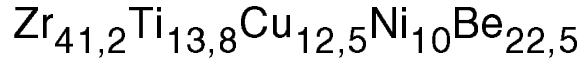


*Письма редактору*

## Низкотемпературные акустические характеристики аморфного сплава



А. Л. Гайдук, Е. В. Безуглый, В. Д. Филь

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины,  
Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47  
E-mail: fil@ilt.kharkov.ua*

В. Л. Джонсон

*California Institute of Technology, Pasadena, CA 91125, U.S.A.*

Статья поступила в редакцию 22 июля 1997 г.

Изучены температурные зависимости скорости  $v$  и поглощения  $\alpha$  высокочастотного звука (50–160 МГц) в массивном аморфном сплаве  $\text{Zr}_{41,2}\text{Ti}_{13,8}\text{Cu}_{12,5}\text{Ni}_{10}\text{Be}_{22,5}$  при гелиевых температурах в нормальном и сверхпроводящем состояниях. Сплав характеризуется сравнительно малой константой  $C$ , определяющей интенсивность взаимодействия упругой волны с двухуровневыми системами. Оценена плотность состояний последних. Особенности изменения  $v$  при сверхпроводящем переходе указывают на возможность реализации бесщелевого состояния в узком температурном интервале вблизи  $T_c$ .

Вивчено температурні залежності швидкості  $v$  та поглинання  $\alpha$  високочастотного звука (50–160 МГц) у масивному аморфному сплаві  $\text{Zr}_{41,2}\text{Ti}_{13,8}\text{Cu}_{12,5}\text{Ni}_{10}\text{Be}_{22,5}$  при гелійових температурах у нормальному та надпровідному станах. Сплав характеризується порівняно малою константою  $C$ , яка визначає інтенсивність взаємодії між пружною хвилею та дворівневими системами. Оцінено густину станів останніх. Особливості варіації  $v$  при надпровідному переході вказують на можливість реалізації безщільового надпровідного стану у вузькому температурному інтервалі поблизу  $T_c$ .

PACS: 62.65.+k, 74.80.Bj

Низкотемпературная кинетика аморфных материалов определяется в основном специфическими низкоэнергетическими квазилокальными возбуждениями — двухуровневыми системами (ДУС). Модельная концепция ДУС, развитая в работах [1,2], оказалась весьма плодотворной при объяснении тепловых, упругих и электромагнитных свойств диэлектрических стекол и метглассов [3]. Простейшая модель ДУС представляет собой тяжелую туннелирующую частицу в асимметричном двухъямном потенциале. Как исходная модель ДУС, так и позднейшие ее варианты [4] универсальны и не связаны со спецификой микроскопического происхождения двухъямных потенциалов.

К настоящему времени изучены свойства большого количества различных стекол. Одним из наиболее замечательных результатов этих исследований является вывод о практической независимости плотности состояний ДУС от состава и способа изготовления стекла. Относительно метглассов следует отметить, однако, что все исследованные составы получены при очень высоких скоростях охлаждения ( $\geq 10^3$  К/с), чем, возможно, и определяется указанная универсальность.

Недавно найдены новые классы стеклообразующих систем, стабильных в широкой области температур переохлаждения жидкости. Сильная их устойчивость по отношению к кристаллизации позволяет получать массивные аморфные образцы при очень низких

скоростях закалки ( $\leq 10$  К/с). Представляется интересным оценить плотность состояний ДУС для типичного представителя этого семейства метгласов. В связи с этим мы провели исследование акустических свойств аморфного сплава  $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$  [5] при температурах вблизи 1 К.

Известно, что акустические измерения являются одним из наиболее информативных методов изучения ДУС [3]. Существуют два основных механизма взаимодействия ДУС со звуком — резонансный и релаксационный. Первый соответствует возбуждению звуком частотой  $\omega$  прямых переходов между туннельными уровнями с энергетическим расщеплением  $E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2} = \omega$  ( $\Delta$  — асимметрия двухъямного потенциала;  $\Delta_0$  — туннельное расщепление уровней при  $\Delta = 0$ ). В актуальном частотном диапазоне ( $\omega \ll T$ ) резонансный вклад в изменение скорости звука с точностью до постоянного слагаемого определяется выражением

$$\left( \frac{\delta v_i}{v_i} \right)_{\text{res}} = \frac{\overline{P}\gamma_i^2}{\rho v_i^2} \ln T = C_i \ln T, \quad (1)$$

где  $\overline{P}$  — плотность состояний ДУС;  $\gamma$  — деформационный потенциал;  $\rho$  — массовая плотность;  $i$  обозначает продольную ( $l$ ) или поперечную ( $t$ ) поляризации.

