

КРИСТАЛЛИЗАЦИОННЫЕ ВОЛНЫ В He^4

К. О. Кешишев, А. Я. Паршин, А. В. Бабкин

Измерен спектр кристаллизационных волн в He^4 , частотная и температурная зависимости их затухания. Поверхностная энергия на границе жидкость — кристалл обнаруживает заметную анизотропию и слабо зависит от температуры в области 0,36–1 К. Установлено, что ниже 1,2 К равновесная форма кристалла He^4 содержит наряду с округленными также и плоские участки.

Экспериментальное исследование капиллярных явлений в обычных классических кристаллах наталкивается на принципиальные трудности, обусловленные, в первую очередь, слишком большим временем установления равновесной формы кристалла. Физическая причина, по которой обычные кристаллы в условиях, близких к равновесию, растут чрезвычайно медленно, состоит в следующем. При кристаллизации, как при всяком фазовом переходе первого рода, состояния двух фаз отделены друг от друга некоторым энергетическим барьером, обеспечивающим устойчивость каждой фазы. Для того чтобы фазовый переход происходил с конечной скоростью, необходимо тем или иным способом нарушить фазовое равновесие. В результате фазовый переход всегда сопровождается диссипацией энергии, которая и ограничивает в конечном счете скорость установления фазового равновесия, и в частности скорость установления равновесной формы.

Совсем другая картина возникает в случае, когда кристаллизация происходит не как обычно, т. е. путем случайных переходов отдельных частиц из одной фазы в другую, а представляет собой когерентный процесс, в принципе не связанный с какой-либо диссипацией энергии [1]. Практически необходимые для этого условия могли бы осуществляться при росте кристаллов гелия из жидкой фазы при достаточно низких температурах. При бездиссипативной кристаллизации становится возможным непосредственное наблюдение всех капиллярных явлений, характерных для обычных жидкостей. В частности, возможны слабозатухающие колебания поверхности с макроскопической амплитудой, во многом аналогичные обычным капиллярным волнам (в данном случае они обусловлены периодическим плавлением и кристаллизацией). Эти колебания — кристаллизационные волны — были экспериментально обнаружены в He^4 [2].

В данной работе представлены результаты исследования спектра кристаллизационных волн в He^4 , частотной и температурной зависимостей их затухания. Поверхностная энергия обнаруживает заметную анизотропию и слабо зависит от температуры. Установлено, что при температурах ниже 1,2 К равновесная форма кристалла He^4 содержит как скругленные, так и плоские участки (последние соответствуют наиболее плотноупакованным граням). Выше 1,2 К плоские участки поверхности в равновесии отсутствуют, возникая лишь при достаточно быстром росте.

1. Прибор

В наших экспериментах использовался оптический криостат с He^3 , представляющий собой модификацию прибора, применявшегося ранее [3] для изучения свойств твердого гелия. Четыре пары плоско параллельных окон (стекло К-8 при 300 К, монокристаллический сапфир при 77 К, химическое и кварцевое стекла при 1,2 К) позволяли наблюдать за ростом кристаллов, фотографировать и выполнять простейшие оптические измерения. Кристаллы He^4 выращивались в контейнере из феррохрома (1, см. рис. 1) прямоугольного сечения 12×15 мм и с двумя стенками из химического стекла размером $12 \times 28 \times 3$ мм, оставлявшими открытым для наблюдения весь объем контейнера. Стекло приклеивалось к феррохрому эпоксидной смолой марки Stycast-1266. При тщательном исполнении (зазор между стеклом и феррохромом составлял около 50 мкм по всему периметру) такая конструкция выдерживает многократное охлаждение от комнатных температур до гелиевых и давления до 60 бар. На боковой стенке внутри контейнера был смонтирован конденсатор 2, предназначенный для возбуждения колебаний поверхности кристалла. Конденсатор выполнен из двух медных проволок в капроновой изоляции диаметром 30 мкм, бифилярно намотанных (150 витков) на текстолитовую пластинку; он выдерживает (в He II) напряжение не менее 3 кВ, что соответствует максимальной напряженности поля $(2-3) \cdot 10^6$ В/см. В верхнюю часть контейнера впаян капилляр 3 и четыре электрических ввода 4, в нижнюю — медный холодопровод 5 к ванне He^3 . Капилляр находился в хорошем тепловом контакте с ванной He^3 .

Температура измерялась угольным термометром сопротивления, который был смонтирован на медном холодопроводе, впаянном в боковую стенку контейнера. Термометр калибровался по давлению паров He^3 . Калибровка контролировалась с помощью кадмиевого репера 7 ($T_{\text{кр}} = 0,515$ К), смонтированного на том же холодопроводе, что и термометр. При заполнении контейнера суммарный теплоподвод к ванне He^3 , включая и теплоподвод излучением через окна, не превышал 10^{-4} Вт.

Кристаллы He^4 выращивались при постоянной температуре (0,4–1,3 К), давлении (25 бар) и контролируемом потоке гелия внутри контейнера, определявшем скорость кристаллизации. Предварительно контейнер заполнялся жидким гелием под давлением около 25 бар с помощью наружного газификатора, после чего газификатор отсоединялся. Рост и плавление кристаллов осуществлялись посредством изменения температуры наружного балластного объема (300 см^3 ; $\Delta p / \Delta T = 25/300$ бар/К).

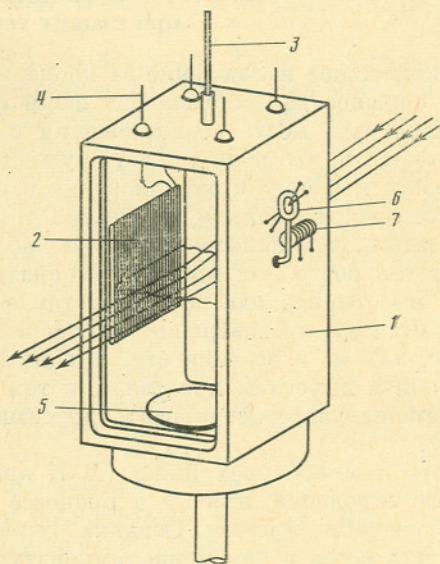


Рис. 1. Конструкция контейнера. 1 — корпус, 2 — конденсатор, 3 — капилляр, 4 — электрический ввод, 5 — холодопровод, 6 — термометр, 7 — кадмиевый репер. Стрелками указано направление светового пучка

Выращенный кристалл при необходимости можно было полностью расплавить быстрее чем за 1 мин, для чего достаточно было понизить давление в балластном объеме на 0,1–0,2 бар ниже кривой плавления. После этого, повышая давление, можно было повторить процесс выращивания с любой желаемой скоростью. Непрерывный визуальный контроль обеспечивал возможность не только многократно повторять процесс выращивания в течение одного эксперимента, но и частично подплавлять и подращивать кристаллы, оставлять в контейнере затравку размером $\sim 1 \text{ мм}^3$ для последующего выращивания большого кристалла и т. д. После того как нужный кристалл был выращен, балластный объем отсоединялся и положение межфазной границы могло оставаться неизменным с точностью до 0,1–0,2 мм в течение многих часов.

