Физика низких температур, 1995, т. 21, № 2, с. 162–172 УДК 538.941

Исследование кинетики роста граней свободно растущего кристалла ^{4}He

В. Л. Цымбаленко

Российский научный центр «Курчатовский институт», Россия, 123182, г. Москва, пл. И. В. Курчатова

Статья поступила в редакцию 1 августа 1994 г., после переработки 9 сентября 1994 г.

Изучен рост свободного кристалла ^{4}He в температурном интервале от 0,5 до 1,5 К и отклонениях от давления фазового равновесия до 1 000 дин/см^2. Разработан метод выращивания кристаллов гелия с минимальным количеством дефектов. Анизотропия кинетического коэффициента роста кристалла измерена непосредственно по форме кристалла. Ниже обоих переходов огранения кристалл рос, сохраняя свою форму, что означает пропорциональность скоростей роста для свободных граней всех ориентаций. Это свидетельствует об общности механизмов роста базисной и боковых граней. Скорости роста эквивалентных граней при одинаковых условиях тем не менее отличались приблизительно в два раза, на их величины оказывала влияние деформация, что дало основание сделать вывод о существенном влиянии дефектов поверхности на рост кристалла. На зависимости скорости роста от пересыщения наблюдался порог. Результаты качественно объяснены в рамках модели послойного роста кристалла, в которой образование нового слоя контролируется источниками Франка—Рида и поверхностными дефектами.

Вивчено ріст вільного кристала ^{4}He в температурному інтервалі від 0,5 до 1,5 К та відхиленнях від тиску фазової рівноваги до 1 000 дін/см^2. Розроблено метод вирощування кристалів гелію з мінімальною кількістю дефектів. Анізотропію кінетичного коефіцієнта росту кристала виміряно безпосередньо по формі кристала. Нижче обох переходів огранення кристал ріс, зберігаючи свою форму, що означає пропорційність швидкостей росту для вільних граней усіх орієнтацій. Це свідчить про спільність механізмів росту базісної і бокових граней. Швидкості росту еквівалентних граней при однакових умовах проте відрізнялися приблизно в два рази, на їх величини впливала деформація, що дало підставу зробити висновок про істотний вплив дефектів поверхні на ріст кристала. На залежності швидкості росту від пересичення спостережено поріг. Результати якісно пояснено в межах моделі шаруватого росту кристала, в якій утворення нового шару контролюється джерелами Франка—Ріда та поверхневими дефектами.

Свойства границы раздела жидкой и твердой фаз ^{4}He являются предметом интенсивных исследований в течение последних полутора десятилетий. Основное внимание уделялось поверхностям, находящимся в атомношероховатом состоянии. Для них было предсказано [1], а затем экспериментально обнаружено [2] квантовое движение элементарных дефектов строения поверхности — ступенек, проявляющееся в виде кристаллизационных волн (см. обзор [3]). Почти одновременно были обнаружены фазовые переходы огранения при температуре $T_{R1} \cong 1{,}3$ К для грани (0001) и при $T_{R2} \cong 0{,}9$ К для грани $(10\bar{1}0)$ [4,5]. Термодинамика этих переходов интенсивно исследовалась теоретически [6,7] и экспериментально [8,9].

Кинетика роста граней при температурах ниже перехода огранения изучена только в работе [9], в которой измерялись скорости роста граней (0001) и $(10\bar{1}0)$. Рост грани (0001) исследован в узком интервале температур от T_{R1} до 1,13 К, поскольку при более низких температурах при максимально возможных в данной методике пересыщениях (отклонениях от давления фазового равновесия) $\delta p \leq 100$ дин/см^2 скорость роста лежала ниже пределов чувствительности аппаратуры. В этой области температур скорость роста грани экспоненциально зависит от величины пересыщения, что, по мнению авторов, свидетельствует о механизме роста грани за счет рождения двумерных зародышей подобно известному механизму роста классических кристаллов [10]. Скорость роста грани $(10\bar{1}0)$ изучена при тех же величинах отклонения от давления фазового равновесия в диапазоне температур от T_{R2} до 0,1 К. Зависимость скорости роста от пересыщения в отличие от грани (0001) была близка к степенной с показателем примерно равным двум. Это обстоятельство, а также влияние незначительных деформаций кристалла на величину скорости роста, например при касании кристаллом стенки контейнера во время роста, привели авторов к выводу, что механизм роста этой грани — дислокационный.

Дальнейшее изучение физического механизма роста граней требует, с одной стороны, получения высококачественных образцов с минимальным количеством дефектов и, с другой стороны, расширения диапазона величин скоростей роста и пересыщений. Особый интерес вызывает обнаруженное в работе [9] двумерное зародышеобразование на

© В. Л. Цымбаленко, 1995

грани (0001). Проблема возникновения критического зародыша и кинетика распада метастабильного состояния, квантовые особенности которых при низких температурах были предсказаны Каганом и Лифшицем [11], в настоящее время являются предметом интенсивных экспериментальных исследований [12–16]. Поэтому представляется интересным попытаться обнаружить и исследовать двумерное зародышеобразование на грани при низких температурах.

В данной работе изучалась кинетика роста граней (0001) и $(10\bar{1}0)$ в интервале температур 1,5–0,5 К и пересыщениях до ~ 1 000 дин/см^2. Для получения кристаллов максимально высокого качества разработана методика, позволяющая выращивать кристаллы, имеющие минимальный контакт с деталями контейнера.

1. Экспериментальная методика

Конструкция оптической ячейки, в которой выращивались кристаллы гелия, схематически приведена на рис. 1. Рост кристалла гелия происходил в основном объеме контейнера V_m. Наблюдать за ростом можно было через стеклянные окна *3*, расположенные с противоположных сторон контейнера. Для того чтобы кристалл образовывался в центре объема на максимальном расстоянии от стенок, использовался эффект зарождения кристалла в сильном электрическом поле. Ранее это явление использовалось при изучении зародышеобразования в гелии при кристаллизации [12]. Через высоковольтный ввод *1* положительное напряжение подавалось на иголку *2*, конец которой находился на оптической оси *4*. Диаметр видимого поля составлял 10 мм. На дне контейнера располагалась мембрана емкостного датчика *7* для измерения давления в диапазоне 0–30 атм. Мембрана и электрод *8* образуют конденсатор, включенный в контур автогенератора. Чувствительность основного датчика составляла 4 кГц/атм при стабильности частоты 1 Гц.

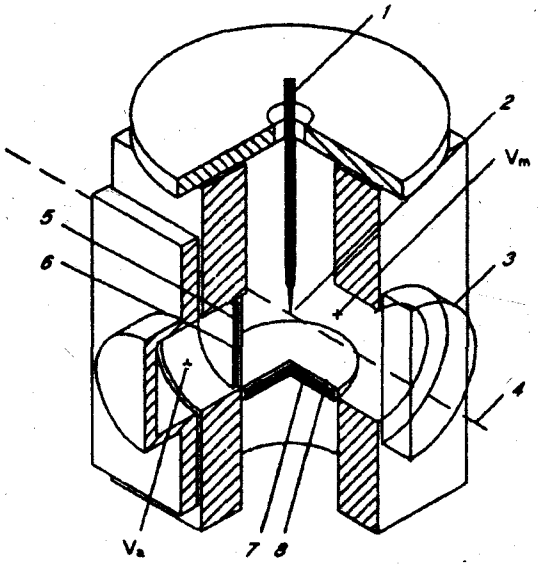

Рис. 1. Схематическое изображение оптического контейнера для роста кристаллов. Обозначения в тексте.