Резонансный вклад в коэффициент поглощения  $\alpha/q$  ( $q$  — волновое число) мал по параметру  $\omega/T$  в масштабе  $C_i$ .

Упругая деформация волны сдвигает также и спектр туннельных уровней. Если при этом имеется релаксационный механизм, позволяющий ДУС быстро (в масштабе  $\omega^{-1}$ ) подстроить заселенность уровней к новому набору  $E$ , то появляется релаксационная составляющая в затухании и скорости звука:

$$\left( \frac{\alpha_i}{q_i} \right) = \frac{C_i}{2} \left( \frac{\pi}{\ln \omega \tau_{\min}} \right), \quad (2)$$

где  $\tau_{\min}$  — минимальное время релаксации при  $\Delta = 0$  и  $E \sim T$ . Выражения (2) справедливы при  $\omega \tau_{\min} \ll 1$ , в противном случае релаксационным взаимодействием можно пренебречь. В общем случае релаксация ДУС в метгласах обусловлена взаимодействием как с электронами, так и с фононами, однако при  $T < 2-3$  К вкладом

последних можно пренебречь и частота релаксации есть [3]

$$(\tau_{\min}^{-1})_e = \frac{\pi}{2} \eta^2 T, \quad (3)$$

где  $\eta$  — безразмерный параметр связи электронов с ДУС.

Образец для исследований с длиной акустического пути 0,74 см был вырезан из слитка овальной формы [5]. Измерения  $v$  и  $\alpha$  проведены в импульсном режиме фазочувствительным мостовым методом на частотах вблизи 54,3 и 162,9 МГц. Диамагнитный отклик  $\chi$  измеряли на частоте 22,5 Гц при концентрическом расположении образца, приемной и возбуждающей катушек. Отметим высокую однородность сплава: при длине волны звука  $\sim 15$  мкм наблюдалось 8–10 хорошо выраженных отражений. Во избежание возможных ошибок интерференционной природы основные измерения были выполнены сравнением фаз и амплитуд первого и второго либо третьего импульсов. При 77 К величины скоростей  $v_l = (5,17 \pm 0,03) \cdot 10^5$ ,  $v_t = (2,49 \pm 0,01) \cdot 10^5$  см/с.

На рис. 1 приведено относительное изменение скорости поперечного звука в исследованном сплаве как в нормальном ( $n$ ), так и сверхпроводящем ( $sc$ ) состояниях. В первом случае прикладывалось поле  $H = 1,5$  Тл ( $H \parallel q$ ). Заметим, что выше  $T_c$  такие поля на поведение  $v$  и  $\alpha$  не влияли. В нормальной фазе изменения скорости с температурой хорошо аппроксимируются логарифмической зависимостью с коэффициентом  $C_i/2$ , появляющимся при суммировании (1) и (2).

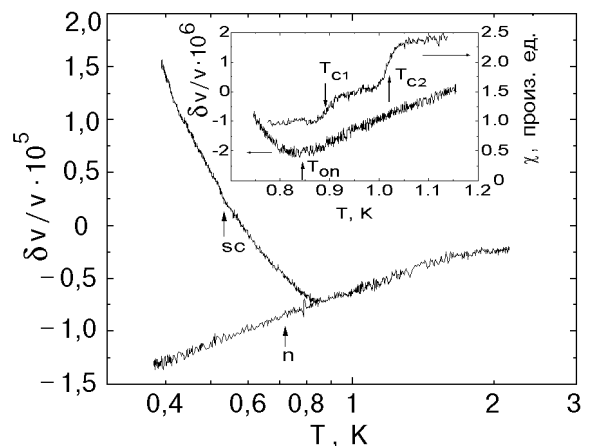


Рис. 1. Температурные зависимости относительных изменений скорости поперечного звука в аморфном сплаве  $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$  на частоте 54,3 МГц. Вставка: фрагмент  $\delta v/v(T)$  и диамагнитный отклик  $\chi$  в области сверхпроводящего перехода.