2. Особенности роста кристаллов He^4 при низких температурах

Визуальное наблюдение за процессом роста кристаллов He^4 обнаруживает большое разнообразие их форм и динамики роста в зависимости от температуры, места возникновения и ориентации зародышей. Необходимо отметить, что поле тяжести существенным образом влияет на динамику роста и форму кристаллов как в процессе роста, так и в равновесии во всем исследованном диапазоне температур (0,4–1,3 К). Подчеркнем уже здесь, что непосредственное наблюдение за кристаллом He^4 в процессе его роста при низких температурах не только позволяет фиксировать его ориентацию, но и представляет возможность эффективного контроля степени его совершенства, поскольку поверхность кристалла как при росте, так и, в особенности, в равновесии оказывается весьма чувствительной к дефектам кристалла, в том числе таким, которые практически невозможно зарегистрировать другими методами (см. ниже в этом разделе).

При температурах ниже 1,2 К кристалл вырастает, как правило, из одного зародыша, причем в процессе роста кристалл всегда в той или иной степени огранен. Огранка выражена тем отчетливее, чем больше скорость роста и чем ниже температура. Наблюдаемая огранка всегда соответствует гексагональной призме, представленной теми или иными гранями в зависимости от места возникновения зародыша, размера кристалла и его ориентации относительно стенок контейнера (см. рис. 2). Симметрия кристалла (гексагональная плотноупакованная структура, пространственная группа D_{6h}^{4+}) позволяет отождествить основания призмы с базисной плоскостью (0001), а перпендикулярные ей боковые грани — с плоскостями либо типа $\{11\bar{2}0\}$, либо типа $\{10\bar{1}0\}$.

На рис. 2 хорошо видны все характерные особенности роста кристаллов He^4 при низких температурах: четкая огранка при сравнительно большой скорости роста ($\sim 0,1 \text{ мм/с}$, кадры *a*, *б*), возникновение скруглений в верхней части поверхности при замедлении роста (*в*) с переходом к характерному мениску (*г*). В процессе плавления кристаллы обычно имеют каплеобразную форму.

Зависимость формы кристалла от скорости роста естественным образом объясняется анизотропией кинетического коэффициента роста K , определяемого соотношением

$$V(\bar{n}, \Delta\mu) = K(\bar{n}, \Delta\mu)\Delta\mu, \quad (1)$$

V — скорость роста по нормали $\bar{n}$ к данной грани, $\Delta\mu$ — разность химических потенциалов двух фаз. А именно, величина K принимает минималь-

ные значения для направлений, определяемых гранями призмы роста (и имеет в этих направлениях особенность типа излома [4]), причем, чем ниже температура, тем сильнее анизотропия.

Особенно малые скорости роста характерны для грани (0001). При самых низких температурах (0,4–0,6 К) и не слишком больших $\Delta\mu$ скорость роста в направлении [0001] настолько мала, что при подходящей ориентации кристалл может в течение нескольких часов висеть на одной из стенок контейнера, «опираясь» на грань (0001) (рис. 3). При этом на скругленных участках поверхности, и только на них, отчетливо видны колебания, вызываемые даже незначительными вибрациями прибора, причем амплитуда этих колебаний быстро растет с понижением температуры (см. также рис. 1 из [2]). Этот факт, на наш взгляд, однозначно свидетельствует, что постулированное ранее [1] квантовое состояние поверхности действительно осуществляется для всех ее ориентаций, кроме особых — (0001), а также $\{11\bar{2}0\}$ (или $\{10\bar{1}0\}$). Особые поверхности при самых низких температурах пребывают, очевидно, в атомно-гладком состоянии.

В этих условиях рост кристалла в направлении [0001] происходит, по-видимому, лишь в результате возникновения зародышей новых атомных слоев в местах соприкосновения грани (0001) со стенками контейнера. При этом часто возникает очень быстрая (быстрее 0,1 с) лавинообразная перекристаллизация, в результате которой кристалл, находившийся до того, например, на одной из боковых стенок, «сбрасывается» в нижнюю часть контейнера, полностью сохраняя свою ориентацию (рис. 4). Как правило, такой процесс сопровождается возникновением одного или нескольких плоскостных дефектов (чаще всего в плоскости (0001)), по-видимому, дефектов упаковки, хорошо изученных в обычных плотноупакованных структурах. Такие дефекты проявляются в равновесии в виде «оврагов», возникающих в местах выхода плоскости дефекта на внешнюю поверхность кристалла (рис. 5, а). Возникновение оврагов очевидным образом обусловлено избыточной энергией дефекта, пропорциональной его площади (наблюдаемая глубина оврагов позволяет оценить эту энергию в 0,1–0,2 эрг/см²). При возобновлении роста кристалла с такими дефектами овраги быстро зарастают, и возникающая огранка ничем не отличается от огранки бездефектного кристалла (рис. 5, б). Подчеркнем, что ориентации блоков по обе стороны плоскости дефекта упаковки строго одинаковы.

Возможность выращивания большого кристалла без видимых дефектов зависит не только от температуры (наилучшие результаты получаются при 0,8–1,0 К), но и от ориентации зародыша. Как правило, в течение одного эксперимента при многократных повторениях процесса выращивания все зародыши имеют одну и ту же или очень близкие ориентации, даже если они возникают в разных местах контейнера¹⁾. В подавляющем большинстве экспериментов «особые» грани имели значительный (не менее 20°) наклон по отношению к горизонтальной плоскости. В этих условиях, для того чтобы избежать уже упоминавшихся сбросов, в каждом эксперименте приходилось терпеливо искать наилучший режим выращивания. Необходимо отметить, что нагревание образца, выращенного, скажем, при 0,8 К, до температуры 1,1 К или выше приводит, как правило, к необратимому изменению формы его поверхности, которое, вероятно, обусловлено пластической деформацией кристалла, вызванной изменением равновесного давления на величину порядка 0,1 бар (ср. [5]). Лишь

¹⁾ В настоящее время мы не имеем связного объяснения этого факта.

достаточно медленное (не быстрее 0,1 К/ч) изменение температуры не сопровождается, по-видимому, пластической деформацией кристалла.

При температурах 1,2–1,3 К кристаллы обычно имеют каплеобразную форму и при росте, и при плавлении. Как правило, одновременно возникает несколько зародышей, постепенно (за десятки секунд) «переползающих» в нижнюю часть контейнера и в конце концов заполняющих ее. Сходную картину уже наблюдал Шальников [6]. Выросший таким образом кристалл имеет холмистую поверхность. Ее вид не меняется существенным образом при росте или плавлении. Кроме дефектов, выходящих на поверхность, часто и непосредственно в объеме кристалла можно заметить дефекты, имеющие вид свилей и скоплений мелких пузырьков жидкости. Выше 1,3 К не удавалось вырастить кристалл, не имеющий видимых дефектов.