В настоящих экспериментах исследовались кристаллы, ось [0001] которых расположена вертикально. При этом минимален перепад гидростатического давления между базисными гранями, а боковые грани находятся в эквивалентных условиях. Для получения кристаллов с нужной ориентацией приходилось выполнять несколько циклов роста. Кристаллы с неподходящей ориентацией полностью расплавлялись, причем минимальное давление в жидкости должно было быть не менее чем на ~ 0,05 атм ниже давления затвердевания. После получения кристалла с осью C_6, близкой к вертикали, далее при плавлении давление уменьшалось лишь на ~ 0,01 атм ниже давления фазового равновесия. Таким образом удавалось сохранить затравку необходимой ориентации.

Как выяснилось в ходе исследования, пересыщения при росте кристаллов гелия составляют величину порядка 100 дин/см^2. Измерение столь малых перепадов давления выполнялось дифференциальным датчиком давления, чувствительным элементом которого служила мембрана *5*. Перемещение мембраны, пропорциональное разности давлений между основным V_m и вспомогательным объемом V_a, регистрировалось по изменению емкости конденсатора, образованного мембраной и электродом *6*. Давление во вспомогательном объеме во время роста кристалла поддерживалось постоянным и равным давлению фазового перехода. Это позволило уменьшить толщину мембраны до 0,03 мм и соответственно увеличить чувствительность датчика на три порядка до 4,4 МГц/атм. Относительная точность определения давления составляла ~ 5%. Время измерения частоты автогенераторов датчиков давления равнялось 1 с, поэтому приведенные в дальнейшем значения давления усреднены за это время.

Контейнер монтировался на ванне ^{3}He оптического криостата ^{3}He. Для уменьшения теплоподвода за счет излучения ванна была окружена экранами со стеклянными окнами при температурах 1,7, 4,2 и 77 К. Суммарный теплоподвод за счет излучения и теплопроводности по сверхтекучему гелию в капиллярах, соединяющих контейнер с системой высокого давления, не превышал 50 мкВт. Электронная система регулировки позволяла поддерживать температуру во время эксперимента с точностью 0,0001 К.

Гелий, использованный в эксперименте, был предварительно очищен с помощью термомехани-

ческого эффекта. Процесс роста кристалла наблюдался на просвет через окна криостата и контейнера. Фотографирование выполнялось в проходящем параллельном пучке света фотоаппаратом, снабженным длиннофокусным объективом с фокусным расстоянием 120 мм. Это позволяло получать увеличенное изображение с разрешением ~ 0,01 мм. Номер снимка выводился на семисегментный индикатор и впечатывался в кадр.

Управление экспериментом и регистрация измеряемых величин осуществлялись системой автоматизации эксперимента, выполненной на базе систем CAMAC и HPIB под управлением компьютера «Vectra». Система управляла температурой, изменением давления в основном объеме, регистрировала температуру и показания датчиков давления, фиксировала момент фотосъемки и устанавливала номер снимка [17].

2. Рост кристалла выше переходов огранения

Кинограмма свободного роста кристалла выше обоих переходов огранения приведена на рис. 2. Жидкий гелий подавался в контейнер с постоянной скоростью. К иголке был приложен постоянный положительный потенциал ~ 2 кВ, достаточный для появления критического зародыша за время $\Delta t \ll 1$ с [12]. При $T = 1{,}285$ К кристалл растет в виде сферически симметричной капли, а центр сферы в процессе роста смещается вниз. Это явление — следствие наличия градиента гидростатического давления в жидкости. Внизу кристалл растет быстрее, чем вверху (кадры *0–1*), а затем даже начинает расплавляться наверху и кристаллизоваться внизу (кадры *1–2–3*). Переплавление кристалла в области градиента гидростатического давления позволяет определить величину кинетического коэффициента. В Приложении выведено уравнение

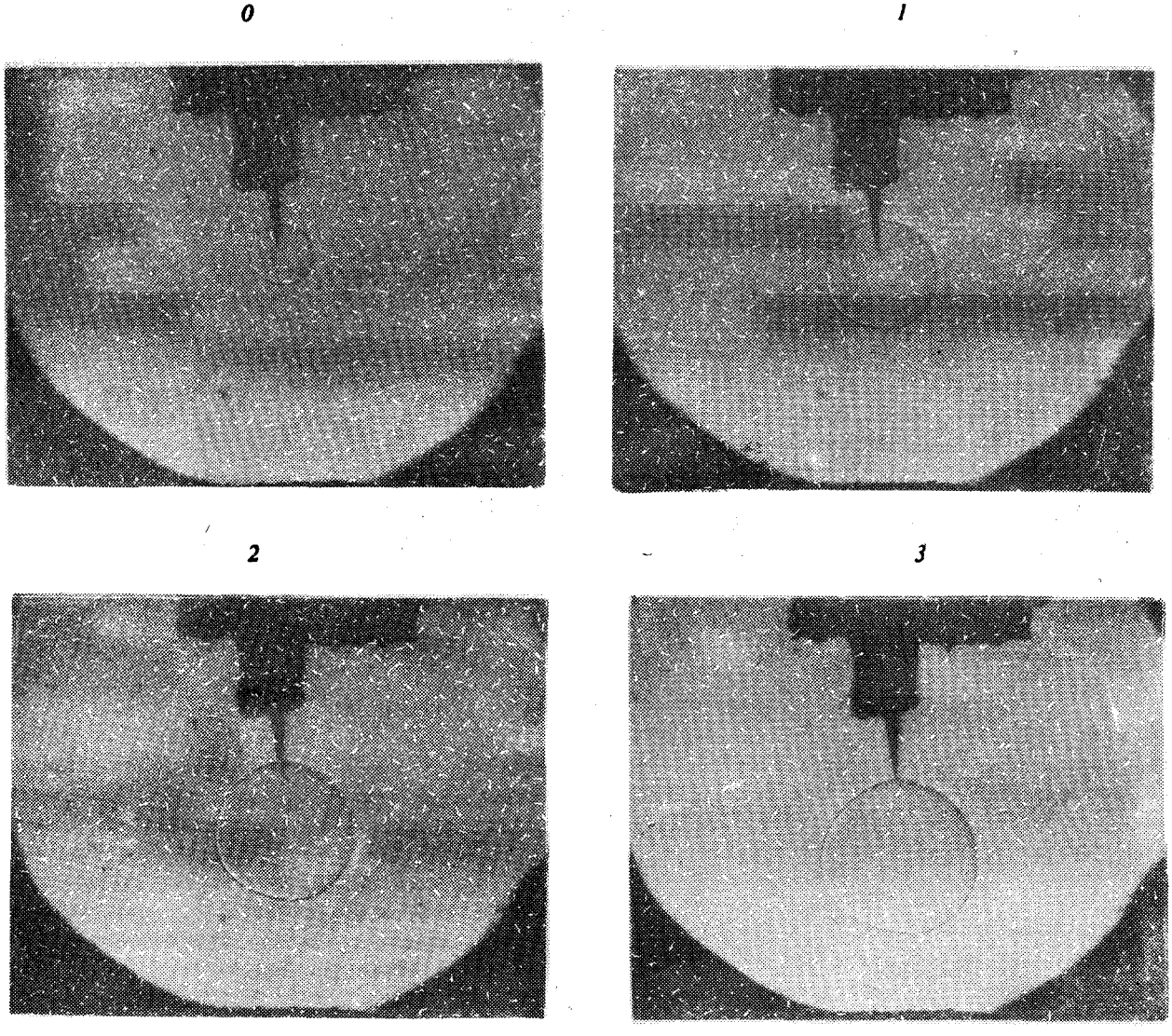

Рис. 2. Рост кристалла гелия выше переходов огранения, $T = 1{,}285$ К. На кадрах — время после зарождения кристалла, с: 0,6 (*0*); 3,2 (*1*); 6,5 (*2*); 8,9 (*3*).