Значения констант  $C_i$  ( $C_l = (0,58 \pm 0,02) \cdot 10^{-5}$ ,  $C_t = (1,42 \pm 0,03) \cdot 10^{-5}$ ) в пределах точности измерений от частоты не зависели.

В сверхпроводящей фазе вымораживание нормальных возбуждений приводит к росту  $\tau_{\min}$  [6] и резкому уменьшению релаксационных вкладов в скорость и поглощение звука, что и отражает на рис. 1 резкий излом  $v(T)$  при температуре  $T_{\text{он}} = 0,85$  К. На вставке рис. 1 представлены измеренные одновременно ( $H = 0$ ) изменения скорости вблизи  $T_{\text{он}}$  и диамагнитный отклик  $\chi$  образца, полученный при амплитуде переменного магнитного поля  $\tilde{H} \approx 4$  мЭ. Очевидно, образец двухфазен с температурами перехода фаз  $T_{c1} \approx 0,9$  К и  $T_{c2} \approx 1,02$  К. Можно думать, что  $T_{c2}$  отвечает какой-то поверхностной фазе, поскольку этот переход никоим образом не отражается на скорости звука. Кроме того, повышение  $\tilde{H}$  до 40 мЭ приводит к практически полному подавлению скачка  $\chi$  при  $T_{c2}$ , в то время как особенность при  $T_{c1}$  сохраняется вплоть до  $\tilde{H} \approx 1$  Э. По-видимому, наблюдавшееся в [7] несовпадение резистивного и магнитного сверхпроводящих переходов в стекле того же состава также связано с двухфазностью.

Из рис. 1 следует несовпадение температур  $T_{\text{он}}$  и  $T_{c1}$ . Можно, конечно, предполагать неоднородность образца по  $T_{c1}$ , однако узость скачка  $\chi$  в  $T_{c1}$  делает это предположение маловероятным. Возможно, в данном случае в интервале температур  $T_{c1} - T_{\text{он}}$  реализуется режим так называемой бесщелевой сверхпроводимости [8].

Для  $\tau_{\min}$  в сверхпроводнике удается получить аналитическое выражение только при  $E \ll \Delta_{sc}$  ( $\Delta_{sc}$  — сверхпроводящая щель) [6]. Поскольку основной вклад в измеряемые характеристики дают ДУС с  $E \leq T$ , вышеприведенное ограничение сводится к  $T \ll \Delta_{sc}$ . В этом случае

$$(\tau_{\min}^{-1})_{e\ sc} = \frac{\pi}{2} \eta^2 T e^{-\Delta_{sc}/T}. \quad (4)$$

Поскольку вплоть до  $T \sim 0,4$  К скорость в сверхпроводящей фазе продолжает расти, следует думать, что условие  $\omega \tau_{\min} < 1$  еще выполняется и для релаксационного вклада в  $\delta v/v$  выражение (2) остается справедливым. Предполагая, что резонансный вклад в нормальной и сверхпроводящей фазах одинаков, для разности скоростей звука в  $sc$ - и  $n$ -фазах из (1)–(4) имеем

$$\frac{\Delta v}{v} = \left( \frac{\delta v}{v} \right)_{sc} - \left( \frac{\delta v}{v} \right)_n \sim - \frac{\Delta_{sc}}{T}.$$