3. Равновесная форма и электрокапиллярные явления

Поверхность кристаллов, выращенных описанным в предыдущем разделе методом с соблюдением всех предосторожностей, имеет (за исключением особых случаев, о которых речь ниже) форму выпуклого мениска (рис. 6). Краевые углы примерно одинаковы для самых различных материалов (медь, феррохром, стекло, капроновая изоляция проводов конденсатора) и составляют в зависимости от ориентации кристаллов от 30° до 60°. Форма мениска на фотографии с достаточной точностью (всюду, кроме участков размером порядка 1 мм, примыкающих к боковым стенкам) может быть описана формулой

$$z(x) = z_0 \operatorname{ch}(x/a),$$

где a — величина, имеющая смысл капиллярной постоянной, причем a в пределах точности не зависит от температуры. Другими словами, поверхностная энергия α (точнее говоря, величина $\bar{\alpha} = \alpha + \partial^2 \alpha / \partial \varphi^2$, где φ — угол между нормалью к поверхности и осью z) не обнаруживает заметной температурной зависимости. Так, для одного из исследованных образцов $\bar{\alpha} = 0,19 \pm 0,02$ эрг/см² в интервале температур от 0,5 до 1,0 К. Необходимо отметить, что получаемые таким способом значения $\bar{\alpha}$ следует рассматривать лишь как ориентировочные, поскольку использованная формула не является, конечно, результатом точного решения задачи о равновесной форме кристалла в поле тяжести; здесь для нас существенно лишь отсутствие температурной зависимости.

Сказанное выше относится к кристаллам, имеющим некоторую произвольную ориентацию по отношению к полю тяжести. Качественно иная картина наблюдается в случаях, когда одна из особых поверхностей (т. е. граней призмы роста) близка к горизонтальной плоскости. В этих случаях при достаточно низких температурах равновесный мениск содержит идеально плоский участок (рис. 7) (возможный радиус кривизны такого «зеркала» не менее l^2/λ , где l — размер зеркала, λ — длина волны видимого света). Зеркало со всех сторон окружено скругленной поверхностью мениска, имеющего обычный вид, причем заметных изломов на границе плоского и скругленного участков не наблюдается. Если на поверхности такого кристалла тем или иным способом возбуждены кристаллизационные волны, то плоскость зеркала остается совершенно неподвижной, и лишь ее граница испытывает колебания, вызванные колебаниями скругленных участков. Плоскость зеркала в точности совпадает с одной из граней призмы роста, что легко устанавливается при подрачивании такого кристалла.

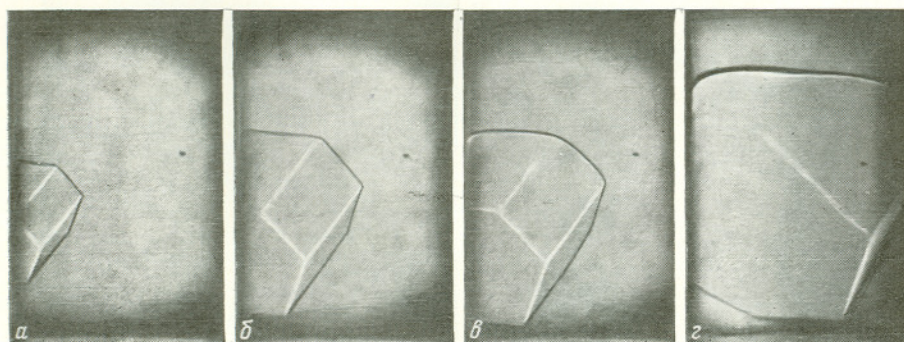


Рис. 2. Различные стадии роста одного из образцов при температуре 0,5 К

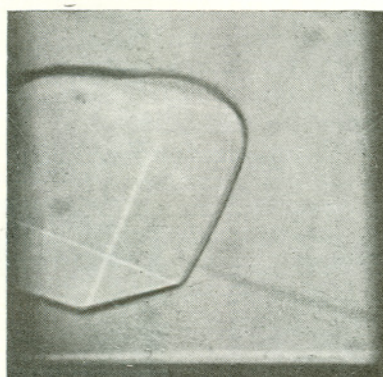


Рис. 3. Кристалл в условиях, близких к равновесию при температуре 0,5 К. Нижняя грань представлена плоскостью (0001), на верхней скругленной поверхности видна кристаллизационная волна, вызванная вибрацией криостата

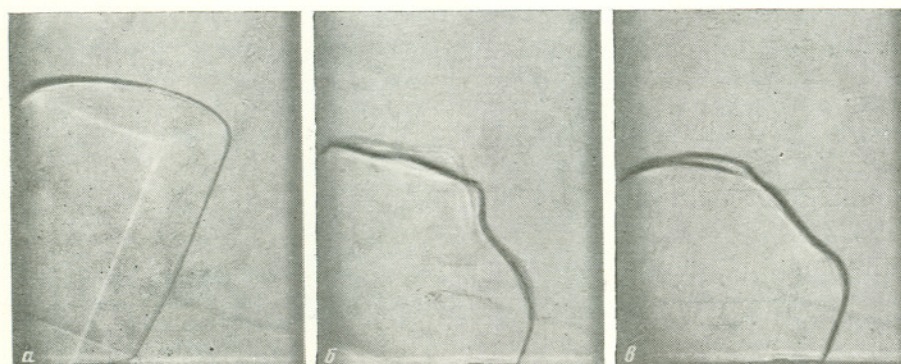


Рис. 4. Кинограмма «сброса» кристалла. Скорость съемки 24 кадр/с

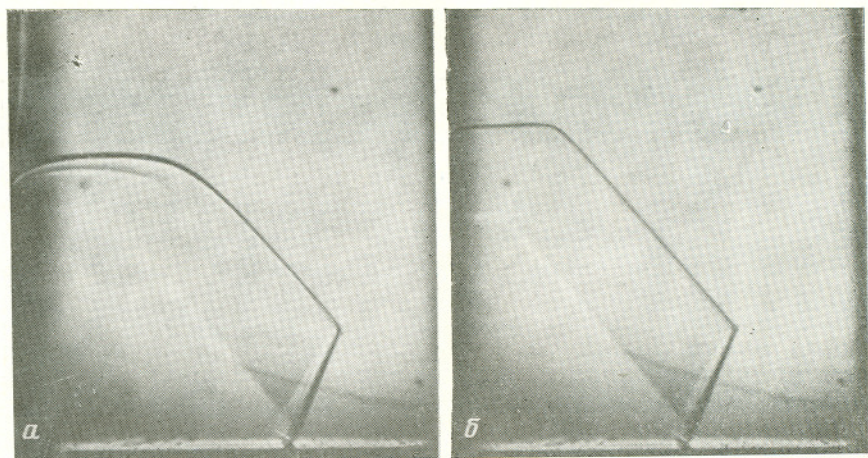


Рис. 5. Внешний вид кристалла с дефектом: *a* — в равновесии; *б* — в процессе роста

