

Микроконтактная спектроскопия релаксационной динамики двухуровневых систем при структурной перестройке металлических стекол Ni–Nb

О.П. Балкашин, И.К. Янсон

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

А. Халбриттер, Г. Михали

*Институт физики университета технологии и экономики
ул. Будафоки, 8, Будапешт, 1111, Венгрия*

Статья поступила в редакцию 27 августа 2002 г.

В диапазоне частот 10^3 – $5 \cdot 10^9$ Гц исследованы микроконтактные спектры (зависимости вторых производных вольт-амперных характеристик от энергии) биметаллических контактов аморфного сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ с серебром. При малых энергиях в микроконтактах из закаленного сплава спектральная особенность, обусловленная рассеянием электронов проводимости на двухуровневых туннельных системах (ДУС), четко наблюдается в СВЧ диапазоне. Это подтверждает полученный нами ранее для гомоконтактов (О.П. Балкашин et al., *Solid State Commun.* **118**, 623 (2001)) вывод о наличии в металлических стеклах быстро релаксирующих ДУС с характерной частотой релаксации $\Gamma > 10^{11}$ Гц. После высокотемпературного отжига аморфного сплава ($T = 800^\circ\text{C}$ в течение 1 ч) и его кристаллизации интенсивность спектральной особенности в области малых напряжений на контакте существенно возросла. Обнаружена резкая частотная дисперсия амплитуды этой особенности вплоть до полного ее исчезновения при измерениях на частотах до $\sim 5 \cdot 10^9$ Гц. Полученные данные свидетельствуют об образовании в отожженных аморфных сплавах Ni–Nb качественно новых медленно релаксирующих ДУС. Оценка характерной частоты релаксации этих ДУС по частотной дисперсии измеряемого сигнала дает значение $\Gamma/2\pi \approx 0,7 \cdot 10^9$ Гц. Обсуждаются возможные причины образования двухуровневых систем в микроконтактах.

У діапазоні частот 10^3 – $5 \cdot 10^9$ Гц досліджено мікроконтактні спектри (залежності других похідних вольт-амперних характеристик від енергії) біметалічних контактів аморфного сплаву $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ зі сріблом. При малих енергіях у мікроконтактах із загартованого сплаву спектральна особливість, обумовлена розсіюванням електронів провідності на дворівневих тунельних системах (ДРС), чітко спостерігається в НВЧ діапазоні. Це підтверджує отриманий нами раніше для гомоконтактів (О.П. Балкашин et al., *Solid State Commun.* **118**, 623 (2001)) висновок про наявність у металевих стеклах швидко релаксуючих ДРС з характерною частотою релаксації $\Gamma > 10^{11}$ Гц. Після високотемпературного відпалу аморфного сплаву ($T = 800^\circ\text{C}$ протягом 1 год.) і його кристалізації інтенсивність спектральної особливості в області малих напруг на контакті істотно зросла. Виявлено різку частотну дисперсію амплітуди цієї особливості аж до повного її зникнення при вимірах на частотах до $\sim 5 \cdot 10^9$ Гц. Отримані дані свідчать про утворення у відпалених аморфних сплавах Ni–Nb якісно нових повільно релаксуючих ДРС. Оцінка характерної частоти релаксації цих ДРС по частотній дисперсії вимірюваного сигналу дає значення $\Gamma/2\pi \approx 0,7 \cdot 10^9$ Гц. Обговорюються можливі причини утворення дворівневих систем у мікроконтактах.

PACS: 72.15.Cz, 72.15.Lh, 73.40.Jn, 74.80.Fp

Введение

Модель двухуровневых туннельных систем (ДУС) – динамических дефектных центров с внутренними степенями свободы, как новый класс низкоэнергетических возбуждений в твердых телах, первоначально была предложена для объяснения линейного хода температурной зависимости теплоемкости аморфных диэлектриков при низких температурах ($T \leq 1$ К) [1]. В дальнейшем было обнаружено [2], что низкотемпературные свойства аморфных металлов и сплавов также хорошо объясняются наличием ДУС, причем важную роль при этом играет взаимодействие этих структурных дефектов с электронами проводимости. Кроме того, как показали исследования по микроконтактной (МК) спектроскопии пластически деформированных чистых металлов [3,4], рассеяние электронов на ДУС служит причиной возникновения низкоэнергетических особенностей на МК спектрах (нулевые аномалии).

