

РАСПАД АНОМАЛЬНОГО СОСТОЯНИЯ КРИСТАЛЛА ^4He

В. Л. Цымбаленко*

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

Поступила в редакцию 21 июля 2004 г.

В диапазоне температур 0.48–0.68 К экспериментально исследован процесс релаксации аномального состояния: возврат кинетики роста к режиму, характерному для кристаллов в нормальном состоянии. Обнаружено, что основной процесс релаксации с уменьшением скорости роста на два порядка происходит за время 1–20 мс после окончания фазы быстрого роста. В течение последующего времени, равного примерно 100 мс, наблюдается медленная релаксация к нормальным значениям кинетического коэффициента роста.

PACS: 67.80.-s

1. ВВЕДЕНИЕ

Кинетика роста кристаллов гелия при небольших отклонениях от равновесия хорошо изучена как выше температуры переходов ограничения в атомно-шероховатом состоянии, так и ниже — в атомно-гладком состоянии. Основные черты кинетики описываются известной моделью послойного роста кристалла [1] с учетом квантовых эффектов, описанных Андреевым и Паршиным [2]. Явление аномального роста, не вписывающееся в эту картину, проявляется при достаточно высоких пересыщениях и состоит в резком увеличении скорости роста граней на несколько порядков [3]. К настоящему времени выяснены условия, при которых возникает это состояние [4–6], изучена кинетика его возникновения [7], измерены скорости роста после перехода в аномальную фазу [7, 8] и воздействие примесей на эти процессы [9]. Эти опыты позволили отбросить возможные объяснения аномального роста, основанные на механизмах, изученных на классических кристаллах, см. [1]. Однако картина эволюции аномального состояния оставалась незавершенной до экспериментального исследования обратного процесса: возврата кристалла в нормальное состояние. Под нормальным состоянием мы понимаем состояние с медленной кинетикой роста, контролируемой известными механизмами (спиральный рост, источ-

ники Франка–Рида, двумерное зародышеобразование [1]). В этом случае подвижность граней определяется внешним пересыщением и не зависит от предыстории.

После перехода в аномальное состояние кристалл быстро вырастает и давление в контейнере падает до значения, близкого к значению давления фазового равновесия и заведомо меньшего величины давления пересыщения, необходимого для зарождения аномального состояния. Из предыдущих экспериментов было известно, что через секунду после этого момента кристалл ведет себя вполне обычно [10]. Позднее была дана меньшая оценка времени возврата — около 100 мс [5]. Эти данные в общих чертах характеризовали процесс возврата к нормальному состоянию. Детали процесса релаксации были неизвестны. В частности, оставался открытым вопрос: как происходит обратный процесс релаксации? Скачком, как при образовании аномального состояния, или непрерывно, с монотонным уменьшением кинетического коэффициента роста на несколько порядков?

Резкое увеличение скорости роста грани (0001), свободной от ростовых дислокаций, наблюдалось в диапазоне температур 0.002–0.25 К, как в наших экспериментах по скачку давления, так и в работе [11] с помощью оптических методов. Из записей давления видно, что после сброса давления (фаза быстрого роста) начинается его увеличение, говорящее о предельно низкой скорости роста. Таким образом, и

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

в этом случае зарегистрирована релаксация к нормальному состоянию. Однако низкое временное разрешение емкостного датчика и оптической регистрации (~ 1 с) не позволяет выяснить детали процесса релаксации.

В данной работе проведены исследования процесса релаксации кристалла гелия к нормальному состоянию.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ МЕТОДИКА

Из предыдущих опытов было известно, что вид кристаллов перед переходом к процессу быстрого роста и по его завершению качественно не отличается от нормальных кристаллов [7, 12]. Пока единственный признак аномалии — высокая скорость роста граней, превышающая нормальную на несколько порядков. Таким образом, процесс возврата к нормальному состоянию (релаксацию) можно проследить пока единственным образом, изучая кинетику роста граней при малых пересыщениях, не вызывающих перехода в аномальную фазу. В данных экспериментах рост кристалла обеспечивался за счет непрерывного поступления жидкого гелия в контейнер через капилляр, связывающий экспериментальный объем с внешней системой высокого давления. Поскольку масса гелия в контейнере и системе давления постоянна, можно записать уравнения, связывающие давления в обеих частях системы:

$$M_1 + M_2 = M = \text{const},$$

$$M_1 = \rho'V_c + \rho(p_1)(V_1 - V_c), \quad M_2 = p_2V_2(t) \frac{m_4}{RT}, \quad (1)$$

$$\frac{dM_1}{dt} = -\frac{dM_2}{dt} = \frac{p_2 - p_1}{Z},$$

где индекс 1 относится к контейнеру, 2 — к наружной части. Верхним штрихом отмечены параметры твердого гелия, без штриха — жидкости, V_c — объем кристалла гелия, V_1 — внутренний объем контейнера, Z — импеданс капилляра. Объем внешней части V_2 изменялся путем сжатия/растяжения сильфона. Ниже температуры 0.8 К, при которой проводились эксперименты, влияние теплового расширения гелия и теплоты кристаллизации пренебрежимо мало [5], поэтому эти поправки не учитываются в формулах (1). Переходя к более удобным переменным, получим систему уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dp_1}{dt} + Dp_0 \frac{df}{dt} &= \frac{p_2 - p_1}{\tau_1}, \\ \frac{dp_2}{dt} &= -\frac{p_2 - p_1}{\tau_1} + \left(1 + \frac{\tau_1}{\tau_2}\right) \frac{dp_1}{dt} \Big|_{t < 0}, \\ \tau_1 &= Z\rho V_1 k_L, \quad \tau_2 = Z \frac{m_4 V_2}{RT}, \\ f &= \frac{V_c}{V_1 \frac{\rho}{\Delta\rho} k_L D p_0}, \end{aligned} \quad (2)$$