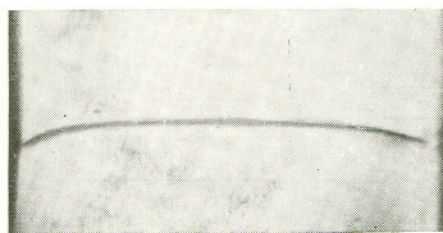


Рис. 6. Равновесная форма мениска

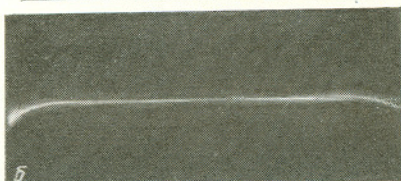
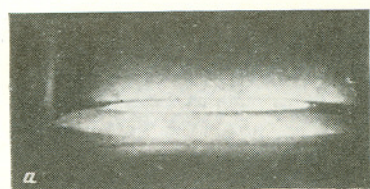


Рис. 7. Форма мениска для кристалла с горизонтальной плоскостью (0001): *a* — общий вид; *б* — профиль

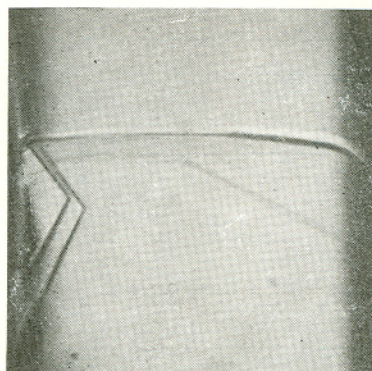


Рис. 9. Рождение пузырей в электрическом поле. Верхняя половина контейнера заполнена жидким гелем, нижняя — кристаллом, слева ниже мениска на конденсаторе видны два ограниченных пузыря

Вырастить кристалл с практически горизонтальной базисной плоскостью (или боковой гранью призмы роста) оказалось возможным с помощью следующего приема. В тех случаях, когда зародыш возникает на одной из стенок в средней или верхней части контейнера, часто удается «уронить» его на горизонтальное медное дно, подплавляя кристалл в месте его соприкосновения со стенкой. Для этого достаточно небольшого импульсного разогрева стенки с помощью какого-либо внешнего источника, например вспышки карманного фонарика; температура контейнера при этом должна составлять 0,8 К или чуть выше. Далее, в процессе падения, длящегося доли секунды, кристалл должен немного подрасти и, следовательно, ограничиться. В результате кристалл, как игральная кость, ложится на одну из своих плоских граней (с подавляющей вероятностью на грань (0001)). Таким способом обычно удается «уложить» базисную плоскость горизонтально с точностью лучше 1° , в то время как при наилучшем из «бросаний», закончившихся «выпадением» боковой грани призмы, угол наклона к горизонтали составил $2,3^\circ$.

В тех случаях, когда такой прием непосредственно не приводит к успеху, например из-за неудачного расположения зародыша, помогает включение электрического поля. При напряжении на конденсаторе, превышающем 700–800 В, зародыши всегда образуются на его поверхности²⁾, откуда их в большинстве случаев удается уронить. Правда, при этом, как правило, почти одновременно возникает несколько зародышей и описанный выше прием приходится выполнять очень быстро³⁾.

Выращивание кристаллов из затравок, ориентированных таким способом, сопряжено с теми же трудностями, что и выращивание кристаллов других ориентаций. Наличие видимых дефектов сильно искажает форму плоского зеркала, уменьшает его размеры и может привести даже к полному его исчезновению. Кроме того, форма и местоположение зеркала весьма чувствительны даже к слабым (несколько градусов) наклонам относительно поля тяжести.

При повышении температуры зеркало уменьшается в размерах и при некоторой температуре T_c исчезает совсем. Значения T_c для данной грани заметно (на 0,1–0,2 К) изменяются от образца к образцу, вероятно, в зависимости от степени совершенства кристалла. По-видимому, максимальные значения T_c достигаются в наиболее совершенных кристаллах (длительное выдерживание кристалла при температуре вблизи T_c приводит к возрастанию T_c). Максимальные из зарегистрированных значений T_c составляют 1,17 К для базисной плоскости и 0,9 К для боковой грани призмы. При измерениях температурной зависимости размера зеркала нам не удалось добиться удовлетворительной воспроизводимости.

На рис. 8 представлены результаты одного из таких экспериментов. Кристалл с базисной плоскостью, «уложенной» горизонтально с точностью лучше $0,5^\circ$, был выращен при температуре около 1,15 К и оставался при 1,15–1,18 К в течение 15 часов. Размер l определялся по угловой ширине главного дифракционного максимума при отражении (под углом 5°) плоско-

²⁾ Непосредственно перед образованием видимых зародышей резко изменяется отражательная способность поверхности конденсатора в скользящем освещении, что связано, по всей вероятности, с образованием большого количества мелких (1–10 мкм) кристалликов в областях с максимальной напряженностью поля.

³⁾ Отметим, что и в этом случае, как правило, все зародыши имеют одну и ту же ориентацию, отличающуюся, вообще говоря, от ориентации зародышей до включения электрического поля. (См. примечание ¹⁾.)

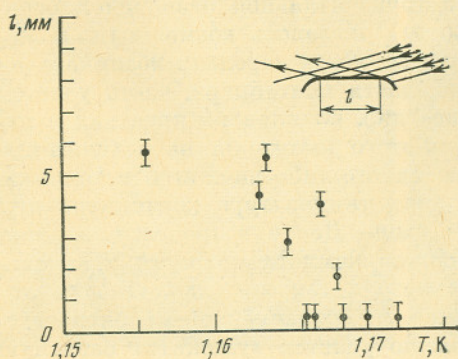


Рис. 8. Температурная зависимость размера плоского участка

параллельного пучка света от мениска с зеркалом (см. рис. 8). Каждое измерение проводилось после стабилизации температуры с точностью 10^{-4} К в течение по крайней мере получаса. После охлаждения кристалла до температур ниже 1 К измеряемый размер составил 9–10 мм. Причины наблюдаемого разброса точек в настоящее время недостаточно ясны; возможно, что он вызван флуктуациями количества гелия в контейнере или даже механическими вибрациями прибора (подчеркнем, что зеркало на поверхности растущего кристалла наблюдается и при температурах, существенно более высоких,

чем T_c для данной грани). Не исключены, однако, и более глубокие физические причины.

Недавно Аврон и др. [7], используя голографическую технику, наблюдали скачкообразное изменение площади плоского участка (0001) при $T=4,08$ К. Эти данные, как видно из сказанного выше, не противоречат нашим наблюдениям; ясно, однако, что вопрос о природе предполагаемого фазового перехода [7, 8] требует дальнейшего исследования.

Электрическое напряжение, приложенное к конденсатору, вызывает видимое изменение краевого угла и соответствующее поднятие края мениска, примыкающего к конденсатору. Это поднятие может достигать 1–2 мм. При малых напряжениях величина поднятия примерно пропорциональна квадрату напряжения, а начиная с 0,8–1 кВ эта зависимость быстро насыщается. Насыщение связано, по-видимому, с уже упоминавшимся возникновением мелких кристалликов на поверхности конденсатора, вытесняющих основной кристалл из областей с максимальным полем.

