Особенности температурной зависимости давления твердого гелия при низких температурах

А.А. Лисунов, В.А. Майданов, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудавский, А.С. Рыбалко, Е.С. Сыркин

Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина E-mail: rubanskiy@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 3 февраля 2012 г.

Проведена серия экспериментов по исследованию условий образования неупорядоченного (стеклоподобного) состояния в кристаллах ³Не. С помощью прецизионных измерений давления при постоянном объеме установлено, что в быстро охлажденных кристаллах, выросших в однородных температурных условиях при наличии большого числа зародышей, легко образуется стекольная фаза, устраняемая лишь после тщательного отжига. Этот результат обнаружен как в ³Не, так и в ⁴Не, он не зависит от типа квантовой статистики, а определяется, в основном, условиями роста кристалла. Проведен анализ аналогичных измерений при использовании другой ячейки, где в процессе роста кристалла создавался направленный градиент температуры. В этом случае для образования стекольной фазы требовалось дополнительное количество дефектов, которые создавались в результате деформации кристалла. Достижимая в эксперименте степень деформации кристалла была достаточна для образования стекольной фазы в твердом ⁴Не и недостаточна для кристалла ³Не, где атомы имеют большую амплитуду нулевых колебаний. На основании анализа температурной зависимости давления проведено также исследование особенностей фононного вклада в давление. Обнаружено, что в кристаллах как ³Не, так и ⁴Не при разных толщинах образцов фононное давление отличается в несколько раз. Приведено качественное объяснение этого эффекта, который обусловлен тем, что в тонких образцах усиливается взаимодействие между слоями атомов. Такое усиление приводит к уменьшению фононного вклада в термодинамические свойства кристалла гелия при низких температурах.

Проведено серію експериментів з дослідження умов утворення неупорядкованого (склоподібного) стану в кристалах 'Не. За допомогою прецизійних вимірювань тиску при постійному об'ємі встановлено, що в швидко охолоджених кристалах, що виросли в однорідних температурних умовах за наявності великої кількості зародків, легко утворюється склоподібна фаза, яка усувається лише після ретельного відпалу. Цей результат виявлено як в ³Не, так і в ⁴Не, він не залежить від типу квантової статистики, а визначається, в основному, умовами росту кристала. Проведено аналіз аналогічних вимірювань при використанні іншої комірки, де в процесі росту кристала створювався спрямований градієнт температури. У цьому випадку для утворення склоподібної фази потрібна додаткова кількість дефектів, які створювалися в результаті деформації кристала. Ступінь деформації кристала що досягнута в експерименті, була достатня для утворення склоподібної фази в твердому ⁴Не і недостатня для кристала ³Не, де атоми мають велику амплітуду нульових коливань. На підставі аналізу температурної залежності тиску проведено також дослідження особливостей фононного внеску до тиску. Виявлено, що в кристалах як ³Не, так і ⁴Не при різних товщинах зразків фононний тиск відрізняється в кілька разів. Приведено якісне пояснення цього ефекту, який обумовлений тим, що в тонких зразках посилюється взаємодія між шарами атомів. Таке посилення призводить до зменшення фононного внеску до термодинамічних властивостей кристала гелію при низьких температурах.

PACS: **67.80.-s** Квантовые кристаллы.

Ключевые слова: твердый гелий, стекольная фаза, термодинамические свойства.

1. Введение

Аномальное поведение твердого ⁴Не при низких температурах, обнаруженное в торсионных экспериментах [1], при измерении сдвигового модуля [2], в экспериментах по массопереносу [3], рассматривается в контексте теоретически предсказанной возможной сверхтекучести квантовых кристаллов (supersolidity). Хотя в этом вопросе пока не достигнут консенсус, в настоящее время имеется ряд экспериментальных фактов, которые свидетельствуют о важности дефектов кристаллической структуры в проявлении этих «суперсолидных» эффектов. Речь идет об образовании в кристалле дефектных состояний, прежде всего — дислокаций. Было показано, что «суперсолидные» эффекты не проявляются после тщательного отжига кристалла, когда исчезает большинство дефектов.

Очень удобным методом идентификации присутствия в кристалле большой плотности дефектов (стеклоподобного состояния) является прецизионная барометрия, которая позволяет выделить на фоне дебаевского фононного вклада в давление избыточное давление, имеющее другую температурную зависимость. Таким методом было обнаружено образование стеклоподобного состояния в быстро охлажденных кристаллах ⁴Не [4,5]. Корреляция между поведением давления и обнаруженной в торсионных экспериментах неклассической вращательной инерцией была продемонстрирована в работе [6] для кристаллов гелия с большим отношением поверхности к объему, где за счет большой степени беспорядка «суперсолидные» эффекты выражены особенно ярко [7].

Поскольку образование стеклоподобного состояния в твердом гелии связано с большой концентрацией дефектов в кристалле, то следующим шагом стало создание такого беспорядка непосредственно в ходе эксперимента. Для этой цели был использован метод деформирования кристалла *in situ* в специальной двух-камерной измерительной ячейке [8,9]. При этом было обнаружено, что процесс создания такого беспорядка в качественных кристаллах ⁴Не существенно зависит от степени деформации кристалла, и в условиях данного эксперимента стеклоподобное состояние удавалось зарегистрировать только, если степень деформации была достаточно велика.

