

КИНЕТИКА РОСТА КРИСТАЛЛА В СВЕРХТЕКУЧЕМ ГЕЛИИ ПРИ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Л. А. Максимов, В. Л. Цымбаленко*

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

Поступила в редакцию 30 декабря 1997 г.

Измерена скорость роста кристаллов ^4He из сверхтекучей жидкости в диапазоне температур 1.2–1.75 К при пересыщениях до 40 мбар. Обнаружено уменьшение скорости роста при высоких пересыщениях: в ОЦК-фазе выше 5 мбар, в ГПУ-фазе выше 20 мбар. В пределе малых пересыщений измерена зависимость кинетического коэффициента роста K от температуры. Вблизи сверхтекучего перехода обнаружено критическое поведение $K \propto (T_\lambda - T)^\epsilon$ со значением $\epsilon = 0.743 \pm 0.123$. Наблюдался скачок коэффициента роста в точке ОЦК–ГПУ-перехода. В гидродинамическом приближении решена задача о кинетике роста кристалла, объяснившая как температурный ход K , так и существование скачка при изменении структуры кристалла.

1. ВВЕДЕНИЕ

Кинетика роста кристалла ^4He интенсивно изучалась после того, как Андреев и Паршин [1] теоретически предсказали квантовое состояние атомно-шероховатых поверхностей кристаллов гелия, а Кешишев, Паршин и Бабкин [2] экспериментально обнаружили следствие этого явления — кристаллизационные волны. К настоящему времени измерен кинетический коэффициент роста K в широком диапазоне температур от 1.6 К до 0.05 К [3–5]. Основной интерес уделялся низким температурам, при которых подвижность поверхности определяется рассеянием квазичастиц на элементарных дефектах поверхности — ступеньках. Ниже 0.6 К преобладают фононы и кинетический коэффициент роста K изменяется по степенному закону: $K \propto T^{-4}$. При более высоких температурах основную роль играют ротонны и кинетический коэффициент изменяется по экспоненциальному закону: $K \propto \exp(\Delta_r/T)$, где Δ_r — ротонная щель [1, 6]. Однако, как показали экспериментальные исследования Боденсона, Николаи и Лейднера, выше 1.4 К наблюдается отклонение от простой экспоненциальной зависимости. Так, по их данным при температуре 1.6 К скорость роста V была приблизительно в 2.5 раза меньше ожидаемой из экстраполяции низкотемпературных данных. В наших экспериментах [7] при 1.746 К скорость роста была уже почти в 7 раз меньше экстраполированной. Авторы работы [3] высказали предположение, что отклонение вызвано зависимостью ротонной щели от давления и температуры [8].

В настоящей работе предпринято экспериментальное изучение роста кристаллов ^4He в диапазоне высоких температур (1.2–1.75 К) при пересыщениях до 40 мбар, что на три порядка превышает ранее исследованный диапазон. Впервые выполнены измерения кинетического коэффициента роста вблизи точки сверхтекучего перехода,

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

$0.03 \leq T_\lambda - T \leq 0.2$ К, и найден соответствующий критический индекс. Расширение интервала пересыщений позволило обнаружить нелинейность в зависимости скорости роста от пересыщения, т. е. включение нового диссипативного канала при росте кристалла. Для объяснения экспериментальной зависимости $K(T)$ в гидродинамическом приближении решена задача о квазистационарном росте кристалла. В исследованном диапазоне температур на границе кристалл–жидкость быстро устанавливается локальное равновесие и в непосредственной близости от границы химический потенциал жидкости μ равен химическому потенциалу кристалла μ' (здесь и далее обозначения без штрихов относятся к жидкости, со штрихами — к кристаллу) и мал скачок Капицы, $T \simeq T'$. В этих граничных условиях заключается главное отличие от случая низких температур (ниже 0.6 К), теория которого развита в работе Андреева и Книжника [9]. Андреев и Книжник вычисляли кинетический коэффициент роста K в области низких температур, где кристаллизационные волны затухают слабо. Согласно экспериментальным данным, это область температур ниже 0.6 К. При таких температурах коэффициент K имеет сильную дисперсию и его полюсы задают спектр кристаллизационных волн и их затухание. Рост кристалла как целого определяется пределом длинных волн. Если размер кристалла R меньше длины свободного пробега λ , что имеет место для температур ниже 0.5 К, то коэффициент K определяется формулами баллистического режима (разд. 3 в [9]). Когда $\lambda \ll R$, следует применять формулы первых двух разделов работы [9]. В [9] использовалось граничное условие на поверхности кристалла $v_n = V$ (v_n — скорость нормальной компоненты), которое при высоких температурах неприменимо. При температурах 1.2–1.7 К скорость роста кристалла лимитируется медленными процессами теплопроводности и вязкости в приповерхностном слое жидкости над границей кристалла, внутри которого происходит установление квазистационарного равновесия передавленной и переохлажденной сверхтекучей жидкости ($\mu(\infty) \neq \mu$, $T(\infty) \neq T'$). Можно показать (см. (22)), что длины свободного пробега элементарных возбуждений малы по сравнению с толщиной этого слоя. Поэтому задачу вычисления кинетического коэффициента роста K следует решать в рамках гидродинамики сверхтекучей жидкости [10] с граничными условиями, предполагающими локальное равновесие на поверхности кристалла. В разд. 4 получена формула (33), которая выражает коэффициент K через коэффициент теплопроводности и вязкости сверхтекучей жидкости. Найденное выражение удовлетворительно описывает основные черты экспериментальных результатов.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

В основе метода лежит измерение давления в контейнере во время роста кристалла после его зарождения в метастабильной жидкости. Контейнер охлаждался с постоянной скоростью до тех пор, пока в жидкости не образовывался критический зародыш твердой фазы. Затем кристалл начинал расти при начальном максимальном значении давления Δp_{init} . По мере роста кристалла давление в контейнере падало от максимального до давления фазового равновесия. Скорость падения давления пропорциональна скорости изменения объема кристалла и связана с кинетическим коэффициентом роста K . Таким образом, измеряя зависимость $p(t)$ можно вычислить скорость роста V и определить значение K в том случае, когда $V \propto \Delta p$.