Наконец, отметим любопытное явление, которое можно наблюдать, подавая на конденсатор достаточно сильное (~ 1 кВ) переменное напряжение частоты 50–100 Гц. В этих условиях на поверхности конденсатора ниже основного мениска образуются пузыри, наполненные, очевидно, жидким гелием, достигающие размеров в несколько миллиметров (рис. 9). Пузыри имеют четко выраженную огранку, одинаковую для всех пузырей и совпадающую с внешней огранкой кристалла при его росте; они очень подвижны, быстро (за доли секунды) возникают и исчезают, «переползают» вверх по поверхности конденсатора и т. д. Особенно большие из них могут иногда дробиться, так что один или несколько пузырьков оказываются замороженными в объеме кристалла; такие пузырьки практически полностью теряют свою подвижность.

4. Спектр и затухание кристаллизационных волн

Подавая на конденсатор переменное напряжение подходящей частоты ω , можно, как показано ранее [2], возбудить плоскую кристаллизационную волну с волновым вектором k , нормальным к поверхности конденсатора. Зависимость $\omega(k)$ для таких волн с учетом поля тяжести и затухания, обусловленного конечностью коэффициента роста K , определяется выражением [1]

$$\omega^2 - \frac{\bar{\alpha}\rho_2}{(\rho_1 - \rho_2)^2} k^3 - \frac{\rho_2}{\rho_1 - \rho_2} gk + i\omega k \frac{\rho_1 \rho_2}{mK(\rho_1 - \rho_2)^2} = 0. \quad (2)$$

Здесь $\bar{\alpha} = \alpha + \partial^2 \alpha / \partial \varphi^2$ (угол φ отсчитывается вдоль k), ρ_1 и ρ_2 — плотности соответственно кристалла и жидкости, g — ускорение поля тяжести, m — масса атома. В предыдущей работе [2] для измерения длины кристаллизационных волн использовалась дифракция света $\text{He} - \text{Ne}$ -лазера на этих волнах. Практически такой способ оказывается неудобным, в первую очередь, из-за наличия случайных колебаний поверхности, вызванных вибрациями установки; кроме того, он не дает возможности измерить затухание.

В данной работе использовался метод, в котором узкий (с шириной, значительно меньшей, чем измеряемая длина волны) луч лазера ЛГ-66 медленно сканирует вдоль колеблющейся поверхности, оставляя практически параллельным фронту волны. Размер пучка по вертикали составлял около 2 мм, амплитуда волны согласно оценкам порядка 0,01–0,05 мм, амплитуда случайных колебаний того же порядка или даже несколько больше. Нижняя часть пучка испытывает преломление на слегка искривленной поверхности и значительно отклоняется вниз; остальной свет, прошедший над поверхностью, попадает на фотодиод ФД-3.

Таким образом, интенсивность света на фотодиоде содержит переменную составляющую, пропорциональную вертикальному смещению поверхности в данной точке. Сигнал с фотодиода усиливался селективным усилителем, настроенным на частоту возбуждения, и после синхронного детектирования (при постоянном сдвиге фаз между возбуждающим и опорным сигналами) поступал на вход Y двухкоординатного самописца. Фактически напряжение на конденсаторе складывалось из постоянного U_1 и переменного (с частотой ω) U_2 , причем $U_1 \gg U_2$. Одновременно на вход X самописца подавался сигнал с многооборотного потенциометра, соединенного с микрометрическим винтом, с помощью которого осуществлялось сканирование. На рис. 10 приведена одна из полученных таким способом записей.

Расстояние по оси X между нулями сигнала определяет длину кристаллизационной волны, а отношение амплитуд соседних максимумов — ее затухание. На рис. 11 представлены результаты измерения спектра для одного из наших образцов при двух температурах: 0,360 и 0,505 К. Пунктирная прямая соответствует зависимости $\omega \sim k^{1/2}$, сплошная кривая — теоретическая зависимость $\omega(k)$ согласно уравнению (2) с учетом гравитационного члена (поправкой на затухание можно пренебречь) и с $\bar{\alpha} = 0,21$ эрг/см². Таким образом, в пределах точности (5%) $\bar{\alpha}$ не изменяется при повышении температуры от 0,360 до 0,505 К.

Данные для других образцов по существу совпадают с приведенными, отличаясь от них лишь небольшим общим сдвигом всей кривой, соответствующим изменению значения $\bar{\alpha}$. Были зарегистрированы, кроме приведенного выше, следующие значения $\bar{\alpha}$: 0,18; 0,15 и 0,097 эрг/см² (штрихпунктирная прямая на рис. 11). Спектр, приведенный в предыдущей работе [2], соответствует $\bar{\alpha} = 0,23 \pm 0,04$ эрг/см². Эти данные свидетельствуют о наличии существенной анизотропии поверхностной энергии $\bar{\alpha}$, но не дают, разумеется, сколько-нибудь полного представления о величине и характере этой анизотропии, поскольку все исследованные данным методом поверхности имели некоторую случайную ориентацию и составляли с любой из особых поверхностей углы не менее 20°.

В работе Балибара, Эдвардса и Лароша [9] (см. также [8]) величина α исследовалась методом капиллярного поднятия. Пренебрегая анизотропией, они получили $\alpha = 0,107 - 0,145$ эрг/см² при $T = 1,3$ К, что вполне согласуется с нашими данными (различие в температуре вряд ли существенно ввиду уже отмечавшейся слабой зависимости α от температуры). При более низких температурах метод, использованный в [9], как это от-

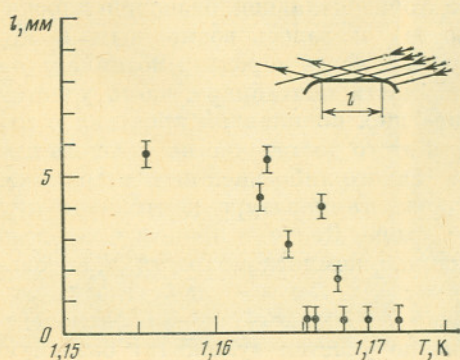


Рис. 8. Температурная зависимость размера плоского участка

параллельного пучка света от мениска с зеркалом (см. рис. 8). Каждое измерение проводилось после стабилизации температуры с точностью 10^{-4} К в течение по крайней мере получаса. После охлаждения кристалла до температур ниже 1 К измеряемый размер составил 9–10 мм. Причины наблюдаемого разброса точек в настоящее время недостаточно ясны; возможно, что он вызван флуктуациями количества гелия в контейнере или даже механическими вибрациями прибора (подчеркнем, что зеркало на поверхности растущего кристалла наблюдается и при температурах, существенно более высоких,

чем T_c для данной грани). Не исключены, однако, и более глубокие физические причины.

Недавно Аврон и др. [7], используя голографическую технику, наблюдали скачкообразное изменение площади плоского участка (0001) при $T=4,08$ К. Эти данные, как видно из сказанного выше, не противоречат нашим наблюдениям; ясно, однако, что вопрос о природе предполагаемого фазового перехода [7, 8] требует дальнейшего исследования.

Электрическое напряжение, приложенное к конденсатору, вызывает видимое изменение краевого угла и соответствующее поднятие края мениска, примыкающего к конденсатору. Это поднятие может достигать 1–2 мм. При малых напряжениях величина поднятия примерно пропорциональна квадрату напряжения, а начиная с 0,8–1 кВ эта зависимость быстро насыщается. Насыщение связано, по-видимому, с уже упоминавшимся возникновением мелких кристалликов на поверхности конденсатора, вытесняющих основной кристалл из областей с максимальным полем.