где Dp_0 — пересыщение, с которого начинается рост кристалла, k_L — сжимаемость жидкого гелия. Заметим, что отношение постоянных времени τ_1 и τ_2 не зависит от импеданса подводящего капилляра, а определяется соотношением масс гелия в контейнере и внешней газовой части. При сжатии сильфона с постоянной скоростью внешнее давление превышает давление в контейнере на величину

$$p_2 = p_1 + \tau_1 \frac{dp_1}{dt}, \quad \frac{dp_1}{dt} \approx \text{const}. \quad (3)$$

После перехода кристалла в аномальное состояние, он вырастает со сбросом пересыщения за время, равное примерно $1 \text{ мс} \ll \tau_{1,2}$, так что начальные условия для системы (2) даются выражениями

$$\begin{aligned} p_1 &= p_1(0), \\ p_2 &= Dp_0 + \tau_1 \frac{dp_1}{dt} \Big|_{t=0}, \\ f &= 1. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь и ниже давление теперь отсчитывается от давления фазового равновесия. Подставляя экспериментально измеренную зависимость $p_1(t)$ в систему (2) с начальными условиями (4) и учитывая, что значения постоянных времени значительно превышают время эксперимента ($\tau_1 = 37$ с, $\tau_2 = 30$ с, $\tau_{1,2} \gg t_{exp} \sim 0.2$ с), получим зависимость объема кристалла от времени:

$$V_c(t) = V_1 \frac{\rho}{\Delta\rho} k_L \left(Dp_0 - p_1(t) + p_2(0) \frac{t}{\tau_1} \right). \quad (5)$$

Отметим, что поскольку в выражении стоит разность текущего и начального давлений, результат формулы (5) не чувствителен к определению положения давления фазового равновесия.

Измерение давления в контейнере и соответственно определение объема кристалла выполнялось с шагом 64 мкс. Однако перейти от значения объема к размеру и определить скорость роста граней можно только в следующем случае: образуется монокристалл; известна анизотропия роста;

кинетика плотноупакованных граней медленнее кинетик поверхностей других кристаллографических ориентаций. Тогда форма кристалла, определяемая подвижностью базисных и боковых граней, — гексагональная призма — и изменение объема определяются ростом граней. Подобный метод применялся ранее для измерения скоростей на этапе быстрого роста [7]. Из изложенного ясно, что измерение давления следует дополнить непосредственной съемкой кристалла в процессе релаксации. Фотографии кристалла, выполненные с интервалом времени 20 мс (расстояние между полукадрами), дают опорные точки для восстановления всего процесса роста кристалла, что позволяет использовать в промежутках между кадрами соотношение (5) для определения скоростей роста граней.

Поскольку скорость роста граней при релаксации изменяется на порядки, мы не будем принимать во внимание анизотропию роста эквивалентных граней, а для связи скорости роста с пересыщением используем линейное соотношение

$$V = K \frac{\Delta\rho}{\rho\rho'} p_1, \quad (6)$$

приближенно выполняющееся и для граней в атомно-гладком состоянии (о применимости этого соотношения см. обсуждение в работе [7]). Ошибка в определении коэффициента сопротивления росту $1/K$ складывается из ошибок в измерениях скорости и пересыщения. Величина пересыщения отсчитывается от давления фазового равновесия над плоской поверхностью. В данных экспериментах эта точка определялась по завершению измерения при последующем плавлении кристалла. Типичный радиус кривизны поверхности кристалла равнялся примерно 1 мм, что дает поправку приблизительно 0.02 мбар, которая совместно со среднеквадратичной ошибкой измерения давления равной примерно 0.07 мбар, дает суммарную неопределенность около 0.1 мбар. Этот вклад существен в области, где пересыщение составляет такую же или меньшую величину. Для независимой оценки давления в этих случаях мы использовали измерение кривизны атомно-шероховатых поверхностей по фотографиям кристаллов. Ошибка оптической методики увеличивается с пересыщением и примерно при 0.25 мбар достигает приблизительно 50%. Объединение методик позволило снизить ошибку измерения во всем диапазоне до 0.03–0.05 мбар.

Методика эксперимента ранее подробно излагалась в ряде работ [5, 7], поэтому укажем только основные моменты. Рост кристаллов из гелия, очи-

щенного термомеханическим эффектом, проводился в оптическом контейнере [13], установленном в оптическом рефрижераторе ${}^3\text{He}$ [14]. Рождение кристалла инициировалось импульсом высокого напряжения, приложенным к вольфрамовой игле. Падение давления регистрировалось емкостным датчиком с полосой 25 кГц. Съемка кристалла осуществлялась ПЗС-камерой, причем кадры были синхронизированы с импульсом напряжения, регистрацией давления и импульсным (длительностью 15 мкс) источником света.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Максимальное пересыщение, достигаемое в камере, ограничено спонтанным зародышеобразованием на стенке. В оптических экспериментах эта величина составляла 8–10 мбар. Оказалось, что качество и форма кристалла существенно зависят от режима роста в аномальном состоянии. Поэтому на первом этапе определялись условия, при которых вырастают кристаллы, удовлетворяющие критериям, изложенным в предыдущем разделе и пригодные для измерения релаксации.

3.1. Кинетика роста и форма кристалла во время фазы быстрого роста при высоких пересыщениях

Исследование скорости роста кристаллов после перехода в аномальное состояние оптическими методами ранее проводилось при пересыщениях, не превышающих примерно 6 мбар [5, 7]. Фотографии кристалла показали, что в течение первых примерно 200 мкс форма кристалла близка к гексагональной призме. На кадрах наблюдалась небольшая рябь на гранях, но в целом кристалл в этот период имеет четкую огранку, отражающую симметрию шестого порядка и свидетельствующую о небольшой анизотропии кинетического коэффициента роста порядка 1.5–3. Этот вывод подтверждается и настоящими наблюдениями.

