

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕРХНОСТИ КРИСТАЛЛОВ <sup>4</sup>He

*К. О. Кешишев, В. И. Марченко, Д. Б. Шемятихин*

*Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук  
119334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 12 декабря 2012 г.

Прослежена эволюция менисков кристаллов гелия вблизи грани (0001) при изменении граничных условий на стенке камеры в диапазоне температур 0.5–0.9 К. Выяснен характер критического поведения краевого угла. Обнаружена анизотропия энергии границы кристалл–стекло. Получены новые данные о температурной зависимости энергии элементарных ступеней.

DOI: 10.7868/S0044451013040071

В настоящей работе мы продолжили изучение поведения краевого угла, возникающего при выходе границы двух конденсированных фаз <sup>4</sup>He (кристалл–сверхтекучая жидкость) на твердую стенку. Постановка задачи и подробное описание оптической методики были изложены в предыдущих публикациях [1, 2]. Напомним лишь, что метод заключается в фотографировании кристалла в параллельном свете с последующей цифровой обработкой изображения. С целью улучшения изображения была существенно изменена конструкция криостата. В новом варианте оптический тракт проходит через окна, расположенные в вакуумном пространстве криостата, и не встречает на своем пути жидкий гелий. В результате, удалось снизить уровень шумности изображения в несколько раз.

На рис. 1 схематично изображено поперечное сечение экспериментальной камеры с кристаллом в нижней ее части. Напомним также, что при анализе профиля менисков вблизи стенок камеры рассматривается двумерная задача в плоскости сечения, поскольку продольный размер камеры (29 мм) значительно превышает величину капиллярной постоянной  $\lambda \sim 1$  мм. Кристалл ориентирован таким образом, что базисная плоскость (0001) расположена горизонтально. Плоскость  $xz$  прямоугольной системы координат совпадает с плоскостью сечения, и ось  $z$  вертикальна. Межфазная граница в силу выбранной конфигурации боковых стенок имеет  $S$ -образную форму, которой соответствует функция  $Z(x)$ . Таким образом, угол

$$\theta = \arctg(dZ/dx)$$



Рис. 1. Поперечное сечение экспериментальной камеры

определяет наклон поверхности в данной точке относительно плоскости (0001). В точке окончания поверхности на стенке  $\theta = \theta_0$ , и именно угол  $\theta_0$  является одной из величин, измеряемых в нашем эксперименте. Вторая измеряемая величина  $\psi$  есть угол наклона стенки относительно оси  $C_6$  кристалла в точке касания.

Краевой угол  $\Omega_R$  с правой стенкой равен

$$\Omega_R = \psi - \theta_{R0} + \frac{\pi}{2}. \tag{1}$$

Он связан с поверхностной энергией кристалла  $\alpha(\theta)$ , энергией кристалл–стенка  $\varepsilon_s$  и энергией жидкость–стенка  $\varepsilon_l$  соотношением

$$\alpha(\theta_{R0}) \cos \Omega_R + \alpha'_\theta(\theta_{R0}) \sin \Omega_R = -\Delta\varepsilon, \tag{2}$$

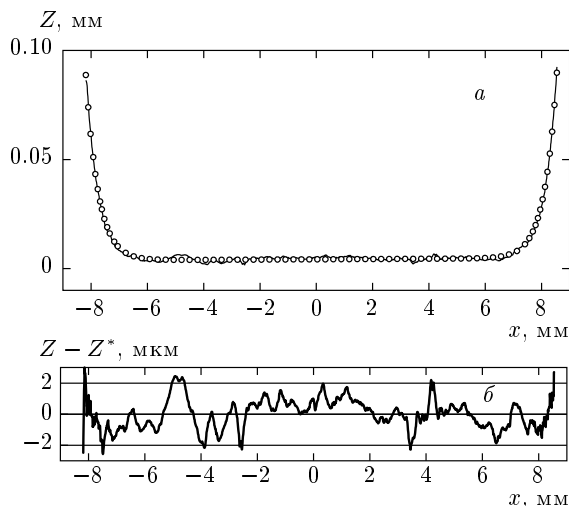


Рис. 2. *a* — Форма  $Z(x)$  мениска жидкого <sup>4</sup>He (линия), теоретический профиль показан кружками; *б* — отклонение экспериментальной кривой от расчетной

