

КИНЕТИКА ОБРАЗОВАНИЯ АНОМАЛЬНОГО СОСТОЯНИЯ И РОСТ КРИСТАЛЛОВ ГЕЛИЯ ПРИ ВЫСОКИХ ПЕРЕСЫЩЕНИЯХ

В. Л. Цымбаленко*

Российский научный центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

Поступила в редакцию 20 ноября 2000 г.

Исследована кинетика образования аномального состояния кристалла гелия с быстрорастущей поверхностью. Экспериментально показано, что определяющий фактор образования аномального состояния — внешнее пересыщение. Измерены зависимости времени формирования состояния от температуры и от стартового пересыщения. Решена задача роста кристалла с возбуждением волны первого звука в контейнере. На основе решения определены зависимости кинетического коэффициента роста аномальных граней от температуры и от начального пересыщения. Показано, что кинетический коэффициент роста граней уменьшается по мере приближения к границам существования аномального состояния. По затуханию осцилляций давления определен кинетический коэффициент роста атомно-шероховатых поверхностей в аномальном состоянии. Найдено, что его значение в 3–4 раза превышает соответствующую величину для граней, но значительно, на порядок, меньше коэффициента роста таких поверхностей в нормальном состоянии. Рассмотрены явления, сопутствующие спиральному росту граней: возбуждение колебаний винтовой дислокации при вращении спирали и рождение вихревых колец в сверхтекучем гелии. Обсуждено влияние этих эффектов на кинетику роста граней и образование аномального состояния.

PACS: 67.90.+z

1. ВВЕДЕНИЕ

Кинетические и термодинамические свойства поверхности раздела между жидким гелием и его твердой ГПУ-фазой являлись предметом интенсивных исследований после теоретического предсказания [1] и экспериментального подтверждения [2] квантового характера роста граней, находящегося в атомно-шероховатом состоянии. К настоящему времени сложилась достаточно полная картина термодинамических переходов на поверхности и кинетики роста граней. Обнаружены три перехода огранения: при $T_{R1} = 1.3$ К появляется огранка базисной плоскости (*c*-грани) [3–5], затем при $T_{R2} = 0.9$ К ограняются боковые плоскости (*a*-грани) [3, 4] и при температуре $T_{R3} = 0.36$ К возникает огранка (1101)-плоскостей (*s*-грани) [6]. Кинетика роста кристалла при небольших отклонениях от равновесия ($Dp < 0.1$ мбар) определяется состоянием поверхности. Выше перехода огранения в атомно-шероховатом состоянии скорость роста контроли-

руется рассеянием квазичастиц на поверхности [7, 8] и диссипацией в среде [9]. Ниже перехода огранения в соответствии с моделями роста в классической кристаллографии [10] рост грани связан либо с двумерным зародышеобразованием [10, 11], либо с топологически неустраняемыми дефектами, образованными на грани дислокациями (спиральный рост,истики Франка–Рида [10]). Эти модели (с необходимой коррекцией для случая гелия [12]) хорошо описывали большинство наблюдаемых явлений. Единственным эффектом, выпадающим из общей картины, был взрывной рост бездислокационной грани кристалла в интервале температур от 2 мК до 0.25 К, обнаруженный в работе [12].

Другое явление, также не вписывающееся в рамки известных представлений, состоит в резком ускорении роста кристалла на два–три порядка (аномальный рост) при достаточно высоких пересыщениях ниже второго перехода огранения [13–16].

Проведенные исследования выявили ряд черт этого перехода: 1) ускорение роста происходит одновременно на *c*- и *a*-гранях [14]; 2) кристалл пере-

*E-mail: vlt@issph.kiae.ru

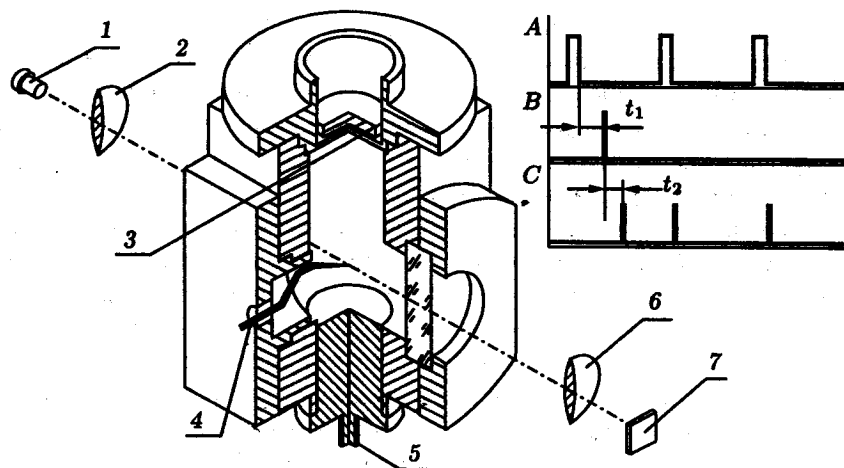


Рис. 1. Схема проведения эксперимента: 1 — импульсный инфракрасный светодиод, 2 — линза, 3 — мембрана емкостного датчика, 4 — вольфрамовая игла, 5 — медный холодопровод, подсоединенный к ванне ^3He , 6 — объектив, 7 — ПЗС-матрица. Оптическая ось расположена горизонтально. Детали оптического криостата [19] не показаны. Временные диаграммы: A — кадровые импульсы видеосигнала, B — импульс высокого напряжения, C — вспышки светодиода

ходит в состояние с быстрорастущими гранями только при начальном пересыщении выше определенного значения Dp^* , величина которого монотонно убывает с понижением температуры (фазовая диаграмма [15, 17]); 3) вдали от границы перехода скорость роста кристалла становится настолько велика, что рост принимает осциллирующий характер, причем декремент затухания колебаний уменьшается по мере удаления от границы перехода [16].

В данной работе приводятся результаты изучения условия образования кристалла на переход в аномальное состояние с быстрорастущими гранями, а также анализ кинетики роста после перехода. В разд. 2 кратко излагается экспериментальная методика. Результаты проверки гипотезы, связывающей переход с характером зародышеобразования кристалла, изложены в разд. 3. Экспериментальные данные по времени возникновения аномального состояния приведены в разд. 4. Анализ картины роста кристалла после перехода в аномальное состояние и на заключительном этапе роста содержатся в разд. 5. В разд. 6 обсуждаются экспериментальные данные, результаты проверок некоторых гипотез, а также рассматриваются процессы, возможно, инициирующие этот переход.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Экспериментальная установка и контейнер, в котором проводились исследования, описаны в мето-

дических работах [18–20] и ряде статей [9, 21]. Исследования проводились в оптическом контейнере (см. рис. 1), что позволяло выполнять съемку кристалла в процессе роста. Внутренний объем контейнера составлял 4 см^3 . Зарождение и последующий рост кристалла происходили на вольфрамовой игле 4, острие которой находилось на оптической оси контейнера. Рождение кристалла инициировалось импульсом высокого напряжения, приложенного к игле. Применение такой методики решило ряд задач:

- 1) исключено влияние стенок — кристалл растет почти свободно, не касаясь стенок контейнера;
- 2) появление кристалла легко синхронизируется с работой видеосистемы;
- 3) начальное пересыщение в гелии Dp_0 может быть выбрано в интервале от нуля до давления спонтанного зарождения кристалла на стенке (0–15 мбар);
- 4) варьируя амплитуду и длительность импульса, можно изменять условия рождения кристалла.