Кристаллы, начинающие свой рост с пересыщения более 6 мбар, демонстрируют сильные отклонения формы от гексагональной, см. рис. 1. Видно, что вначале кристалл напоминает гексагональную призму. Однако позже, через 120–200 мкс после перехода форма кристалла близка к сферической с заметной «всхолмленностью». Подобный вид встречается чаще всего, хотя иногда наблюдаются весьма экзотические формы кристаллов (см. ниже рис. 5*в*). На

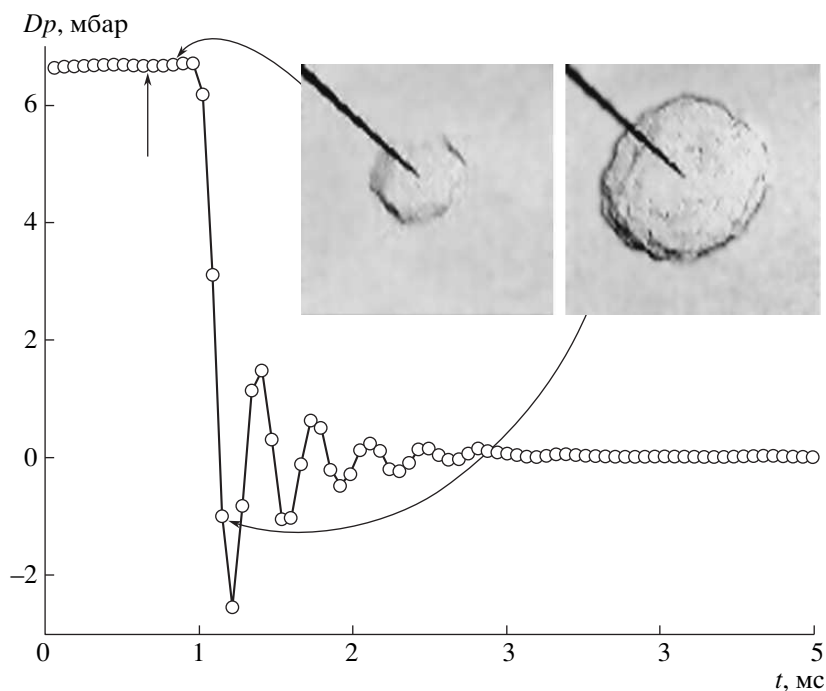


Рис. 1. Рост кристалла при $T = 0.48$ К. Вертикальная стрелка отмечает момент приложения импульса высокого напряжения. На начальной стадии кристалл имеет видимую кинетическую огранку с небольшой анизотропией роста. Примерно через 200 мкс неустойчивость приводит к почти сферической форме кристалла

рис. 2 показана область, в которой наблюдается турбулентность поверхности. Видно, что условная граница, разделяющая области устойчивости и неустойчивости (заштрихованная полоса), лежит примерно при 6 мбар. Отметим, что этот график отображает только те случаи, когда неустойчивость развилась во время роста за первые 200 мкс. В большинстве кристаллов, выросшие выше границы устойчивости, имеют включения жидкости внутри себя (см. ниже рис. 5в), а также протяженные дефекты, выходящие на поверхность, о наличии которых говорит сильное искажение поверхности кристалла, особенно заметное в равновесном состоянии, по завершении роста. Это делает их непригодными для измерений релаксации. Таким образом, область, в которой возможны исследования возврата к нормальному состоянию данной методикой, ограничена сверху пересыщением примерно 6 мбар, а снизу — границей между аномальной и нормальной фазами.

3.2. Возможные причины искажения формы кристаллов

Эти наблюдения заставляют по-новому взглянуть на результаты измерения скоростей роста при высоких пересыщениях, рис. 3. Существенным осно-

ванием метода определения скорости роста по отношению амплитуд давления является предположение о том, что кристалл имеет выпуклую форму, не сильно отличающуюся от сферической [7]. Для кристаллов, чья форма становится округлой, это выполняется, рис. 1. Но для кристалла, показанного на рис. 5в, это предположение нарушается и такой метод расчета дает завышенные значения скорости и кинетического коэффициента роста. Поэтому, до тех пор пока не будет выяснена форма кристалла выше зоны устойчивости, результаты определения скорости быстрого роста по данной методике следует рассматривать как верхнюю границу значений. С учетом этих замечаний приведем значения средней скорости роста на первой полуволне осцилляций давления (первые примерно 200 мкс) для кристаллов с начальным пересыщением приблизительно 10 мбар, рис. 4. Затухание последующих колебаний давления связано с ростом/плавлением атомно-шероховатых участков. Декремент затухания позволяет оценить по порядку величины кинетический коэффициент роста этих поверхностей при пересыщении, не превышающем 1 мбар, рис. 4. Эти значения дают интервал величин, с которых начинается возврат в нормальное состояние.

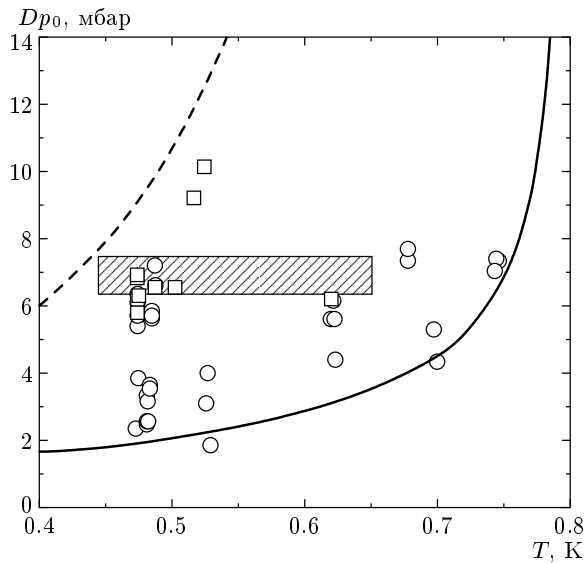


Рис. 2. Фазовая диаграмма аномального состояния. Сплошная линия разделяет области нормального (ниже кривой) и аномального роста. Кружками обозначены серии роста, в которых не наблюдалось развития неустойчивости формы, квадратами — кристаллы с заметными отклонениями формы от гексагональной, граница между ними — заштрихованная область. Штриховой кривой показан ход граничного пересыщения для тангенциальной неустойчивости [18, 19]