После экспериментов с твердым ⁴Не встал вопрос о поиске стеклоподобного состояния в кристаллах другого изотопа ³Не, который является ферми-кристаллом. Это было мотивировано тем, что, с одной стороны, в ³Не не были обнаружены аномалии в торсионных экспериментах, а с другой стороны, сдвиговый модуль ³Не изменялся так же, как в ⁴Не, но только для ГПУ фазы, и оставался неизменным в ОЦК фазе [10]. Для выяснения возможного влияния типа квантовой статистики и кристаллической структуры на образование

неупорядоченного состояния в кристаллах гелия были проведены эксперименты с твердым 3 Не, деформированном *in situ* [11]. Эксперименты показали, что в деформированных кристаллах 3 Не при молярных объемах, бо́льших \sim 19 см 3 /моль, стеклоподобное состояние практически не образуется ни в ГПУ, ни в ОЦК фазах, в отличие от деформированного 4 Не в тех же условиях. Этот результат поставил ряд новых вопросов.

Прежде всего возникла потребность провести эксперименты с кристаллами ³Не, выращенными в других условиях, сравнить их с результатами для деформированных кристаллов. Как уже указывалось, образцы гелия, выращенные в двухкамерной ячейке, оказывались гораздо менее дефектными, чем в использованной ранее однокамерной ячейке [4,5] даже при одинаковой скорости охлаждения. И это при том, что отношение диаметра образца к его толщине в случае двухкамерной ячейки было на порядок больше, что предполагало рост более дефектного кристалла. Поэтому необходимо было провести тщательный анализ условий роста кристаллов в обеих ячейках. Кроме того, для понимания роли квантовой статистики в этих эффектах важно было сопоставить результаты, полученные в одинаковых условиях с ⁴Не и ³Не.

Еще одна серия вопросов возникла при анализе фононного вклада в давление кристаллов гелия, выращенных в однокамерной и двухкамерной ячейках. Было обнаружено, что для кристаллов ⁴Не, исследованных в двухкамерной ячейке, величина фононного давления существенно ниже. Представлялось необходимым выяснить возможные причины такого эффекта и исследовать аналогичную ситуацию для случая твердого ³Не.

Таким образом, настоящая статья, наряду с представлением новых экспериментальных данных, подводит итог серии работ [4,5,8,9,11], посвященных исследованию температурной зависимости давления в кристаллах обоих изотопов гелия в области «суперсолидных» эффектов.

2. Особенности экспериментальной методики

В настоящей работе описаны новые эксперименты, проведенные с помощью однокамерной ячейки (назовем ее ячейкой 1), конструкция которой приведена в [5], а результаты сопоставляются с данными, полученными ранее в двухкамерной ячейке (ячейка 2), конструкция которой подробно описана в [9]. Для анализа условий роста и охлаждения исследуемых кристаллов удобно перейти от конструктивной схемы ячеек к некоторой стилизованной схеме, где обозначены холодопроводы и источники теплопритока. Такие схемы приведены на рис. 1.

В ячейке 1 (рис. 1,a) исследуемый кристалл I выращивался в цилиндрической полости медного корпуса 5, который имел постоянный тепловой контакт с

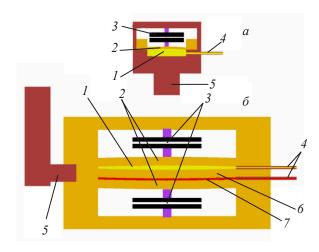


Рис. 1. Упрощенные схемы измерительных ячеек, использованных для поиска неупорядоченной фазы в твердом гелии. Ячейка 1: образец твердого гелия (1); подвижный электрод емкостного датчика давления из бериллиевой бронзы (2); емкостной датчик давления (3); капилляр заполнения (4); медный корпус, закороченный на камеру растворения (5) (а). Ячейка 2: исследуемый образец твердого гелия (1); подвижные электроды емкостных датчиков давления (2); емкостные датчики давления (3); капилляры заполнения (4); медный хладопровод от камеры растворения (5); гибкая мембрана (6); управляющая камера, заполняемая жидким гелием (7) (6).

камерой растворения. Образцы имели диаметр 9 мм и толщину 1,5 мм. Такая конструкция обеспечивала надежное однородное охлаждение образца с малым временем тепловой релаксации. Верхняя крышка 2, сделанная из бериллиевой бронзы толщиной 0,9 мм, играла роль подвижного электрода емкостного датчика давления, обеспечивающего измерение давления кристалла непосредственно в ходе эксперимента.

Ячейка 2 (рис. 1,6) была предназначена для создания дефектов в исследуемых образцах путем их деформирования. Поэтому она содержала две камеры измерительную камеру 1, где выращивался кристалл в виде тонкого диска диаметром 32 мм и толщиной 0,5 мм, и управляющую камеру 7, которая могла заполняться жидким 'Не при разном давлении. Между камерами располагалась гибкая мембрана 6 из бериллиевой бронзы толщиной около 2 мм. Мембрана прогибалась под действием давления в управляющей камере 7, и, тем самым, вызывала деформацию образца 1. Степень деформации кристалла можно было регулировать, изменяя величину избыточного давления жидкости в управляющей камере. Давление в камерах 1 и 7 в любой момент времени измерялось с помощью емкостных датчиков 3. Корпус ячейки был выполнен из бериллиевой бронзы, а медный хладопровод 5 от камеры растворения имел тепловой контакт с корпусом ячейки лишь в одном месте.