Хотя точная микроскопическая структура ДУС неизвестна – это могут быть особые участки линий дислокаций, межкластерные границы или границы зерен, атомы в междоузельном пространстве и т.д., простая модель частицы в двухъямном потенциальном поле хорошо описывает свойства совершенно различных по своей природе разупорядоченных (аморфных) систем. Согласно модели [1], двухуровневую систему можно представить как атом, движущийся в потенциальной яме с двумя минимумами, создаваемыми ближайшим окружением, или как группу атомов, которая может образовывать две или более почти эквивалентные конфигурации в пространстве, незначительно отличающиеся по энергиям. Пусть разность уровней энергии для основных низколежащих состояний в каждой яме различается на Δ (асимметричный двухъямный потенциал) и ямы разделены прямоугольным потенциальным барьером с характерной высотой V и шириной W . При достаточно низких температурах ($T \sim 1-10$ К) термически активированные классические надбарьерные переходы запрещены, однако возможен процесс квантового туннелирования между состояниями в отдельных ямах. Частота таких туннельных переходов определяется параметрами барьера и массой туннелирующей частицы:

$$\omega_t = \omega_0 \exp\left(-W\sqrt{2mV/\hbar^2}\right), \quad (1)$$

где $\hbar\omega_0$ – характеристическая энергия колебаний в индивидуальном минимуме, а m – эффективная масса туннелирующих атомов либо отдельного атома. Расстояние между энергетическими уровнями ДУС (энергия возбуждения), соответствующими двум конфигурациям атомной структуры, равно

$E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2}$, $\Delta_0 = \hbar\omega_t$. Предполагается, что из-за аморфности среды двухуровневые системы однородно распределены по значению параметра Δ и свойства образца определяются средним по всему хаотическому ансамблю ДУС. Это предположение подтверждается измерениями различных термодинамических и кинетических характеристик при $T \sim 1$ К [2,5].

Взаимодействие ДУС с фононами в аморфных диэлектриках учитывается в теории как возмущение параметра асимметрии Δ . В аморфных металлах необходимо также учитывать взаимодействие ДУС с электронами проводимости для объяснения более быстрой (на 4–5 порядков) релаксации в металлах по сравнению с изоляторами [2].

Исходя из результатов многочисленных экспериментов по измерению зависимостей электропроводности от времени и исследований по МК спектроскопии мезоскопических проводников, а также ультразвуковых экспериментов на массивных образцах, двухуровневые системы можно условно классифицировать [6] по скорости переходов между потенциальными минимумами.

1. Медленные ДУС (время релаксации $\tau > 10^{-8}$ с), иногда их называют двухуровневые флуктуаторы, характеризуются высоким барьером и пренебрежимо малой величиной Δ_0 . Переходы между потенциальными ямами осуществляются за счет термической активации или некогерентного квантового туннелирования.
2. Быстрые ДУС (10^{-8} с $> \tau > 10^{-12}$ с) обладают малым барьером и достаточно большими значениями Δ_0 ($10^{-4}-1$ мэВ, исходя из принципа неопределенности), что обуславливает когерентные квантовые переходы между двумя состояниями.
3. Ультрабыстрые ДУС ($\tau < 10^{-12}$ с) имеют настолько большие значения Δ_0 , что E также велико, и физическое поведение такой системы определяется однородно распределенным основным состоянием.