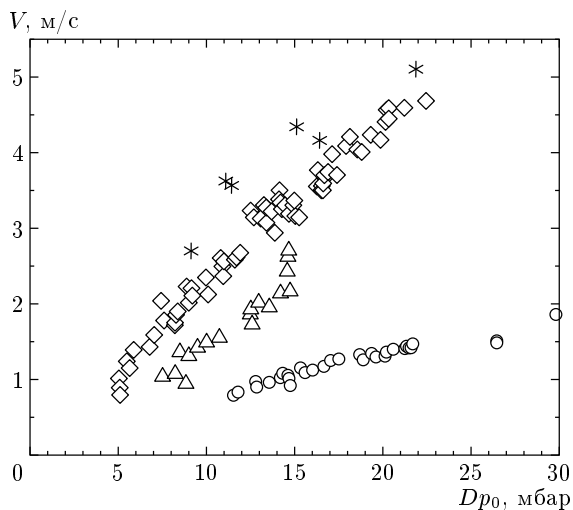


Рис. 3. Скорости роста кристалла сразу после перехода в аномальное состояние: \circ — $T = 0.653$ К, \triangle — $T = 0.533$ К, \diamond — $T = 0.421$ К, $*$ — $T = 0.206$ К

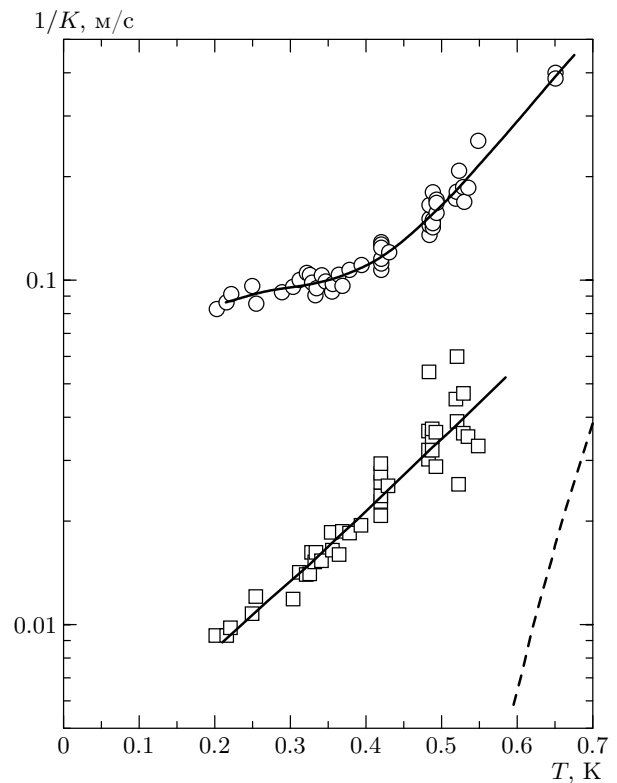


Рис. 4. Зависимость кинетического коэффициента роста, определенного по осцилляциям давления, от температуры. Кружки демонстрируют кинетику граней в течение первых примерно 200 мкс после образования быстрой фазы, квадраты показывают кинетику атомно-шероховатых поверхностей на заключительном этапе осцилляций. Штриховая кривая соответствует кинетическому коэффициенту роста атомно-шероховатых поверхностей, измеренному при малых отклонениях от равновесного состояния методом кристаллизационных волн

Согласно эксперименту, перед переходом в аномальное состояние кристалл имеет хорошо определенные грани и растет за счет механизмов, связанных с дефектами [5, 7]. Картина роста кристаллов на этом этапе дает основания полагать, что базисные и боковые грани находятся в атомно-гладком состоянии. Само по себе пересыщение не разрушает перехода огранения. После перехода в аномальную фазу в эксперименте наблюдается кинетическая огранка кристалла [8], говорящая только об анизотропии роста. Эта анизотропия может возникнуть как при росте атомно-гладких, так и атомно-шероховатых граней. Действительно, возникновение плоских участков на поверхности растущего кристалла экспериментально наблюдалось и вы-