Эти возможности позволили в предыдущих работах [15, 17] построить фазовую диаграмму аномального состояния и снять фильмы, показывающие быстрый рост кристалла.

Кристаллы выращивались из гелия, очищенного термомеханически. Эксперимент проводился в следующей последовательности (см. временные диаграммы на рис. 1). Сначала в жидкости устанавливалось необходимое пересыщение. Затем в момент, синхронизированный с видеосигналом (серия кадровых

импульсов A) с задержкой t_1 , на иглу подавался импульс высокого напряжения B . Первая вспышка светодиода длительностью около 15 мкс задерживалась на t_2 относительно импульса высокого напряжения (см. серию C). Последующие вспышки освещения синхронизированы с кадровыми импульсами видеосигнала, следующими с периодом 20 мс. Таким образом, интервал времени между первыми двумя кадрами был менее 20 мс и обычно составлял 13.6 мс, а между последующими кадрами равнялся периоду кадровых импульсов. Поскольку телевизионное изображение передается по полукадрам, нечетные кадры смещены на одну строку по вертикали относительно четных. Рост кристалла фиксировался в памяти сигнального процессора (первые пять кадров) [20] и при необходимости параллельно записывался на видеоленту. Минимальный интервал между первым и вторым снимками ограничен длительностью импульса синхронизации и не может быть менее 2 мс. Такое временное разрешение недостаточно для получения представления об этапе быстрого роста кристалла. Чтобы решить эту задачу, мы модифицировали данную методику. Эксперимент по росту кристаллов при фиксированной температуре повторялся примерно 15 раз, причем начальное пересыщение в контейнере, напряжение и длительность высоковольтного импульса были идентичными. Как оказалось, кривые изменения давления совпадали в пределах точности измерения, а форма и ориентация кристаллов, сфотографированных с одной и той же задержкой t_2 , близки, т. е. процесс роста хорошо воспроизводился. Варьируя задержку вспышки с шагом равным длительности строчной развертки 64 мкс, мы получили серию кадров, дающих представление об изменении формы кристалла в режиме осциллирующего роста (см. ниже рис. 7). Кривая изменения давления усреднена по 16 измерениям. Как видно, кристаллы, зарождающиеся в идентичных условиях, имеют одинаковую ориентацию.

Падение давления, сопровождающее рост кристалла, измерялось синхронно с видеозаписью емкостным датчиком давления, расположенным на контейнере. Мембрана датчика находится на расстоянии приблизительно 1 см от иглы. Это приводит к задержке порядка 30 мкс, связанной с распространением волны первого звука в жидком гелии. Отклик измерительного тракта на ступенчатое изменение давления состоит в задержке равной 32 мкс и экспоненциальной релаксации с единственной постоянной времени. В течение одной серии опытов постоянная релаксации оставалась одной и той же. В разных сериях это значение равнялось 54 или 77 мкс.

Для точной привязки значений давления к моменту съемки кристалла на этапе быстрого роста проводилась коррекция, состоящая из временного сдвига на 62 мкс и компенсации переходной характеристики.

Отметим, что в предыдущих исследованиях [15–17] особого внимания на амплитуду и продолжительность импульса не обращалось, поскольку от импульса требовалось только вызвать гарантированное зарождение кристалла. Поэтому амплитуда выбиралась высокой и одинаковой во всех экспериментах, а длительность составляла несколько миллисекунд. В работах [15–17] отмечалось начало импульса, а выключение напряжения происходило в момент съемки первого кадра.

3. ВЛИЯНИЕ УСЛОВИЙ ЗАРОЖДЕНИЯ КРИСТАЛЛА

Эти эксперименты были проведены для проверки гипотезы, связывающей возникновение аномального состояния с характером образования критического зародыша. Предположим, что зародыш появляется в классическом случае с уже ограниченной поверхностью, а в квантовом случае его поверхность находится в атомно-шероховатом состоянии, что обеспечивает высокую скорость роста. Действительно, в классическом случае докритический зародыш находится в состоянии близком к равновесию, что соответствует ограниченной форме при данных температурах. В квантовом же случае зародыш возникает в конечном состоянии. Заметим, что число состояний зародыша с неупорядоченной поверхностью больше, поскольку энтропия такой поверхности выше энтропии поверхности кристалла, состоящей из плоских граней. Следовательно, при туннелировании в большинстве случаев зародыш будет попадать в состояния с атомно-шероховатой поверхностью. Конечно, такое состояние неравновесно, и одновременно с ростом зародыша будет происходить релаксация к его равновесной форме. Если время релаксации велико (см. примечание Нозьера и Уваги в работе [22], с. 403), то поверхность кристалла так и останется в атомно-шероховатом состоянии до окончания его роста. Релаксация к равновесной форме проявится в том, что скорость роста из-за динамического возникновения плоских участков на поверхности будет меньше скорости роста атомно-шероховатых поверхностей.

Если эта гипотеза справедлива, то граница между нормальным и аномальным ростом есть граница перехода от классического зародышеобразования к квантовому. Каган и Лифшиц в 1972 г. [23] обратили

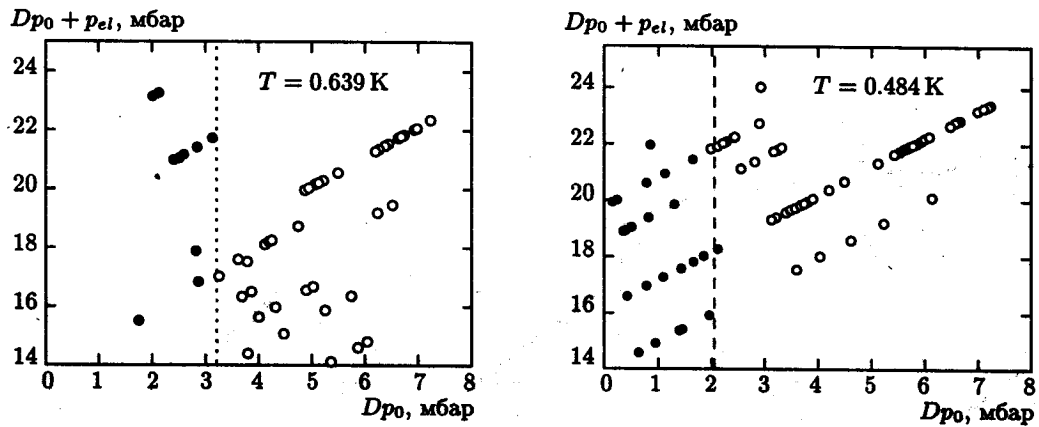


Рис. 2. Образование аномального состояния в зависимости от внешнего гидростатического пересыщения и пересыщения в момент возникновения критического зародыша. Светлые точки — аномальный рост, темные — нормальный рост; Dp_0 — начальное гидростатическое давление, p_{el} — добавка, обусловленная электростатическим полем

внимание на тот факт, что граница имеет резкий характер и пересыщение перехода возрастает с увеличением температуры, что качественно согласуется с видом фазовой диаграммы [17]. Тогда основным параметром процесса является не внешнее гидростатическое давление, а его сумма с электростатическим давлением импульса. Это обстоятельство отметил Ю. М. Каган, предложивший экспериментально исследовать влияние амплитуды импульса. Если изложенная гипотеза верна, то положение границы нормального и аномального роста должно определяться именно суммой гидростатического и электростатического давлений.