где

$$\Delta\varepsilon = \varepsilon_s - \varepsilon_l.$$

Краевой угол у левой стенки равен

$$\Omega_L = \psi + \theta_{L0} + \frac{\pi}{2}. \tag{3}$$

Граничное условие у левой стенки имеет вид

$$\alpha(\theta_{L0}) \cos \Omega_L - \alpha'_\theta(\theta_{L0}) \sin \Omega_L = -\Delta\varepsilon. \tag{4}$$

Правая и левая стенки изготовлены из одного и того же материала (полированное стекло). Поэтому, при горизонтальной ориентации базисной плоскости кристалла благодаря наличию винтовой оси второго порядка  $C_2$  в группе симметрии кристалла на обеих стенках при одинаковых значениях  $\psi$  должно реализоваться одно и то же физическое состояние. При повороте  $C_2$  угол  $\theta_{L0}$  меняет знак, и ниже мы будем представлять экспериментальные данные для единой функции

$$\theta_0(\psi) = \theta_{R0}(\psi) = -\theta_{L0}(\psi).$$

Для контроля возможностей нашей оптической методики были использованы результаты цифровой обработки фотографий двух тестовых образцов. На рис. 2*a* представлена форма  $Z(x)$  мениска жидкого <sup>4</sup>He, заполняющего нижнюю часть камеры. Здесь же представлена теоретическая зависимость формы поверхности в приближении малых углов  $\theta \ll 1$ :

$$Z^*(x) = A + B \operatorname{ch} \frac{x}{\Lambda}, \quad \Lambda = \sqrt{\frac{\alpha_l}{\rho_l g}},$$

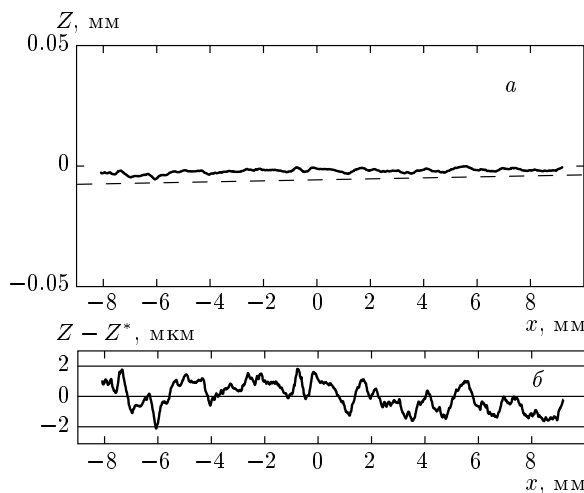


Рис. 3. *a* — Форма  $Z(x)$  для плоской растущей грани кристалла <sup>4</sup>He, штриховая линия показывает направление грани; *б* — отклонение экспериментальной кривой от прямой

где  $\alpha_l = 0.28$  эрг/см<sup>2</sup> — поверхностное натяжение жидкого <sup>4</sup>He при температуре  $T = 2.3$  К [3],  $\rho_l = 0.145$  г/см<sup>3</sup> — его плотность,  $g$  — ускорение поля тяжести. На рис. 2*б* представлена зависимость

$$\delta Z(x) = Z(x) - Z^*(x),$$

характеризующая отклонения экспериментальной кривой от расчетной, соответствующей оптимальному выбору подгоночных параметров  $A$  и  $B$ .

Аналогичные данные представлены на рис. 3 для кристалла, плоскость (0001) которого близка к горизонтали. Фотография сделана в процессе роста при температуре 0.88 К, т.е. ниже температуры перехода ограничения  $T_R$  базисной плоскости. При таких условиях межфазная граница совпадает с растущей гранью. На рис. 3*a* зависимость  $Z(x)$  аппроксимирована прямой

$$Z^* = A + Bx.$$

Отличие экспериментальных значений от оптимальной прямой показано на рис. 3*б*. В обоих случаях (рис. 2*б*, 3*б*) отклонения от реальной формы имеют случайный характер и составляют величину примерно  $\pm 2$  мкм, являясь основным источником погрешностей при определении формы поверхности. Изображение мениска жидкого гелия позволяет фиксировать направление горизонтали с точностью приблизительно  $2 \cdot 10^{-4}$  рад. По фотографиям растущей грани ее направление в плоскости  $xz$  определялось с точностью приблизительно  $2 \cdot 10^{-4}$  рад.