Этот способ позволяет расширить диапазон пересыщений на три порядка от значе-

ний 0.01–0.1 мбар, характерных для предыдущих экспериментов, до величин 15–40 мбар. Регистрация давления выполняется с высоким разрешением по времени, т. е. возможно исследовать кинетику роста за времена от секунд до долей миллисекунды. Ограничения методики связаны, во-первых, с вероятностным характером процесса образования критического зародыша. Его появление происходит на внутренней поверхности контейнера при пересыщении, определяемом свойствами поверхности в месте его зарождения. Иными словами, стартовое давление является свойством поверхности контейнера и не может быть изменено в процессе эксперимента. Для того чтобы получить максимальные пересыщения, мы использовали обработку поверхности контейнера водородом (подробнее см. [11]). Второе ограничение обусловлено способом измерения пересыщения. Измерение давления осуществлялось емкостным датчиком, сформированным стенкой контейнера и электродом. Таким датчиком измерялось давление вдали от растущего кристалла. Показания датчика близки к значениям давления вблизи кристалла в том случае, когда время роста t_{gr} много больше времени пролета τ_1 первого звука в контейнере, $t_{gr} \gg \tau_1 \sim 30$ мкс. Расчет кинетического коэффициента роста требует, как будет показано ниже, измерения температуры гелия в процессе роста. Мы не проводили прямого измерения температуры по следующим соображениям: термометр аналогично датчику давления покажет температуру у границы кристалла в том случае, если время роста кристалла много больше времени пролета второго звука τ_2 , $t_{gr} \gg \tau_2 \sim 0.5$ мс. Выполнение обоих условий означает, что давление и температура гелия постоянны в объеме контейнера и рост кристалла квазистационарен. В этом случае, как было показано в работе [11], изменение температуры однозначно связано с изменением давления и может быть вычислено по зависимости $p(t)$, что и позволяет ограничиться только измерениями давления. Эти два условия дают нижнюю границу применимости данной методики, $T \geq 1.2$ К.

Рост кристаллов гелия происходил в контейнере из нержавеющей стали с внутренним объемом $\mathcal{V}_0 = 2$ см³, см. рис. 1. Контейнер состоит из корпуса 8, в который впаян соединенный с ванной ³He медный холодопровод 11, и фланца 4, на котором располагается емкостной датчик давления. Температура гелия контролировалась термометром сопротивления 12, припаянным к медному холодопроводу 10, который непосредственно соприкасался со сверхтекучим гелием. Вакуумная плотность соединения корпуса контейнера и фланца обеспечивалась индиевым уплотнением 7.

Емкостной датчик давления образован мембраной фланца и электродом 5. Эта емкость подсоединена к катушке индуктивности, расположенной в сверхпроводящем экране для уменьшения потерь на излучение и увеличения добротности контура. Этот контур слабой связью 1 : 100 с помощью коаксиального ввода присоединялся к автогенератору, расположенному на капке криостата при комнатной температуре. Добротность контура при гелиевой температуре составляла ~ 1000 , что обеспечивало стабильность частоты порядка 1 Гц за время измерения 1 с при основной частоте автогенератора около 7 МГц. Эта методика позволяет измерять давление в относительных единицах частоты, т. е. требуется калибровка измерительной системы по эталону давления. В качестве эталона использовался манометр, калибровка которого в диапазоне 26–30 атм была проверена по кривой затвердевания гелия. Поскольку, как будет видно ниже, отличие давления в контейнере в процессе роста кристалла от давления фазового равновесия не превышало 0.05 атм, что много меньше собственно давления фазового равновесия ≈ 25 атм, то было достаточно определить крутизну датчика df/dp в точке измерения. Для этого в каждой серии экспериментов измерялась зависимость $f(p)$ в

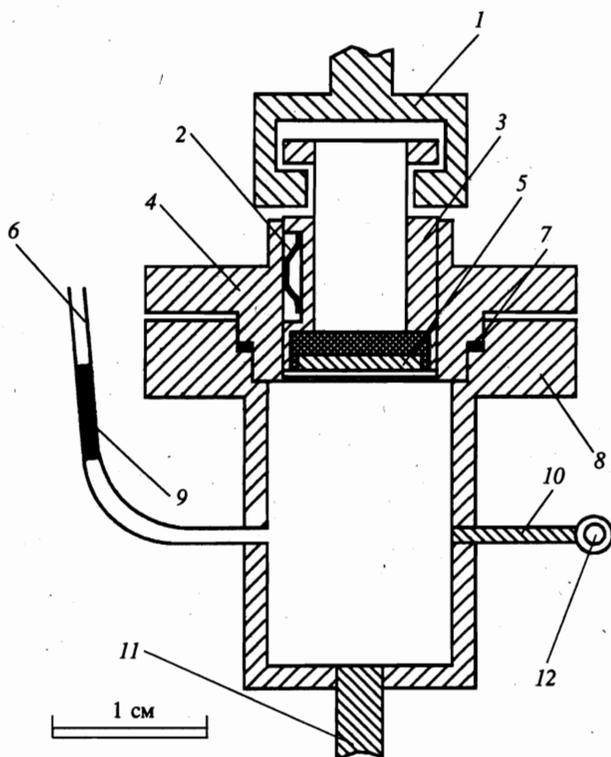


Рис. 1. Конструкция контейнера. Обозначения в тексте

диапазоне давлений 1–30 атм при температуре ≈ 2.5 К и по ней численно определялась дифференциальная чувствительность датчика. Эта процедура обязательно проводилась после каждого перемещения электрода 5 датчика (см. ниже). Ошибка в определении крутизны датчика была около 3%.

Сверхтекучий гелий охлаждался с постоянной скоростью до появления критического зародыша и начала роста кристалла. Контейнер соединялся с внешним объемом капилляром 6 (см. рис. 1) длиной ≈ 2 м и внутренним диаметром 0.15 мм. Суммарный объем капилляра заполнения (≈ 0.03 см³) много меньше объема контейнера. Первая серия измерений проводилась с указанным капилляром и датчиком давления, мембрана которого при диаметре 10 мм имела толщину 0.55 мм. Чувствительность датчика равнялась 4.1 кГц/бар. Измерения проводились с шагом по времени 1.024 мс. Постоянная времени установления давления в этой системе равнялась $\tau_{rel} = 2.76$ с. Это время, как будет видно ниже, сопоставимо с временем роста кристалла при температурах, близких к линии сверхтекучего перехода, что требовало введения поправок, связанных с подтоком жидкости по капилляру. Для уменьшения влияния этого эффекта во второй серии экспериментов в линию напуска гелия был добавлен дроссель 9, увеличивший время релаксации давления в системе до 37 с. Кроме того, на порядок была увеличена чувствительность датчика. Это было достигнуто за счет уменьшения толщины мембраны