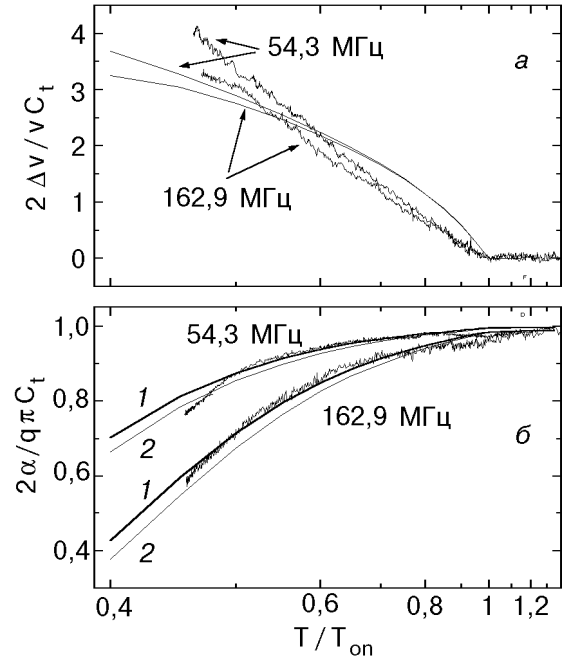


Рис. 2. Разность относительных изменений скоростей поперечного звука в сверхпроводящем и нормальном состояниях в зависимости от приведенной температуры. Гладкие линии — результат расчета ( $\eta = 0,85$ ) (а); поглощение в сверхпроводящей фазе:  $\eta = 0,89$  (1),  $\eta = 0,81$  (2) (б). Температура приведена в обратной шкале.

На самом деле сильное неравенство между  $T$  и  $\Delta_{sc}$  в наших экспериментах не выполняется. Тем не менее можно было ожидать спрямления экспериментальных зависимостей  $\Delta v/v(T^{-1})$  в некотором интервале  $T < T_c$ , где  $\Delta_{sc}(T) \approx \Delta_{sc}(0)$ .

График такого типа представлен на рис. 2, а. Для удобства сравнения с теоретическими зависимостями на рис. 2 шкала температур представлена в приведенном виде, причем за критическую температуру мы приняли  $T_{\text{он}}$ . Шкала скоростей также нормирована на  $C_t/2$ . Оказалось, что ниже  $T_{\text{он}}$  зависимость  $\Delta v/v(T^{-1})$  во всем изученном температурном интервале близка к линейной, однако ее наклон в два раза превышает БКШ-значение  $\Delta_{sc}(0)$ . Скорее всего, такое поведение  $\Delta v/v(T^{-1})$  является результатом совместного действия нескольких температурнозависимых механизмов. Для сравнения на рис. 2, а приведен полный расчет  $\Delta v/v$  для БКШ-модели ( $\eta = 0,85$ , см. ниже), основанный на уравнениях работы [6]. Согласие расчетных зависимостей с экспериментальными явно неудовлетворительно практически во всем температурном интервале, хотя масштаб изменений в целом воспроизводится правильно. Можно надеяться, что вблизи  $T_c$  согласие удастся

улучшить учет эффектов магнитного рассеяния, устраняющих расходимость производных параметра порядка и энергетической щели в  $T_c$  [8], однако строгой теории взаимодействия звука с ДУС в присутствии магнитных примесей в настоящее время не существует. Предположение о равенстве резонансных вкладов в  $sc$ - и  $n$ - фазах может оказаться неверным вследствие значительного сужения туннельных уровней при уменьшении  $(\tau_{\min}^{-1})_{e\ sc}$  [9], что может деформировать поведение  $\Delta v/v$  при более низких температурах, в том числе и изменить нормировку оси ординат на рис. 2,а.

На рис. 2,б приведены температурные зависимости изменений поглощения звука, также нормированного в соответствии с (2) на  $\pi C_t/2$ . Кроме того, поскольку в изученном температурном интервале реальное значение  $\alpha$  определить не удастся (это можно сделать только по изменению поглощения между нормальным и глубоким сверхпроводящим состояниями), в нормальной фазе нормированное поглощение в соответствии с (2) было принято равным единице. Теоретические зависимости в модели БКШ хорошо воспроизводят разницу в поведении поглощения на двух частотах, хотя крутизна изменения  $\alpha/q$  при  $T/T_{\text{он}} \sim 0,45$  превышает расчетную. Напомним, однако, что крутизна экспериментальных зависимостей на рис. 2,б также определяется выбором нормировочной постоянной  $C_t$ . Оценочное значение  $\eta \approx 0,85$  зависит, конечно, от величины  $\Delta_{sc}$  и при уменьшении последней  $\eta$  также уменьшается. Теоретические зависимости становятся при этом еще более пологими, так что уменьшить оценочное значение  $\eta$  при сохранении нормировочной константы  $C_t$  более чем в два раза не удастся.