Начальная стадия эксперимента заключалась в выращивании небольшого ( $\sim 1 \text{ мм}^3$ ) кристалла, базисная плоскость которого была близка к горизонтали. Эта процедура была подробно описана в работах [1, 2]. Далее кристалл медленно подращивался до уровня стеклянных стенок. Скорость роста не превышала приблизительно  $1 \text{ мкм/с}$  и стабилизировалась путем контролируемого нагрева балластного объема, размещенного вне криостата. При этом давление в балласте превышало равновесное значение на величину около  $0.4 \text{ мбар}$ .

После стабилизации выбранной температуры проводилось фотографирование профилей кристалла на разных уровнях. Переход на следующие уровни осуществлялся путем либо последовательных подплавлений, либо подращиваний кристалла. Разность соседних уровней составляла  $0.2\text{--}0.5 \text{ мм}$ .

При достижении очередного уровня камера с кристаллом отключалась от балласта с помощью вентиля, размещенного вне криостата при комнатной температуре<sup>1)</sup>. В результате устанавливался квазиравновесный режим, сопровождающийся очень медленным потоком гелия из линии заполнения в камеру, вызванным понижением уровня жидкого гелия в  $4.2 \text{ К}$  ванне криостата. В этих условиях кристалл медленно рос со скоростью приблизительно  $5 \cdot 10^{-3} \text{ мкм/с}$ , практически не меняя своей формы.

Далее представлены результаты измерений для двух кристаллов. У первого образца базисная плоскость была наклонена в поперечном направлении (относительно оси  $x$ ) на угол  $2 \cdot 10^{-4} \text{ рад}$ , и в продольном направлении (относительно оси  $y$ ) на угол  $1.2 \cdot 10^{-3} \text{ рад}$ . Для второго образца поперечный наклон составлял  $8 \cdot 10^{-4} \text{ рад}$ , а продольный —  $6 \cdot 10^{-4} \text{ рад}$ . После измерения продольного наклона грани оптическая скамья наклонялась на измеренный угол, в результате чего устранялась непараллельность оптической оси относительно грани.

Первый образец фотографировался в ходе постепенного подплавления, второй последовательно подращивался. В обоих случаях для контроля релаксации поверхности фотографирование проводилось спустя  $20 \text{ мин}$ , а затем  $40 \text{ мин}$  после запираания камеры с помощью вентиля. В случае первого образца были получены две серии фотографий, соответствующие двум температурам:  $0.89 \text{ К}$ ,  $0.61 \text{ К}$ , для второго — три серии при температурах  $0.9$ ,  $0.72$  и  $0.53 \text{ К}$ .

<sup>1)</sup> К сожалению, в конструкции нашего прибора «холодный» вентиль не был предусмотрен.