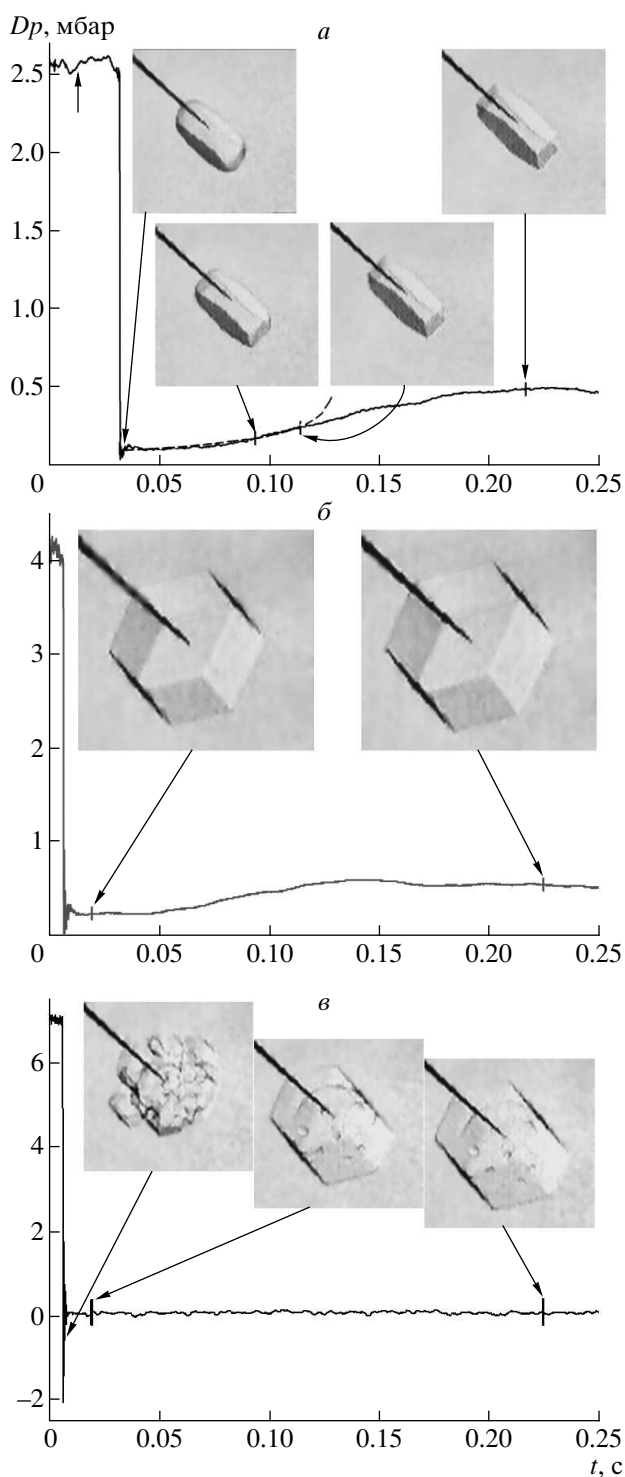


Рис. 5. Примеры роста кристаллов на этапе релаксации к нормальному состоянию при 0.48 К. *а)* Релаксация кристалла с начальным пересыщением вблизи границы аномальной области, *б)* релаксация кристалла при остаточном давлении примерно до 0.25 мбар, *в)* форма и релаксация кристалла, образовавшегося при высоком пересыщении

ше перехода огранения, когда граница находится в атомно-шероховатом состоянии [5, 15]. Поэтому вопрос, происходит ли при переходе в аномальную фазу возврат поверхности кристалла в атомно-шероховатое состояние или она остается атомно-гладкой, остается открытым.

Устойчивость атомно-гладкой поверхности в тангенциальном потоке жидкости рассматривалась Андреевым [16], который показал, что изменение энергии ступени приводит к цилиндрической огранке кристалла. В нашем случае происходит в основном нормальное падение потока жидкости на границу, что отличается от рассмотренного в работе [16] чисто касательного течения. Эксперименты со струей жидкости, направленной на базисную грань кристалла, показали, что грань не разрушается при скоростях потока, достигающих до 50 см/с, что соответствует скоростям роста около 5 м/с [17]. Хотя ситуация в экспериментах со струей отличается от ситуации при росте кристалла на игле, устойчивость грани до таких высоких скоростей свидетельствует в пользу вывода об устойчивости формы кристалла в атомно-гладком состоянии при быстром росте.

Если же переход в аномальную фазу приводит к переходу граней в атомно-шероховатое состояние, то в этом случае пропадает сингулярность поверхностной жесткости на плотноупакованных гранях и становятся возможными гидродинамические неустойчивости, связанные либо с кристаллизационными волнами, либо с неустойчивостью Кагана–Нозьера–Уваги [18, 19]. В первом случае рябь на поверхности кристалла могла бы быть вызвана рождением и распространением кристаллизационных волн, поскольку кинетические коэффициенты роста граней достаточно велики. Закон дисперсии волн без учета гравитационного вклада и тангенциального потока жидкости (см. ниже) имеет вид [2]

$$\omega^2 + i \frac{1}{K} \frac{\rho \rho'}{\Delta \rho^2} \omega k - \frac{\alpha \rho}{\Delta \rho^2} k^3 = 0, \quad (7)$$

где ω и k — частота и волновой вектор кристаллизационной волны, α — поверхностная жесткость. Для оценки пренебрежем зависимостью поверхностной энергии от ориентации и примем для величины жесткости значение поверхностной энергии около 0.2 э/см². Для бегущей кристаллизационной волны должно выполняться условие

$$k \geq \frac{1}{4K^2} \frac{\rho}{\alpha} \left(\frac{\rho'}{\Delta \rho} \right)^2, \quad (8)$$

что для значений $1/K \sim 10$ см/с (см. рис. 4) дает оценку для минимального волнового вектора

$k \sim 10^4 \text{ см}^{-1}$ и затухания волны пропорционально $\exp(-t/\tau)$:

$$\tau \leq 4K^3 \frac{\alpha}{\rho'} \left(\frac{\Delta\rho^2}{\rho\rho'} \right)^2 \sim 10^{-6} \text{ с.} \quad (9)$$

Из оценки следует, что длина кристаллизационных волн, распространяющихся вдоль грани, порядка 10^{-4} см и слишком мала, чтобы образовать наблюдаемые искажения поверхности граней. К тому же эти волны должны затухать за время, на два порядка меньшее характерного времени роста. Таким образом, возбуждение кристаллизационных волн не ответственно за наблюдаемую деформацию формы кристалла.

Потоки жидкости, текущие вдоль поверхности, изменяют закон дисперсии кристаллизационных волн и могут приводить к неустойчивости поверхности, как было показано Нозьером и Увагой [18] и Каганом [19]. В этих работах отмечена неустойчивость, аналогичная неустойчивости тангенциальных разрывов Кельвина–Гельмгольца, причем нормально падающий поток жидкости к неустойчивости не приводит¹⁾. При свободном росте кристалла в центре контейнера его кинетическая огранка, имеющая вид гексагональной призмы, приведет в районе ребер к касательному потоку жидкости со скоростью v_t , что и могло бы послужить источником неустойчивости. Закон дисперсии кристаллизационных волн в присутствии скользящего потока жидкости имеет вид

$$\omega^2 + \left(i \frac{1}{K} \frac{\rho\rho'}{\Delta\rho^2} \omega k + 2v_t \frac{\rho}{\Delta\rho} \right) + k^2 \left(v_t \frac{\rho}{\Delta\rho} \right)^2 - \frac{\alpha\rho}{\Delta\rho^2} k^3 = 0. \quad (10)$$

Положительная мнимая часть частоты приводит к экспоненциальному росту амплитуды возмущения. Поскольку наблюдаемая неустойчивость развивается за время примерно 100 мкс, значения тангенциальной скорости должны быть достаточно велики. Положив значение в максимуме $\text{Im}(\omega) = 10^4 \text{ с}^{-1}$ и взяв значения кинетического коэффициента роста из рис. 4, можно численно рассчитать требуемые значения v_t . Они лежат в интервале 25–40 см/с. Предположив, что касательные скорости пропорциональны скорости v_n нормального падения жидкости и что эта связь (геометрический фактор), примерно

