраций распад раствора происходит с образованием новой фазы в виде фрактальных структур типа дерева Кейли. Это не является удивительным, поскольку на больших расстояниях r взаимодействие между примесями убывает как $1/r^3$ и является существенно анизотропным (для некоторых направлений оно имеет характер притяжения, для других — отталкивания). Величина и знак его сложным образом зависят от кристаллографического направления, в котором лежит радиус-вектор, соединяющий взаимодействующие примеси [20–22]. Поэтому при малых концентрациях, когда среднее расстояние между примесями существенно превышает межатомное, новая фаза растет в виде дерева, степень вершины которого определяется как концентрацией, так и числом кристаллографических направлений, вдоль которых имеет место притяжение.

При больших концентрациях, когда расстояние между примесями сравнимо с межатомными, упругие поля примесей перекрываются, и эффективное взаимодействие между ними существенно изотропизуется, сохраняя при этом дальнедействующий характер. В этом случае зародыши новой фазы растут в виде компактных образований. Таким образом, существенное различие в величинах эффективного координационного числа при больших и малых концентрациях ${}^4\text{He}$ связано, по нашему мнению, со спецификой межпримесного взаимодействия в ОЦК решетках ${}^3\text{He}$.

Отметим, что характер межпримесного взаимодействия на больших расстояниях весьма сходен с диполь-дипольным взаимодействием (электростатическим и магнитным) в том смысле, что оно зависит от расстояния как r^{-3} , а угловая зависимость такова, что после усреднения по направлениям оно обращается в нуль. Известно [23], что в системах со взаимодействием такого рода возможно возникновение весьма сложных структур с нетривиальным распределением ориентаций дипольных моментов в узлах решетки. Это обстоятельство может служить дополнительным аргументом в пользу нашего предположения о формировании фрактальных структур из примесей ${}^4\text{He}$ в слабых растворах ${}^4\text{He}-{}^3\text{He}$.

Разумеется, для $z = 3$ можно было бы предположить возникновение при распаде раствора регулярно упакованных планарных структур из атомов ${}^4\text{He}$. Такое предположение было бы естественным только в том случае, если бы матрица ${}^3\text{He}$ обладала специфической анизотропией, присущей, например, слоистым кристаллам. Поскольку ОЦК решетка ${}^3\text{He}$ не имеет таких свойств, существование плоских зародышей новой фазы в ней представляется мало вероятным. Еще одной возможностью для образования плоских преципитатов может служить процесс оседания примесей на границах зерен. Проверка такого предположения, однако, выходит за рамки используемой нами модели твердого раствора (она предполагает, в частности, введение в задачу дополнительного подгоночного параметра — энергии взаимодействия примеси с границей).

Обратим также внимание на то, что в обратном предельном случае очень слабых растворов ${}^3\text{He}$ в матрице ${}^4\text{He}$ [6] поведение теплоемкости может быть объяснено в предположении существования квазиодномерных зародышей новой фазы, образующихся, например, на дислокациях в кристалле [24]. Нам представляется, что указанная модель не может быть непосредственно применена для описания термодинамики кристаллов ${}^3\text{He}$ с малым количеством примесей ${}^4\text{He}$. Причина этого состоит в том, что решетка ${}^3\text{He}$ является существенно более "квантовой", так что подвижность дислокаций в ней велика, и, следовательно, они с большой вероятностью покидают кристалл в процессе выращивания образца.

В заключение укажем, что дальнейшее исследование проблемы должно быть связано с последовательным микроскопическим описанием взаимодействия примесей, учитывающим дискретность кристаллической решетки. К сожалению, нам не известны работы, где проводились бы измерения теплоемкости растворов в промежуточной области концентраций $0.3 < n_0 < 5\%$. Наличие таких результатов позволило бы сделать более определенные выводы о смене механизма зародышеобразования как функции состава твердого раствора.

Авторы выражают благодарность профессору Д.О. Эдвардсу (Университет Огайо, США) за обсуждения, инициировавшие появление данной работы, а также В.Н. Григорьеву и Э.Я. Рудаковскому за ценные замечания и интерес к работе.