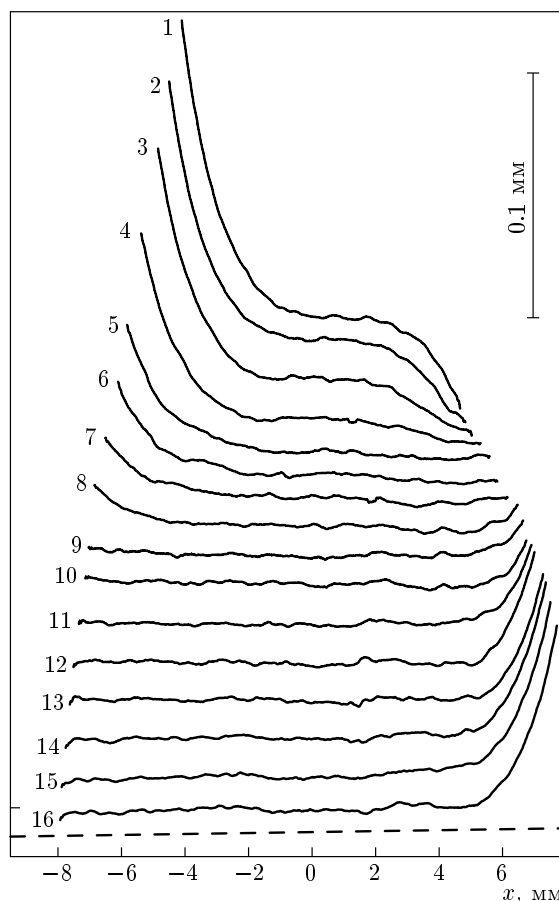


Рис. 4. Серия менисков кристалла при  $T = 0.61 \text{ К}$ . Штриховая линия показывает направление грани. Фотографии сделаны в процессе плавления

Результаты обработки двух из пяти серий представлены на рис. 4 (первый образец,  $T = 0.61 \text{ К}$ ) и на рис. 5 (второй образец,  $T = 0.9 \text{ К}$ ). Масштаб по оси ординат более чем в 60 раз превышает масштаб вдоль оси абсцисс. Все кривые максимально приближены друг к другу без соблюдения вертикального масштаба. Реальное расстояние по вертикали между серединами верхнего и нижнего профилей составляет приблизительно  $5 \text{ мм}$ .

С точки зрения равновесности форм поверхности, наблюдаемых во всех сериях, картина выглядит весьма неоднозначно.

Как известно, равновесная форма поверхности соответствует минимуму поверхностной и гравитационной энергий. Определяющую роль при этом играет поверхностная жесткость. В нашем случае речь идет о так называемой продольной жесткости  $\tilde{\alpha} = \alpha + \alpha''$ . Поверхностная жесткость исследовалась во многих работах [4–6] различными методами. Су-

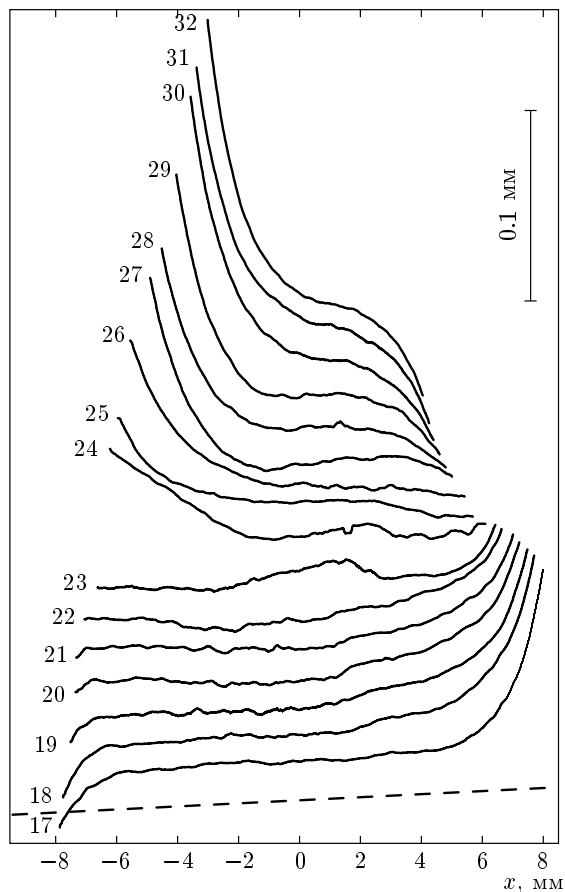


Рис. 5. Серия менисков кристалла при  $T = 0.9$  К. Штриховая линия показывает направление грани. Фотографии сделаны в процессе роста

щественный для нас результат заключается в следующем. В интервале температур  $0.4 \text{ К} < T < T_R$  для атомношероховатых участков поверхности при достаточно малых углах наклона  $\theta \lesssim 0.1$  рад поверхностная жесткость обладает весьма слабой анизотропией. Величина жесткости не зависит от температуры и составляет  $\tilde{\alpha}_0 \approx 0.245$  эрг/см<sup>2</sup>. Лишь при температурах ниже 0.3 К при малых углах  $\theta < 0.04$  рад было обнаружено [7] резкое уменьшение  $\tilde{\alpha}$ .