В обеих ячейках для измерения температуры использовали термометры сопротивления из RuO₂, про-

калиброванные по кристаллизационному термометру с 3 Не. Образцы твердого гелия выращивали из газообразного гелия методом блокировки капилляра заполнения. Для измерения давления использовали емкостные датчики 3 , позволяющие регистрировать давление кристалла при постоянном объеме с разрешением \pm 3 Па в любой момент времени в ходе эксперимента. Оценки показали, что изменение объема образца, связанное с прогибом гибких мембран емкостных датчиков давления и деформирующей мембраны в ячейке 2 , дает поправки в измерения давления, не превышающие точности измерений.

Исследуемый 3 Не для очистки от возможных примесей 4 Не подвергался специальной ректификации в безнасадочной колонке. При этом кристалл очищенного 3 Не, охлажденный до ~ 40 мК, не проявлял признаков фазового расслоения, тем самым, свидетельствуя о том, что возможная концентрация 4 Не была меньше 10^{-5} . В экспериментах с 4 Не [5,8,9] для повышения его чистоты при создании высокого давления с помощью адсорбционного газификатора удалялись первые порции десорбированного газа, богатого 3 Не.

Эксперименты с использованием ячейки 1 проводили следующим образом. Выращенный кристалл охлаждался до ~ 1 К с максимально возможной скоростью (30 мК/мин) для получения максимальной концентрации дефектов. Отметим, что после роста кристаллов часто наблюдалась заметная релаксация давления, происхождение которой недавно было подробно исследовано в работе [12]. По этой причине исследуемые кристаллы подвергались термоциклированию в области температур 0,6-0,8 К до полного исчезновения релаксационных процессов. После прекращения процесса релаксации давления образцы охлаждались ступенчатым образом с шагом 30-100 мК. На каждой ступени измерения проводили после соответствующей изотермической выдержки, когда изучаемая величина уже соответствовала равновесному значению давления. Измерения также проводили и при ступенчатом отогреве образца, при этом не было обнаружено гистерезисных эффектов. Температурную зависимость давления кристаллов ³Не измеряли в области температур 50–500 мК. Методика проведения экспериментов с ячейкой 2 включала приготовление образца по описанной выше схеме, его деформацию с помощью управляющей камеры и измерение температурной зависимости давления при ступенчатом охлаждении или нагреве образца. В этом случае также обращалось внимание на измерение равновесных значений давления на каждой ступени.

3. Температурная зависимость давления в твердом ³He

Первые поиски стеклоподобного состояния в кристаллах ³Не были проведены, как отмечалось выше, с

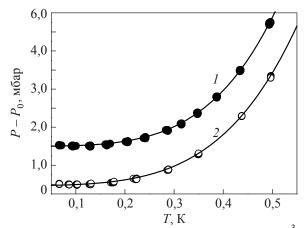
образцами, деформированными в процессе эксперимента (ячейка 2) [11], и они не показали заметных признаков стекольного состояния. Новые эксперименты были проведены с использованием ячейки 1. Полученная температурная зависимость давления приведена на рис. 2 для двух молярных объемов. В исследованной области температур величина давления монотонно уменьшается с понижением температуры, лишь при самых низких температурах для образца с большим молярным объемом было замечено незначительное увеличение давления, обусловленное вкладом обменного взаимодействия между атомами ³Не, обладающими ненулевым магнитным моментом. В пренебрежении этим вкладом, а также с учетом того, что вакансионный вклад в давление становится существенным лишь при более высоких температурах, температурную зависимость полного давления системы можно записать в виде

$$P(T) = P_0 + a_{\rm ph} T^4 + a_g T^2, \qquad (1)$$

где P_0 — давление при T=0, а $a_{\rm ph}$ и $a_{\rm g}$ — весовые множители, учитывающие вклады соответственно фононной и стеклоподобной подсистем. Для получения значений этих множителей удобно выражение (1) переписать в виде

$$(P(T) - P_0) / T^2 = a_g + a_{ph} T^2,$$
 (2)

а рис. 1 перестроить в координатах $(P(T)-P_0)/T^2$ от T^2 . Тогда соответствующим графиком будет прямая, наклон которой определяет величину $a_{\rm ph}$, отрезок, отсекаемый на вертикальной оси, дает значение a_g . Такая зависимость представлена на рис. 3 для кристалла с молярным объемом 22,25 см 3 /моль (кривая I), для сравнения приведена также аналогичная зависимость,



 $Puc.\ 2$. Температурная зависимость давления кристаллов 3 Не, выращенных в ячейке 1, за вычетом давления P_0 при нулевой температуре. Молярный объем 22,57 см 3 /моль (I), молярный объем 22,25 см 3 /моль (I). Сплошные линии соответствуют подгонке по формуле (1). Для кривой I масштаб по вертикальной оси сдвинут на 1 мбар вверх.

полученная для образца с близким молярным объемом в ячейке 2 (кривая 2).