Частота Γ релаксации ДУС пропорциональна квадрату отношения энергии туннелирования к энергии возбуждения $(\Delta_0/E)^2$ (см., например, [7]). Функция распределения ДУС в модели [1,2] задается выражением

$$P(E, u) = \frac{1}{2} \bar{P}(1-u)^{-1/2} / u, \quad u = (\Delta_0/E)^2, \quad (2)$$

поэтому в аморфном состоянии в основном должны преобладать медленные дефектные центры ($E > \Delta_0$) с асимметричным двухъямным потенциальным рельефом. Таким образом, функция распределения ДУС по энергии и частотам релаксации имеет вид [8]:

$$P(E, \Gamma) = P(E) \Gamma^{-1} \left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_{\max}} \right)^{-1/2}, \quad (3)$$

$$\int P(E, \Gamma) dE d\Gamma = 1.$$

К настоящему времени предложено два различных механизма взаимодействия электронов проводимости с ДУС в аморфных металлах. В теории Завадовского и Владара [9,10] (см. также [6]) рассмотрен механизм немагнитного двухканального кондо-рассеяния для быстро релаксирующих ДУС с почти симметричным ($\Delta_0 \gg \Delta$) двухъямным потенциалом. В отличие от формализма традиционной одноканальной теории эффекта Кондо, описывающей рассеяние электронов на статических магнитных примесях, в этой модели ДУС рассматривается как динамический дефект с двумя значениями квазиспина, соответствующими двум состояниям двухуровневой системы. Два канала ассоциируются с двумя значениями реального спина электронов проводимости. Флуктуации электронной плотности изменяют высоту барьера на потенциальном рельефе ДУС и тем самым изменяют вероятность туннельных переходов. С понижением температуры описанный механизм приводит к логарифмическому росту электросопротивления в области низких температур и, следовательно, вызывает появление отрицательной особенности* на МК спектрах при $eV_0 \rightarrow 0$ (V_0 — постоянное напряжение на контакте).

В альтернативной теории Козуба и Кулика [11] учитываются как неупругие, так и упругие процессы рассеяния электронов на асимметричных ($\Delta_0 \ll \Delta$) ДУС в микроконтактах. Неупругие процессы являются причиной возникновения положительной аномалии на МК спектре (т.е. на зависимости $d^2V/dI^2(eV_0)$, обычно регистрируемой экспериментально), тогда как вклад от упругого рассеяния может иметь разные знаки в зависимости от знака разности ($\sigma^+ - \sigma^-$) сечений упругого рассеяния электронов на ДУС, находящихся в двух пространственных конфигурациях. Вклад упругих процессов в ток через микроконтакт при $T = 0$ определяется выражением

$$\Delta I = \frac{V_0}{2R_0} \frac{1}{S_c} \sum_j \mathbf{M}(\mathbf{r}_j) [\sigma_j^+ (1 - N_j) + \sigma_j^- N_j] =$$

$$= \frac{V_0}{2R_0} \sum_j \mathbf{M}(\mathbf{r}_j) \frac{\sigma_j^+ - \sigma_j^-}{2S_c} \times \left[\Theta(E_j - eV_0) + \frac{E}{E + q(eV_0 - E)} \Theta(eV_0 - E_j) \right], \quad (4)$$

$$q = \frac{1}{2} [1 - (2\phi(\mathbf{r}_j)/V)^2],$$

где R_0 — сопротивление микроконтакта в отсутствие ДУС; S_c — площадь поперечного сечения контакта; $\mathbf{M}(\mathbf{r}_j)$ — геометрический фактор, зависящий от положения j -й ДУС; N_j — числа заполнения нижних энергетических уровней ДУС, которые зависят от приложенного к контакту напряжения из-за неупругого взаимодействия ДУС с электронами проводимости**; Θ — ступенчатая функция Хевисайда; $\phi(\mathbf{r}_j)$ — электрический потенциал в месте расположения индивидуальной ДУС. Зависимость чисел заполнения N_j от энергии электронов позволяет реализовать упругую спектроскопию заселенностей двухуровневых систем, предложенную в работе [11].