На рис. 2 приведены результаты измерений, в которых независимо варьировались эти параметры при двух температурах. Как видно из графика, граница между аномальным и нормальным ростом определяется именно гидростатическим давлением среды. Это означает, что гипотеза, связывающая эффект аномального роста с зародышеобразованием, не верна.

4. КИНЕТИКА ВОЗНИКНОВЕНИЯ АНОМАЛЬНОГО СОСТОЯНИЯ

Поскольку, как стало ясно, аномальное состояние не возникает одновременно с кристаллом, а развивается под воздействием внешнего гидростатического давления, интересно определить характерные времена этого процесса. С этой целью длительность импульса была уменьшена до 128 мкс (две строки строчной развертки видеоадаптера), а амплитуда была выбрана так, чтобы гарантировать появление кристалла в течение этого времени. Общее время

записи давления равнялось приблизительно 230 мс, а фотографирование кристалла проводилось в течение первых 80 мс.

На рис. 3 показан рост кристалла в случае, когда переход в состояние с быстрорастущей поверхностью происходит через 36 мс после зарождения кристалла. Видно, что сначала кристалл растет в виде шестигранной пластинки вплоть до момента перехода в аномальное состояние, после чего в течение приблизительно 170 мкс вырастает полностью, что сопровождается падением давления до давления фазового равновесия. Эта картина типична для всех наблюдаемых серий с большими временами задержки. На рис. 4 приведены кривые изменения давления при росте кристаллов со стартовым пересыщением выше границы перехода. Отчетливо видно, что по мере приближения к граничному пересыщению Dp^* время задержки τ_{jump} между возникновением кристалла и началом быстрого роста увеличивается. Абсолютная величина скачка давления при быстром росте может быть значительно меньше стартового пересыщения, см. рис. 4. Общую тенденцию увеличения задержки τ_{jump} по мере приближения к границе аномальной области иллюстрирует рис. 5. Заметим, что при близких начальных пересыщениях Dp_0 , тем не менее, существует значительный разброс величин τ_{jump} . Например, при $Dp_0 \approx 4.8$ мбар и $T = 0.639$ К значение задержки от опыта к опыту меняется в интервале 8–40 мс. С понижением температуры величина задержки при том же начальном пересыщении убывает. Однако сделать однозначный вывод о том, что именно уменьшение температуры приводит к сокращению времени задержки, нельзя,

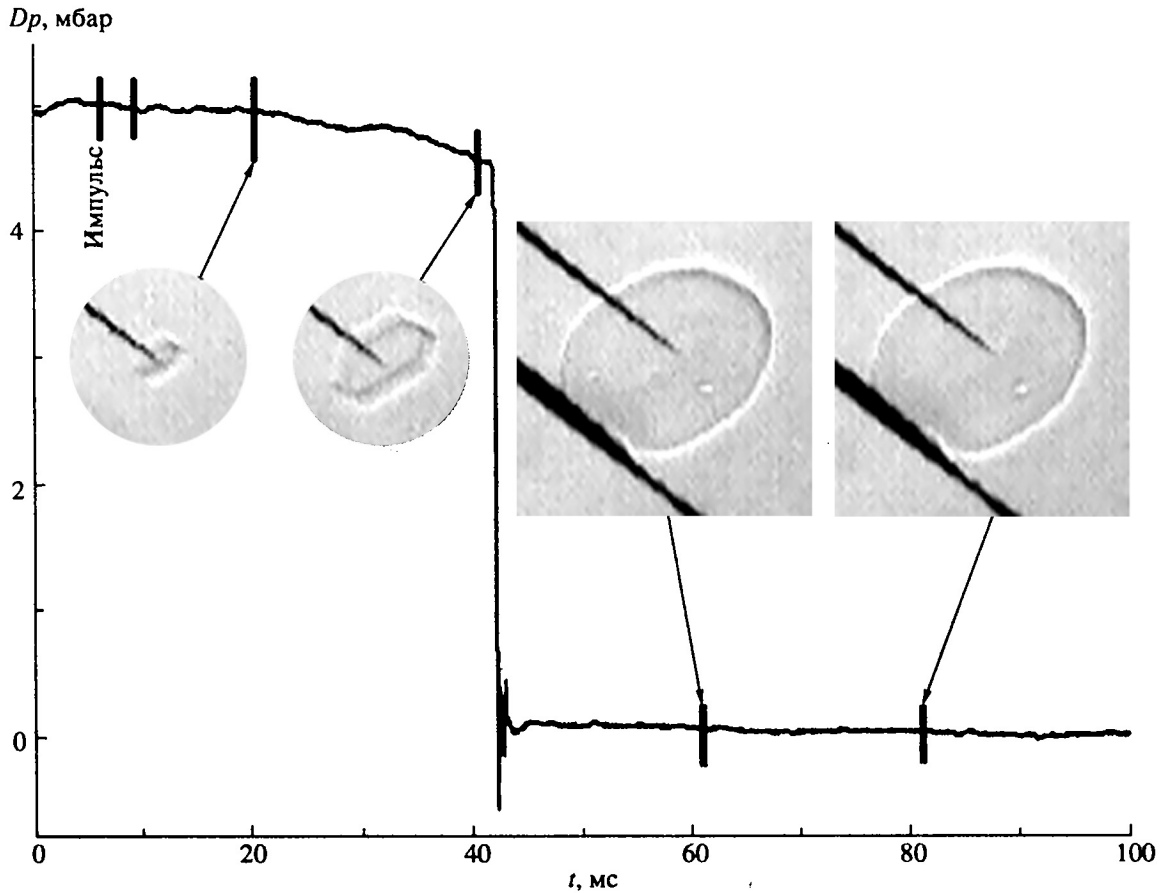


Рис. 3. Пример записи падения давления в контейнере при возникновении аномального состояния с задержкой 36 мс при $T = 0.639$ К. До наступления момента перехода видна огранка кристалла, типичная для роста ниже первого и второго переходов ограничения

поскольку, как видно на рис. 4, одновременно происходит уменьшение граничного пересыщения Dp^* . Если совместить значения Dp^* для двух разных температур с соответствующим сдвигом данных, то окажется, что в пределах разброса эти данные согласуются друг с другом. Поэтому, какой именно фактор — температура или близость к границе перехода — определяет изменение τ_{jump} , остается пока неясным.