Для всех серий наших экспериментальных данных участки поверхности при не слишком малых углах наклона  $10^{-2} \lesssim \theta \lesssim 0.1$  рад соответствуют уравнению равновесия

$$\tilde{\alpha} Z''_{xx} = \Delta \rho Z, \tag{5}$$

где  $\tilde{\alpha} = \text{const} = 0.245$  эрг/см<sup>2</sup>,  $\Delta \rho$  — разность плотностей твердой и жидкой фаз.

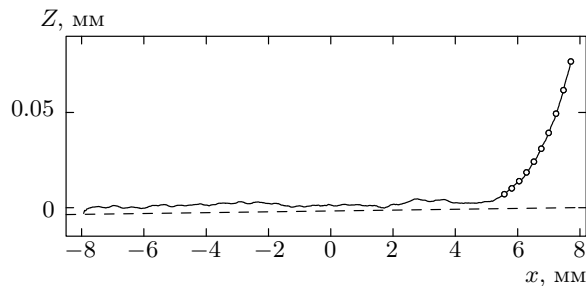


Рис. 6. Профиль № 16 при  $T = 0.61$  К (линия) и аппроксимация мениска (кружки)

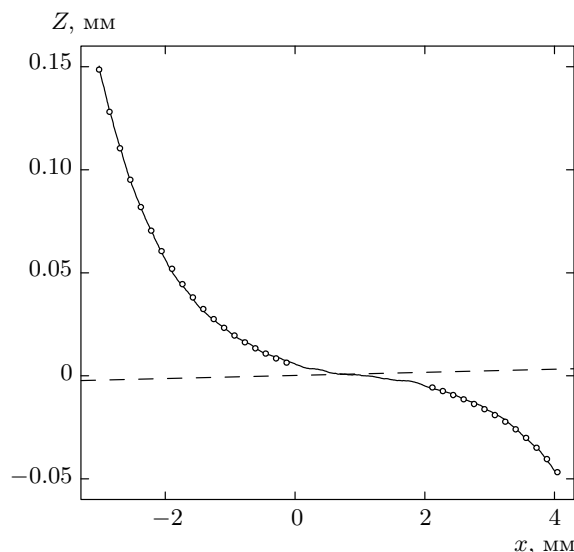


Рис. 7. Профиль № 32 при  $T = 0.9$  К (линия) и его аппроксимация (кружки)

На рис. 6 представлен результат аппроксимации<sup>2)</sup> профиля № 16 (рис. 4) с помощью решения уравнения (5)

$$Z = A \text{sh} \frac{x - x_0}{\Lambda},$$

где

$$\Lambda = (\tilde{\alpha} / \Delta \rho g)^{1/2}.$$

Штриховой линией показано измеренное направление грани (0001) с наклоном относительно горизон-

<sup>2)</sup> Заметим, что формы менисков могут быть описаны с удовлетворительной точностью [2] и как функции  $Z = \pm (x - x_0)^3 b^{-2}$ , где  $b \sim 1$  мм, которые соответствуют стандартной теории вицинальной поверхности, как эшелона ступеней, отталкивающихся по закону  $\propto x^{-2}$ . Такая картина, однако, противоречит результатам измерений величины  $\tilde{\alpha}$  по спектру кристаллизационных волн при не слишком малых углах.

тали  $2 \cdot 10^{-4}$  рад. Аналогичные результаты обработки профиля № 32 (рис. 5) представлены на рис. 7. В данном случае левый и правый участки профиля аппроксимированы формулами

$$Z_{\pm} = A \operatorname{sh} \frac{x - x_{\pm}}{\Lambda}$$

с одной и той же амплитудой  $A$  и параметрами  $x_{\pm}$ , различающимися на  $\approx 1$  мм.

Таким образом, можно утверждать, что при не слишком малых углах  $10^{-2} \lesssim \theta \lesssim 10^{-1}$  поверхность находится в равновесном состоянии.