до 0.27 мм и использования точной подводки электрода к мембране на минимальное расстояние. Устанавливая при сборке прибора зазор между мембраной и электродом при комнатной температуре, трудно обеспечить его оптимальную величину, например, из-за тепловых усадок при охлаждении и деформации мембраны при создании в контейнере давления, необходимого для кристаллизации. По этим причинам оптимальный зазор устанавливался непосредственно во время эксперимента при гелиевой температуре. Электрод датчика располагался на обойме 3 (см. рис. 1), которая помещалась в проточке фланца 4 и прижималась к его поверхности пружиной 2. В верхней части обоймы проделаны две симметричные прорези, в которые помещалось коромысло 1, прикрепленное к штоку пьезодвигателя (на рисунке не показан). Такие пьезодвигатели используются в туннельном микроскопе для перемещения образца с шагом 0.1–1 мкм [12]¹⁾. После установления необходимого давления в контейнере перед началом серии экспериментов электрод перемещался к мембране до касания. Затем направление движения штока пьезодвигателя менялось на противоположное и выставлялся необходимый зазор, величина которого определялась по основной частоте генератора. Затем коромысло перемещалось вперед для ликвидации механического контакта между контейнером и пьезодвигателем, что существенно уменьшало воздействие механических вибраций на датчик. Во второй серии экспериментов временное разрешение было увеличено до 0.25 мс.

3. ОБРАБОТКА РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЙ

Для вычисления кинетического коэффициента роста K необходимо знать скорость роста V и разность химических потенциалов $\Delta\mu = \mu - \mu'$:

$$V = K\Delta\mu. \quad (1)$$

Разность химических потенциалов дается выражением

$$\Delta\mu = -(s - s')\Delta T + \frac{\rho' - \rho}{\rho\rho'} \Delta p, \quad (2)$$

где s — энтропия единицы массы, $\Delta p = p - p_0$ и $\Delta T = T - T_0$ — отклонения давления и температуры от их равновесных значений p_0, T_0 . В наших экспериментах рост кристалла шел при постоянной массе гелия в контейнере. В этом случае, как уже отмечалось, изменение температуры в процессе роста связано с изменением давления формулой, выведенной в работе [12]:

$$\Delta T = -\Delta p \frac{kdp/dT - \beta}{\rho C_p - \beta dp/dT}, \quad (3)$$

где dp/dT — наклон кривой фазового равновесия, β — коэффициент теплового расширения, k — сжимаемость, C_p — теплоемкость при постоянном давлении. С учетом (3) выражение (2) запишем в виде

$$\Delta\mu = \frac{\rho' - \rho}{\rho\rho'} Dp, \quad Dp = \alpha(T)\Delta p, \quad \alpha(T) = 1 + \frac{dp}{dT} \frac{kdp/dT - \beta}{\rho C_p/T - \beta dp/dT}, \quad (4)$$

¹⁾ Авторы благодарны В. С. Эдельману за предоставление пьезодвигателя.

где мера неравновесности Dp выражена в единицах давления. Поправка за счет изменения температуры максимальна при высоких температурах и может достигать до значения $\alpha \approx 1.25$. Заметим, что абсолютные изменения температуры жидкого гелия в процессе роста кристалла не превышали ~ 1 мК.

Объем кристалла \mathcal{V}_{crys} связан с падением давления в процессе роста соотношением

$$\mathcal{V}_{crys} = \mathcal{V}_0 \frac{\rho}{\Delta\rho} k [p(t=0) - p(t)], \quad (5)$$

где $t = 0$ — момент зарождения кристалла. Для начальных пересыщений $\Delta p_{init} = 15$ –40 мбар конечный объем кристалла составлял 2–4 мм³, т. е. конечный размер кристалла был около миллиметра. Чтобы связать скорость изменения объема с линейной скоростью роста кристалла, необходимо сделать предположения о форме кристалла, которая определяется анизотропией кинетического коэффициента роста и контактом кристалла со стенкой контейнера. Градиент гидростатического давления не вносит существенного вклада, так как перепад давления на длине кристалла (≈ 0.02 мбар) много меньше величин пересыщений, исследуемых в данной работе. Добавка к давлению, обусловленная кривизной поверхности кристалла, также значительно меньше пересыщения.

В области существования кубической фазы кинетический коэффициент роста изотропен. В гексагональной же фазе авторы работы [3] наблюдали при $T = 1.35$ К анизотропный коэффициент роста с отношениями скоростей $V_{\langle 1120 \rangle} : V_{\langle 1010 \rangle} : V_{\langle 0001 \rangle} = 2.8 : 2.5 : 1$. Однако этим результатам противоречат измерения анизотропии кинетического коэффициента роста, выполненные Андреевой, Кешишевым и Осипьяном [13] и Андреевой и Кешишевым [14] методом кристаллизационных волн, которые не обнаружили столь сильную анизотропию роста атомно-шероховатых поверхностей (линейное убывание K вблизи грани [0001] имеет геометрическую природу [15]). Анизотропия роста специально исследовалась одним из авторов [16] по форме роста кристалла, т. е. аналогично методу Боденсона, Николаи и Лейдерера [3]. Во всех экспериментах со свободно растущим кристаллом гелия (см. серию снимков растущего кристалла при $T = 1.285$ К на рис. 2 в [16]) не было отмечено высокой, 1 : 3, анизотропии роста вдоль оси C_6 и в перпендикулярном направлении, в то время как небольшая анизотропия, $\sim 10\%$, в базисной плоскости, которую также наблюдали авторы работы [3], хорошо была видна (см. рис. 4 в [16]). Таким образом, есть основания считать кинетический коэффициент роста близким к изотропному и в ГПУ-фазе.