До перехода в аномальное состояние кристалл растет довольно медленно. Его форма, как следует из рис. 3, почти не меняется, что говорит о пропорциональности скоростей роста a - и c -граней. Для роста кристаллов до пересыщений около 0.5 мбар этот факт отмечался ранее в работе [21]. Скорость роста c -границ, как видно из результатов съемки, меньше скорости роста a -граней, анизотропия ско-

рости V_a/V_c порядка 2–3.5. Скорости роста эквивалентных a -граней, как и для роста нормального кристалла, отличаются друг от друга в некоторых случаях почти на 50%, что свидетельствует о влиянии дефектов поверхности на кинетику роста. На рис. 6 приведены зависимости скорости роста кристаллов до перехода и кристаллов, нормально растущих вплоть до давления фазового равновесия. Поскольку, как отмечалось выше, наблюдается значительный разброс как анизотропии роста, так и абсолютных значений скорости роста, значения скорости были усреднены следующим образом. По зависимостям давления от времени для семи серий измерений определялось изменение объема кристалла в процессе роста. В качестве линейного размера кристалла принималась величина

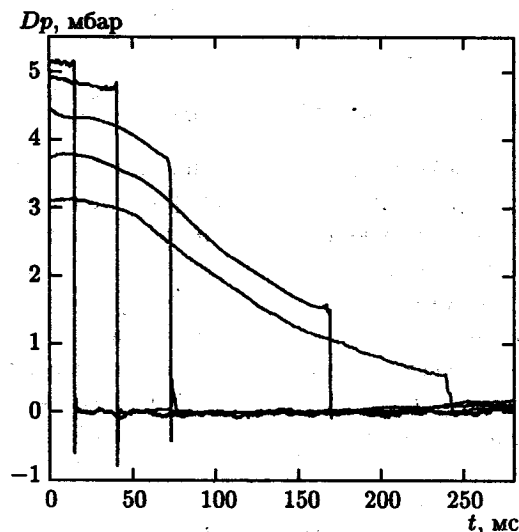


Рис. 4. Записи падения давления в контейнере во время роста кристалла при $T = 0.639$ К с различными начальными пересыщениями. Увеличение Dp_0 приводит к уменьшению времени образования аномального состояния

$$R = \left(\frac{3}{4\pi} V_c \right)^{1/3}$$

(V_c — объем кристалла). Продифференцировав функцию $R(t)$, получаем среднюю скорость роста, связанную со скоростями роста a - и c -граней соотношением (П.7). Результаты, полученные на кристаллах, у которых не наблюдался переход вплоть до завершения роста, изображены светлыми кружками. Темными символами показаны результаты такой обработки трех кривых с наибольшими временами задержки, представленных на рис. 4. Видно, что эти зависимости в пределах разброса согласуются. Таким образом, до перехода рост кристалла качественно и количественно не отличается от нормального роста при малых пересыщениях. А такой рост, как следует из ряда работ [11, 12, 21], обусловлен хорошо известными физическими механизмами, такими как спиральный рост и рост, индуцированный источниками Франка-Рида. Влияние дефектов проявляется, например, в том, что эквивалентные грани кристалла растут с различными скоростями, что приводит к разным размерам боковых граней (см. рис. 3).

Подводя итог этим экспериментам, сформулируем основные черты процесса образования аномального состояния кристалла гелия с быстрорастущей поверхностью.

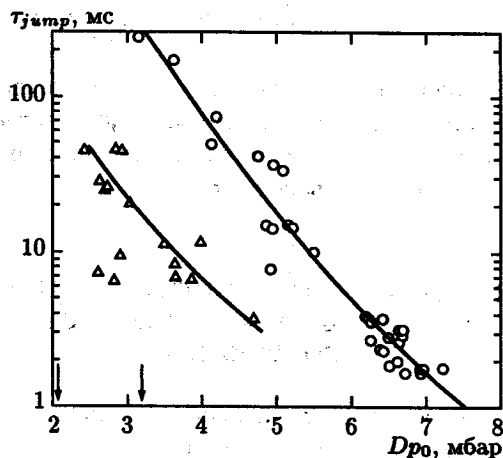


Рис. 5. Зависимость времени образования аномального состояния от начального пересыщения при 0.639 К (кружки) и 0.484 К (треугольники). Стрелки указывают положение границы аномальной области при этих температурах

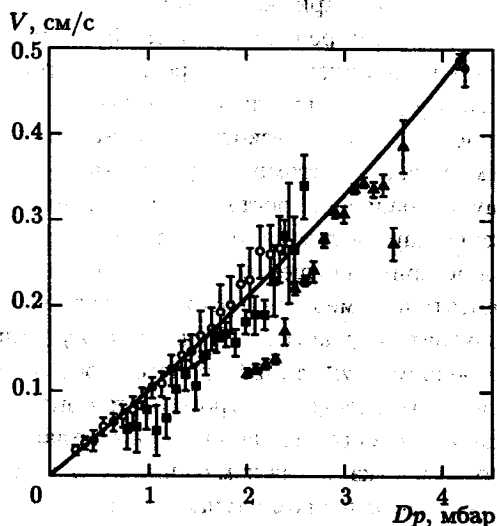


Рис. 6. Усредненная скорость роста кристалла в нормальном состоянии (светлые кружки) при $T = 0.639$ К и результаты обработки тем же способом (см. текст) трех кривых падения давления, показанных на рис. 4 (темные символы)

1. Переход в аномальное состояние осуществляется лишь в том случае, когда начальное пересыщение превышает граничное пересыщение, соответствующее фазовой диаграмме [17], $Dp_0 > Dp^*$.

2. Время задержки между возникновением кристалла и началом быстрого роста увеличивается по мере приближения к границе перехода.

3. Значения задержки имеют значительный разброс.

4. До начала быстрого роста кинетика граней определяется дефектами поверхности и качественно и количественно не отличается от кинетики при малых (< 1 мбар) пересыщениях.

5. КИНЕТИКА РОСТА КРИСТАЛЛА ПОСЛЕ ПЕРЕХОДА В АНОМАЛЬНОЕ СОСТОЯНИЕ

После перехода в аномальное состояние рост кристалла идет настолько быстро, что в объеме контейнера возбуждаются радиальные акустические колебания с частотой порядка 2–3 кГц [16]. Это приводит к тому, что теперь в жидкости существует градиент давления, и показания датчика, расположенного на стенке, не совпадают со значениями давления на границе кристалла. Существенно также, что рост и плавление кристалла являются несимметричными процессами. При росте форма кристалла, как видно на рис. 7, определяется медленно растущими гранями. При плавлении, наоборот, его форма является результатом расплавления поверхностей с высоким значением кинетического коэффициента роста, в нашем случае — атомно-шероховатых участков. Поэтому в уравнения роста войдут различные кинетические параметры на этапах роста и плавления кристалла, причем существенно и отношение площадей относительно медленно растущих граней и атомно-шероховатых участков. Ниже мы ограничимся рассмотрением двух стадий процесса роста кристалла: начального участка быстрого роста кристалла от момента образования до начала первого плавления и конечного участка, когда изменения давления становятся малыми. В первом случае, как видно на снимках процесса роста (рис. 7), кристалл растет в виде шестигранной призмы, сохраняя свою форму, и его кинетика определяется только гранями, что позволяет найти кинетический коэффициент роста граней в аномальном состоянии. Во втором случае затухание колебаний системы кристалл–жидкость в основном должно определяться кинетикой роста/плавления атомно-шероховатых участков поверхности кристалла, что позволяет оценить влияние перехода на кинетику атомно-шероховатых поверхностей.