Таким образом, оба рассмотренных выше механизма рассеяния электронов на ДУС приводят к появлению низкоэнергетических особенностей на МК спектрах. Однако характерные времена релаксации для соответствующих процессов существенно различаются: $\tau \sim 10^{-12}$ с для немагнитного кондо-рассеяния и $10^{-3} - 10^{-8}$ с для спектроскопии заселенностей.

Универсальность поведения при низких температурах широкого класса аморфных твердых тел, обусловленная наличием в них ДУС, вызывает значительный интерес к таким системам и стимулирует привлечение разнообразных экспериментальных методов, в том числе и микроконтактную спектроскопию, для исследования свойств этих специфических структурных образований. В частности, с помощью высокочастотной МК спектроскопии при измерениях в СВЧ диапазоне до частот $\omega \sim 10^{11}$ Гц ($\omega \leq \Gamma$) было установлено, что в металлических стеклах систем Fe-B [12] и Ni-Nb [13,14] различного состава в основном реализуются быстро релаксирующие ДУС с характерными частотами релаксации, превышающими 10^{11} Гц. Аналогичные результаты получены и для микроконтактов на ос-

* Полярность особенности на МК спектре определяется знаком второй производной вольт-амперной характеристики микроконтакта. В данном контексте имеется в виду, что электрон-фононное взаимодействие обуславливает появление положительной особенности в спектре, т.е. $d^2V/dI^2(eV_0) > 0$.

** Взаимодействием ДУС с фононами из-за их малой плотности можно пренебречь при $T < 5$ К и малых напряжениях на контакте $V_0 < 3-5$ мВ.

нове поликристаллических дефектных тонких пленок из чистой меди [15].

Цель настоящей работы — исследование влияния кристаллизации аморфного сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ при высокотемпературном отжиге на частотную дисперсию амплитуды низкоэнергетической особенности на МК спектрах, обусловленную рассеянием электронов на двухуровневых системах. Методом высокочастотной МК спектроскопии в диапазоне частот $10^3\text{--}5\cdot 10^9$ Гц измерены спектры контактов серебра с исходным аморфным сплавом $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ и с тем же сплавом, подвергнутым отжигу при температуре 800°C в течение одного часа. Оказалось, что, в отличие от аморфного состояния для контактов с отожженным сплавом, амплитуда низкоэнергетической особенности при $eV_0 \rightarrow 0$ существенным образом зависит от частоты облучения.

Экспериментальная методика

Исследования выполнены на образцах металлических аморфных сплавов $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$, полученных быстрой закалкой расплава и представляющих собой тонкие (~ 20 мкм) ленты шириной 1–2 мм. Термический отжиг лент производили в инертной атмосфере гелия либо аргона при температуре 800°C в течение одного часа с последующим медленным (5–7 ч) охлаждением до комнатной температуры. По имеющимся литературным данным [16], такой режим термообработки приводит к образованию равновесной кристаллической фазы. Для закаленных образцов металлического стекла микроконтакты создавались между торцом ленты сплава и острым ребром бруска из чистого серебра. После отжига лента становилась чрезвычайно хрупкой, поэтому ее приклеивали серебряной пастой к плоской медной поверхности, и микроконтакты образовывались между поверхностью ленты и серебряной иглой с радиусом закругления в несколько микрон. Поверхность ленты после отжига механически полировали и подвергали химическому травлению.

Массивные электроды микроконтакта монтировали в держателях двух независимых механизмов микроперемещений, что позволяло изменять их относительное расположение в пространстве и варьировать прижимающее усилие. Подобная методика давала возможность создавать контакты различных геометрических размеров на разных участках поверхности электродов.