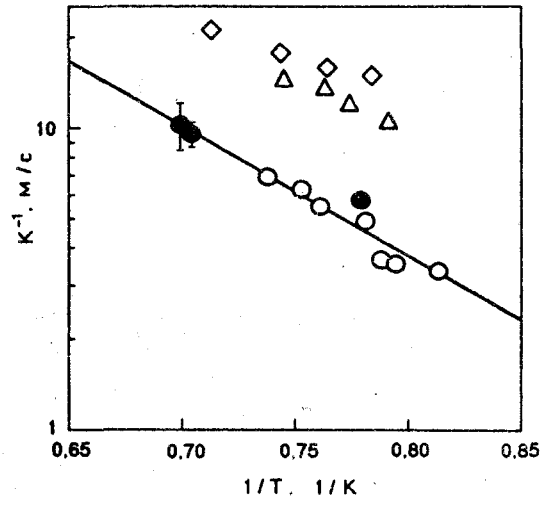

Рис. 3. Кинетический коэффициент роста атомношероховатой поверхности K, определенный по перемещению контура кристалла в процессе роста (см. Приложение): данные работы [18] для граней $(10\bar{1}0)$ (○) и (0001) (△); результаты [9] для ориентации [0001] (◇); экспериментальные результаты настоящей работы (●).

для формы кристалла в процессе роста. Из анализа уравнения следует, что кинетический коэффициент роста постоянен на контуре кристалла. Наблюдаемая анизотропия не превышает 10%. Кристаллографическая ось C_6 направлена направо под углом примерно 40° к вертикальной оси рисунка. Ориентация была определена по огранке кристалла при последующем охлаждении ниже температуры обоих переходов огранения. Величины кинетического коэффициента роста, вычисленные по методу, изложенному в Приложении, приведены на рис. 3 и хорошо согласуются с данными работы Лейдерера и др. [18] для ориентации $[10\bar{1}0]$.

Между двумя переходами огранения (T = = 0,9–1,3 K) кристалл растет в виде тонкой пластинки (рис. 4,*а*). Скорость роста боковых поверхностей, остающихся в атомношероховатом состоянии, значительно превышает скорость роста базисных плоскостей. Наблюдается небольшая анизотропия коэффициента роста вдоль базисной плоскости (рис. 4,*б*). Угловая зависимость скорости роста кристалла, рассчитанная по формулам, приведенным в Приложении, показана на рис. 4,*в*. Видны шесть характерных минимумов в направлениях $[10\bar{1}0]$. Анизотропия роста порядка 7%, что согласуется с величиной, полученной в работе [18]. Пересыщения во время роста кристалла малы и находятся ниже предела чувствительности датчика давления.

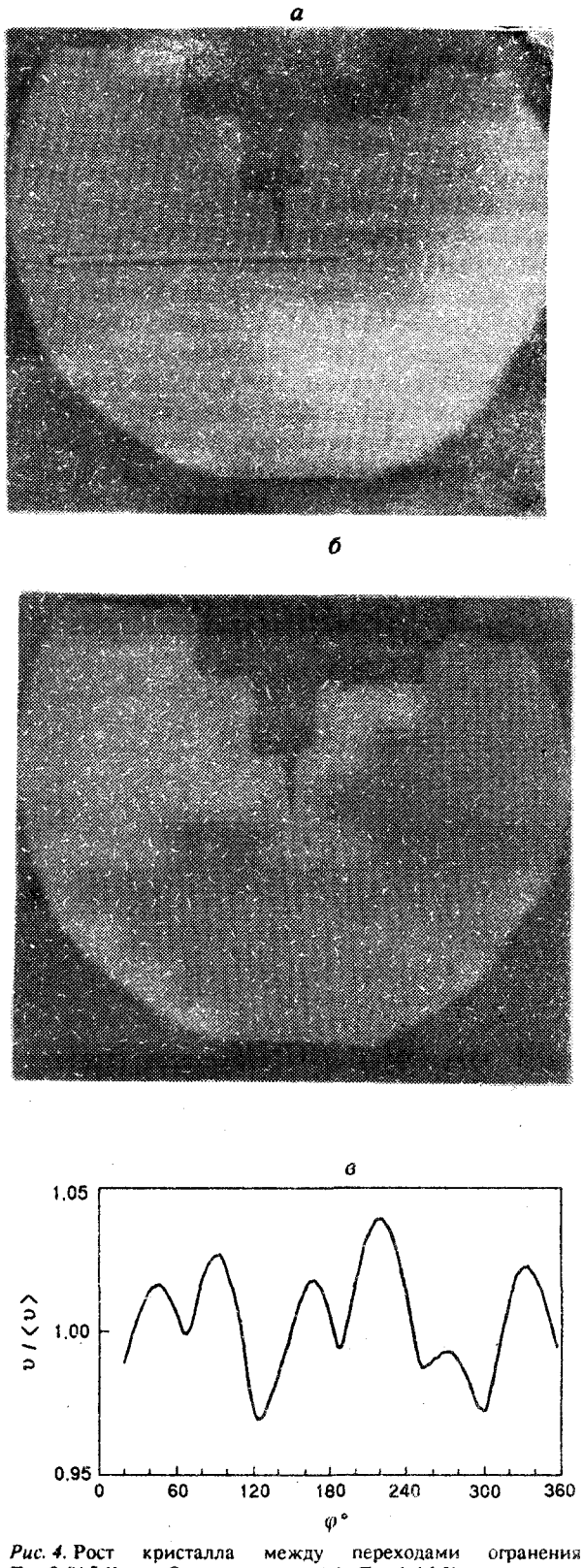

Рис. 4. Рост кристалла между переходами огранения. T = 0,915 K, ось C_6 вертикальна (*а*); T = 1,16 K, вид кристалла в плане, видна анизотропия коэффициента кинетического роста (*б*); Угловые зависимости скорости роста кристалла (*б*), рассчитанные по формулам, выведенным в Приложении. $\langle v \rangle$ — значения скорости, усредненной по всем направлениям (*в*).

3. Рост кристалла ниже второго перехода огранения

3.1. Влияние условий роста

Уменьшение температуры от 0,87 до 0,82 К приводит к появлению огранки боковой поверхности кристалла. Ниже этой температуры вплоть до минимальной температуры эксперимента (0,5 К) огранка кристалла качественно не меняется. Кристалл растет в виде шестиугольной призмы с четко сформированными гранями, которые сопрягаются небольшими округлыми участками. На рис. 5 приведена типичная серия снимков в процессе роста.