На рис. 3 видно, что в образце, выращенном в ячейке 1, наблюдается заметный вклад стеклоподобного состояния ($a_g \sim 3 \text{ мбар/K}^2$), в то время как в образце, выращенном в ячейке 2, стекольный вклад очень мал. Этот эффект можно, по-видимому, объяснить различными условиями роста кристаллов в обеих ячейках. В ячейке 1, как видно на рис. 1,а, при росте кристалла охлаждение происходит равномерно со всех сторон холодной медной стенки, поэтому поликристалл зарождается сразу в нескольких местах, и в итоге вырастает дефектный образец. Ячейка 2 (рис. 1,6) обеспечивает другие условия роста кристалла. Стенки ячейки сделаны из бериллиевого сплава с меньшей теплопроводностью, а медный хладопровод 6 и капилляр заполнения 7 создают в ячейке направленный градиент температуры, способствующий росту более качественного кристалла, который вырастает из зародышей, возникших в самом холодном месте ячейки.

Отметим, что линии 1 и 2 на рис. 3, соответствующие кристаллам, выращенным в разных ячейках, имеют различный наклон, что означает различный вклад в давление, вносимый фононной подсистемой. Анализ фононного давления в твердом гелии и возможных причин, изменяющих его величину, требует самостоятельного рассмотрения и будет представлен в разд. 5.

4. Анализ полученных результатов

Полученные результаты позволяют более однозначно трактовать причины отсутствия стеклоподобного состояния в кристаллах ³Не, деформированных в условиях эксперимента [11]. Наиболее адекватной представляется дислокационная модель, поскольку дефор-

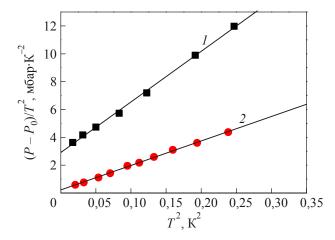


Рис. 3. Зависимость $(P(T)-P_0)/T^2$ от T^2 для кристаллов ³ Не, выращенных в разных ячейках: образец выращен в ячейке 1 (молярный объем 22,25 см³/моль) (*I*); образец выращен в ячейке 2 и подвергнут деформации (молярный объем 22,20 см³/моль) [11] (2).

мация кристалла обычно приводит к появлению в нем дислокаций, плотность которых зависит от степени деформации. Эксперименты с деформированными кристаллами ⁴He [9] показали, что для регистрации стеклоподобного состояния в условиях этих экспериментов требовалась достаточно высокая плотность дислокаций, которая достигалась лишь при степени деформации, соответствующей избыточному давлению в измерительной камере ячейки 2 около 3 бар. В случае твердого ³He такая плотность дислокаций, очевидно, должна быть больше, чем в случае ⁴He, поскольку изза большей амплитуды нулевых колебаний атомов дислокации становятся более подвижными, что затрудняет образование и поддержание необходимой плотности дислокаций.

Таким образом, наблюдение стеклоподобного состояния в настоящей работе (в кристаллах 3 He, выращенных в ячейке 1) не противоречит результатам работы [11], где в деформированных кристаллах 3 He (ячейка 2) не было зарегистрировано заметного количества стекольной фазы.

Значения a_g , полученные в работе, были использованы для оценки плотности дислокаций, возникающих при росте и охлаждении кристалла или при его деформировании. Вклад дислокационной подсистемы в термодинамические свойства кристалла рассматривался в работах [13,14]. В соответствии с [14], если в кристалле образовалась сетка дислокаций с плотностью N, то основной вклад будут вносить поперечные колебания дислокационных линий струнного типа (дислокационные фононы). Тогда в исследованной области температур дислокационный вклад в давление имеет вид

$$P_d = \frac{\gamma_0 \beta_d}{2} T^2 \,, \tag{3}$$

где γ_{θ} — параметр Грюнайзена, $\beta_d = \pi N k^2/(3\hbar s)$, s — скорость поперечного звука в твердом гелии, k и \hbar — постоянные Больцмана и Планка. Сопоставляя выражение (3) с вкладом в давление от неупорядоченной фазы в формуле (1), имеем для плотности дислокаций:

$$N = \frac{6a_g s\hbar}{\pi \gamma_{\theta} k^2}.$$
 (4)

Плотность дислокаций в исследованных кристаллах 3 He, оцененная по формуле (4) с использованием данных о параметре Грюнайзена для ОЦК фазы 3 He γ_θ = 2,18 [15] и о скорости поперечного звука s=250 м/с [16], дает для образцов, полученных в ячейке 1 ($a_g \sim 3~\text{мбар/K}^2$), значение $N \approx 3,6\cdot 10^{12}~\text{сm}^{-2}$. Это значение того же порядка, что и для образцов 4 He, выращенных в таких же условиях [9]. В случае деформированных кристаллов 3 He [11] (ячейка 2) плотность дислокаций, возникающих при максимально возможной степени деформации, была по оценкам на 1–2 по-

рядка меньше, что не позволяло стабилизировать и регистрировать стеклоподобное состояние (в пределах чувствительности использованной методики).

Что касается идентификации неупорядоченного (стеклоподобного) состояния, образующегося в кристаллах гелия, то недавно такие исследования были проведены с помощью ядерного магнитного резонанса [17,18]. Эксперименты проводились на примере слабого твердого раствора ³Не в ⁴Не, где атомы ³Не использовались как зонд для определения сосуществующих фаз. Условия роста кристаллов в этом случае были такие же, как для кристаллов, выращенных в ячейке 1. Измерения коэффициента спиновой диффузии и времен ядерной магнитной релаксации показали, что при быстром росте кристаллов гелия легко образуются включения жидкоподобной фазы, которые затем переходят в новое состояние с очень малым временем релаксации. Предполагается, что затвердевание жидкоподобных включений приводит к образованию состояния с большим количеством дислокаций.