При изотропном росте на стенке кристалл имеет форму шарового сегмента и его объем связан с радиусом сегмента R соотношением

$$\mathcal{V}_{crys} = \frac{\pi}{3} R^3 (2 - 3 \cos \theta + \cos^3 \theta), \quad (6)$$

где θ — краевой угол. Скорость роста кристалла с учетом (5) и (6) дается формулой

$$V = \frac{dR}{dt} = \gamma \left(\mathcal{V}_0 \frac{\rho}{\rho' - \rho} k \Delta p_{init} \right)^{1/3} \frac{d}{dt} \left(\frac{p_{init} - p(t)}{\Delta p_{init}} \right)^{1/3}, \quad (7)$$

$$\gamma = \left[\frac{3}{\pi(2 - 3 \cos \theta + \cos^3 \theta)} \right]^{1/3}.$$

Геометрический фактор γ для сферы ($\theta = \pi$) приблизительно равен 0.62. По визуальным наблюдениям краевой угол при контакте твердого гелия с нержавеющей сталью

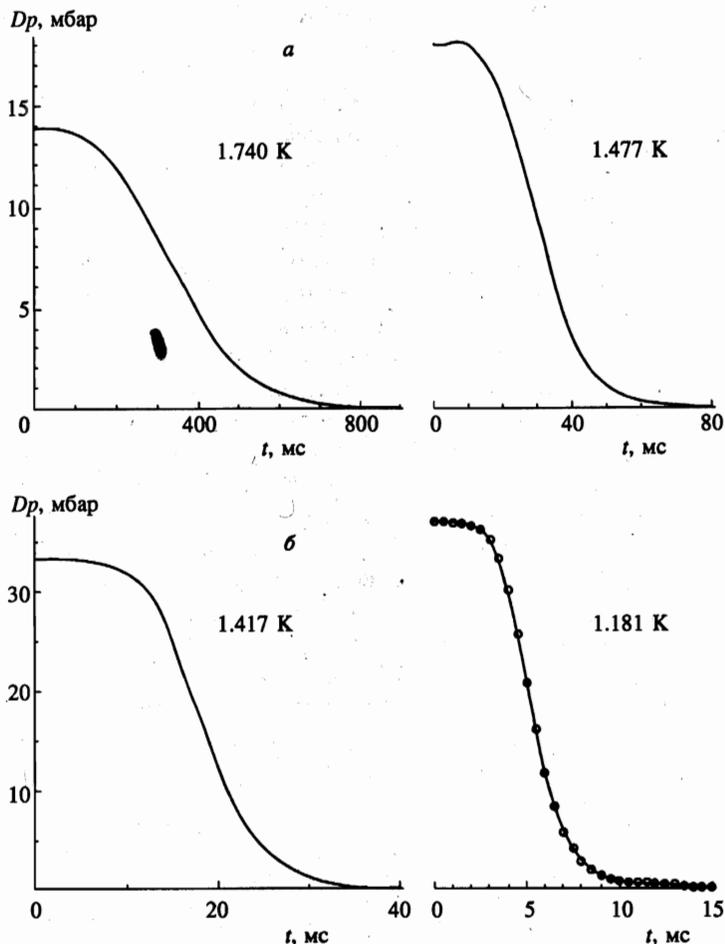


Рис. 2. Экспериментальные записи падения давления в контейнере при росте кристалла: *a* — ОЦК-фаза, *б* — ГПУ-фаза

принимает значения в диапазоне $90\text{--}120^\circ$, что соответствует значениям геометрического фактора $0.66\text{--}0.78$. Если кристалл образуется в углах контейнера, то выражение для геометрического фактора значительно усложняется, но его величина остается близкой к определяемой по формуле (7) при больших краевых углах. Заметим, что при конечном размере кристалла ~ 1 мм площадь вблизи углов составляет $\approx 8\%$ от всей суммарной внутренней площади контейнера, т. е. вероятность образования кристалла в углах мала.

Ошибка в определении объема максимальна в начале роста, когда давление мало отличается от начального. В конце роста возрастает относительная ошибка в определении величины пересыщения. По этим причинам обрабатывалась часть кривой падения давления в интервале $(0.05\text{--}0.95)\Delta p_{init}$. Суммарная ошибка в скорости роста в первой серии экспериментов составляла $10\text{--}20\%$, возрастая до 50% при минимальных температурах. Во второй серии экспериментов точность была повышена почти в 2 раза.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В обеих сериях измерений начальное пересыщение Dp_0 в кубической фазе составляло 15–18 мбар. В гексагональной фазе в первой серии измерений $Dp_0 = 8$ –10 мбар, во второй серии $Dp_0 = 30$ –40 мбар. Типичные экспериментальные кривые падения давления в контейнере приведены на рис. 2. Видно, что время роста кристаллов вблизи линии сверхтекучего перехода порядка 0.5 с и быстро убывает с уменьшением температуры вплоть до значений порядка нескольких миллисекунд. Результаты обработки этих кривых по формулам (4) и (7) представлены на рис. 3. Кинетический коэффициент роста определялся по начальной части зависимости $V(Dp)$, где в пределах ошибки скорость роста пропорциональна пересыщению. Температурные зависимости величины K , полученные в обеих сериях экспериментов с параметром $\gamma = 1.2$, представлены на рис. 4. Видно, что в пределах ошибки значения кинетического коэффициента роста, полученные в разных сериях при различных начальных пересыщениях, согласуются. Температурный ход K согласуется с результатами работ [3, 16]. На рис. 4 также видно отмеченное ранее в работах [3, 7] отклонение температурного хода K от простой экспоненциальной зависимости выше 1.5 К. Из рис. 4 также видно, что до температур порядка 1.65 К в ОЦК-фазе наклон зависимости $\ln(K)$ от $1/T$ не сильно отличается от наклона в ГПУ-фазе. Выше этой температуры наклон существенно возрастает, что, по-видимому, связано с близостью к λ -переходу. На рис. 5 приведен ход кинетического коэффициента роста в этой области температур. В пределах ошибки зависимость коэффициента K от температуры удовлетворительно описывается соотношением $K \propto (T_\lambda - T)^\epsilon$, где $\epsilon = 0.743 \pm 0.123$. Подчеркнем, что использованная формула служит лишь для иллюстрации температурного хода вблизи сверхтекучего перехода в измеренном диапазоне температур и не претендует на описание температурной зависимости K за пределами этого интервала.