5.1. Рост кристалла после возникновения

Рассмотрим сферически-симметричную задачу роста кристалла в контейнере радиусом R_0 , полагая

скорость роста граней V пропорциональной пересыщению:

$$V = K \frac{\Delta \rho}{\rho \rho'} D p = K \left((s - s') \Delta T + \frac{\Delta \rho}{\rho \rho'} p \right), \quad (1)$$

где ρ — плотность, s — энтропия единицы массы, ΔT и p — отклонения температуры и давления от линии фазового равновесия. Символы со штрихами относятся к твердой фазе, без штрихов — к жидкости. В области температур, для которой рассматривается данная задача, энтропии твердой и жидкой фаз практически одинаковы и мера неравновесности с хорошей точностью равна p (подробнее см. [24]). Уравнения течения идеальной сжимаемой жидкости следующие:

$$\Delta \varphi - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial t^2} = 0, \quad (2)$$

$$v = \frac{\partial \varphi}{\partial r}, \quad p = -\rho \frac{\partial \varphi}{\partial t},$$

где c — скорость звука. Граничные условия

$$v(r_0) = -\frac{\Delta \rho}{\rho} V = -\frac{\Delta \rho}{\rho} K \frac{\Delta \rho}{\rho \rho'} p(r_0) =$$

$$= K \frac{\Delta \rho^2}{\rho \rho'} \frac{\partial \varphi}{\partial t} \Big|_{r=r_0}, \quad (3)$$

$$v(R_0) = \frac{\partial \varphi}{\partial r} \Big|_{r=R_0} = 0$$

учитывают отсутствие потока жидкости на стенке контейнера и уравнение непрерывности на границе кристалла. В данной задаче кристалл рассматривается как сфера радиусом r_0 с изотропным коэффициентом роста K . Начальные условия в момент возникновения кристалла имеют вид

$$p(r) = p_0, \quad v(r) = \begin{cases} -K \frac{\Delta \rho^2}{\rho^2 \rho'} p_0, & r = 0, \\ 0, & r > 0. \end{cases} \quad (4)$$

Для малых отклонений поверхности кристалла от равновесной формы уравнения (2) с граничными условиями (3) дают осциллирующий рост кристалла с затуханием, которое определяется величиной параметра K (см. [16]). На интересующем нас этапе малого параметра нет, и необходимо решить нестационарную задачу роста кристалла совместно с распространением волны первого звука в объеме контейнера. Результаты численного расчета приведены в Приложении.

На рис. 8 приведены зависимости средних значений коэффициента роста от начального пересыщения при двух температурах. Как видно из графика, кинетический коэффициент роста увеличивается по мере отдаления от границы перехода, что

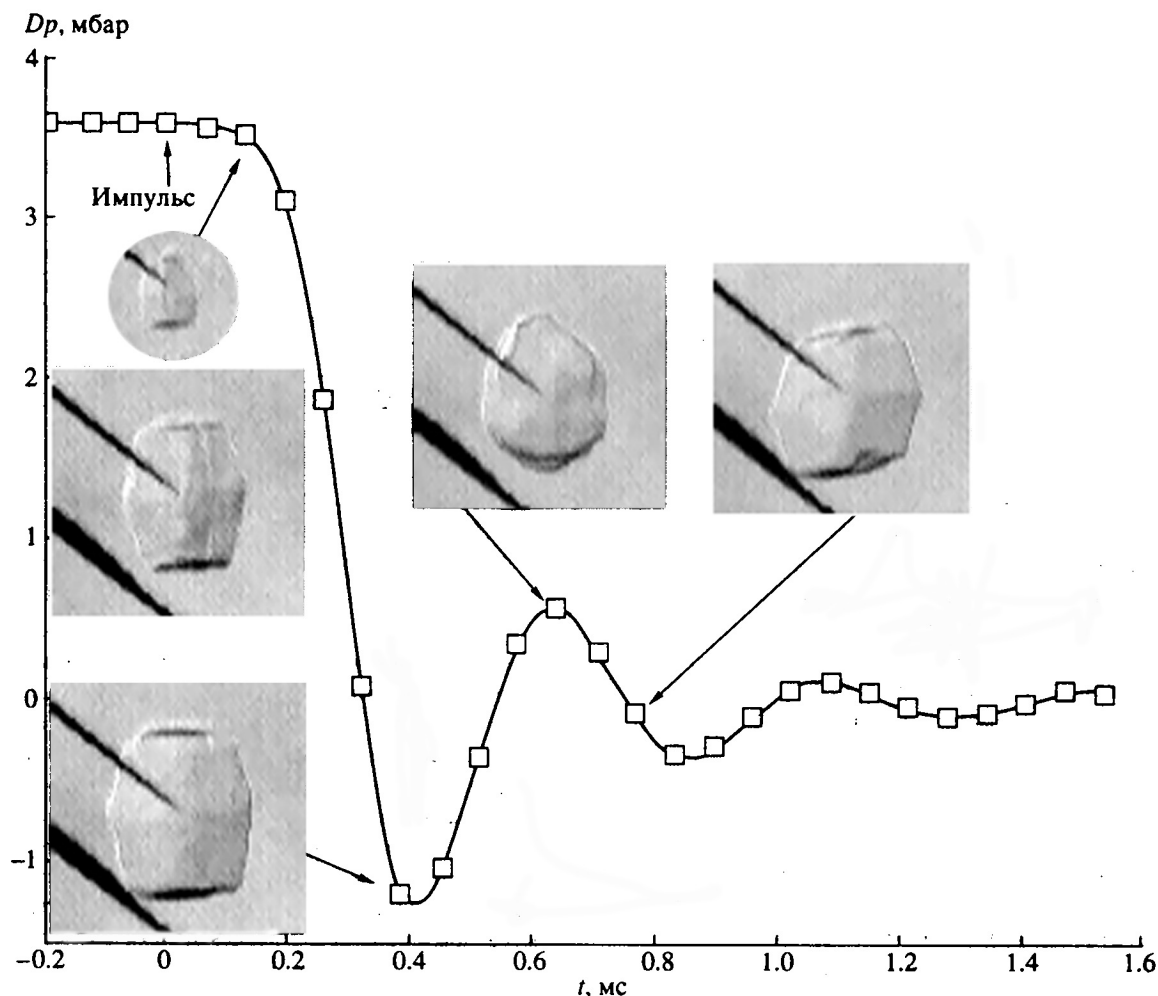


Рис. 7. Осциллирующий рост кристалла при $T = 0.484$ К и $Dp_0 = 3.6$ мбар. Видны кинетическая огранка в процессе роста и округление кристалла при плавлении.

качественно согласуется с поведением затухания осцилляций давления, описанным в работе [16]. Тем не менее абсолютные значения K при $T = 0.484$ К и $Dp_0 = 8$ мбар почти в 40 раз меньше соответствующих значений для атомно-шероховатой поверхности при той же температуре. Темными квадратами показаны значения K для кривых роста с задержками скачка относительно момента возникновения кристалла на 14–240 мс (рис. 4). В пределах разброса эти точки согласуются со значениями, определенными с малой задержкой (< 10 мс), для которых переход к быстрому росту происходит практически при том же пересыщении, при котором возникает кристалл. Это означает, что кинетические свойства поверхности на этапе быстрого роста определяются

не давлением, при котором происходит переход, а начальным пересыщением в жидкости.