Поскольку наличие неупорядоченной фазы в работах [17,18] было зарегистрировано при достаточно высоких температурах (~ 1,5 К), то их образование происходит в основном на стадии роста кристалла. При этом можно полагать, что они сохраняются при охлаждении вплоть до самых низких температур. Удалить такие состояния можно лишь в результате тщательного отжига кристалла вблизи кривой плавления. Отжиг образцов, исследованных в настоящей работе, проводили вблизи температуры плавления в течение 10-20 часов. В результате отжига величина a_g существенно уменьшалась, однако практически не удалось добиться, чтобы $a_g = 0$. Это связано с тем, что, по-видимому, не все дефекты чувствительны к отжигу, что было также отмечено в работах [12,19]. Особенно не поддаются отжигу винтовые дислокации и клубок, образованный пересекающимися винтовыми и краевыми дислока-

Отметим, что выяснение условий образования стеклоподобного состояния в кристаллах Не было бы не полным, если эксперименты, проведенные в настоящей работе с помощью прецизионного измерения давления. не дополнить анализом имеющихся экспериментальных данных о другой термодинамической величине теплоемкости [20–24]. Полученные здесь результаты не однозначны. Авторы работ [20–23] обнаружили, что при температурах ниже ~ 0,5 К имеется дополнительный линейный по температуре вклад в теплоемкость по сравнению с кубическим фононным вкладом. Линейный вклад в теплоемкость характерен для стеклоподобного состояния. Однако в работе [24] тщательные измерения теплоемкости твердого ³Не не выявили дополнительного линейного вклада. Что же касается экспериментального исследования теплоемкости в твердом ⁴Не, то здесь ситуация также неоднозначна. Линейный вклад в теплоемкость, соответствующий неупорядоченному состоянию, был обнаружен в работах [20,23,25]. Однако в ряде других работ линейный член не был зарегистрирован на фоне дебаевской теплоемкости [26–28]. Можно предположить, что причина такого различия связана с разными условиями роста кристаллов гелия в этих экспериментах.

Следует обратить внимание, что образование неупорядоченного (стеклоподобного) состояния было обнаружено и в кристаллах инертных газов (неона, аргона, криптона и ксенона) в экспериментах по измерению теплоемкости [29], где была зарегистрирована избыточная (по сравнению с фононной) теплоемкость, имеющая линейную температурную зависимость, характерную для аморфного состояния. Что же касается фононного вклада в теплоемкость, то для таких кристаллов, которые в отличие от твердого гелия имеют свободную поверхность, было обнаружено увеличение теплоемкости в согласии с теорией [30–33].

5. Фононный вклад в давление

В исследованной области температур, как уже отмечалось, основной вклад в давление кристаллов гелия можно условно разделить по характеру температурной зависимости на дебаевский вклад (фононный), пропорциональный T^4 , и вклад стеклоподобного состояния, пропорциональный T^2 . Рис. 4 иллюстрирует, как изменяется с температурой относительный вклад этих подсистем для образцов ³Не, исследованных в настоящей работе. Как видно на графиках, при температурах выше ~ 0.3 К фононный вклад превышает стекольный, а при более высоких температурах он становится доминирующим.

Если сопоставить значения давления фононной подсистемы $P_{
m ph}$, полученные в экспериментах с использованием ячейки 1 и ячейки 2, то оказывается, что они

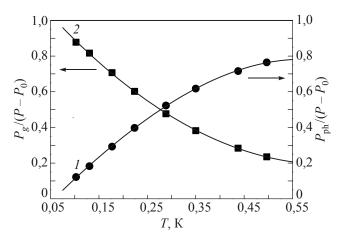


Рис. 4. Относительный вклад в давление, вносимый фононной подсистемой (кривая I) и стекольной подсистемой (кривая 2), для образца твердого ³Не с молярным объемом $22,25 \text{ см}^3/\text{моль}$.

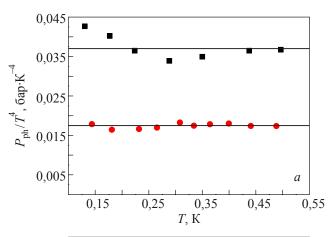
сильно отличаются. Величина $P_{\rm ph}$ для случая ячейки 2 в несколько раз ниже. Это отличие проявляется как для 3 Не (рис. 5,a), так и для 4 Не (рис. 5,a). При этом, как видно на рис. 5, при переходе от образцов, выращенных в ячейке 1, к образцам, выращенным в ячейке 2, температурная зависимость $\sim T^4$ сохраняется.

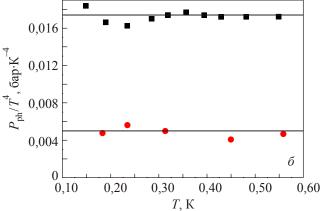
Обычно фононный вклад в давление системы записывается в виде

$$P = \frac{3\pi^4}{5} \frac{\gamma_\theta}{V_m} R \frac{T^4}{\theta_D^3} \,, \tag{5}$$

где Θ_D — температура Дебая, которую при достаточно низких температурах можно считать не зависящей от температуры, R — газовая постоянная, V_m — молярный объем кристалла. Полученные значения $P_{\rm ph}$ позволили рассчитать значения температуры Дебая для исследованных молярных объемов (необходимые для этого данные о параметре Грюнайзена были взяты из работы [15], где была показана независимость его от температуры).