Микроконтактные исследования выполняли по стандартной методике регистрации амплитуды второй V_2 гармоники низкочастотного (1623 Гц) модулирующего тока в зависимости от приложенного к контакту постоянного напряжения (энергии) [17]. При высокочастотных измерениях контакт облуча-

ли переменным ВЧ полем малой мощности, подводимым к контакту по коаксиальному кабелю. Излучение ВЧ генератора прерывали на звуковой частоте (2433 Гц) и стационарную во времени разность напряжений на микроконтакте, подвергнутом ВЧ облучению и без облучения — сигнал видеодетектирования V_d , после усиления регистрировали фазовым детектором на частоте прерывания. В обоих случаях измеряемые сигналы $V_2(V_0)$ и $V_d(V_0)$ с амплитудой около 1 мкВ пропорциональны значениям второй производной вольт-амперной характеристики микроконтакта $d^2V/dI^2(eV_0)$ [12]. Все эксперименты выполнены при температуре 4,2 К. Детальное описание методики измерений приведено в работах [12–14].

Основные результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены типичные МК спектры, полученные для нескольких биметаллических контактов серебра с неотожженным сплавом $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$. Скачкообразное уменьшение амплитуды сигналов при больших смещениях ($V_0 > 30$ мВ) вызвано выключением НЧ и ВЧ модуляции для точной фиксации нулевого уровня сигнала. Характерная спектральная особенность при малых напряжениях ($V_0 \rightarrow 0$), обусловленная рассеянием электронов на ДУС, четко проявляется в МК спектрах на звуковой частоте ~ 3 кГц (рис. 1,а) и практически имеет ту же форму при измерениях на СВЧ $\sim 5\cdot 10^9$ Гц (рис. 1,б). В общих чертах эта особенность хорошо воспроизводит данные для гомоконтактов металлических аморфных сплавов систем Fe–В и Ni–Nb различных составов, исследованных в работах [12–14] в звуковом и СВЧ ($6\cdot 10^{10}$ Гц) диапазонах. Затем по мере увеличения напряжения амплитуда сигнала плавно изменяется, проходя через максимум для некоторых контактов. Этот пик в спектрах на рис. 1 (кривые 2 и 3) при $eV_0 \sim 12$ мэВ совпадает по положению с максимумом в плотности состояний поперечно поляризованных фононов в серебре [17], тогда как характерные энергии соответствующих фононов для Nb и Ni равны 16 и 25 мэВ [17]. Однако для однозначного подтверждения фононной природы особенности при $eV_0 \sim 12$ мэВ необходимо провести специальные измерения на контактах $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ с другими чистыми металлами. На рис. 1 обращает на себя внимание различное поведение сигнала при больших энергиях ($eV_0 > 20$ мэВ). В спектрах 1 и 3 в этой области наблюдаются положительные значения V_2 и V_d ($d^2V/dI^2 > 0$, т.е. сопротивление контакта растет с увеличением напряжения), типичные для электрон-фононного механизма рассеяния [17]. Причем нелинейность ВАХ обусловлена процессами многофононной генерации,