Наконец, отметим любопытное явление, которое можно наблюдать, подавая на конденсатор переменное напряжение достаточно сильное (~ 1 кВ) переменные частоты 50–100 Гц. В этих условиях на поверхности конденсатора ниже основного мениска образуются пузыри, наполненные, очевидно, жидким гелием, достигающие размеров в несколько миллиметров (рис. 9). Пузыри имеют четко выраженную огранку, одинаковую для всех пузырей и совпадающую с внешней огранкой кристалла при его росте; они очень подвижны, быстро (за доли секунды) возникают и исчезают, «переползают» вверх по поверхности конденсатора и т. д. Особенно большие из них могут иногда дробиться, так что один или несколько пузырьков оказываются замороженными в объеме кристалла; такие пузырьки практически полностью теряют свою подвижность.

4. Спектр и затухание кристаллизационных волн

Подавая на конденсатор переменное напряжение подходящей частоты ω , можно, как показано ранее [2], возбудить плоскую кристаллизационную волну с волновым вектором k , нормальным к поверхности конденсатора. Зависимость $\omega(k)$ для таких волн с учетом поля тяжести и затухания, обусловленного конечностью коэффициента роста K , определяется выражением [1]

$$\omega^2 - \frac{\bar{\alpha}\rho_2}{(\rho_1 - \rho_2)^2} k^3 - \frac{\rho_2}{\rho_1 - \rho_2} gk + i\omega k \frac{\rho_1 \rho_2}{mK(\rho_1 - \rho_2)^2} = 0. \quad (2)$$

Здесь $\tilde{\alpha} = \alpha + \partial^2 \alpha / \partial \varphi^2$ (угол φ отсчитывается вдоль k), ρ_1 и ρ_2 — плотности соответственно кристалла и жидкости, g — ускорение поля тяжести, m — масса атома. В предыдущей работе [2] для измерения длины кристаллизационных волн использовалась дифракция света $\text{He} - \text{He}$ -лазера на этих волнах. Практически такой способ оказывается неудобным, в первую очередь, из-за наличия случайных колебаний поверхности, вызванных вибрациями установки; кроме того, он не дает возможности измерить затухание.

В данной работе использовался метод, в котором узкий (с шириной, значительно меньшей, чем измеряемая длина волны) луч лазера ЛГ-66 медленно сканирует вдоль колеблющейся поверхности, оставаясь практически параллельным фронту волны. Размер пучка по вертикали составлял около 2 мм, амплитуда волны согласно оценкам порядка 0,01–0,05 мм, амплитуда случайных колебаний того же порядка или даже несколько больше. Нижняя часть пучка испытывает преломление на слегка искривленной поверхности и значительно отклоняется вниз; остальной свет, прошедший над поверхностью, попадает на фотодиод ФД-3.

Таким образом, интенсивность света на фотодиоде содержит переменную составляющую, пропорциональную вертикальному смещению поверхности в данной точке. Сигнал с фотодиода усиливался селективным усилителем, настроенным на частоту возбуждения, и после синхронного детектирования (при постоянном сдвиге фаз между возбуждающим и опорным сигналами) поступал на вход Y двухкоординатного самописца. Фактически напряжение на конденсаторе складывалось из постоянного U_1 и переменного (с частотой ω) U_2 , причем $U_1 \gg U_2$. Одновременно на вход X самописца подавался сигнал с многооборотного потенциометра, соединенного с микрометрическим винтом, с помощью которого осуществлялось сканирование. На рис. 10 приведена одна из полученных таким способом записей.

Расстояние по оси X между нулями сигнала определяет длину кристаллизационной волны, а отношение амплитуд соседних максимумов — ее затухание. На рис. 11 представлены результаты измерения спектра для одного из наших образцов при двух температурах: 0,360 и 0,505 К. Пунктирная прямая соответствует зависимости $\omega \sim k^{3/2}$, сплошная кривая — теоретическая зависимость $\omega(k)$ согласно уравнению (2) с учетом гравитационного члена (поправкой на затухание можно пренебречь) и с $\tilde{\alpha} = 0,21$ эрг/см². Таким образом, в пределах точности (5%) $\tilde{\alpha}$ не изменяется при повышении температуры от 0,360 до 0,505 К.

Данные для других образцов по существу совпадают с приведенными, отличаясь от них лишь небольшим общим сдвигом всей кривой, соответствующим изменению значения $\tilde{\alpha}$. Были зарегистрированы, кроме приведенного выше, следующие значения $\tilde{\alpha}$: 0,18; 0,15 и 0,097 эрг/см² (штрихпунктирная прямая на рис. 11). Спектр, приведенный в предыдущей работе [2], соответствует $\tilde{\alpha} = 0,23 \pm 0,04$ эрг/см². Эти данные свидетельствуют о наличии существенной анизотропии поверхностной энергии $\tilde{\alpha}$, но не дают, разумеется, сколько-нибудь полного представления о величине и характере этой анизотропии, поскольку все исследованные данным методом поверхности имели некоторую случайную ориентацию и составляли с любой из особых поверхностей углы не менее 20°.

В работе Балибара, Эдвардса и Лароша [9] (см. также [8]) величина α исследовалась методом капиллярного поднятия. Пренебрегая анизотропией, они получили $\alpha = 0,107 - 0,145$ эрг/см² при $T = 1,3$ К, что вполне согласуется с нашими данными (различие в температуре вряд ли существенно ввиду уже отмечавшейся слабой зависимости α от температуры). При более низких температурах метод, использованный в [9], как это от-

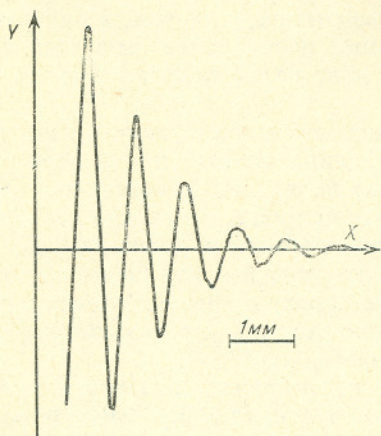


Рис. 10

Рис. 10. Пример экспериментальной записи

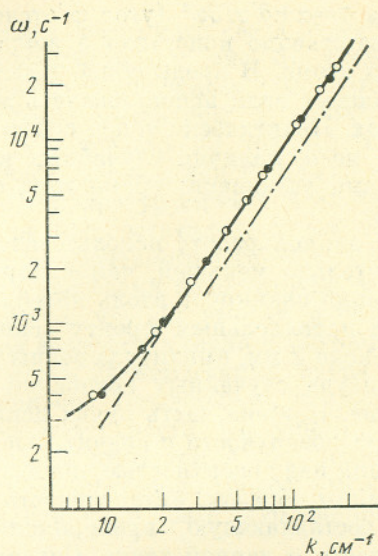


Рис. 11

Рис. 11. Спектр кристаллизационных волн для двух образцов. Образец № 1, ● — $T = 0,505$ К, ○ — $T = 0,360$ К, $\tilde{\alpha} = 0,21$ эрг/см². Образец № 2 — штрихпунктирная прямая, $\tilde{\alpha} = 0,097$ эрг/см²

мечают сами авторы (см. [8]), оказывается непригодным даже для оценки усредненных по углам значений α из-за возникновения огранки кристалла в процессе измерения.