5.2. Затухание колебаний при завершении роста

Как отмечалось выше, рост и плавление кристалла в общем случае обусловлены кинетикой всей поверхности кристалла, и только по зависимостям $p(t)$ разделить вклады граней и атомно-шероховатых поверхностей невозможно. Однако по мере затухания колебаний давления наступает момент, когда амплитуда колебаний становится настолько малой, что плавления–затвердевания одних только атомно-шероховатых участков достаточно, чтобы ком-

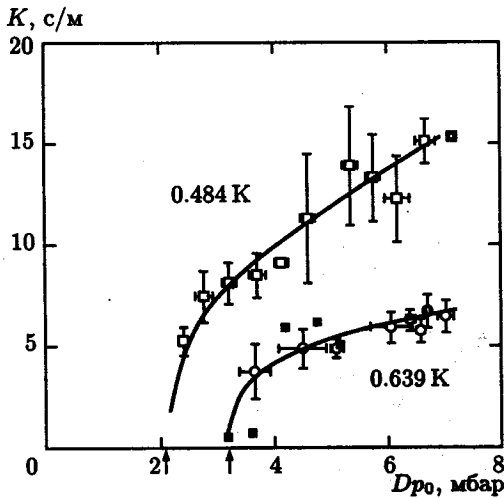


Рис. 8. Зависимости кинетического коэффициента роста граней, определенные на первой стадии осциллирующего роста кристалла. Светлыми символами показаны данные, полученные при временах образования аномального состояния, меньших 10 мс. Темными квадратами изображены результаты обработки кривых рис. 4. Стрелки показывают границу аномальной области для данных температур

пенсировать изменение плотности жидкости. Ниже этой амплитуды p_{low} кинетика роста, а значит, и затухание определяются кинетическим коэффициентом роста только атомно-шероховатых участков. Измеряя затухание осцилляций давления ниже этого порога, можно определить кинетический коэффициент роста поверхности через время порядка 0.5–1 мс после начала быстрого роста кристалла.

Пороговое давление p_{low} определяется из геометрических соображений. Поскольку скорость роста граней намного меньше скорости роста шероховатых участков, для оценки будем считать грани неподвижными. В этом случае рост кристалла определяется только шероховатыми поверхностями. Граничное давление соответствует ситуации, когда при максимальном расплавлении поверхность тем не менее будет еще касаться боковой грани (мы выбираем боковые грани, поскольку, как видно на рис. 7, поперечный размер кристалла больше его толщины). Полагая отношение поперечного размера к толщине равным $L_a/L_c = r$, получим, что для значений $r = 2-4$ отношение p_{low}/Dp_0 лежит в интервале 0.15–0.1. На рис. 9а приведена запись осцилляций давления при росте кристалла, на которой хорошо видны шесть периодов. Значения амплитуд

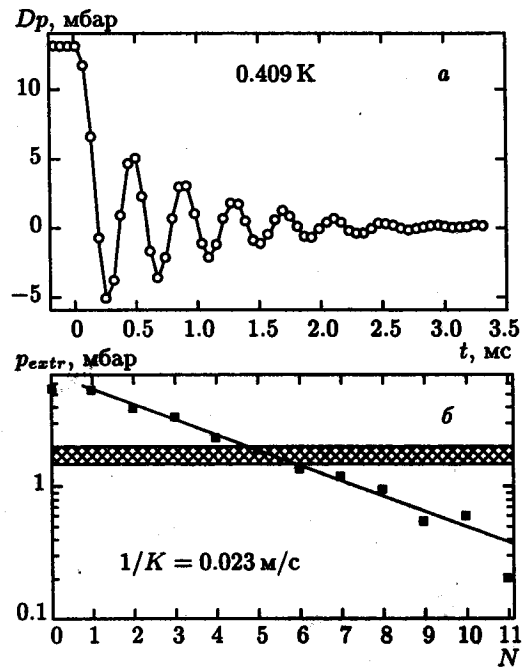


Рис. 9. Осцилляции давления при росте кристалла в глубине аномальной области (а). Уменьшение амплитуд давления со временем (б), N — номер полупериода осцилляций кривой на рис. а. Заштрихована область пересыщений, где должно было бы наблюдаться изменение декремента затухания колебаний, если бы кинетический коэффициент роста атомно-шероховатых поверхностей в аномальном состоянии соответствовал коэффициенту, измеренному при малых пересыщениях на нормальных кристаллах

экстремумов в полулогарифмическом масштабе показаны на рис. 9б. Видно, что декремент затухания как выше $p_{low} \approx 1.5$ мбар, так и ниже этого давления имеет одно и то же значение. По величине затухания можно определить кинетический коэффициент роста атомно-шероховатых поверхностей в аномальном состоянии, $1/K = 0.023$ м/с. Это значение промежуточное между коэффициентом роста аномальных граней ($1/K_{facet} = 0.071$ м/с) и коэффициентом роста атомно-шероховатых поверхностей ($1/K_{rough} = 4.5 \cdot 10^{-4}$ м/с), измеренным ранее методом кристаллизационных волн [5] при малых отклонениях от равновесия.

Таким образом, скорость роста атомно-шероховатых поверхностей больше скорости роста граней, что согласуется с наблюдаемой кинетической огранкой кристалла на стадии роста и с изменением его формы в процессе плавления. Тот факт, что кинетический коэффициент роста поверхности

аномального кристалла значительно меньше коэффициента роста поверхности нормального кристалла, может быть интерпретирован двумя способами. Во-первых, это уменьшение подвижности поверхности может быть связано с изменением физического механизма, ответственного за движение элементарных дефектов поверхности — ступенек. При таких пересыщениях и температурах скорость роста поверхности доходит приблизительно до 10 м/с, а скорость движения ступеней, как следует из оценки их подвижности по данным работ [5, 22, 25], выходит на константу, приближаясь к скорости звука. Подобный случай применительно к спиральному росту грани был рассмотрен в работе [12]. Из теоретического анализа работы следует, что в этой «релятивистской» ситуации подвижность ступеней уменьшается. Вторая возможность связана с изменением состояния кристалла и, как следствие, кинетики его поверхности. Для разделения этих вариантов следует измерить кинетический коэффициент роста в условиях, когда вязкость среды достаточно велика и скорость ступеней значительно меньше скорости звука. Как показывают оценки, при пересыщениях до 15 мбар эти условия выполняются при температуре выше 0.6 К. В этой области затухание осцилляций давления слишком велико, что не позволило экспериментально определить, изменяется ли декремент при малых амплитудах.

6. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Суммируем основные черты кинетики образования аномального перехода. Как видно из экспериментальных результатов, процесс, приводящий к возникновению аномального состояния, инициируется внешним пересыщением. Этот процесс имеет значительную длительность вблизи критического пересыщения Dp^* , но по мере отдаления от фазовой границы значительно ускоряется. Сама граница между аномальной и нормальной областями, возможно, носит кинетический характер. Иными словами, этот переход не наблюдается при $Dp < Dp^*$ лишь потому, что время образования быстрого состояния становится больше времени роста кристалла. Кинетика роста кристалла до перехода не отличается качественно и количественно от кинетики роста нормальных кристаллов, т. е. процесс, приводящий к переходу, не отражается на скорости роста граней до момента наступления перехода. Такой характер явления еще больше сближает его с наблюдаемым в интервале температур 0.02–0.25 К явлением «взрыв-

ного» роста бездислокационных граней кристалла. Ранее в работе [15] предположение об общности физических механизмов этих явлений высказывалось на основании схожести их фазовых диаграмм.

Другой качественный момент состоит в том, что изменение кинетики не вызвано только поверхностным переходом. Этот вывод был сделан в работе [16] на основании результатов съемки кристаллов в режиме осциллирующего роста. Как видно на рис. 7, после стадии роста начинается расплавление кристалла, сопровождающееся исчезновением граней. Если бы эффект был связан только с поверхностью, то на следующем этапе роста, начинающемся при пересыщении, которое на фазовой диаграмме соответствует области нормального роста, скорости роста граней были бы на 2–3 порядка меньше и осцилляции прекратились бы. Поскольку в эксперименте такая ситуация не наблюдается, причина высокой подвижности лежит в объеме. Косвенно этот вывод подтверждается ранее отмеченным фактом, что переход осуществляется одновременно на всех гранях, а также тем, что атомно-шероховатые поверхности аномального кристалла имеют иную мобильность, чем атомно-шероховатые поверхности нормального кристалла.