постоянна в нашем интервале температур, рассчитаем температурный ход пересыщения, необходимого для развития тангенциальной неустойчивости, см. рис. 2 (геометрический фактор $v_t/v_n \sim 0.2$ подобран так, чтобы при $T = 0.4$ К граница неустойчивости проходила через точку $Dp = 6$ мбар). Видно, что увеличение температуры приводит к уменьшению кинетического коэффициента роста, а значит, требуется более высокая скорость течения жидкости и, как следствие, увеличение давления. Такой крутой ход плохо согласуется с экспериментом, поэтому вряд ли наблюдаемая неустойчивость есть следствие тангенциальной неустойчивости Кагана–Нозьера–Уваги [18, 19], развивающейся из-за неоднородного течения гелия.

Возможно, что искажения поверхности кристалла происходят вследствие возникновения и развития турбулентности в потоке жидкости вблизи кристалла, поскольку скорости течения жидкости велики, см. рис. 3. Из наших данных пока нельзя сделать оценку роли этого процесса.

3.3. Релаксация к нормальному состоянию до границы неустойчивости

В этой области кристаллы соответствуют сформулированным ранее критериям, имеют незначительные дефекты и форму гексагональной призмы. Восстановление размеров кристалла по проекции дает ошибку в измерении линейных размеров около 0.01 мм. Промежуток между снимками варьировался от 20 до 100 мс, что дает нижнюю границу скорости роста граней ~ 0.01 см/с. Сверху скорость роста ограничивается подтоком гелия и в наших экспериментах не превышает 0.1 см/с. Для пересыщенных $Dp \geq 0.1$ мбар соответствующие кинетические коэффициенты роста лежат в области $1/K \geq 5$ м/с. Ниже приводятся данные для коэффициентов роста наиболее быстрых, боковых граней. Значения K для базисных граней получаются из этих данных умножением на коэффициент анизотропии, который при $T \sim 0.5$ К лежит в интервале 0.3–0.6, а при $T \sim 0.7$ К в диапазоне 0.05–0.15.

Релаксация кристаллов при $T = 0.48$ К

Рассмотрим релаксацию кристаллов, образовавшихся вблизи границы аномальной фазы, рис. 5а. Кинетический коэффициент быстрого роста, определенный по отношению амплитуд, равняется $1/K = 0.14$ м/с. По завершению фазы быстрого

¹⁾ Вывод работы [17] о неустойчивости поверхности при росте кристалла неверен. Авторы благодарны А. Я. Паршину, указавшему на это обстоятельство.

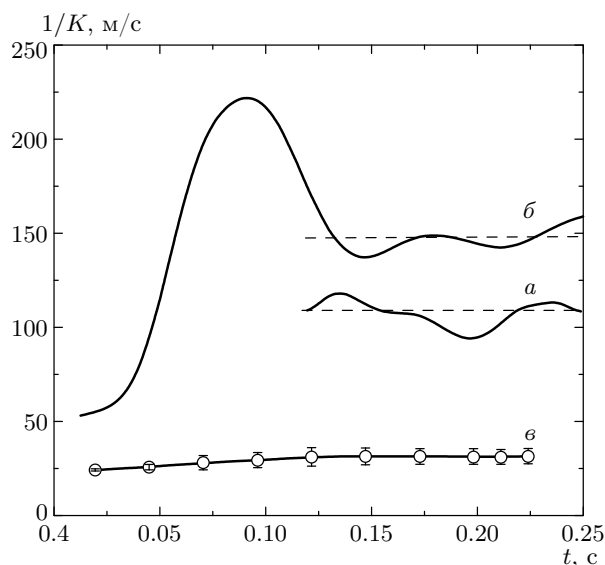


Рис. 6. Изменение кинетического коэффициента роста на завершающем этапе релаксации. Обозначения кривых соответствуют сериям на рис. 5. Время отсчитывается от скачка давления

роста в контейнере устанавливается давление, выше равновесного для плоской поверхности на величину лапласовского давления. Эта разница, как видно по округленной форме кристаллов на рис. 5а, составляет около 0.07 мбар. Подток жидкости по капилляру приводит к росту кристалла в первую очередь в районе скругленных ребер, где кинетический коэффициент роста выше коэффициента роста граней. До тех пор пока идет рост атомно-шероховатых участков, ход давления будет отражать возрастание их кривизны, см. рис. 5а, пунктирная кривая. Затем начинается наблюдаемый рост граней, и мы можем определить кинетику их роста по методике, изложенной ранее, см. рис. 6. Видно, что, начиная с $t \sim 100$ мс, кинетический коэффициент роста остается неизменным в пределах ошибки измерения. Для времен $t < 100$ мс нижняя граница коэффициента $1/K \geq 10$ м/с. Таким образом, уже через время, равное примерно 20 мс после окончания этапа быстрого роста, подвижность граней уменьшилась не менее, чем на два порядка.

Рост кристаллов за счет атомно-шероховатых участков увеличивает задержку, начиная с которой применима наша методика. С этой точки зрения предпочтительны серии измерений, в которых давление в контейнере после завершения быстрого роста отличается от равновесного на большую величину, $Dr \geq 0.2$ мбар. В этом случае кривизна ребер

мала и ресурс роста за счет атомно-шероховатых участков исчерпывается значительно быстрее. Пример такой серии приведен на рис. 5б. Во время быстрого роста кинетический коэффициент равен $1/K = 0.14$ м/с. На фотографиях видно, что, начиная с $t \sim 20$ мс после скачка давления, кристалл увеличивается за счет роста граней. Соответствующая зависимость кинетического коэффициента роста от времени приведена на рис. 6. За время от 20 до 100 мс видна небольшая (порядка трех раз) релаксация коэффициента K , который выходит к значению $1/K = 150 \pm 24$ м/с. Таким образом, основная релаксация кинетики происходит за время, меньшее 20 мс. Вопрос, происходит обратный переход скачком или непрерывно, остается открытым.