При измерениях спектра и, в особенности, затухания кристаллизационных волн приходится подчиняться ряду довольно жестких требований. Во-первых, амплитуда волны должна быть мала, причем обычного требования малости по сравнению с длиной волны недостаточно: при больших напряжениях, как уже упоминалось, кристаллизация происходит на всей поверхности конденсатора выше основного мениска, полный объем жидкости в контейнере периодически изменяется и результирующее колебание поверхности представляет собой суперпозицию исследуемой волны и квазиоднородного колебания той же частоты. Кроме того, при больших амплитудах возбуждения результаты перестают быть воспроизводимыми, что связано, вероятно, с необратимыми изменениями, происходящими в кристалле при длительном действии переменного электрического поля большой амплитуды. Далее, длина волны должна быть мала по сравнению с размерами контейнера L , но велика по сравнению с диаметром проволоки намотки конденсатора ($\sim 0,04$ мм). Наконец, затухание должно быть не слишком велико ($\kappa \leq k_0$, где κ и k_0 — соответственно мнимая и действительная части волнового вектора $\mathbf{k}$), но и не слишком мало ($\kappa L \geq 1$), чтобы можно было пренебречь отраженной волной.

При измерениях затухания (т. е. величины κ), поскольку они связаны с измерениями амплитуды, возникает дополнительная трудность, обусловленная несовершенством нашей оптики (главным образом, грязью на стеклах). А именно, измеренные значения κ могут содержать небольшую ($\sim 0,5$ см⁻¹) неконтролируемую аддитивную добавку, что связано с невозможностью точной калибровки пропускания по всему оптическому тракту в каждом эксперименте.

Величина затухания, как следует из уравнения (2), определяется соотношением

$$\kappa = \frac{1}{3} \rho_1 \rho_2^{1/2} (\rho_1 - \rho_2)^{-2/3} \bar{\alpha}^{-2/3} (mK)^{-1} \omega^{1/2} \quad (3)$$

(гравитационной поправкой в исследованном диапазоне частот можно пренебречь). На рис. 12 представлены результаты измерения частотной зависимости κ при двух разных температурах для образца, спектр которого изображен на рис. 11. Видно, что зависимость $\kappa \sim \omega^{1/2}$ действительно выполняется, т. е. наблюдаемое затухание действительно обусловлено конечностью коэффициента роста K .

Согласно [1] при низких температурах, когда диссипация энергии при движении межфазной границы обусловлена ее столкновениями с фононами, коэффициент роста зависит от температуры по закону $K \sim T^{-4}$, а при более высоких температурах, когда число ротонов в жидкости становится достаточно большим, — в основном по закону $K \sim \exp(\Delta/T)$, где Δ — ротонная щель. Рис. 13 демонстрирует температурную зависимость величины $1/mK$, вычисленной по измеренным значениям κ , для трех различных образцов.

Можно констатировать, что при низких температурах затухание убывает медленнее, чем это было бы в случае чисто фононного механизма. При сравнении экспериментальных данных с теорией следует, однако, иметь в виду, что в реальном эксперименте всегда существуют причины, приводящие к остаточному затуханию, т. е. к конечному затуханию при сколь угодно низких температурах. Сюда относятся различные процессы рассеяния кристаллизационных волн на дефектах кристалла и на колебаниях поверхности, вызванных вибрациями установки, влияние геометрии излучателя и кривизны мениска и т. д. Такое остаточное затухание может, очевидно, сильно меняться от образца к образцу и в зависимости от конкретного механизма рассеяния изменяться с частотой по тому или иному закону. С этой точки зрения легко объяснить систематическое расхождение данных, соответствующих двум разным частотам для образца № 3 на рис. 13 (упоминавшейся выше неконтролируемой добавки к затуханию недостаточно, чтобы объяснить это расхождение).

Изложенные соображения позволяют следующим образом интерпретировать данные рис. 13. Будем считать, что измеренное затухание складывается из трех независимых слагаемых: остаточного затухания, а также фононного и ротонного затухания:

$$1/mK = A(\omega) + BT^4 + Ce^{-\Delta/T}, \quad (4)$$

причем согласно сказанному коэффициент A может изменяться от образца к образцу и, кроме того, зависеть от частоты. Фононное затухание B вследствие сильной анизотропии скорости звука в кристаллическом He⁴ может заметно изменяться в соответствии с ориентацией образца. Что же касается ротонного вклада C , зависящего главным образом от характеристик ротонов жидкости, то он, по-видимому, должен принимать приблизительно одинаковые значения для всех образцов.

В соответствии с такой интерпретацией на рис. 13 приведены прямые, изображающие вклад первых двух слагаемых в уравнении (4). Определенный таким способом ротонный вклад приведен на рис. 14. Видно, что все данные практически укладываются на одну зависимость, имеющую вид $\exp(-\Delta/T)$, что является, по существу, наиболее серьезным аргументом в пользу изложенной интерпретации. Полученное значение $\Delta = (7,8 \text{ K})$ несколько выше по сравнению с нейтронографическими данными $(7,0 - 7,2 \text{ K})$ [10]. Это различие, однако, может быть лишь кажущимся, поскольку коэффициент C может зависеть от температуры по некоторому степен-

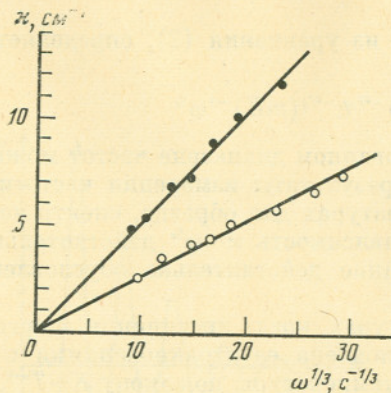


Рис. 12

Рис. 12. Частотная зависимость затухания кристаллизационных волн при двух температурах: $\circ$ — $T = 0,360$ К, $\bullet$ — $T = 0,505$ К

Рис. 13. Температурная зависимость затухания кристаллизационных волн для трех образцов: образец № 3, $\circ$ — 1118 Гц, $\bullet$ — 232 Гц; образец № 4, $\blacksquare$ — 827 Гц; образец № 5, $\diamond$ — 837 Гц

Рис. 14. Ротонный вклад в затухание кристаллизационных волн. Обозначения те же, что на рис. 13. Прямая соответствует значению $\Delta = 7,8$ К