Наблюдение осцилляционного роста кристалла показывает, что время существования аномального состояния после его возникновения более 3 мс (см. рис. 9). Измерение хода давления после завершения роста кристалла, связанное с подтоком жидкости в контейнер, позволило сделать заключение, что приблизительно через 100 мс кинетика граней становится нормальной. Таким образом, за время меньше 100 мс происходит релаксация кристалла к равновесному состоянию.

Из изложенного следует, что природа эффекта лежит в изменении объемных свойств, имеет кинетический характер и проявляется в ускорении роста граней. На основании экспериментальных данных пока невозможно сказать, какого рода перестройка объема и где — в кристалле или в жидкости — происходит. В рамках существующих моделей это явление не находит своего объяснения. Поэтому рассмотрим факторы, не учтенные в модели классического спирального роста. В этой модели полагают, что центр спирали, связанный с винтовой дислокацией, неподвижен. Такое предположение правомерно для роста кристаллов при высоких температурах, при которых фонная вязкость очень велика. В случае гелия при температурах близких к абсолютному нулю вязкость мала и убывает с понижением температуры по степенному закону T^n , где $n = 3-5$ [26–30].

Это означает, что вращение ростовой спирали может привести к возбуждению колебаний дислокации и дополнительной диссипации, связанной с трением дислокации. Этот процесс вызовет, с одной стороны, нагревание кристалла и, с другой стороны, возбуждение дислокационной подсистемы кристалла. Для качественной оценки этого эффекта ограничимся областью температур выше 0.55 К, в которой вплоть до пересыщений порядка 15 мбар скорость индивидуальных ступенек много меньше скорости звука, поправки из работы [12] малы и применимы классические соотношения для спирального роста. Рассматривая движение дислокации в приближении струнной модели Келера [31], можно получить приближенное выражение для мощности, передаваемой дислокации ростовой спиралью:

$$P \approx \frac{\beta^2}{C} \sqrt{\frac{C}{A}} \frac{\eta}{1 + 2\eta^3/2}, \quad \eta = \frac{1}{2\omega} \frac{B}{A}. \quad (5)$$

Здесь β — линейная энергия ступеньки, ω — угловая частота вращения ростовой спирали, а A , B и C — параметры струнной модели, определяемые выражениями

$$\begin{aligned} A \frac{\partial^2 \zeta}{\partial t^2} + B \frac{\partial \zeta}{\partial t} - C \frac{\partial^2 \zeta}{\partial z^2} &= 0, \\ A &= \frac{\rho' b^2}{\pi}, \quad C = \frac{2Gb^2}{\pi(1-\nu)}, \end{aligned} \quad (6)$$

где ρ' — плотность твердого гелия, b — вектор Бюргера, G — модуль сдвига, ν — коэффициент Пуассона. Численная оценка для концентрации дислокаций $A = 2 \cdot 10^5 \text{ см}^{-2}$ (определена для кристаллов, выращенных на игле [21], по значению порогового пересыщения, с которого начинается рост грани) показывает, что дополнительная диссипация, связанная с дислокациями, пренебрежимо мала. В указанном интервале температур до пересыщений порядка 15 мбар этот вклад не превышает 1% от энергии фазового перехода. Таким образом, энергия колебаний дислокаций, возбуждаемых спиральным ростом, намного меньше характерных энергий процесса роста. По этой причине указанный механизм вряд ли существенно воздействует на состояние кристалла и маловероятно, что это явление приведет к наблюдаемому переходу в состояние с быстрорастущей поверхностью.

Другое допущение классической модели состоит в том, что течение жидкости к поверхности во время спирального роста рассматривается как ламинарное и безвихревое. Это, по-видимому, верно для роста обычных кристаллов, когда скорость подтока жидкости к границе мала. В нашем случае подвижность

ступенек велика, так что их скорость может приближаться к скорости звука. Увлечение жидкости ростовой спиралью создает возмущение ламинарного потока, что, возможно, приводит к рождению вихрей. Вихревая нить, притягиваясь к твердой границе, в принципе может породить ступеньки на поверхности и, таким образом, создать центры роста грани. Действительно, течение жидкости вблизи кора вихря понижает давление, т. е. способствует плавлению кристалла. Как следует из оценки, на расстоянии порядка 10^{-7} см рождение ступеней происходит беспороговым образом. Однако численные оценки возможности рождения вихрей ротовыми спиралями весьма пессимистические. Приняв в качестве присоединенной массы значения, выведенные в работах [32, 22], получим, что энергия и момент импульса жидкости слишком малы, чтобы породить вихревую линию, выходящую из центра ростовой спирали и замыкающуюся на спирали с противоположным направлением вращения (источник Франка-Рида). Рождение вихревых колец спиралью роста остается открытым вопросом, поскольку вблизи движущейся ступеньки течение жидкости потенциально. Таким образом, маловероятно, что спиральный рост порождает в сверхтекучей жидкости вихри с концентрацией, достаточной для изменения кинетики роста грани.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования образования аномального состояния кристалла гелия с быстрорастущей поверхностью, рожденного коротким электростатическим импульсом в метастабильном сверхтекучем гелии, показали, что возникновение состояния требует значительного времени, увеличивающегося по мере приближения к границе аномальной области. Наблюдения осциллирующего роста кристалла продемонстрировали, что это явление не связано только с изменениями поверхностных свойств. Таким образом, аномальное состояние развивается под воздействием внешнего пересыщения, приводящего, как видно из экспериментальных данных, к изменению свойств объема кристалла или жидкости. Из рассмотрения явлений, сопутствующих спиральному росту (колебание дислокации и рождение вихрей), следует, что вряд ли эти механизмы приводят к наблюдаемому переходу. К тому же оба этих механизма требуют наличия достаточного количества дислокаций. Если данный эффект и явление «взрывного» роста грани [12] имеют общую

физическую природу, то переход в состояние с быстрорастущей поверхностью вообще не связан с дислокациями, поскольку во втором случае быстрый рост наблюдается именно на бездислокационной грани. Таким образом, наблюдаемое явление не удастся объяснить в рамках известных моделей, модифицируя и распространяя их на случай роста кристаллов гелия в сверхтекучей жидкости.