Изучение релаксации при больших пересыщениях ограничивается, как было отмечено выше, неустойчивостью формы кристалла во время быстрого роста и, как следствие, его дефектностью и сильным искажением граней. Однако удалось зарегистрировать рост кристалла, который, несмотря на указанные обстоятельства, тем не менее имел форму, пригодную для подобных измерений, см. рис. 5в. Во время быстрого роста кинетический коэффициент равен $1/K = 0.097$ м/с, т. е. примерно вдвое превышает значения для кристаллов рис. 5а, б. Включения жидкости в кристалле не изменяют своего положения. Давление в контейнере на этапе релаксации мало изменяется и равно 0.1 ± 0.06 мбар. Неточность определения давления фазового равновесия может изменить масштаб значений K не более чем вдвое в ту или иную сторону. На рис. 6 приведены значения кинетического коэффициента роста, вычисленные для величины $Dr = 0.1$ мбар, и относительные ошибки, определяющиеся шумами. Видно медленное убывание кинетического коэффициента роста, который остается примерно на порядок больше равновесного значения, но на два порядка меньше величины, измеренной во время быстрого роста.

Релаксация при $T = 0.69$ К

При этой температуре диапазон пересыщений, при которых образуются кристаллы, пригодные для измерений, невелик, см. рис. 2. Но важным преимуществом экспериментов в этой области является значительный интервал времени, проходящий между моментом образования кристалла и его переходом в аномальное состояние, рис. 7. Это позволяет провести измерения кинетики роста до перехода совместно с измерениями релаксации. На рис. 7 приведены две серии роста с задержками 16 мс (а) и 3.6 мс (б). Отметим, что объем кристалла серии (а) с высокой

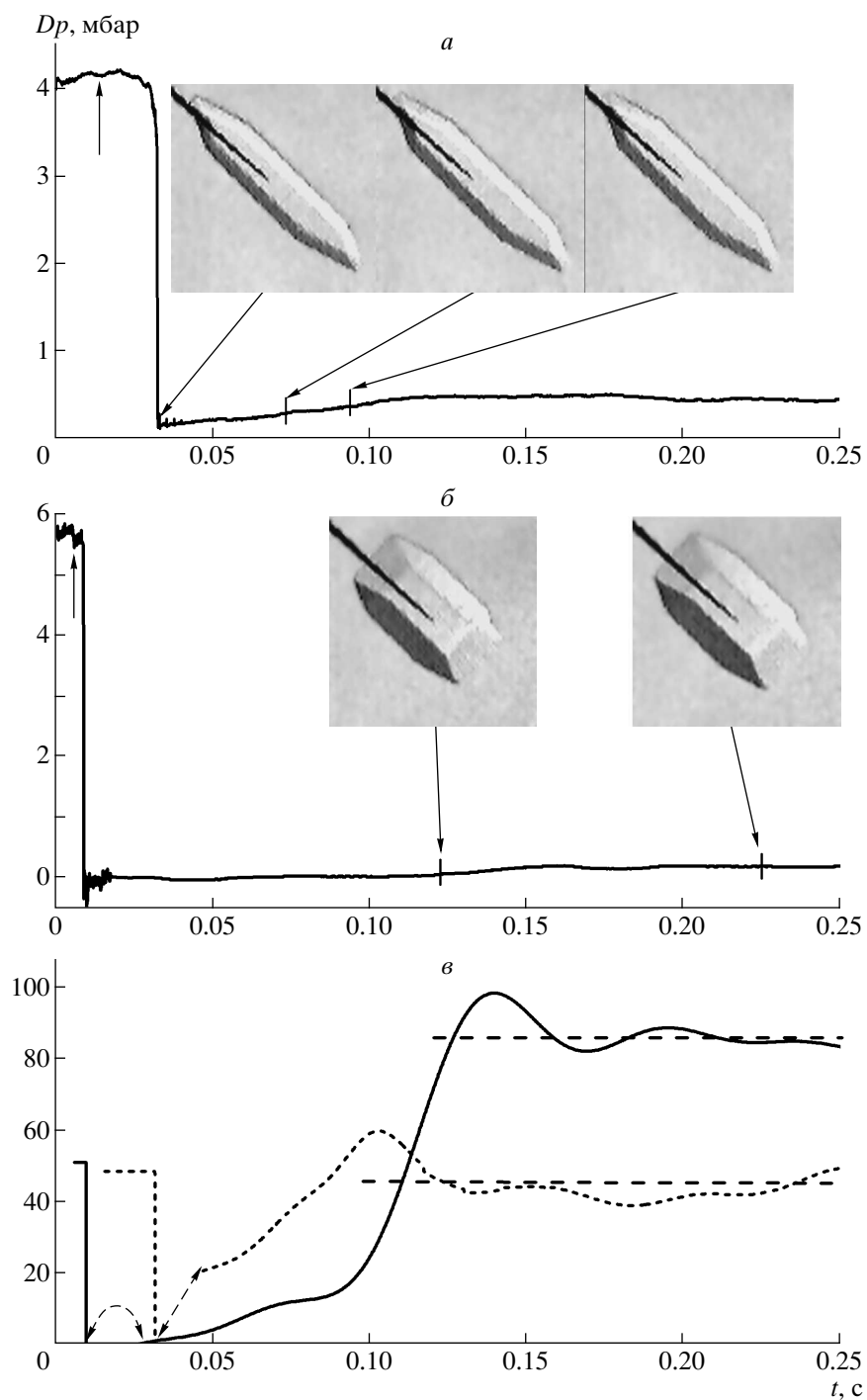


Рис. 7. Релаксация кристаллов при 0.69 К при двух различных величинах начальных пересыщений. Кинетические коэффициенты роста кристаллов до и после аномального роста отличаются не более чем вдвое. Двухсторонними стрелками указаны интервалы вне пределов чувствительности данной методики

анизотропией роста (0.053) перед скачком составлял примерно 50 % от конечного объема, т. е. на этапе быстрого роста его размер увеличился всего на 25 %. Для серии (б) удалось определить кинетический коэффициент быстрого роста $1/K_{fast} = 0.22$ м/с. На нижнем графике показано изменение кинетического коэффициента роста. Видно, что значение K до перехода мало отличается от величины после релаксации. Отличие примерно в 2 раза незначимо: как ранее наблюдалось по форме кинетической огибающей, в режиме нормального роста, обусловленного дефектами [5, 10], скорости роста даже эквивалентных граней различаются в несколько раз. Значения K при $T = 0.68$ К выше, чем при 0.48 К, что согласуется с известными экспериментальными данными [10, 12].