На первом этапе работы было исследовано влияние дна и стенок контейнера, а также механической деформации на рост кристалла. Выяснилось, что влияние стенок ведет к невоспроизводимому уменьшению скорости роста кристаллов. Небольшие механические деформации кристалла, полученные им при падении с острия на дно (высота падения ~ 4 мм), также приводят к уменьшению скорости роста как базисной, так и боковых граней. Наглядно это демонстрировалось в эксперименте с ростом кристалла, упавшим на дно, когда на острие оставляли высокое напряжение. При подаче жидкого гелия в контейнер происходит не увеличение размера уже существующего кристалла, а зарождение на острие нового кристалла (рис. 6). Далее происходит только рост кристалла на острие, несмотря на то, что пересыщение на верхнем кристалле меньше, чем на нижнем на давление $\rho gh \sim 70$ дин/см^2. Само острие также уменьшает скорость роста грани, что видно на рис. 5. По этим причинам далее, если специально не оговорено, приводятся только результаты, полученные на

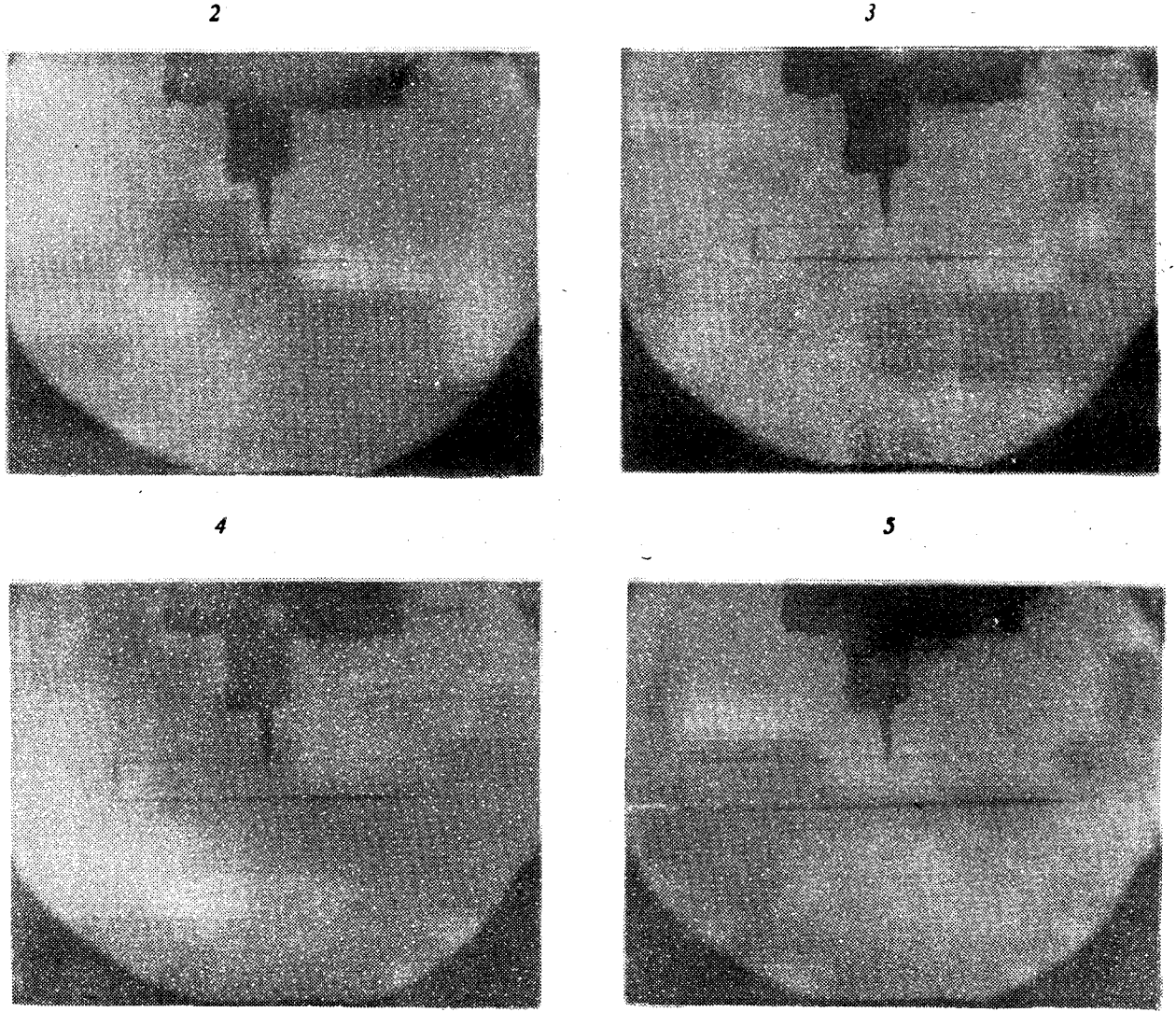

Рис. 5. Фотографии роста кристалла ниже двух переходов огранения. $T = 0{,}532$ К. Моменты съемки обозначены стрелками на рис. 8,*а*.

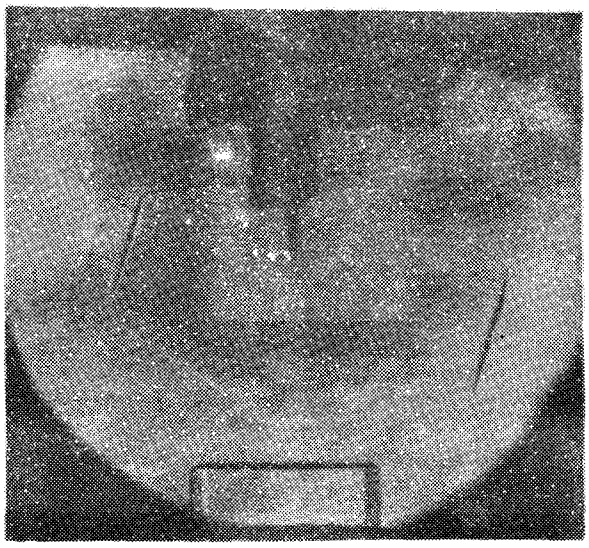

Рис. 6. Демонстрация влияния пластической деформации кристалла, полученной при падении кристалла с высоты ~ 4 мм (кристалл внизу), на скорость роста граней. Вместо увеличения кристалла в размере после начала поддавливания гелия в контейнере, на игле появляется новый недеформированный кристалл, скорость роста которого при меньшем пересыщении значительно выше скорости роста продеформированного кристалла.

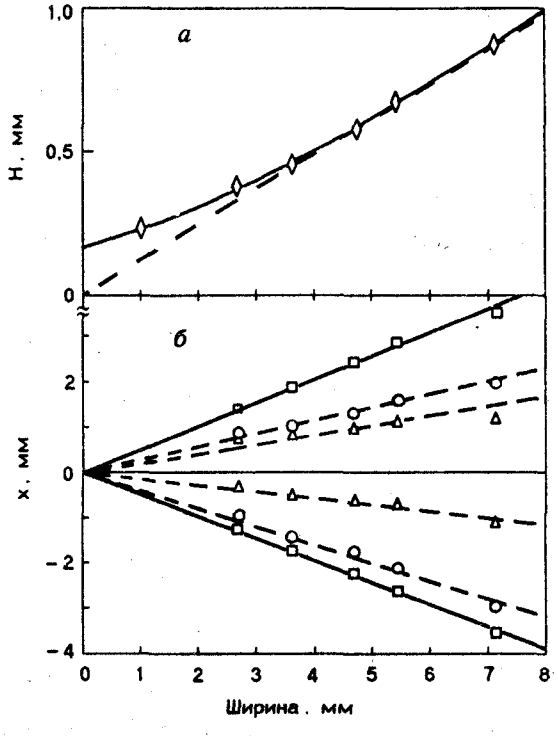

Рис. 7. Сохранение подобия кристалла, изображенного на рис. 5, в процессе роста. Зависимость положения нижней свободной базисной плоскости кристалла от его ширины, определенной как расстояние между проекциями крайних ребер (*а*); зависимости положения проекций ребер кристалла от его ширины, светлые проекции, удаленные боковые ребра (○); темные проекции, ближние к наблюдателю ребра (△); крайние ребра (□) (*б*).

свободных гранях до какого-либо механического воздействия на них.