Полученная зависимость температуры Дебая от молярного объема приведена на рис. 6 для кристаллов ³ Не и ⁴ Не, исследованных в ячейках 1 и 2. Для сравне-





Puc. 5. Температурная зависимость величины $P_{\rm ph}/T^4$ для 3 Не: ячейка 1 (22,25 см 3 /моль) (**■**), ячейка 2 (молярный объем 22,20 см 3 /моль) (**●**) (*a*); 4 Не: ячейка 1 (20,1 см 3 /моль) (**■**), ячейка 2 (20,05 см 3 /моль) (**●**) (δ).

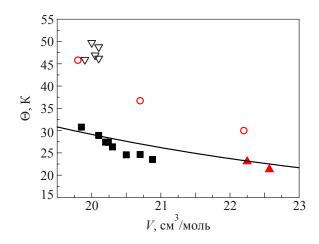


Рис. 6. Зависимость температуры Дебая от молярного объема, полученная из экспериментов по прецизионному измерению давления. Для 3 Не: ячейка 1(настоящая работа) (▲); ячейка 2 ([10]) (○). Для 4 Не: ячейка 1 ([5,8]) (■); ячейка 2 ([9]) (∇). Сплошная линия соответствует литературным данным, взятым из [15].

ния на этом же рисунке показаны сглаженные значения литературных данных о Θ_D [15], относящиеся к ОЦК фазе ³Не и ГПУ фазе ⁴Не. На рис. 6 отчетливо видно, что значения Θ_D , полученные в экспериментах с ячейкой 1 как для ³Не, так и для ⁴Не хорошо согласуются с известными данными. В то же время результаты, полученные в экспериментах с ячейкой 2, дают сильно завышенные (на 30–50%) значения дебаевской температуры.

Причину различных значений фононного давления, по-видимому, следует искать в различии геометрии образца твердого гелия в обеих ячейках. В ячейке 1 толщина образца составляла 1,5 мм, а в ячейке 2 — 0,5 мм. Это означает, что во втором случае увеличивается вклад поверхностных эффектов в термодинамические свойства системы. Отметим, что анализ данных о фононном давлении, измеренном в работе [6] для образца 4 Не толщиной 0,1 мм, также показал заметно заниженное значение величины $P_{\rm ph}$.

Поскольку при переходе от образца 1 к образцу 2 температурная зависимость давления не изменилась, то речь может идти лишь о количественном изменении. Поверхностный вклад в термодинамические величины тонких пленок имеет другую температурную зависимость [29–31]. В отличие от «обычных» классических кристаллов твердый гелий со свободной поверхностью не существует — его поверхность всегда закрепленная. Это означает, что слои атомов, расположенные в приповерхностной области, взаимодействуют между собой сильнее, чем слои, расположенные на

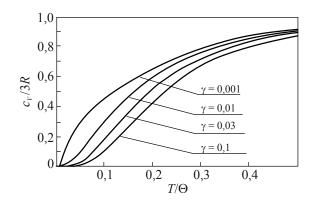


Рис. 7. Температурная зависимость теплоемкости кристалла с различным взаимодействием между слоями атомов, характеризующимся параметром γ .

достаточно далеком расстоянии от поверхности. Поскольку образец 2 имеет гораздо меньшую толщину, чем образец 1, то и влияние закрепленной поверхности проявляется в нем значительно сильнее. Другими словами, эффективное взаимодействие между слоями в образце 2 сильнее, чем в образце 1.

Для определенности будем рассматривать теплоемкость твердого гелия, температурная зависимость которой отличается от температурной зависимости давления лишь показателем степени. Введем параметр у, характеризующий отношение межслоевого взаимодействия к внутрислоевому. Исследования, проведенные в работах [29,32] для достаточно общей модели слоистого кристалла, показали, что с увеличением у теплоемкость системы понижается (см. рис. 7).

К такому же выводу можно прийти и на основании простых оценок, не прибегая к громоздким вычислениям. Фононная теплоемкость определяется функцией распределения по частотам колебательных состояний — $g(\omega)$. Если для оценок воспользоваться эйнштейновской моделью, то эта функция имеет вид: $g(\omega) = \delta (\omega - \langle \omega \rangle)$, где $\langle \omega \rangle$ — частота, усредненная по фононному спектру*.

Теплоемкость, приходящаяся на один атом, в рассматриваемой модели имеет вид

$$C(T) = 3R \left(\frac{\hbar \langle \omega \rangle / 2kT}{\sinh \hbar \langle \omega \rangle / 2kT} \right)^{2}, \tag{6}$$

где усредненная по спектру частота $\langle \omega \rangle$ зависит от того, находится ли данный атом в слое с «обычным» взаимодействием $\langle \omega \rangle_1$ или усиленным $\langle \omega \rangle_2$. Другими словами, спектр колебаний в образце 2 смещается в сторону высоких частот, т.е. количество низкочастотных колебаний в образце 2 значительно меньше, чем в образце 1.