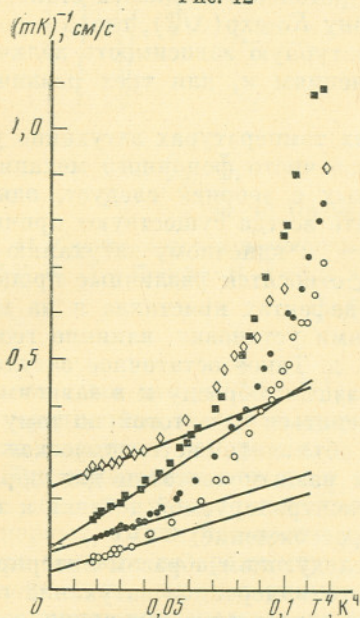


Рис. 13

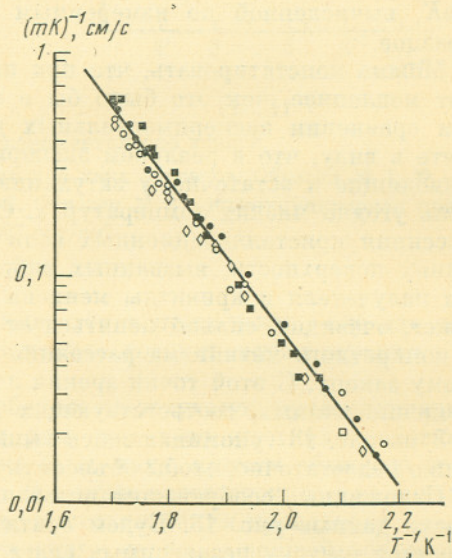


Рис. 14

ному закону, как и большинство величин, определяемых ротонным спектром (теплоемкость, нормальная плотность и т. д.).

Недавно Кастен, Балибар и Ларош [11], исследуя прохождение звука через межфазную границу в He^4 при температурах 0,4–1 К, смогли измерить величину, эквивалентную коэффициенту роста K [12], и получили экспоненциальную зависимость с Δ от 5 до 7,8 К для различных образцов. Для окончательного выяснения вопроса необходима теория, содержащая количественный расчет ротонного вклада в затухание, а также, возможно, и других эффектов [11].

5. Заключение

Существование слабо затухающих колебаний поверхности кристаллов гелия, обусловленных периодическим плавлением и кристаллизацией, означает, что квантовые эффекты играют определяющую роль в процессах кристаллизации гелия при низких температурах. Можно констатировать, таким образом, что теория, основанная на представлении о квантовомеханической делокализации дефектов поверхности [1], в целом правильно описывает наблюдаемые явления. С другой стороны, факт существования

при низких температурах атомно-гладких поверхностей, соответствующих выделенным по симметрии граням кристалла, позволяет уточнить сделанные в [1] предположения. А именно, свободная энергия β делокализованных ступеней на особых поверхностях (и только на них) оказывается положительной. Величина β может быть принципиально определена при измерениях равновесного размера зеркала l (для строго горизонтального зеркала можно использовать формулу $\beta = \alpha a_0 l / 2R$, где a_0 — высота ступени, R — радиус кривизны мениска вблизи края зеркала). Так, из рис. 5, б следует, что для плоскости (0001) по порядку величины $\beta \sim 5 \cdot 10^{-9}$ эрг/см (при $a_0 \approx 3 \cdot 10^{-8}$ см); отметим, что это значение на порядок ниже, чем полученное Балибаром и Кастеном [8] из других соображений.

При повышении температуры роль квантовых эффектов, вообще говоря, уменьшается. Представляет интерес оценка области температур, где квантовые эффекты при кристаллизации гелия существенны. Для этого воспользуемся следующими простыми соображениями. Заметим, что квантовыми эффектами, во всяком случае, нельзя пренебречь, если при данной температуре существует область длин волн, где кристаллизационные волны слабо затухают. Температуру T_0 , выше которой затухание велико для всех длин волн вплоть до атомных, можно оценить, экстраполируя данные рис. 14 с использованием соотношения (3). Такая оценка дает $T_0 = 1,5$ К. Другими словами, всюду, вплоть до перехода в ОЦК-фазу (а возможно, и выше), процессы, происходящие на поверхности кристаллов гелия, носят существенно квантовый характер. Это означает, в частности, что последовательное рассмотрение фазового перехода от атомно-гладкой к атомно-шероховатой поверхности [13], проявляющегося в исчезновении зеркала, в чисто классических терминах в случае гелия невозможно.

Мы благодарны П. Л. Канице за интерес к работе, А. И. Шальникову за повседневное внимание и помощь, В. И. Воронину за помощь при настройке радиоаппаратуры, А. Ф. Андрееву, И. Л. Ландау и В. И. Марченко за многочисленные дискуссии, С. Балибару за возможность ознакомиться с препринтами работ [7, 8, 11, 12] до их опубликования.

Примечание (12.IX.1980). Недавно нам стала известна работа Ландау и др. [14], в которой указано на наличие плоских участков в равновесной форме кристаллов He^4 ниже 1 К, а также приведены результаты измерения $\bar{\alpha}$ для скругленных участков ($\bar{\alpha} = 0,1-0,2$ эрг/см² для различных образцов и не зависит от температуры в области 0,4–1,45 К). Эти результаты, как видно из текста, вполне согласуются с нашими.

Институт физических проблем
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
16 июля 1980 г.

Литература

- [1] Андреев А. Ф., Паршин А. Я. ЖЭТФ, 1978, т. 75, с. 1511.
- [2] Кешишев К. О., Паршин А. Я., Бабкин А. В. Письма в ЖЭТФ, 1979, т. 30, с. 63.
- [3] Шальников А. И. ЖЭТФ, 1964, т. 47, с. 1727.
- [4] Чернов А. А. Кристаллография, 1962, т. 7, с. 895.
- [5] Кешишев К. О., Межев-Деглин Л. П., Шальников А. И. Письма в ЖЭТФ, 1973, т. 17, с. 296.
- [6] Шальников А. И. ЖЭТФ, 1961, т. 41, с. 1056.
- [7] Avron J. E., Balfour L. S., Kuper C. G., Landau J., Lipson S. G., Schulman L. S. Preprint, Technion-PH-80-108.
- [8] Balibar S., Castaing B. J. de Phys. Lett., 1980, v. 41, p. L-329.
- [9] Balibar S., Edwards D. O., Laroche C. Phys. Rev. Lett., 1979, v. 42, p. 782.

- [10] *Greywall D.* Phys. Rev., 1979, v. B21, p. 1329.
 - [11] *Castaing B., Balibar S., Laroche C.*, J. de Phys. (в печати).
 - [12] *Castaing B., Nozieres P.* J. de Phys., 1980, v. 41, p. 701.
 - [13] *Burton W. K., Cabrera N., Frank F. C.* Phil. Trans. Roy. Soc., London, 1951, v. 243A, p. 299.
 - [14] *Landau J., Lipson S. G., Määttänen L. M., Balfour L. S., Edwards D. O.* Phys. Rev. Lett., 1980, v. 45, p. 31.
-

CRYSTALLIZATION WAVES IN He⁴

K. O. Keshishev, A. Ya. Parshin, A. V. Babkin

The spectrum of crystallization waves in He⁴ is measured and the frequency and temperature dependences of their attenuation are determined. The surface energy at the liquid-crystal interface is essentially anisotropic and weakly depends on the temperature in the 0.36 to 1 K range. It is found that below 1.2 K the equilibrium shape of the crystal contains both plane and rounded parts.