3.2. Форма кристалла в процессе роста

Вследствие малого различия в показателях преломления жидкого и кристаллического гелия в проходящем свете хорошо видны грани кристалла, расположенные под малыми углами к падающему пучку света (рис. 5, базисные грани). Перемещение граней измерялось непосредственно. Боковые ребра видны в виде значительно менее контрастных темных и светлых полосок. Фокальная плоскость объектива во время съемки проходила через изображение острия. В такой конфигурации ребра кристалла, расположенные ближе к объективу, получаются темнее фона, а дальние ребра на фотографии — светлее фона. Измерив X-координату проекций боковых ребер, затем можно восстановить размеры всех сторон шестигранника.

Обобщая результаты примерно 200 серий роста, отметим, что кристаллы с правильной огранкой выращиваются весьма редко. Как правило, шестиугольник, лежащий в основании призмы роста, далек от равностороннего. Например, стороны кристалла, изображенного на рис. 5, соотносятся как 0,24:1,17:1,32:0,8:0,6:1,87. Существенно, что эти пропорции сохраняются в процессе роста для свободно растущих граней. Этот факт иллюстрируется рис. 7. На рис. 7,*а* приведено положение нижней базисной плоскости, а на рис. 7,*б* — X-координаты боковых ребер в зависимости от ширины кристалла, изображенного на рис. 5. Видно, что положения ребер и базисной грани изменяются пропорционально. Отклонение от линейной зависимости в начале роста можно объяснить влиянием острия, диаметр которого ~ 0,01 мм. Отсюда следует, что форма кристалла в процессе роста подобна первоначальной и скорости роста граней пропорциональны. Поскольку в процессе роста давление изменяется, скорости роста v_i свободных граней одинаково зависят от δp, $v_i = v_{i0} f(\delta p)$. Этот вывод дает основания полагать, что механизм роста атомногладких поверхностей (0001) и (10$\bar{1}$0) один и тот же.

Несмотря на то что боковые грани находятся при одном и том же δp, значения скоростей их роста значительно различаются. На одном кристалле скорости могут отличаться в два–три раза. Поскольку соотношения между скоростями сохраняются по мере роста, то причина, вызывающая различие, по-видимому, лежит в дефектах, возникших в момент образования кристалла. Таким образом, скорость роста граней кристалла определяется либо лимитируется дефектами поверхности.

3.3. Зависимость скорости роста от величины пересыщения

На рис. 8 приведена запись показаний дифференциального датчика давления во время роста кристалла (рис. 5). Жидкий гелий подается в контейнер с постоянной скоростью до момента $t = 70$ с. До начала кристаллизации в момент $t = 0$ давление быстро растет (за начало отсчета времени принят момент, непосредственно предшествующий началу кристаллизации). Затем начинает расти кристалл, и давление теперь соответствует скорости роста граней. По завершении роста кристалла давление релаксирует к равновесному ($\delta p = 0$). Затем кристалл немного подплавлялся ($t = 75$–80 с). В результате оплавления боковая поверхность принимала округлую форму с радиусом кривизны $R \sim 1$ мм. Величина δp в этот момент превышала давление фазового равновесия на $\Delta p \approx \tilde{\alpha}(\rho/\Delta\rho)/R \sim 20$ дин/см^2, где $\tilde{\alpha}$ — поверхностная жесткость (см. Приложение); $\Delta\rho/\rho$ — относительное изменение плотности при затвердевании. Показание датчика в этой точке с учетом поправки Δp принималось за значение $\delta p = 0$.

На рис. 8,*б* приведена зависимость скорости роста свободной базисной грани от давления пересыщения, измеренная на двух различных кристаллах, выращенных с разной скоростью. Видно, что результаты для грани (0001) хорошо воспроизводятся.

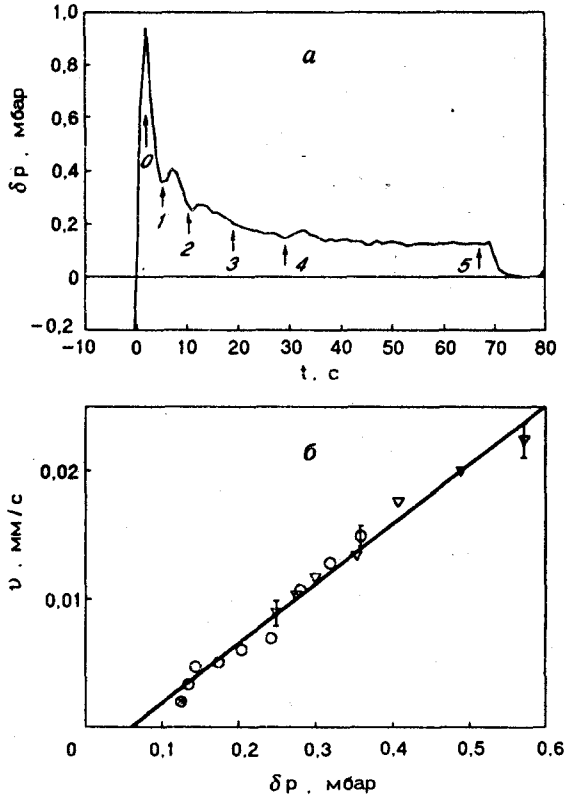

Рис. 8. Запись показаний дифференциального манометра в процессе роста кристалла (рис. 5) (*а*); зависимость скорости базисной плоскости (0001) от пересыщения (*б*). Кружки и треугольники на рис. (*б*) обозначают два кристалла, выращенные с различными скоростями.

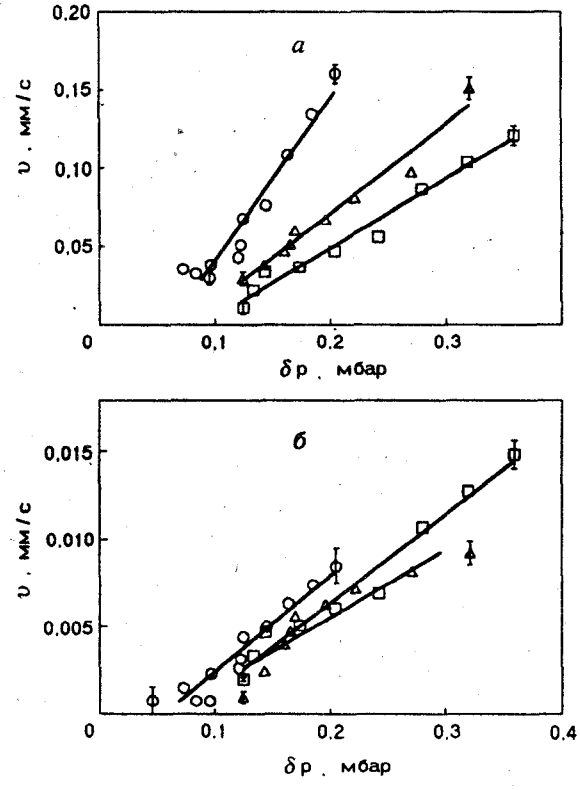

Рис. 9. Зависимости скорости роста граней $(10\bar{1}0)$ (*а*) и базисной грани (0001) (*б*) при различных температурах T, К: 0,851 (○); 0,684 (△); 0,532 (□).

Ранее уже отмечалось, что боковые грани, находящиеся под одним и тем же пересыщением, тем не менее растут с различными скоростями. По этой причине на графиках приводится скорость роста, усредненная по всем граням. Скорость роста конкретной грани отклонялась от среднего значения в пределах ± 50% и не существенно менялась от кристалла к кристаллу.