Экстраполяция K к точке ОЦК–ГПУ-перехода дает со стороны кубической фазы значение $1/K_{bcc} = 9.9 \pm 0.86$ м/с, со стороны гексагональной фазы величину $1/K_{hcp} = 11.8 \pm 2.09$ м/с. Таким образом, переход от ОЦК- к ГПУ-фазе сопровождается скачком

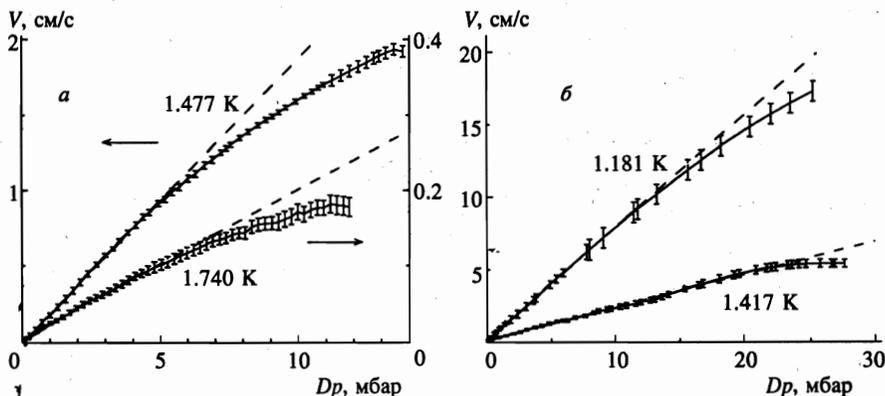


Рис. 3. Зависимость скорости роста от пересыщения: а — ОЦК-фаза, б — ГПУ-фаза. Видно уменьшение скорости роста выше 5 мбар в кубической фазе. В гексагональной фазе вплоть до 25 мбар скорость роста пропорциональна пересыщению

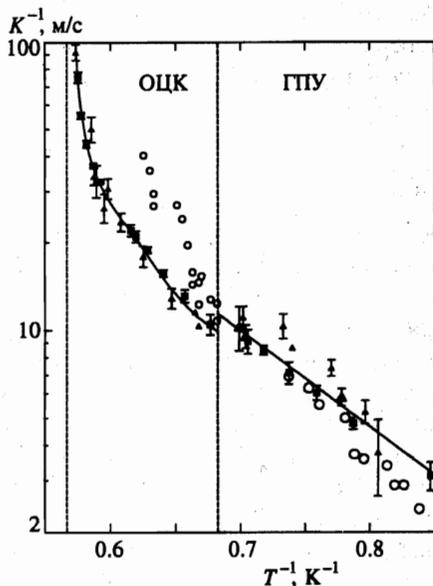


Рис. 4

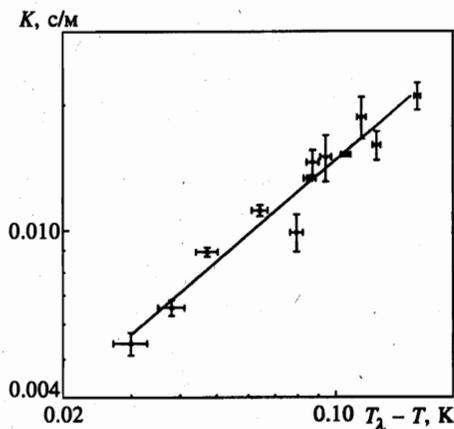


Рис. 5

Рис. 4. Температурные зависимости кинетического коэффициента роста. Светлыми кружками показаны результаты работы [3], светлыми треугольниками — данные [16]. Темными треугольниками и квадратами изображены наши результаты: треугольники — первая серия экспериментов, квадраты — вторая серия. Штриховые вертикальные прямые разделяют область ОЦК- и ГПУ-фаз

Рис. 5. Температурный ход кинетического коэффициента роста вблизи сверхтекучего перехода

ком кинетического коэффициента роста.

В ОЦК-фазе (см. рис. 3), начиная с пересыщений ≈ 5 мбар, наблюдается отклонение от линейной зависимости, в то время как в гексагональной фазе нелинейность значительно меньше и отклонение становится заметным выше ≈ 25 мбар. Для учета нелинейности добавим в формулу (1) следующий член разложения функции $V(Dp)$ по степеням Dp в виде

$$V = K \frac{\rho' - \rho}{\rho \rho'} Dp \left(1 - \frac{Dp}{G} \right). \tag{8}$$

В ОЦК-фазе параметр $G = 38.6 \pm 2.7$ мбар и не зависит от температуры. Это означает, что форма зависимости $V(Dp)$ остается неизменной при увеличении скорости роста на порядок. Для ГПУ-фазы из-за возросших ошибок однозначное утверждение сделать трудно.

Кинетика роста кристалла ^4He обусловлена двумя процессами: быстрым микроскопическим механизмом перехода атома из жидкости в твердую фазу через атомно-шероховатую поверхность и медленным массо- и теплопереносом через окружающую среду.

Суммарная разность химических потенциалов $\Delta\mu$ (см. формулу (1)) складывается из скачка химического потенциала на границе кристалла и его изменения в объеме жидкости. Тогда полный обратный кинетический коэффициент роста может быть представлен в виде суммы поверхностного и объемного коэффициентов:

$$\frac{1}{K} = \frac{1}{K_{surf}} + \frac{1}{K_{bulk}}. \quad (9)$$

Поскольку поверхностные процессы происходят значительно быстрее объемных, то $K_{surf} \gg K_{bulk}$ и, следовательно, рост кристалла будет определяться транспортом в жидкости. Экспериментальные факты, такие как изотропия коэффициента роста и близость численных значений K в обеих фазах, говорят о слабом влиянии кристаллической структуры на кинетику роста при малых пересыщениях. Таким образом, основные диссипативные процессы, определяющие рост кристалла, происходят в жидкости. Ниже в разд. 4 в этом предположении вычислен кинетический коэффициент роста. Этот расчет, выполненный в линейном приближении, не может отразить наблюдаемого в эксперименте поведения скорости роста при больших пересыщениях. Поэтому мы рассмотрели, насколько правомерно пренебрежение квадратичными членами в точных уравнениях гидродинамики сверхтекучей жидкости. Численные оценки показывают, что во всем диапазоне температур при всех скоростях роста квадратичные члены малы, т. е. их учет не может описать наблюдаемый нелинейный эффект. Кроме того, в эксперименте видна связь нелинейности с кристаллической структурой твердой фазы. Это свидетельствует в пользу предположения о том, что замедление скорости роста связано с микроскопической структурой поверхности образца и, как следствие, с нелинейными процессами кинетики ступенек на атомно-шероховатой поверхности. Отсюда следует, что при больших пересыщениях важную роль играет K_{surf} . В настоящей работе теория роста кристалла при больших пересыщениях рассматриваться не будет.