Совершенно иная картина наблюдается при углах  $\theta \lesssim 10^{-2}$  рад. Здесь часто возникают немонотонные профили, что свидетельствует об отсутствии равновесия (см. рис. 4, 5). Протяженность таких участков вдоль оси  $x$  меняется в пределах нескольких миллиметров, а нерегулярные отклонения по вертикали составляют 10–20 мкм. Обычно подобные явления связываются с дефектностью кристалла, прежде всего с присутствием дислокаций, и мы не можем исключить подобного объяснения. Можно лишь напомнить, что кристаллы выращивались с соблюдением всех необходимых в таких случаях мер предосторожности.

Вместе с тем, в ряде случаев форма отдельных фрагментов поверхности вряд ли может быть объяснена наличием дислокаций. Так, например, профиль № 23 (рис. 5) в средней своей части содержит прямолинейный, с нашей точностью, участок протяженностью приблизительно 4 мм и наклоненный относительно грани (0001) на угол 0.003 рад. На следующем кадре (профиль № 24) наблюдается плоский участок с выходом на левую стенку, наклоненный в противоположную сторону на угол 0.01 рад. Наличие столь протяженных плоских участков поверхности трудно, на наш взгляд, связать с присутствием дефектов в объеме кристалла. К сожалению, у нас нет каких-либо конкретных соображений по поводу природы наблюдаемых метастабильных состояний. Сделать какие-либо количественные заключения о равновесной форме менисков (и краевом угле) при малых углах, и, соответственно, об угловой зависимости поверхностной жесткости в таких условиях затруднительно.

В теоретической работе [8] предсказано, в частности, явление, обусловленное наличием скачка производной  $\alpha'_\theta$  при  $\theta = 0$ . Суть явления заключается в том, что в некотором диапазоне углов  $\psi_- < \psi < \psi_+$ , определяемом соотношением

$$|\Delta\varepsilon - \alpha_0 \sin \psi| < \beta \cos \psi,$$

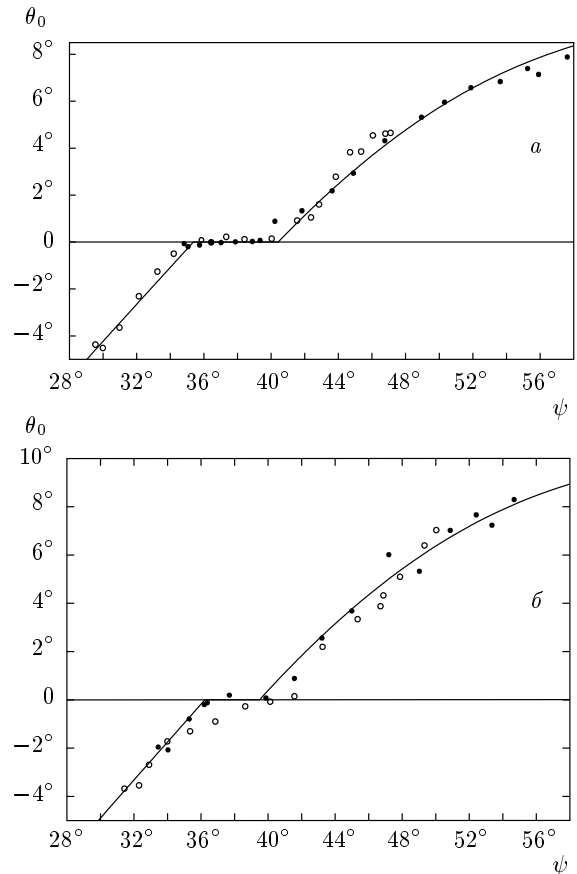
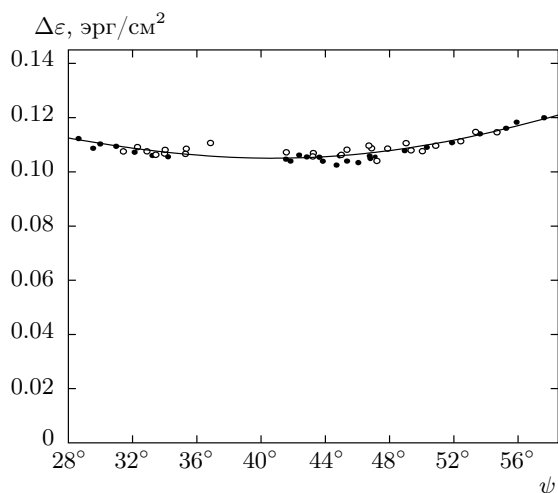