Зависимость скорости роста граней кристалла от δp в пределах ошибок аппроксимируется прямой линией. Данное утверждение справедливо для изученного температурного диапазона (0,53–0,82 К) (рис. 9). Экстраполяция скорости роста к нулю дает значение порогового пересыщения δp_c. Его величина лежит в диапазоне $\delta p_c = 50$–100 дин/см^2. Наличие порогового давления свидетельствует о том, что при малых пересыщениях рост граней подчиняется иному механизму, чем при больших пересыщениях. Итак, в области пересыщений 100–1 000 дин/см^2 скорость роста граней независимо от их кристаллографической ориентации возрастает примерно линейно с δp.

Отметим, что деформация кристалла при падении или касании стенки увеличивала δp_c до значений 250–400 дин/см^2. При больших пересыщениях скорость росла также примерно по линейному закону. Наклон $\Delta v/\Delta p$ при $\delta p > \delta p_c$ в деформированных кристаллах был меньше, чем наклон в свободно выращенных кристаллах. Отметим также, что если в процессе роста грань кристалла касается небольшого препятствия (например края пластины, на которой укреплено острие), то ее рост прекращается на некоторое время. Затем грань скачком «проращивается» вокруг препятствия. Наблюдались случаи, когда препятствие разделяло грань на две части, одна из которых продолжала расти с прежней скоростью. В этом случае после срыва задержанная часть подрастала до второй части.

3.4. Влияние температуры на скорость роста граней

На рис. 9 приведены зависимости скоростей роста граней от пересыщения при разных температурах. Видно, что в пределах разброса данных скорость роста грани (0001) не зависит от температуры в интервале 0,53–0,82 K. Скорость роста грани $(10\bar{1}0)$ падает по мере понижения температуры. Это проявляется и на форме кристалла во время роста. При $T \sim 0{,}8$ K ширина кристалла относится к его толщине как (12–16):1, а при $T \sim 0{,}5$ K — как (4–6):1. На рис. 10 представлена температурная зависимость скорости роста граней при постоянном пересыщении $\delta p = 200$ дин/см^2. Для сравнения на этом же рисунке приведена полученная в работе [9] температурная зависимость скорости роста грани $(10\bar{1}0)$ при $\delta p =$ 60–85 дин/см^2. Этот рисунок иллюстрирует независимость скорости роста от температуры для базисной грани (0001) и уменьшение скорости роста грани $(10\bar{1}0)$ при охлаждении. Зависимости скорости роста для грани $(10\bar{1}0)$ при $\delta p = 200$ дин/см^2 и при ~ 80 дин/см^2 [9] качественно согласуются.

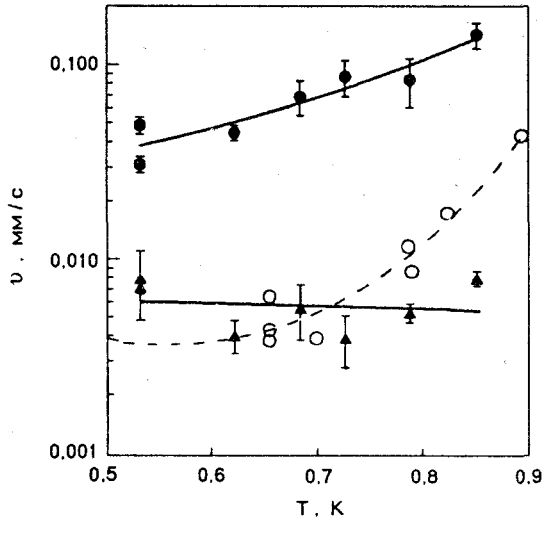

Рис. 10. Температурная зависимость скорости роста базисной плоскости (▲) и боковых граней (●) при пересыщении $\delta p = 200$ дин/см^2; скорости роста боковой грани при $\delta p \approx 80$ дин/см^2 из [9] (○); пунктир — [9].

4. Обсуждение результатов

Процесс роста свободно выращенного кристалла, подвергавшегося минимальным сторонним воздействиям, имеет следующие характерные черты: а) деформация влияет на скорость роста; б) при одинаковых условиях эквивалентные грани растут тем не менее с различными скоростями; в) величина скорости роста зависит от пересыщения по степенному закону.

В случае, когда скорость роста грани определяется двумерным зародышеобразованием, следует ожидать сильную экспоненциальную зависимость скорости роста от пересыщения, одинаковые величины скоростей для эквивалентных граней и слабое влияние дефектности кристалла. Отсюда следует, что вплоть до максимальных передавливаний, полученных в настоящей работе ($\sim 1\,000$ дин/см^2), зародышеобразование не вносит существенного вклада в кинетику роста грани, и $v_{nucl}(1\,000$ дин/см$^{2)} \ll 4 \cdot 10^{-3}$ см/с. Таким образом можно оценить нижнюю границу линейной энергии ступеньки β, образующей критический двумерный зародыш. Выражение для скорости роста за счет зародышеобразования дано в [7]

$$v_{nucl} \sim a(\mu_s^2/\beta^2\tau_0)^{1/3} F^{4/3} \exp(-\pi\beta^2/3FT) , \qquad v_s = \mu_s F , \quad F = a(\Delta\rho/\rho)\delta p , \tag{1}$$

где v_s — скорость отдельной ступеньки; μ_s — ее подвижность; a — межплоскостное расстояние. Подвижность ступеньки при $T = 0{,}5$ K определим из угловой зависимости кинетического коэффициента роста поверхностей [19,20]: $\mu_s(0{,}5\text{ K}) \approx \approx 10^9$ с·см/г. Полагая для оценки параметр τ_0 порядка $1/\omega_D$, где ω_D — дебаевская частота, получаем, что при $T \sim 0{,}5$ K линейная энергия $\beta/a > 0{,}0015$ дин/см^2. Эта оценка не противоречит значению $\beta/a =$ 0,01 дин/см^2 для грани (0001), определенному в работе [21]. Подставив это значение в соотношения (1), найдем значение δp, при котором скорость роста зародышевым механизмом сравнивается со скоростями роста грани кристалла, изображенного на рис. 8,*б* (предполагаем $v \propto \delta p$). Пересечение этих зависимостей происходит при $\delta p \sim 10^5$ дин/см^2 и скоростях роста порядка 1 см/с. Подобные значения в нашем эксперименте не достигнуты. Подчеркнем, что оценка пересыщения, при котором сопоставимы вклады де-

фектов и зародышей в рост грани, сделана в очень грубых предположениях и дает только порядок величины δp. При высоких скоростях роста становятся существенными динамические эффекты, так как скорости движения отдельных ступенек сравниваются со скоростью звука. В исследованном нами диапазоне скоростей роста эти эффекты малы, поскольку скорость движения индивидуальных ступеней при пересыщениях до 1 000 дин/см^2 и минимальной температуре $T = 0{,}53$ K много меньше скорости звука c, $v_s \approx \mu_s a(\Delta\rho/\rho)\delta p \sim c/15$.