5. РАСЧЕТ КИНЕТИЧЕСКОГО КОЭФФИЦИЕНТА РОСТА

Рассмотрим одномерный квазистационарный рост кристалла в системе координат, связанной с границей кристалл-жидкость. При высоких температурах важную роль играет теплота кристаллизации q , которая в отличие от случая низких температур велика:

$$q = T(s - s') = T \frac{\rho' - \rho}{\rho\rho'} \frac{dp}{dT}. \quad (10)$$

Выделение тепла на атомно-шероховатой поверхности кристалла ($x = 0$) в процессе его роста приводит к быстрому установлению локального равновесия между кристаллом и пограничным слоем жидкости:

$$T' = T(0), \quad p' = p(0), \quad \mu' = \mu(0). \quad (11)$$

Таким образом, мы пренебрегаем скачком Капицы, который, согласно экспериментальным данным [17], на атомно-шероховатой поверхности при высоких температурах очень мал. Локальное равновесие на границе кристалла приводит к нарушению теплового равновесия в пространстве между поверхностью кристалла и стенками контейнера:

$$\delta p = p(0) - p, \quad \delta T = T(0) - T, \quad \delta \mu = \mu(0) - \mu. \quad (12)$$

Здесь и далее T , p , μ — значения термодинамических величин вдали от кристаллического зародыша. При этом кроме неизбежного потока жидкости как целого возникают вязкий поток относительного движения компонент жидкости и тепловой поток от границы кристалла. Эти диссипативные потоки ограничивают скорость роста кристалла и, в конечном счете, задают ее величину. Разности температур и давлений (12) можно связать со степенью неравновесности (2) уравнением

$$\Delta\mu = \frac{\rho' - \rho}{\rho\rho'} \left(\frac{dp}{dT} \delta T - \delta p \right). \quad (13)$$

Здесь $\Delta\mu = \mu(T, p) - \mu'(T, p)$ — степень неравновесности системы.

Рост кристалла можно рассматривать как квазистационарный в том случае, если время распространения первого и второго звука от кристалла до стенки контейнера много меньше времени роста кристалла. Это условие согласуется с областью применимости нашей методики измерения и ограничивает данное рассмотрение областью температур $1.2 \text{ K} < T < T_\lambda = 1.763 \text{ K}$.

В системе координат, связанной с границей кристалла, кинетика роста описывается системой статических уравнений гидродинамики сверхтекучей жидкости [10], линеаризованной по малым отклонениям от равновесия:

$$\frac{dj}{dx} = 0, \quad j = \rho_s v_s + \rho_n v_n, \quad (14)$$

$$\frac{dp}{dx} = \left(\frac{4}{3}\eta + \zeta_2 - \rho\zeta_1 \right) \frac{d^2 v_n}{dx^2}, \quad (15)$$

$$\frac{dQ}{dx} = 0, \quad Q = \mu j + T\rho_s v_n - \kappa \frac{dT}{dx}, \quad (16)$$

$$\frac{d\mu}{dx} = (\zeta_1 - \rho\zeta_3) \frac{d^2 v_n}{dx^2}. \quad (17)$$

Напомним, что ρ_s , ρ_n и v_s , v_n — плотности и скорости сверхтекучей и нормальной компонент ($\rho = \rho_s + \rho_n$), j и Q — плотности потока массы и энергии жидкости, η , ζ_1 , ζ_2 , ζ_3 — соответствующие коэффициенты вязкости, а κ — коэффициент теплопроводности жидкости. Теплопроводность кристалла на кривой плавления мала [18], и ею будем пренебрегать. Оценка, обосновывающая это допущение, будет приведена ниже.

Заметим, что тривиальное решение системы (14)–(17), когда все градиенты обращаются в нуль, не удовлетворяет граничным условиям, согласно которым значения давления, температуры и химического потенциала на поверхности кристалла и в глубине жидкости отличны друг от друга и связаны соотношением (13). Чтобы найти нетривиальное решение, воспользуемся термодинамическим соотношением

$$d\mu = -s dT + dp/\rho \quad (18)$$

и свяжем, используя (15) и (17), градиент температуры со второй производной от скорости нормальной компоненты:

$$\frac{dT}{dx} = \zeta_0 \frac{d^2 v_n}{dx^2}, \quad \zeta_0 = \frac{4}{3}\eta + \zeta_2 + \rho^2 \zeta_3 - 2\rho\zeta_1. \quad (19)$$

Из (16) и (19) находим уравнение для скорости нормальной компоненты:

$$T\rho_s v_n - \frac{\kappa\zeta_0}{\rho s} \frac{d^2 v_n}{dx^2} = Q - \mu j. \quad (20)$$

Из законов сохранения массы (14) и энергии (16) следует, что правая часть уравнения (20) постоянна. Отсюда получаем закон затухания скорости нормальной компоненты:

$$\frac{dv_n}{dx} = C \exp\left(-\frac{x}{L}\right), \quad L = \frac{\sqrt{\kappa T \zeta_0}}{T \rho_s}. \quad (21)$$

Толщина переходного слоя в рассматриваемой области температур по порядку величины составляет $L \sim 10^{-6}$ см. Размер кристалла много больше толщины переходного слоя, что оправдывает одномерный подход к задаче. Для применимости гидродинамического подхода необходимо удовлетворение неравенства $\lambda < L$, где λ — длина пробега элементарных возмущений в сверхтекучей жидкости. В данной области температур основную роль играют ротоны [10]. Определяя длину пробега ротона из вязкости [10], получим для отношения λ/L выражение

$$\frac{\lambda}{L} \leq \frac{15}{\sqrt{20/3}} \frac{T \rho_s}{\rho_n v_r v_c}, \quad (22)$$

где v_r — тепловая скорость ротона, а v_c — критическая скорость в гелии. В интервале температур 1.2–1.7 К численно $\lambda/L \leq 0.1$ –0.2, т. е. неравенство выполняется и гидродинамический подход правомерен.