Приложение

Коэффициенты разложения в формуле (8) равны

$$\begin{aligned} b_0 &= 4; & b_1 &= 32; & b_2 &= 144; & b_3 &= 480; & b_4 &= 1320; \\ b_5 &= 3168; & b_6 &= 6913; & b_7 &= 14414; & b_8 &= 30813; \\ b_9 &= 72048; & b_{10} &= 184620; & b_{11} &= 488376; \\ b_{12} &= 1252648; & b_{13} &= 3006272; & b_{14} &= 6674186; \\ b_{15} &= 13811996; & b_{16} &= 27447686; & b_{17} &= 55431280; \\ b_{18} &= 121396999; & b_{19} &= 293835094; & b_{20} &= 749271795; \\ b_{21} &= 1884259692; & b_{22} &= 4474431975; \\ b_{23} &= 9864530634; & b_{24} &= 20287650355; \\ b_{25} &= 40058936096; & b_{26} &= 80443615062. \end{aligned}$$

Список литературы

- [1] Б.Н. Есельсон, В.Н. Григорьев, В.Г. Иванцов, Э.Я. Рудаковский, Д.Г. Саникидзе, И.А. Сербин. Растворы квантовых жидкостей ${}^3\text{He}-{}^4\text{He}$. М. (1973). 423 с.
- [2] D.O. Edwards, A.S. McWilliams, J.G. Daunt. Phys. Lett. **1**, 6, 218 (1961).
- [3] D.O. Edwards, A.S. McWilliams, J.G. Daunt. Phys. Rev. Lett. **9**, 5, 195 (1962).
- [4] P.M. Tedrow, D.M. Lee. Phys. Rev. **181**, 1, 399 (1969).
- [5] G.O. Zimmermann. Proc. LT-9. Columbus **1**, 244 (1964).
- [6] R. Schrenk, O. Friz, Y. Fujii, E. Siskakis, F. Pobell. J. Low Temp. Phys. **84**, 1/2, 155 (1991).
- [7] P. Kumar, M. Bernier. J. Low Temp. Phys. **79**, 1/2, 1 (1990).
- [8] Р. Браут. Фазовые переходы. М. (1967). 288 с.
- [9] D.O. Edwards, M.S. Pettersen. J. Low Temp. Phys. **87**, 3/4, 473 (1992).
- [10] Т. Хилл. Статистическая механика. М. (1960). 485 с.
- [11] С. Трики, В. Кирк, Е. Адамс. В кн.: Квантовые кристаллы. М. (1975). С. 134.
- [12] В.Г. Вакс, В.И. Зиненко, В.Е. Шнейдер. УФН **114**, 4, 629 (1983).
- [13] Г. Стенли. Фазовые переходы и критические явления. М. (1973). 419 с.
- [14] G.A. Baker. Phys. Rev. **124**, 2, 768 (1961).
- [15] A.J. Guttman, C.J. Thompson, B.W. Ninham. J. Phys. **C3**, 8, 1641 (1970).
- [16] C. Domb, A.J. Guttman. J. Phys. **C3**, 8, 1652 (1970).
- [17] C. Domb. Adv. Phys. **19**, 79, 339 (1970).
- [18] А.З. Паташинский, В.Л. Покровский. Флуктуационная теория фазовых переходов. М. (1982). 381 с.
- [19] Р. Кубо. Статистическая механика. М. (1967). 452 с.
- [20] J.R. Hardy, R. Bullough. Phil. Mag. **15**, 134, 237 (1967).
- [21] R. Bullough, J.R. Hardy. Phil. Mag. **17**, 148, 833 (1968).
- [22] В.А. Слюсарев, М.А. Стржеменский, И.А. Бурахович. ФНТ **4**, 6, 698 (1978).
- [23] П.И. Белобров, Р.С. Гехт, В.А. Игнатченко. ЖЭТФ **84**, 3, 1097 (1983).
- [24] Т.Н. Анцыгина, В.А. Слюсарев, К.А. Чишко. ФНТ **21**, 6, 583 (1995).