Рис. 8. Зависимость  $\theta_0(\psi)$  для двух серий профилей:  $T = 0.61$  (а) и  $0.9$  (б) К. Светлые и темные символы соответствуют правой и левой сторонам мениска. Сплошная линия — результат расчета по формулам (2), (4), (6), (7)

где  $\beta = \alpha'_\theta > 0$  при  $\theta = +0$ , реализуется состояние, при котором атомногладкая грань непосредственно контактирует со стенкой. В таком случае на зависимости  $\theta_0(\psi)$  в определенном интервале углов должно возникать плато. На рис. 8 приведены результаты обработки наших фотографий для этой зависимости. Как видно, плато действительно наблюдается. Однако, характер зависимости  $\theta_0(\psi)$  существенно отличается от ожидаемого [8] корневого поведения. Краевой угол при не слишком малых углах  $\theta_0 \sim 1^\circ$  приближается к плато линейно.

Напомним, что, как было описано в наших предыдущих работах [1, 2], профиль мениска определялся из анализа дифракционной картины. Такой анализ, однако, затруднителен вблизи линии контакта кристалл–жидкость–стенка, т. е. именно там, где необходимо определить значение краевого угла. Здесь, на расстоянии приблизительно 0.3 мм, вели-



**Рис. 9.** Зависимость  $\Delta\varepsilon(\psi)$  по данным двух описанных выше серий измерений ( $T = 0.9$  К (светлые символы) и  $T = 0.61$  К (темные символы)). Сплошная кривая соответствует функции (7)

чине сравнимой с  $\Lambda \approx 1.2$  мм, дифракционная картина усложняется из-за сближения двух относительно простых дифракций от стенки и от границы кристалл–жидкость. В таких условиях значение  $\theta_0$  при  $\theta_0 > 0.01$  рад определялось экстраполяцией производной аппроксимирующей мениск функции

$$Z = A \operatorname{sh} \frac{x - x_0}{\Lambda}$$

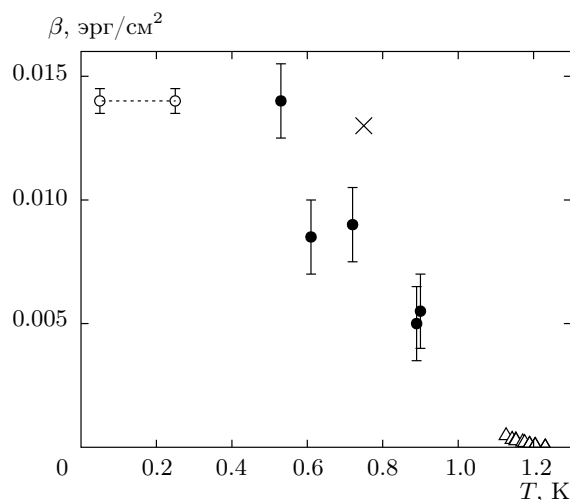
в расчетную точку соприкосновения со стенкой. Область же малых краевых углов  $\theta_0 \leq 0.01$  рад, где, вероятно, должен наблюдаться корневой закон, требует дополнительного исследования.

Наблюдаемое поведение менисков при углах  $10^{-2} < \theta \lesssim 10^{-1}$  рад может быть объяснено при следующих предположениях: функция  $\alpha(\theta)$  при этих углах имеет вид

$$\alpha = \alpha_0 + \beta|\theta| + \alpha_0'' \frac{\theta^2}{2}, \quad (6)$$

а энергия границы твердый гелий–стекло  $\varepsilon_s$  является функцией угла  $\psi$ . Кроме того, в исследованном диапазоне температур можно считать, что лишь энергия ступеней меняется с температурой, а остальные параметры,  $\alpha_0 \approx 0.172$  эрг/см<sup>2</sup> [9],  $\alpha_0'' = \tilde{\alpha}_0 - \alpha_0 \approx 0.073$  эрг/см<sup>2</sup>, а также функция  $\Delta\varepsilon(\psi)$  уже практически достигли своих значений при нуле температуры.