Как и при температуре 0.48 К, быстрая релаксация протекает за время около 20 мс после перехода, и кинетический коэффициент принимает значения $1/K = 10\text{--}20$ м/с. Далее наблюдается возврат кинетики к нормальному значению, завершающийся примерно через 100 мс. Сравнение кривых релаксаций (а) и (б) показывает тенденцию, заметную и на рис. 6: время медленной релаксации к нормальному состоянию растет с увеличением начального пересыщения.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Эксперименты показали, что основная, быстрая, релаксация происходит за время примерно от 1 до 20 мс после перехода в аномальное состояние. Этот период не разрешался нашей методикой, известно только, что в начальной его точке кинетический коэффициент роста лежал в интервале $1/K = 0.05\text{--}0.25$ м/с, а в конечной упал до $1/K = 10\text{--}20$ м/с. Вопрос, происходит ли основной возврат скачком или непрерывно, так и остался неразрешенным. Далее наблюдается релаксация с характерным временем примерно 100 мс к нормальным значениям, близким к величинам коэффициента роста до перехода. Наблюдается тенденция увеличения времени медленной релаксации (см. рис. 6, 7) с ростом стартового пересыщения. Однако это вывод не может считаться окончательным, поскольку существенное торможение релаксации (рис. 5в, 6) наблюдалось на кристаллах, образовавшихся при высоких пересыщениях. В этих случаях наблюдалась неустойчивость роста поверхности, приводящая к дефектности кристаллов, образованию включений и, возможно, к насыщению кристалла вакансиями.

Наблюдения финальной стадии процесса завершают картину эффекта.

До сих пор остаются непонятными процессы, проходящие в течение длительного времени и приводящие к резкому увеличению скорости роста, а также собственно механизм быстрого роста. Единственное явление, имеющее общие черты с данным эффектом (фазовая диаграмма, статистический характер перехода, влияние примесей), это эффект, описанный в работе [11]. Объединение этих эффектов еще более сузило перечень возможных источников быстрого роста. Поскольку в последнем случае ускорение происходило на совершенной грани, источники роста должны формироваться самой поверхностью. Двумерное зародышеобразование неэффективно при столь малых отклонениях от равновесия. Качественно новый источник роста предложен в работе [20], где показано, что столкновения ступеней способны приводить к их перебросу в следующую кристаллографическую плоскость и, таким образом, обеспечивают рост идеальной грани. Увеличение температуры и введение примесей тормозит ступени, что требует большего пересыщения для реализации такого сценария. Эта картина качественно согласуется с экспериментом и, возможно, именно этот механизм обеспечивает быструю кинетику граней. Однако причина, по которой длительное время этот механизм не запускается и кристалл растет обычным, медленным, способом, остается неясной. Объяснение быстрого роста на основе модели, предложенной в работе [21], качественно не согласуется с экспериментальными данными.

Автор благодарен А. Я. Паршину за обстоятельное и критическое обсуждение работы, а также Ю. М. Кагану за интерес и полезные обсуждения в процессе выполнения экспериментов. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 02-02-16772).

ЛИТЕРАТУРА

1. А. А. Чернов, *Современная кристаллография*, т. 3, Наука, Москва (1980).
2. А. Ф. Андреев, А. Я. Паршин, *ЖЭТФ* **75**, 1511 (1978).
3. V. L. Tsybalenko, *Phys. Lett. A* **211**, 177 (1996).
4. V. L. Tsybalenko, *Phys. Lett. A* **257**, 209 (1999).

5. V. L. Tsymbalenko, *J. Low Temp. Phys.* **121**, 53 (2000).
6. В. Л. Цымбаленко, *Письма в ЖЭТФ* **77**, 288 (2003).
7. В. Л. Цымбаленко, *ЖЭТФ* **119**, 1182 (2001).
8. V. L. Tsymbalenko, *Phys. Lett. A* **274**, 223 (2000).
9. В. Л. Цымбаленко, *Письма в ЖЭТФ* **78**, 965 (2003).
10. В. Л. Цымбаленко, *ФНТ* **21**, 162 (1995).
11. P. J. Hakonen, J. P. Ruutu, G. Tvalashvili, A. V. Babkin, and A. Ya. Parshin, *J. Low Temp. Phys.* **112**, 117 (1998).
12. S. Balibar, F. Gallet, P. Nozieres, E. Rolley, and P. E. Wolf, *J. de Phys.* **46**, 1987 (1985).
13. V. L. Tsymbalenko, *Cryogenics* **36**, 65 (1996).
14. В. Л. Цымбаленко, *ПТЭ* **4**, 161 (1997).
15. J. Bodensohn, P. Leiderer, and K. Nicolai, *Z. Phys. B* **64**, 55 (1986).
16. А. Ф. Андреев, *ЖЭТФ* **106**, 1219 (1994).
17. Л. А. Максимов, В. Л. Цымбаленко, *ЖЭТФ* **122**, 530 (2002).
18. P. Nozieres and M. Uwaha, *J. de Phys.* **47**, 263 (1986).
19. М. Ю. Каган, *ЖЭТФ* **90**, 498 (1986).
20. А. Я. Паршин, В. Л. Цымбаленко, *Письма в ЖЭТФ* **77**, 372 (2003).
21. N. Gov, *J. Low Temp. Phys.* **129**, 25 (2002).