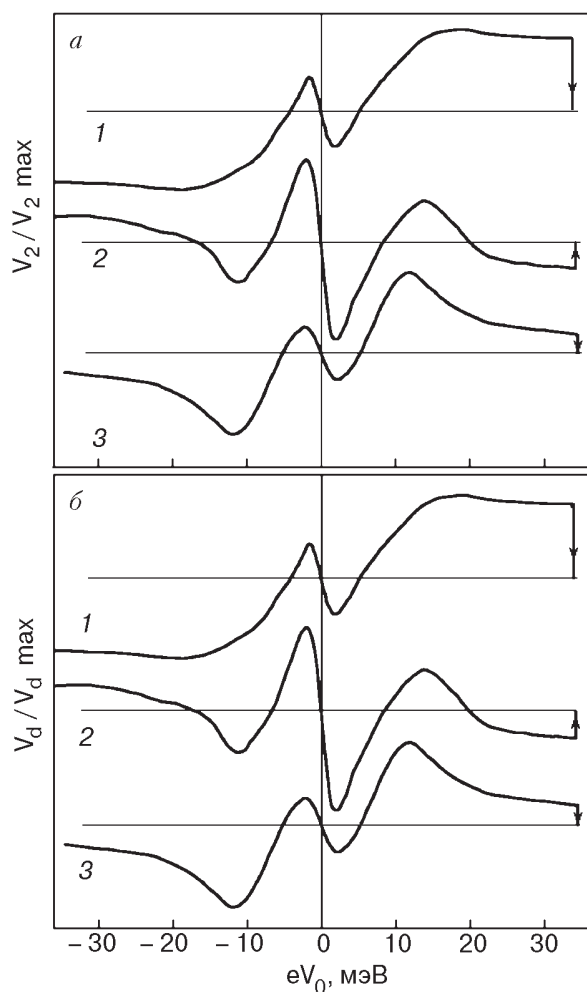


Рис. 1. Микроконтактные спектры гетероконтактов закаленного сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ с Ag, измеренные на звуковой частоте (а) и $5,12 \cdot 10^9$ Гц (б) при различных сопротивлениях контактов R , Ом: 8 (1), 19 (2) и 36 (3). Кривые сдвинуты по вертикальной оси, однако масштаб для всех кривых одинаков.

имеющими место в грязных контактах [18] с высокими частотами релаксации, характерными для релаксации электронной подсистемы в контакте ($\sim 10^{13}$ Гц). Поэтому измерения на существенно меньших частотах ($\omega \sim 10^9$ Гц) никак не сказываются на форме регистрируемых зависимостей. Влияние более медленных процессов реабсорбции неравновесных фононов с частотами $\sim 10^9$ – 10^{10} Гц, происходящими в чистых контактах [19,20], в измеренных спектрах не обнаружено. Отрицательные значения d^2V/dI^2 при $eV_0 > 20$ мэВ, наблюдающиеся на спектре 2, возможно, вызваны разрушением пространственной локализации электронных состояний при электрон-электронных или электрон-фононных столкновениях [21,22]. Некоторые отличия амплитуды и формы спектров при $eV_0 \rightarrow 0$, как и поведение сигнала при больших напряжениях, на рис. 1 для кон-

тактов с различными сопротивлениями, а значит, отличающихся геометрическими размерами, следует приписать разным соотношениям вкладов от нескольких механизмов рассеяния: электрон-ДУС, электрон-фононного и электрон-электронного.

Асимметрия МК спектров при различных полярностях приложенного напряжения, связанная с термоэлектрическими эффектами, свойственными биметаллическим контактам, в наших измерениях практически отсутствовала. Как известно [23,24], степень асимметрии зависит от разности термоэдс контактирующих металлов и приращения температуры микроконтакта с увеличением приложенного к контакту напряжения. Температура изучаемых контактов может значительно возрастать с увеличением напряжения из-за малой длины свободного пробега электронов в аморфном сплаве. Однако термоэдс металлических стекол [5,21], совпадая по знаку, очень мало отличается по величине от термоэдс чистого серебра (0,3–1 мкВ/град) в области низких температур ($T \leq 30$ К) [25], что и обеспечивает пренебрежимо малую асимметрию спектров при различных полярностях напряжения смещения.

При высокотемпературном отжиге сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ существенным образом уменьшается топологический и композиционный беспорядок, присутствующий аморфному состоянию. Кристаллизация сплава при отжиге способствует увеличению степени регулярности атомной решетки и, следовательно, должна приводить к уменьшению концентрации ДУС. Это, в свою очередь, должно уменьшить интенсивность соответствующей особенности на МК спектрах, вплоть до полного ее исчезновения в совершенном кристалле. Как показали эксперименты, после отжига форма МК спектров не претерпела кардинальных изменений. Однако практически при тех же значениях низкочастотной модуляции (0,5–1,0 мВ) амплитуда спектральной особенности при $eV_0 \rightarrow 0$ оказалась в 3–5 раз больше. Микроконтактные спектры для двух контактов отожженного сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ с серебром представлены на рис. 2 и 3. Спектры, полученные для разных частот измерений, нормированы на НЧ кривую в области больших напряжений, где характерная частота электрон-фононного рассеяния существенно превосходит частоту ВЧ облучения. На рисунках хорошо прослеживается уменьшение амплитуды низкоэнергетической линии в спектре с ростом частоты облучения. Соответствующие зависимости для изменения дифференциального сопротивления этих контактов изображены на рис. 4. Возрастание сопротивления контакта с увеличением смещения подтверждает электрон-фононный механизм рассеяния при больших напряжениях. Как следует из