На рис. 9 представлена функция  $\Delta\varepsilon(\psi)$ , рассчитанная по формулам (2),(4) по данным описанных выше двух серий измерений. Параметры  $\beta$



**Рис. 10.** Зависимость  $\beta(T)$

для каждой серии подобраны так, чтобы воображаемые продолжения функций  $\Delta\varepsilon(\psi)$ , вычисленных при  $\psi < \psi_-$  и  $\psi > \psi_+$ , сшивались в области плато. Полученные таким образом результаты для функции  $\Delta\varepsilon(\psi)$  для обеих серий с экспериментальной точностью совпадают. Учитывая симметрию кристалла гелия, пренебрегая азимутальной анизотропией и предполагая, что  $\Delta\varepsilon(\psi)$  является аналитической функцией углов, можно параметризовать ее следующим образом (в единицах эрг/см<sup>2</sup>):

$$\Delta\varepsilon(\psi) = 0.128 - 0.013 \cos 2\psi + 0.022 \cos 4\psi. \quad (7)$$

Расчетные зависимости  $\theta_0(\psi)$  с учетом анизотропии  $\Delta\varepsilon(\psi)$  (7) показаны на рис. 8 сплошными линиями.

Далее по указанной схеме и используя формулу (7) были определены значения  $\beta$  для остальных серий<sup>3</sup>.

Полученная температурная зависимость величины  $\beta$  представлена на рис. 10 (данные обозначены темными кружками). Здесь же приведены результаты работы [7] (светлые кружки), полученные в температурном диапазоне 50–250 мК с помощью анализа спектра кристаллизационных волн, работы [4] (треугольники), полученные из анализа кинетики роста грани (0001) при температурах близких к переходу ограничения, а также величина  $\beta$  полученная в работе [1] (крестик) при температуре 0.72 К.

Таким образом, наши данные о величине  $\beta$ , характеризующие поверхностную энергию при углах  $0.01 < \theta \lesssim 0.1$  рад, вполне согласуются с данными

<sup>3</sup> Отметим, что пренебрежение анизотропией  $\varepsilon_s(\psi)$  приводит к увеличению оценки  $\beta$  приблизительно на 30 %.

работы [7], полученными при  $\theta \lesssim 0.01$  рад. Однако, в то время как при температурах меньших 0.25 К и углах  $\theta \lesssim 0.01$  рад в работе [7] наблюдается резкое уменьшение  $\tilde{\alpha}$ , что согласуется с теоретическими представлениями о вицинальных поверхностях, мы обнаружили присутствие неаналитического вклада  $\beta|\theta|$  в поверхностную энергию в области углов  $0.01 < \theta \lesssim 0.1$  рад, что не имеет теоретического объяснения при наличии конечной и практически не зависящей от температуры величины  $\tilde{\alpha}$ .

Мы благодарим А. Ф. Андреева, А. Я. Паршина и Е. Р. Подоляка за полезные обсуждения. Работа выполнена в рамках Программы Фундаментальных Исследований Президиума РАН «Квантовые мезоскопические и неупорядоченные структуры».

## ЛИТЕРАТУРА

1. К. О. Кешишев, В. Н. Сорокин, Д. Б. Шемятихин, Письма в ЖЭТФ **85**, 213 (2007).
2. К. О. Keshishev and D. B. Shemyatikhin, JLTP **150**, 282 (2008).
3. J. F. Allen and A. D. Misener, Math. Proc. of the Cambridge Phil. Soc. **34**, 299 (1938).
4. P. E. Wolf, F. Gallet, S. Balibar, and P. Nozières, J. de Phys. (France) **46**, 1987 (1985).
5. А. В. Бабкин, Д. Б. Копелиович, А. Я. Паршин, ЖЭТФ **89**, 2388 (1985).
6. О. А. Андреева, К. О. Кешишев, С. Ю. Осипьян, Письма в ЖЭТФ **49**, 661 (1989).
7. E. Rolley, C. Guthmann, E. Chevalier, and S. Balibar, JLTP **99**, 851 (1995).
8. В. И. Марченко, А. Я. Паршин, Письма в ЖЭТФ **83**, 485 (2006).
9. O. A. Andreeva and K. O. Keshishev, Physica Scripta T **39**, 325 (1991).