* Как известно, частоту колебаний гармонического осциллятора можно оценить как $\omega \sim (\alpha/m)^{1/2}$, где α — силовая постоянная осциллятора, m — его масса. Тогда при усилении связи между слоями атомов (увеличении α) величина ω тоже возрастает.

Отношение соответствующих теплоемкостей в низкотемпературном пределе имеет вид

$$\frac{C_2(T)}{C_1(T)} = \left(\frac{\langle \omega \rangle_2}{\langle \omega \rangle_1}\right)^2 \exp\left(-\frac{\hbar}{kT} (\langle \omega \rangle_2 - \langle \omega \rangle_1)\right) =
= \beta \exp\left(-\frac{\hbar}{kT}\alpha\right), \tag{7}$$

где
$$\beta = (\langle \omega \rangle_2 / \langle \omega \rangle_1)^2$$
, $\alpha = \langle \omega \rangle_2 - \langle \omega \rangle_1$.

Поскольку усредненная по спектру частота $\langle \omega \rangle_2$ в образце 2 превышает усредненную по спектру частоту $\langle \omega \rangle_1$ в образце 1, т.е. показатель экспоненты в формуле (7) отрицательный, то и теплоемкость в более тонком образце значительно меньше, чем в более массивном. Отметим, что дальнейшее уменьшение толщины должно существенно разнообразить температурную зависимость фононного вклада в теплоемкость, поскольку при очень малых толщинах вклад в термодинамику будут вносить поверхностные фононы, имеющие другую температурную зависимость.

Естественно, влияние поверхностных эффектов сказывается не только на теплоемкость, но и на другие термодинамические свойства, в частности на фононное давление $P_{\rm ph}$, исследуемое в данное работе. Связь между $P_{\rm ph}$ и фононной теплоемкостью $C_{\rm ph}$ выражается известным соотношением Мея–Грюнайзена:

$$C_{\rm ph} = \frac{V_m}{\gamma_{\rm h}} \frac{\partial P_{\rm ph}}{\partial T},\tag{8}$$

Таким образом, величина $P_{\rm ph}$ для кристаллов, выращенных в ячейке 2, в связи с влиянием поверхностных эффектов заметно ниже, чем в случае ячейки 1.

6. Заключение

Эксперименты по поиску условий образования стеклоподобного состояния в кристаллах гелия показали, что такое состояние дегко образуется в быстро охлажденных образцах как ³He, так и ⁴He. Результат существенно не зависит от того, является ли образец бозекристаллом или ферми-кристаллом. Наблюдаемое отличие является лишь количественным и происходит лишь в меру квантово-механической подвижности атомов. Основную роль играют условия роста кристаллов, что подтверждается экспериментами, проведенными в двух ячейках с разными условиями роста. В одной ячейке кристалл рос в однородных температурных условиях при наличии сразу нескольких зародышей новой фазы, что приводило к получению кристалла с большим количеством зерен и большой плотностью дефектов на границах зерен.

В другой ячейке создавался направленный градиент температуры, и кристалл вырастал с меньшим количеством дефектов. В таких более качественных кристаллах образование стеклоподобного состояния наблюда-

лось лишь после достаточно сильного деформирования кристалла. Этот эффект был обнаружен пока только в кристаллах 4 He, а для реализации эффекта в кристаллах 3 He требуется, по-видимому, более высокая степень деформации.

Анализ фононного вклада в давление $P_{\rm ph}$ кристалла показал, что результаты, полученные в ячейках разного типа, дают сильно отличающиеся значения $P_{\rm ph}$. Обнаруженный эффект связан с усилением эффективного взаимодействия между слоями атомов при сильном уменьшении толщины образца. Этот факт также подтверждается заметным ростом дебаевской температуры в более тонких образцах. Наличие закрепленной поверхности твердого гелия, естественно, приводит к тому, что в таких образцах низкотемпературный фононный вклад становится меньше.

Авторы выражают благодарность И.А. Господареву, В.Д. Нацику, С.Н. Смирнову и С.Б. Феодосьеву за полезные дискуссии.

Работа была выполнена при поддержке гранта УНТЦ (проект 5211).