Оценим теперь плотность состояний ДУС. Это можно сделать, если известна температура кроссовера  $T_{cr}$ , при которой электронная релаксация сравнивается с фононной:  $(\tau_e)_{\min} = (\tau_{ph})_{\min}$ . Обычно принято считать, что кроссовер происходит при температуре, при которой скорость звука проходит через максимум [3]. В нашем случае  $T_{cr} \approx 3,3$  К. Скорость фононной релаксации определяется в основном поперечными фононами [3]:

$$(\tau_{\min}^{-1})_{ph} = \frac{8\gamma_t^2}{\pi r v_t^5} T^3. \quad (5)$$

Комбинируя (1), (3) и (5), получаем

$$\bar{P} = 8,4(T_{cr}/\eta)^2 C_t \cdot 10^{32} \text{ эрг}^{-1} \cdot \text{см}^{-3} \quad (6)$$

(в этом уравнении  $T_{cr}$  в градусах). Подставляя  $T_{cr} = 3,3$  К,  $\eta = 0,85$ ,  $C_t = 1,42 \cdot 10^{-5}$ , получаем  $\bar{P} = 1,8 \cdot 10^{29} \text{ эрг}^{-1} \cdot \text{см}^{-3}$ . Эта величина на два-три порядка меньше данных, опубликованных в литературе [4].

В (6) специально выделены величины, значение которых нам точно не известно. На самом деле в исследованном образце наблюдается заметный квадратичный по  $T$  вклад в скорость звука (соответствующие результаты предполагается опубликовать позже), сочетание которого с логарифмической зависимостью также может привести к формированию максимума скорости. Поэтому  $T_{cr}$  может оказаться несколько выше. Подгоночное значение  $\eta$  (рис. 2,б) зависит от величины энергетической щели, для которой мы использовали значение БКШ. В том случае, если наше предположение о влиянии магнитного рассеяния окажется верным, энергетическая щель будет занижена [8], что может в несколько раз уменьшить оценку  $\eta^2$ . Точное значение  $C_t$  нам также не известно, оно может быть получено из величины логарифмического спада скорости звука в глубоком сверхпроводящем состоянии. С учетом всех этих замечаний оценочное значение  $\bar{P}$  в исследованном сплаве может оказаться на порядок больше вышеприведенного, что все равно существенно меньше известных значений.

Таким образом, полученные на основе акустических измерений оценки плотности состояний ДУС в аморфном сплаве  $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$  дают величину существенно меньшую, чем в других метглассах. Возможно, это связано с очень малой скоростью охлаждения расплава ( $\sim 10$  К/с). Выявленные особенности сверхпроводящего упорядочения указывают, с одной стороны, на двухфазность исследованного аморфного сплава, а с другой, — на возможность реализации в данном материале бесщелевой сверхпроводимости в узком интервале температур.

Авторы выражают благодарность В. З. Бенгусу, Е. Д. Табачниковой и А. С. Бакаю за полезные обсуждения, Е. А. Масалитину за помощь в подготовке аппаратуры.

1. P. W. Anderson, B. I. Halperin, and C. M. Varma, *Philos. Mag.* **25**, 1 (1972).
2. W. A. Phillips, *J. Low Temp. Phys.* **7**, 351 (1972).
3. S. Hunklinger and A. K. Raychaudhuri, *Progr. Low Temp. Phys.* **9**, 266 (1986).
4. D. A. Parshin, *Phys. Rev.* **B49**, 9400 (1994).

- 
5. A. Pecker and W. L. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 2342 (1993).
6. J. L. Black and P. Fulde, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 453 (1979).
7. A. Gerber, A. Milner, A. Voronel, A. Rubstein, I. Rosenberg, and M.-P. Macht, *Physica* **C275**, 333 (1997).
8. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, *ЖЭТФ* **39**, 1781 (1960).
9. N. Thomas, *Philos. Mag.* **B48**, 297 (1983).

---

Low-temperature acoustic characteristics of  
amorphous alloy  $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$

A. L. Gaiduk, E. V. Bezuglyi,  
V. D. Fil', and W. L. Johnson

The temperature dependencies of high frequency (50–160 MHz) sound velocity  $v$  and attenuation  $\alpha$  are investigated in the bulk amorphous alloy

$Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$  at helium temperatures in normal and superconducting states. The alloy is characterized by a small constant  $C$  determining the intensity of interaction between elastic wave and two-level systems. Their density of states is evaluated. The peculiarities of variation in  $v$  under the superconducting transition suggest a gapless superconductivity within a narrow temperature range near  $T_c$ .