Автор признателен Л. А. Максимова за многочисленные обсуждения в процессе работы, Ю. М. Кагану за ценное обсуждение результатов и идеи, высказанные во время дискуссий, а также Л. Б. Дубовскому и С. Н. Бурмистрову за полезные рабочие обсуждения. Особенная благодарность А. Я. Паршину за обстоятельные критические обсуждения экспериментальных результатов и их интерпретации. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 99-02-17289).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Рассмотрим сферически-симметричную задачу роста кристалла в контейнере. В этом приближении пренебрегаем несферичностью контейнера (отношение перпендикулярных размеров 1 : 2) и заменяем реальный кристалл, растущий в виде гексагональной призмы с отношением размеров 1 : k, где k = 2-3, сферой того же объема. Кинетический коэффициент роста считается изотропным. Перейдем к одномерной задаче с помощью подстановки

$$\varphi(r, t) = \frac{f(r, t)}{r}, \quad (\text{П.1})$$

приводя уравнения (2)-(4) к безразмерному виду заменой

$$\begin{aligned} R_0 r \rightarrow r, \quad t \frac{R_0}{c} \rightarrow t, \quad cv \rightarrow v, \\ \rho c^2 p \rightarrow p, \quad c R_0^2 f \rightarrow f, \end{aligned} \quad (\text{П.2})$$

и введем безразмерный параметр λ , пропорциональный подвижности поверхности:

$$\lambda = cK \frac{\Delta \rho^2}{\rho \rho'} = K \cdot 3.53 \frac{\text{м}}{\text{с}}. \quad (\text{П.3})$$

Тогда уравнения (2) и граничные и начальные условия (3), (4) примут вид

$$\frac{\partial^2 f}{\partial t^2} - \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} = 0, \quad v = \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{f}{r} \right), \quad p = -\frac{1}{r} \frac{\partial f}{\partial t}, \quad (\text{П.4})$$

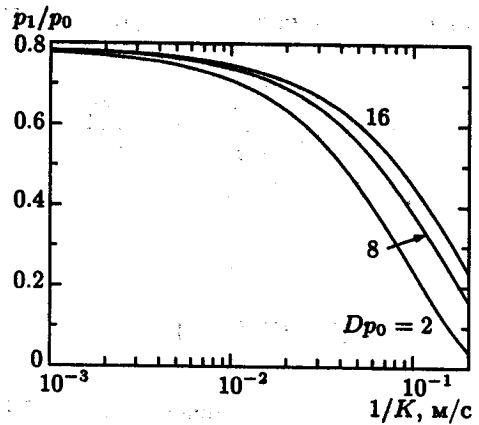


Рис. 10. Результаты численного расчета отношения амплитуды первого минимума давления, измеренного датчиком на стенке контейнера, к начальному пересыщению в зависимости от Dp_0 и кинетического коэффициента роста K . Постоянная интегрирования измерительной цепи равна 54 мкс

$$v(r_0, t) - \frac{\lambda}{r_0} \frac{\partial f}{\partial t} \Big|_{r=r_0} = 0, \quad (\text{П.5})$$

$$v(1, t) = \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{f}{r} \right) = 0,$$

$$p(r, 0) = p_0, \quad v(r, 0) = \begin{cases} -\lambda p_0, & r = 0, \\ 0, & 0 < r < 1. \end{cases} \quad (\text{П.6})$$

Решение этой задачи дает зависимость давления от времени на стенке контейнера, где расположен емкостной датчик. Заметим, что в случае быстрого роста с задержкой (см. выше) начальное значение радиуса кристалла полагалось конечным, определенным по давлению, при котором начинается быстрый рост. Затем сигнал свертывался с передаточной функцией измерительной системы. На рис. 10 для иллюстрации метода приведены расчеты отношения амплитуды первого минимума давления к стартовому пересыщению для трех начальных пересыщений и постоянной интегрирования передаточной функции 54 мкс, использованной в данной серии опытов. Видно, что по отношению амплитуд можно определить кинетический коэффициент роста, если $1/K = 0.01-0.2$ м/с.

Поскольку реальный кристалл имеет анизотропный коэффициент роста, приведем соотношения, связывающие усредненный кинетический коэффициент роста K_0 с коэффициентами роста граней. Для этого необходимо по форме кристалла опреде-

лить отношение средних скоростей роста, $V_a/V_c = r$.
Тогда

$$K_c = K_0 \frac{1}{r^{2/3}} \frac{\pi^{1/3}}{\sqrt{3}} \approx K_0 \frac{0.846}{r^{2/3}}, \quad (\text{П.7})$$

$$K_a \approx K_0 r^{1/3} 0.846.$$

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Ф. Андреев, А. Я. Паршин, ЖЭТФ 75, 1511 (1978).
2. К. О. Кешишев, А. Я. Паршин, А. В. Бабкин, Письма в ЖЭТФ 30, 63 (1979).
3. S. Balibar and B. Castaing, J. de Phys. Lett. 41, 329 (1980).
4. J. A. Avron, L. S. Balfour, C. G. Kuper, J. Landau, S. G. Lipson, and L. S. Schulman, Phys. Rev. Lett. 45, 814 (1980).
5. К. О. Кешишев, А. Я. Паршин, А. В. Бабкин, ЖЭТФ 80, 716 (1981).
6. S. Balibar, F. Gallet, and P. E. Wolf, Phys. Rev. Lett. 51, 1366 (1983).
7. А. Ф. Андреев, В. Г. Книжник, ЖЭТФ 83, 416 (1982).
8. R. M. Bowley and D. O. Edwards, J. de Phys. 44, 723 (1983).
9. Л. А. Максимов, В. Л. Цымбаленко, ЖЭТФ 114, 1313 (1998).
10. А. А. Чернов, *Современная кристаллография*, т. 3, Наука, Москва (1980).
11. S. Balibar, F. Gallet, P. Nozieres, E. Rolley, and P. E. Wolf, J. de Phys. 46, 1987 (1985).
12. J. P. Ruutu, P. J. Hakonen, A. V. Babkin, A. Ya. Parshin, and G. Tvalashvili, J. Low Temp. Phys. 112, 117 (1998).
13. V. L. Tsymbalenko, Phys. Lett. A 211, 177 (1996).
14. V. L. Tsymbalenko, Phys. Lett. A 248, 267 (1998).
15. V. L. Tsymbalenko, Phys. Lett. A 257, 209 (1999).
16. V. L. Tsymbalenko, Phys. Lett. A 274, 223 (2000).
17. V. L. Tsymbalenko, J. Low Temp. Phys. 121, 53 (2000).
18. V. L. Tsymbalenko, Cryogenics 36, 65 (1996).
19. В. Л. Цымбаленко, ПТЭ №4, 161 (1997).
20. В. Л. Цымбаленко, ПТЭ №2, 78 (1999).
21. В. Л. Цымбаленко, ФНТ 21, 162 (1995).
22. P. Nozieres and M. Uwaha, J. de Phys. 48, 389 (1987).
23. Ю. М. Каган, И. М. Лифшиц, ЖЭТФ 62, 385 (1972).
24. V. L. Tsymbalenko, J. Low Temp. Phys. 88, 55 (1992).
25. О. А. Андреева, К. О. Кешишев, С. Ю. Осипьян, Письма в ЖЭТФ 49, 661 (1989).
26. I. Iwasa, S. Wales, and R. Wanner, Sol. St. Comm. 18, 853 (1976).
27. K. Araki, I. Iwasa, and H. Suzuki, J. Phys. Soc. Jap. 46, 1119 (1979).
28. Y. Hiki and F. Tsuruoka, Phys. Lett. A 56, 484 (1976); Phys. Rev. B 20, 2702 (1979).
29. В. Л. Цымбаленко, ЖЭТФ 74, 1507 (1978); ЖЭТФ 87, 943 (1984).
30. D. J. Bishop, H. W. Dail, and M. A. Paalanen, Phys. Rev. Lett. 46, 664 (1981).
31. J. S. Koehler, in *Imperfections in Nearly Perfect Crystals*, New York (1952).
32. А. М. Косевич, Ю. А. Косевич, ФНТ 7, 1347 (1981).