- 1. E. Kim and M. Chan, Nature 427, 225 (2004).
- 2. J. Day and J. Beamish, Nature 450, 853 (2007).
- M.W. Ray and R. Hallock, *Phys. Rev. Lett.* 100, 235301 (2008).
- 4. V.N. Grigor'ev, V.A. Maidanov, V.Yu. Rubanskii, S.P. Rubets, E.Ya. Rudavskii, A.S. Rybalko, Ye.V. Syrnikov, and V.A. Tikhii, *Phys. Rev.* **B76**, 224524 (2007).
- 5. В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудавский, А.С. Рыбалко, В.А. Тихий, *ФНТ* **34**, 431 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 344 (2008)].
- 6. A.S.C. Rittner and J.D. Reppy, *J. Phys.: Conf. Ser.* **150**, 032089 (2009).
- A.S.C. Rittner and J.D. Reppy, *Phys. Rev. Lett.* 101, 155301 (2008)
- 8. E.Ya. Rudavskii, V.N. Griror'ev, A.A. Lisunov, V.A. Maidanov, V.Yu. Rubanskii, S.P. Rubets, A.S. Rybalko, and V.A. Tikhii, *J. Low Temp. Phys.* **158**, 578 (2010).
- И.А. Дегтярев, А.А. Лисунов, В.А. Майданов, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудавский, А.С. Рыбалко, В.А. Тихий, ЖЭТФ 138, 699 (2010).
- 10. J.T. West, O. Syschenko, J. Beamish, and M.H.W. Chan, *Nature Phys.* **5**, 598 (2009).
- A.A. Lisunov, V.A. Maidanov, V.Yu. Rubanskyi, S.P. Rubets, E.Ya. Rudavskii, A.S. Rybalko, and V.A. Tikhiy, *Phys. Rev.* B83, 132201 (2011).
- 12. A. Suhel and J.R. Beamish, Phys. Rev. B84, 094512 (2011).
- 13. A. Granato, Phys. Rev. 11, 740 (1958).
- 14. В.Д. Нацик, С.Н. Смирнов, ФНТ **18**, 185 (1992) [Low Temp. Phys. **18**, 128 (1992)].
- Е.О. Вехов, В.Н. Григорьев, В.А. Майданов, Н.П. Михин, В.Ю. Рубанский, С.П. Рубец, Э.Я. Рудавский, А.С. Рыбалко, Е.В. Сырников, В.А. Тихий, ФНТ 33, 835 (2007) [Low Temp. Phys. 33, 635 (2007)].

- 16. Б.Н. Есельсон, В.Г. Иванцов, В.А. Коваль, Э.Я. Рудавский, И.А. Сербин, Свойства жидкого и твердого гелия. $Pacmsopai\ ^3 He^{-4} He$, Наукова Думка, Киев (1982).
- 17. Ye. Vekhov, A. Birchenko, N. Mikhin, and E. Rudavskii, *J. Low Temp. Phys.* **158**, 496 (2010).
- 18. A. Birchenko, N. Mikhin, E. Rudavskii, and Ye. Vekhov, arXiv:1107.0653, cond-mat (2011).
- 19. J.D. Reppy, Phys. Rev. Lett. 194, 255301 (2010).
- 20. E.S. Heltems and C.A. Swenson, Phys. Rev. 128, 1512 (1962).
- 21. H.H. Sample and C.A. Swenson, Phys. Rev. 158, 188 (1967).
- 22. R.S. Pandorf and D.O. Edwards, Phys. Rev. 169, 2228 (1968).
- 23. S.H. Castles and E.D. Adams, *Phys. Rev. Lett.* **30**, 1125 (1973); *JLTP* **19**, 397 (1975).
- 24. D.S. Greywall, Phys. Rev. B15, 2604 (1977).
- 25. J. Frank, Phys. Lett. 11, 208 (1964).
- 26. A.C. Clark and M.H.W. Chan, *J. Low Temp. Phys.* **138**, 853 (2005).
- 27. G. Allers, *Phys. Lett.* **22**,404 (1966); *Phys. Rev.* **A2**, 1505 (1970).
- 28. W.R. Gardner, J.K. Hoffer, N.E. Phillips, *Phys. Rev.* A7, 1029 (1973).
- 29. H. Mendes and H. Lohneysen, *J. Low Temp. Phys.* **84**, 237 (1991).
- 30. Ю.А. Косевич, Е.С. Сыркин, *ФНТ* **9**, 624 (1983) [*Low Temp. Phys.* **9**, 317 (1983)].
- 31. И.А. Господарев, Е.С. Сыркин, ФНТ **9**, 978 (1983) [Low Temp. Phys. **9**, 506 (1983)].
- 32. Ю.А. Косевич, Е.С. Сыркин, *ФНТ* **9**, 1195 (1983) [*Low Temp. Phys.* **9**, 616 (1983)].
- 33. Е.С. Сыркин, С.Б. Феодосьев, ФНТ **8**, 1115 (1982) [Low Temp. Phys. **8**, 564 (1982)].

Features of the temperature dependence of the pressure of solid helium at low temperatures

A.A. Lisunov, V.A. Maidanov, V.Yu. Rubanskyi, S.P. Rubets, E.Ya. Rudavskii, A.S. Rybalko, and E.S. Syrkin

A series of experiments have been performed to find out the conditions for formation of disordered (glassy) state in ³He crystals. The high-precision pressure measurements at constant volume demonstrated that a glassy phase was easily generated in quenched cooled crystals grown under uniform temperature conditions in the presence of big number of nuclei and could be removed only after careful annealing. This result was found in both ³He and ⁴He. It does not depend on the type of quantum statistics and is defined mainly by the conditions of the crystal growth. Analysis of similar measurements also was made for some other cell, where the temperature gradient was created in the process of crystal growth. In that case an additional number of defects, created due to deformation of the crystal, were required for formation of a glassy phase. The degree of crystal deformation achieved in the experiment was sufficient for the formation of glassy phase in solid ⁴He, but not in ³He, where the atoms had higher amplitude of zero-point oscillations. The temperature dependence of pressure was used to study the features of phonon contribution to pressure. It is found that in crystals of both ³He and ⁴He, the phonon pressure differs by several times at different thicknesses of the sample. The qualitative explanation of this effect implies that in thin samples interaction between atomic layers becomes stronger, resulting in decreasing the phonon contribution to the thermodynamic properties of the crystal at low temperature.

PACS: 67.80.-s Quantum solids.

Keywords: solid helium, glassy phase, thermodynamic properties.