Наблюдаемые особенности кинетики роста граней характерны для механизмов роста, обусловленных дефектами поверхности. Механизм роста грани, общий для граней (0001) и $(10\bar{1}0)$, что следует из сохранения формы кристалла в процессе роста, должен объяснять существование порога на зависимостях $v(\delta p)$. Наличие порога, как показано в эксперименте, связано с дефектами. Естественное объяснение порога следует из модели источников Франка—Рида выхода на поверхность пары винтовых дислокаций противоположного знака, соединенных ступенькой. Величина порогового давления δp_c, при котором на источнике начинают генерироваться свободные ступени и начинается рост грани, связана со средним расстоянием d_0 между выходами дислокаций соотношением $\delta p_c = 2(\beta/a)(\rho/\Delta\rho)/d_0$ [10]. Для порога $\delta p_c \approx$ ≈ 100 дин/см^2 получаем $d_0 \sim 2\cdot 10^{-3}$ см и концентрацию дислокаций $\Lambda \sim d_0^{-2} \sim 2\cdot 10^5$ см$^{-2}$. При пересыщениях, меньших порогового значения, свободные ступени генерируются источниками с большим расстоянием между дислокациями, и число таких источников мало. На источниках, у которых расстояние между выходами дислокаций меньше d_0, рождение свободных ступеней происходит флуктуационным образом. Эти факторы приводят к падению скорости роста при $\delta p < \delta p_c$ и качественному различию зависимости $v(\delta p)$ при малых и больших пересыщениях, что проявляется на экспериментальных зависимостях как пороговое давление.

Существование порога, обусловленного источниками Франка—Рида, наблюдалось ранее в амплитудной зависимости коэффициента прохождения ультразвука через грань (0001) при температуре 0,44 K [22]. Величина порога $\delta\mu_c = (\Delta\rho/\rho^2)\delta p_c$ равнялась 1,9 (м/с)^2 для $\delta p_c \approx 3{,}8\cdot 10^4$ дин/см^2, что дает концентрацию дислокаций $\Lambda \sim 4\cdot 10^{10}$ см$^{-2}$. Заметим, что концентрация дефектов в кристалле, заполняющем контейнер, значительно превышает концентрацию в свободно выращенном кристалле. Подчеркнем еще раз, что использованные нами формулы не учитывают динамических эффектов, и поэтому значения параметров, вычисленных при больших пересыщениях, следует принимать только как оценочные.

Механизм роста граней при пересыщениях выше порогового значения должен объяснить близкую к линейной зависимость $v(\delta p)$, независимость от температуры скорости роста грани (0001) и увеличение скорости роста грани $(10\bar{1}0)$ с повышением температуры. Предположим, что действует механизм спирального роста грани. Скорость такого роста v_d пропорциональна подвижности ступеней и обратно пропорциональна линейной энергии ступени: $v_d \sim 0{,}05 v_s a^2 \rho\Delta\mu/(\beta/a) \sim \mu_s(T)/\beta(T)$, где $\Delta\mu$ — разность химических потенциалов жидкой и твердой фаз. Подвижность ступени пропорциональна кинетическому коэффициенту роста атомношероховатой поверхности и в интервале 0,85–0,4 K возрастает примерно в 500 раз [5,18,22]. Экспериментальные данные по температурной зависимости β приведены в [21] для $T = 0{,}4-0{,}2$ K $\beta/a = \text{const} = 0{,}01$ дин/см^2) и для $T = 1{,}13-1{,}23$ K в [9] (β растет с понижением температуры, $\beta(1{,}13\text{ K})/a = 4{,}7\cdot 10^{-4}$ дин/см^2), т.е. β возрастает не более чем в 20 раз при температуре ниже $\sim 1{,}1$ K. Для грани (0001) температуры 0,85–0,4 K составляют 2/3–1/3 от температуры огранения, и можно предполагать, что β изменяется в этом интервале еще меньше. Таким образом, модель спирального роста при понижении температуры дает возрастание скорости роста грани в 25–500 раз, что не наблюдается в эксперименте и позволяет исключить этот механизм из рассмотрения.

Поскольку скорость роста грани не определяется изменением подвижности свободных ступеней, естественно предположить наличие препятствий на грани, преодоление которых ступеньками и определяет зависимость скорости роста от передавливания и температуры. Вблизи перехода огранения ($T_{R2} \approx 0{,}9$ K) грани $(10\bar{1}0)$ скорость ее роста возрастает, что было интерпретировано авторами работы [9] как следствие уменьшения до нуля линейной энергии ступеньки, т.е. параметр β определяет скорость роста грани. Если это предположение верно, то становится понятным различный температурный ход скоростей роста базисной и боковых граней. С понижением температуры ниже перехода огранения грани $(10\bar{1}0)$ линейная энергия ступеньки на этой грани возрастает, что увеличивает энергию взаимодействия с препятствием и высоту барьера и, как следствие, уменьшает скорость роста грани. Рост же базисной грани идет при температурах значительно ниже перехода огранения, где $\beta \cong \text{const}$, что и дает примерно постоянную скорость роста.

Таким образом, разработанная методика выращивания монокристаллов гелия с минимальным воздействием подвеса позволила измерить скорость роста граней до передавливаний $\sim 1\,000$ дин/см^2 не-

посредственно по наблюдениям кинетической огранки. Сохранение формы кристалла в процессе роста дало основание сделать заключение о единой природе механизма роста базовой и боковых граней. Влияние деформации и наблюденная анизотропия роста эквивалентных боковых граней показали определяющую роль дефектов поверхности в кинетике роста в этом диапазоне пересыщений. Температурные зависимости скорости роста грани $(10\bar{1}0)$ и грани (0001) объясняются изменением линейной энергии ступени с температурой, что изменяет эффективность препятствий для движения ступенек.

Автор признателен Ю. М. Кагану, С. Н. Бурмистрову и Л. Б. Дубовскому за полезные дискуссии в процессе выполнения этой работы, К. О. Кешишеву за ознакомление с его результатами, что прояснило некоторые аспекты данной проблемы, А. Я. Паршину за ценное обсуждение результатов работы и Е. П. Красноперову за интерес к работе.

Эта работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 93-02-2587) и частичной поддержке Международного научного фонда.

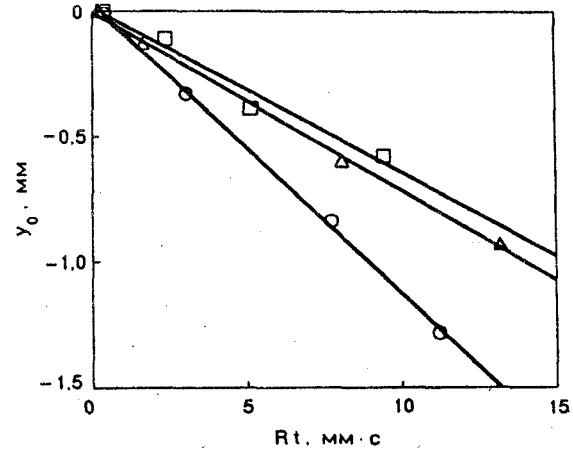

Рис. 11. Изменение положения центра растущего кристалла со временем в зависимости от радиуса для проверки соотношения (П.9) и определения кинетического коэффициента роста K при трех температурах T, К: 1,43 (□); 1,42 (△); 1,285 (○).