Подставляя выражение (21) в (15) и (19), определяем поведение давления и температуры в переходном слое:

$$\delta p(x) = \eta_0 C \exp\left(-\frac{x}{L}\right), \quad \eta_0 = \frac{4}{3} \eta + \zeta_2 - \rho \zeta_1, \quad (23)$$

$$\delta T = \frac{\zeta_0}{\rho_s} C \exp\left(-\frac{x}{L}\right). \quad (24)$$

Множитель C легко найти из (13):

$$C = A \Delta \mu, \quad A^{-1} = \frac{\rho' - \rho}{\rho \rho'} \left(\frac{dp}{dT} \frac{\zeta_0}{\rho_s} - \eta_0 \right). \quad (25)$$

При высоких температурах коэффициент A положителен. Это означает, как и следовало ожидать, что температура и давление в слое жидкости около зародыша выше, чем вблизи стенок контейнера. Но величина этого эффекта при большом значении dp/dT мала:

$$\frac{\delta p(0)}{\Delta p} = \frac{\alpha \eta_0}{(dp/dT)(\zeta_0/\rho_s) - \eta_0} \ll 1. \quad (26)$$

Итак, формулы (21)–(25) определяют зависимость δp , δT и dv_n/dx от степени неравновесности $\Delta \mu$. Потoki j и Q получаются из законов непрерывности потоков массы и энергии на границе кристалл–жидкость:

$$j = -\rho' V = \rho_s v_s + \rho_n v_n, \quad (27)$$

$$Q = j(Ts' + \mu') = \mu j + T s \rho v_n - \kappa \frac{dT}{dx}, \quad Q - \mu j = j T s'.$$

Из (14), (16) и (27) легко найти зависимость значений скоростей сверхтекучей и нормальной компонент от V и $\Delta \mu$ на границе:

$$v_n = -\frac{s' \rho'}{s \rho} V - LC \exp\left(-\frac{x}{L}\right), \quad v_s = V \frac{\rho'}{\rho_s} \left(\frac{s' \rho_n}{s \rho} - 1 \right) + \frac{\rho_n}{\rho_s} LC \exp\left(-\frac{x}{L}\right). \quad (28)$$

Чтобы связать δp , δT и dv_n/dx друг с другом, необходимо привлечь дополнительные соображения.

В работе [9] показано, что рост плоской границы кристалла со скоростью V приводит к диссипации энергии в единицу времени на единицу поверхности, равной

$$\frac{dE}{dt} = \rho' \Delta \mu V = \rho' K (\Delta \mu)^2. \quad (29)$$

С другой стороны, диссипация энергии в сверхтекучей жидкости определяется интегралом от диссипативной функции [10]:

$$\frac{dE}{dt} = \int R dx, \quad R = \left(\zeta_0 - \frac{4}{9} \eta \right) \left(\frac{dv_n}{dx} \right)^2 + \frac{\kappa}{T} \left(\frac{dT}{dx} \right)^2. \quad (30)$$

С учетом (21), (24) интеграл от диссипативной функции равен

$$\int R dx = LC^2 \zeta_0 \left(1 - \frac{2\eta}{9\zeta_0} \right). \quad (31)$$

Приравнявая (29) и (31), находим

$$K = LA^2 \frac{\zeta_0}{\rho'} \left(1 - \frac{2\eta}{9\zeta_0} \right). \quad (32)$$

Подставим сюда (25) и приведем результат к виду, удобному для анализа:

$$K^{-1} = \frac{1}{Ts\rho\rho'} \left(T \frac{\rho' - \rho}{\rho} \right)^2 \left(\frac{dp}{dT} - s\rho \frac{\eta_0}{\zeta_0} \right)^2 \sqrt{\frac{\zeta_0}{T\kappa}} \left(1 - \frac{2\eta}{9\zeta_0} \right)^{-1}. \quad (33)$$

Как видно из получившегося выражения, в данном приближении кинетический коэффициент роста определяется термодинамическими параметрами жидкой и твердой фаз и диссипативными коэффициентами сверхтекучей жидкости. Скорость роста примерно обратно пропорциональна квадрату теплоты кристаллизации.

Оценим теперь вклад теплопроводности кристалла в кинетический коэффициент роста. При росте кристалла с постоянной скоростью при постоянном пересыщении, как видно из формулы (24), твердая фаза образуется при одной и той же температуре и, следовательно, нет потоков тепла и дополнительной диссипации, связанной с теплопроводностью кристалла. В реальном эксперименте пересыщение изменяется от максимальной величины Dp_0 в момент зарождения кристалла до нуля в конце роста. Поскольку согласно формулам (3) и (24) температура образующегося слоя твердой фазы зависит от пересыщения, в кристалле возникнет градиент температуры и, как следствие, дополнительная диссипация E_{cryst} , связанная с теплопроводностью, которая уменьшит скорость роста кристалла. Суммарная диссипация энергии E_{sum} в процессе роста за время t_{gr} , согласно формуле (29), есть

$$E_{sum} \sim \rho' K \Delta \mu^2 R^2 t_{gr} \sim \left(\frac{\Delta \rho}{\rho} \right)^2 \frac{1}{\rho'} K R^2 D p_0^2 t_{gr},$$

где R — размер кристалла. Как следует из экспериментальных значений пересыщений и формулы (5), $R \sim 1$ мм. Начальная температура, как можно показать по формулам (3) и (24), в начальный момент роста выше конечного значения на величину

$\Delta T_{crys} \sim D\rho_0/(dp/dT)$. Тогда диссипацию E_{crys} , связанную с теплопроводностью кристалла, можно оценить выражением

$$E_{crys} \sim t_{gr} \frac{\kappa'}{T} \int (\nabla T)^2 dV \sim t_{gr} \frac{\kappa'}{T} \frac{D\rho_0^2}{(dp/dT)^2} R.$$

Отношение E_{crys} к полной диссипации составляет

$$\frac{E_{crys}}{E_{sum}} \sim \left(\frac{\rho}{\Delta\rho} \right)^2 \frac{\kappa'}{T} \left(\frac{dp}{dT} \right)^{-2} \rho' K^{-1} \frac{1}{R} \sim 10^{-4},$$

чем можно пренебречь, как мы и полагали в нашем анализе.

Проанализируем вклад параметров в кинетический коэффициент роста. Последний множитель лежит в интервале 1–1.2, так как выполняется неравенство $2\eta/9\zeta_0 < 1/6$. Отношение η_0/ζ_0 порядка единицы. С учетом этих замечаний перепишем выражение (33) в следующем виде:

$$K^{-1} \approx \frac{1}{Ts\rho\rho'} \left(T \frac{\rho' - \rho}{\rho} \right)^2 \left(\frac{dp}{dT} - s\rho \right)^2 \sqrt{\frac{\zeta_0}{T\kappa}}. \quad (34)$$

Первые три множителя определяют изменение K за счет изменения термодинамических величин гелия. Их значения на кривой плавления хорошо известны. Последний множитель связан с кинетическими коэффициентами сверхтекучей жидкости. К сожалению, отсутствуют экспериментальные данные о величинах η , ζ_1 , ζ_2 , ζ_3 и κ на кривой плавления в данной области давлений и температур. Известно, что при давлении насыщенного пара вторая вязкость ζ_2 на полтора порядка превышает первую. С увеличением давления первая вязкость возрастает [19], а вторая вязкость ζ_2 , как следует из измерений затухания первого звука [20], уменьшается. Заметим, что комбинация коэффициентов второй вязкости, входящая в ζ_0 , как следует из соотношений Онсагера для кинетических коэффициентов [10], положительна. Суммируя эти сведения и используя выражения для теплопроводности и вязкости в ротонной области, получаем, что множитель, связанный с диссипативными коэффициентами жидкости, удовлетворяет неравенству

$$\sqrt{\frac{\zeta_0}{T\kappa}} > \sqrt{\frac{4\eta/3}{T\kappa}} = \frac{2}{\sqrt{15}} \frac{1}{v_c}. \quad (35)$$

Зависимость критической скорости от температуры при $p \sim 25$ атм рассчитаем по значениям ротонной щели и положению ротонного минимума из работы [8]. С учетом приближений и упрощений нашего анализа формула (34) описывает температурный ход K , а численное значение следует ожидать близким по порядку величины. Для аппроксимации данных введем масштабный коэффициент, $K_{app} = mK_{theor}$. Результат приближения со значением $m = 0.2$ приведен на рис. 6. Видно удовлетворительное согласие расчета с экспериментом. Убывание K с повышением температуры в основном связано с увеличением наклона кривой фазового равновесия. Изменение ротонной щели, как предполагали авторы работы [3], также вносит вклад в температурную зависимость K , но в меньшей степени, пропорционально уменьшению критической скорости (см. (35)). В точке ОЦК–ГПУ-перехода отношение коэффициентов роста определяется

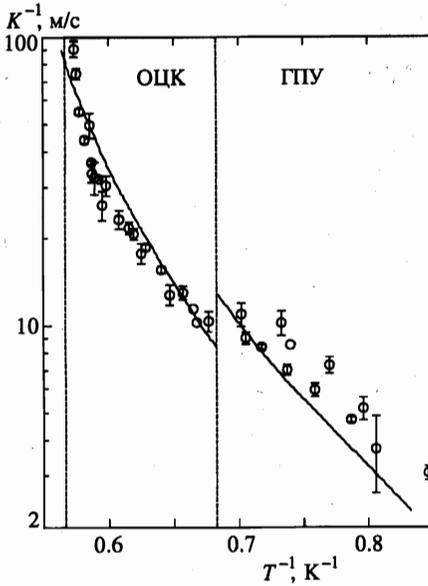


Рис. 6. Сопоставление экспериментальных данных и результатов расчета по формуле (34)

термодинамическими параметрами и составляет

$$\frac{K_{bcc}}{K_{hcp}} = \frac{\rho'_{bcc}}{\rho'_{hcp}} \left(\frac{\rho'_{hcp} - \rho}{\rho'_{bcc} - \rho} \right)^2 \left[\frac{(dp/dT)_{hcp} - s\rho}{(dp/dT)_{bcc} - s\rho} \right]^2 \approx 1.48. \tag{36}$$

Знак скачка, как видно из рис. 6, совпадает с экспериментом, а его величина удовлетворительно согласуется с экспериментальным значением.

Подчеркнем, что значения K вычислялись с использованием формул для ротонного вклада в кинетические коэффициенты и по этой причине не могут описывать поведение роста кристалла в критической области.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Измерения скорости роста кристалла гелия в области высоких температур при малых пересыщениях позволили установить температурную зависимость кинетического коэффициента роста. Обнаружен скачок K в точке ОЦК–ГПУ-перехода, а также определен критический индекс в поведении зависимости $K(T)$ вблизи точки сверхтекучего перехода. Для объяснения этих экспериментальных результатов рассмотрена задача о квазистационарном росте кристалла в гидродинамическом приближении. Эта модель, основывающаяся на предположении, что массо- и теплоперенос в жидкости играет основную роль в кинетике роста кристалла, удовлетворительно объясняет как температурный ход кинетического коэффициента роста, так и наличие скачка в точке ОЦК–ГПУ-перехода. Расширение диапазона пересыщений до 40 мбар выявило нелинейный характер кинетики роста при высоких пересыщениях.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант N96-02-18511a) и Голландской организацией научных исследований (грант NWO-07-30-002).

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. J. Bodensohn, K. Nicolai, and P. Leiderer, Z. Phys. B 64, 55 (1986).
4. S. G. Lipson and E. Polturak, in *Progress in Low Temperature Physics*, (1987), Vol. XI.
5. E. Rolly, E. Chevalier, C. Guthmann, and S. Balibar, Phys. Rev. Lett. 72, 872 (1994).
6. R. M. Bowley and D. O. Edwards, J. de Phys. 44, 723 (1983).
7. V. L. Tymbalenko, Phys. Lett. A 211, 177 (1996).
8. O. W. Dietrich, E. H. Graf, C. H. Huang, and L. Passell, Phys. Rev. A 5, 1377 (1972).
9. А. Ф. Андреев, В. Г. Книжник, ЖЭТФ 83, 416 (1982).
10. И. М. Халатников, *Теория сверхтекучести*, Наука, Москва (1971).
11. V. L. Tymbalenko, J. Low Temp. Phys. 88, 55 (1992).
12. И. Н. Хлюстиков, В. С. Эдельман, ПТЭ 1, 158 (1996).
13. О. А. Андреева, К. О. Кешишев, С. Ю. Осипьян, Письма в ЖЭТФ 49, 661 (1989).
14. О. А. Андреева, К. О. Кешишев, Письма в ЖЭТФ 52, 799 (1990).
15. P. Nozieres and M. Uwaha, J. de Phys. 48, 389 (1987).
16. В. Л. Цымбаленко, ФНТ 21, 162 (1995).
17. H. J. Maris and T. E. Huber, J. Low Temp Phys. 48, 99 (1982); 48, 463 (1982).
18. А. А. Голуб, С. В. Сватко, ФНТ 6, 957 (1980).
19. V. I. Sobolev and L. A. Pogorelov, in *Proc. LT-17* (1984), p. 75.
20. K. Dransfeld, J. A. Newell, and J. Wilks, Proc. Roy. Soc. A 243, 500 (1958).