Приложение

Пусть контур кристалла задается уравнением $F(x, y, t) = 0$. Ось Y вертикальна, начало системы координат совмещено с кончиком иглы. Полный дифференциал функции F равен нулю:

$$dF = \frac{\partial F}{\partial x}\,dx + \frac{\partial F}{\partial y}\,dy + \frac{\partial F}{\partial t}\,dt = 0\ . \qquad (\text{П}.1)$$

Вектор нормали к контуру и, следовательно, направление роста лежат в плоскости XY. Запишем соотношения между дифференциалами и выражение для скорости нормального роста:

$$v = K(\theta)\frac{\Delta\rho}{\rho_l\rho_s}\delta p\ ,\ dx = v\sin\theta\,dt\ ,$$
$$dy = v\cos\theta\,dt\ ,\ tg\,\theta = -\frac{\partial F/\partial x}{\partial F/\partial y}\ , \qquad (\text{П}.2)$$

где $K(\theta)$ — анизотропный коэффициент роста; θ — угол между нормалью к контуру и осью Y. Подставляя (П.2) в (П.1) получаем уравнение для формы контура:

$$\frac{\partial F}{\partial t} + v(\theta, x, y, t)\left[\left(\frac{\partial F}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial F}{\partial y}\right)^2\right]^{1/2} = 0\ . \qquad (\text{П}.3)$$

В нашем случае

$$v = K(\theta)\frac{\Delta\rho}{\rho_l\rho_s}\left[\delta p(t) - \rho g y - \frac{\rho_l}{\Delta\rho}\left(\frac{\tilde{\alpha}_1}{R_1} + \frac{\tilde{\alpha}_2}{R_2}\right)\right]\ , \qquad (\text{П}.4)$$

где $\tilde{\alpha}_i = \alpha + \partial^2\alpha/\partial\varphi_i^2$ — поверхностная жесткость; α — поверхностная энергия; R_i — главные радиусы кривизны. Первый член в скобках (П.4) описывает отклонение среды от равновесия, второй — градиент гидростатического давления, третий — эффект кривизны поверхности. Полученные выражения (П.3), (П.4) описывают форму кристалла при произвольном пересыщении. В пределе малых скоростей $\partial F/\partial t \equiv 0$ и соотношение (П.3) дает для равновесной формы кристалла уравнение Херринга ([10], стр. 36) при существовании градиента давления. При больших пересыщениях $\delta p >> \rho g R$, $(\rho/\Delta\rho)\alpha/R$ получаем кинетическую огранку. Можно показать, что в этом случае форма кристалла, задаваемая уравнением (П.4), совпадает с построением Чернова для кинетической огранки (см. [10], стр. 167).

Для определения кинетического коэффициента роста K подставим экспериментально наблюдаемый контур кристалла в уравнение (П.3). Эволюция контура описывается уравнением

$$x^2 + [y - y_0(t)]^2 - R^2(t) = 0\ . \qquad (\text{П}.5)$$

Вертикальное перемещение центра кристалла описывается функцией $y_0(t)$. Подставляя (П.4) и (П.5) в уравнение (П.3) получаем:

$$[y - y_0(t)]\dot{y}_0 + R\dot{R} -$$
$$- K(\theta)\frac{\Delta\rho}{\rho_l\rho_s}R(t)\left[\delta p(t) - \rho g y - \frac{\rho_l}{\Delta\rho}\left(\frac{\tilde{\alpha}_1}{R_1} + \frac{\tilde{\alpha}_2}{R_2}\right)\right] = 0\ . \qquad (\text{П}.6)$$

Группируя члены с y и учитывая, что (П.6) выполняется при произвольном значении y, получаем уравнения

$$\frac{dy_0}{dt} = -K(\theta)\frac{\Delta\rho}{\rho_s} gR(t) \; ; \qquad (П.7)$$

$$\frac{d(R^2-y_0^2)}{dt} = 2K(\theta)\frac{\Delta\rho}{\rho_1\rho_s} R(t)\left[\delta p(t) - \frac{\rho_1}{\Delta\rho}\left(\frac{\tilde{\alpha}_1}{R_1} + \frac{\tilde{\alpha}_2}{R_2}\right)\right] . \qquad (П.8)$$

Из уравнения (П.7) следует, что на контуре кристалла, описанном (П.5), коэффициент роста постоянен, т.е. рост идет изотропно.

В данном эксперименте жидкий гелий поступал в контейнер непрерывно с постоянной скоростью. По завершении переходного процесса (длительностью ~ 0,3 с) устанавливается режим, при котором объем кристалла увеличивается линейно со временем, $V(t) = ct$. Подставляя радиус $R(t) = [3V(t)/4\pi]^{1/3}$ в выражение (П.7) получаем соотношение

$$y_0(t) = -\frac{3}{4} K \frac{\Delta\rho}{\rho_s} gR(t)t \; . \qquad (П.9)$$

Как видно из рис. 11, такая зависимость хорошо выполняется. Значения K приведены на рис. 3.

1. А. Ф. Андреев, А. Я. Паршин, *ЖЭТФ* **75**, 1511 (1978).
2. К. О. Кешишев, А. Я. Паршин, А. В. Бабкин, *Письма в ЖЭТФ* **30**, 63 (1979).
3. S. G. Lipson and E. Polturak, *Progress in Low Temperature Physics*, v. XI (1987).
4. J. Landau, S. G. Lipson, L. M. Maattanen, L. S. Balfour, and D. O. Edwards, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 31 (1980).
5. К. О. Кешишев, А. Я. Паршин, А. В. Бабкин, *ЖЭТФ* **80**, 716 (1981).
6. А. Ф. Андреев, *ЖЭТФ* **80**, 2042 (1981).
7. P. Nozieres and F. Gallet, *J. Phys. (Paris)* **48**, 353 (1987).
8. А. В. Бабкин, Д. Б. Копелиович, А. Я. Паршин, *ЖЭТФ* **89**, 2288 (1985).
9. P. E. Wolf, F. Gallet, S. Balibar, E. Rolley, and P. Nozieres, *J. Phys. (Paris)* **46**, 1987 (1985).
10. А. А. Чернов, *Современная кристаллография*, Наука, Москва (1980), т. 3.
11. Ю. М. Каган, И. М. Лифшиц, *ЖЭТФ* **62**, 385 (1972).
12. V. L. Tsymbalenko, *J. Low Temp. Phys.* **88**, 55 (1992).
13. В. А. Михеев, Э. Я. Рудавский, В. К. Чаговец, Г. А. Шешин, *ФНТ* **17**, 444 (1991).
14. T. Satoh, M. Morishita, M. Ogata, and S. Katoh, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 335 (1992).
15. L. C. Brodie, F. Bodegom, J. A. Nissen, and J. S. Semura, *Phys. Rev.* **B40**, 6617 (1989).
16. Q. Xiong and H. J. Maris, *J. Low Temp. Phys.* **82**, 105 (1991).
17. В. Л. Цымбаленко, *ПТЭ* **2**, 67 (1993).
18. J. Bodensohn, K. Nicolai, and P. Leiderer, *Z. Phys.* **B64**, 55 (1986).
19. P. Nozieres and M. Uwaha, *J. Phys. (Paris)* **48**, 389 (1987).
20. О. А. Андреева, К. О. Кешишев, С. Ю. Осипьян, *Письма в ЖЭТФ* **49**, 661 (1989).
21. E. Rolley, E. Chevalier, C. Guthmann, and S. Balibar, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 872 (1994).
22. B. Castaing, S. Balibar, and C. Laroche, *J. Phys. (Paris)* **41**, 897 (1980).

Study of the growth kinetics of facets in a free-growing ^{4}He crystal

V. L. Tsymbalenko

The growth of a free-growing ^{4}He crystal is studied in a temperature range from 1.5 K to 0.5 K at overpressures up to 1000 dyne/cm^2. A method is developed to grow crystals with a minimal amount of dislocations. The anisotropy of the coefficient of the kinetic growth of the crystal is measured directly by the crystal form. Below the temperatures of both roughening transitions the crystal grows with its form retained which is to say that the growth rates for all free facets are proportional and the growth mechanism is single for basal and lateral facets and the equivalent faces under equal conditions have the growth rates differed by a factor of 2, suggesting a significant influence of surface defects on the crystal growth. A threshold is observed in the overpressure dependence of facet growth rate. The results are explained qualitatively in the framework of the layer-by-layer crystal growth model by which the creation of a new layer is controlled by the Frank—Read sources and surface defects.