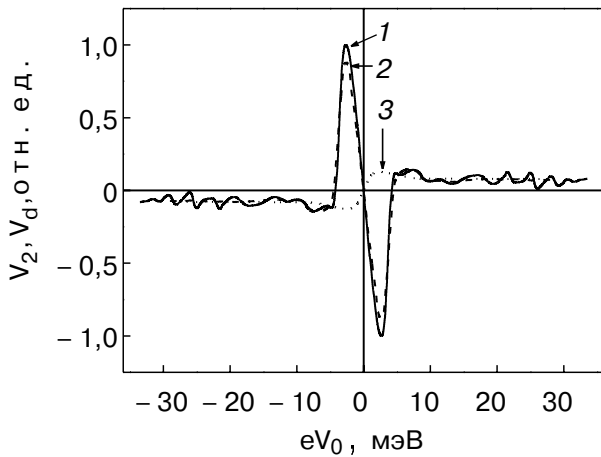


Рис. 2. Микроконтактные спектры гетероконтакта отожженного сплава $Ni_{59}Nb_{41}$ с Ag, измеренные на звуковой (1) и микроволновых частотах ω , Гц: $0,48 \cdot 10^9$ (2) и $4,79 \cdot 10^9$ (3). Сопротивление контакта $R = 7$ Ом.

рис. 2–4, в контактах с отожженным сплавом амплитуда низкоэнергетической особенности (нулевой аномалии) существенным образом зависит от частоты ВЧ облучения. При частотах около $5 \cdot 10^9$ Гц эта особенность в спектре полностью исчезает.

В спектрах на рис. 2 и 3 в районе $eV_0 \sim 12$ мэВ отсутствует фоновая особенность, наблюдавшаяся для закаленных сплавов (см. рис. 1.), не изменяющая свою форму при разных частотах измерений. Микроконтакты с закаленным сплавом создавались касанием острых краев электродов, что, по-видимому, обеспечивало большую долю чистого серебра в объеме контакта. В контактах с отожженным сплавом, которые создавались методом «игла–плоскость», область концентрации тока, вероятно, фор-

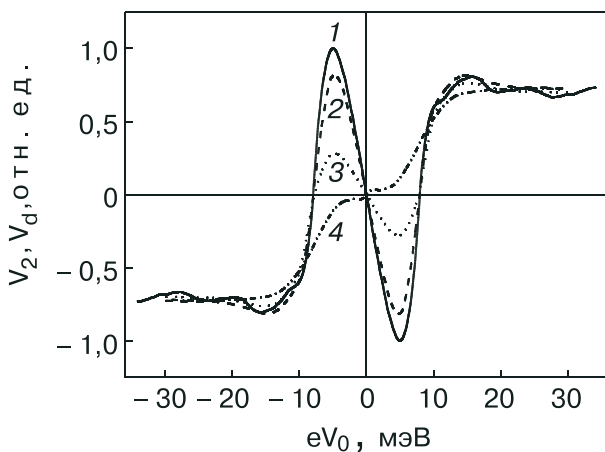


Рис. 3. Эволюция микроконтактных спектров контакта отожженного сплава $Ni_{59}Nb_{41}$ с Ag при измерениях на различных частотах: звуковая частота (1), СВЧ диапазон ω , 10^9 Гц: $0,48$ (2), $2,036$ (3) и $4,72$ (4). Сопротивление контакта $R = 14$ Ом.

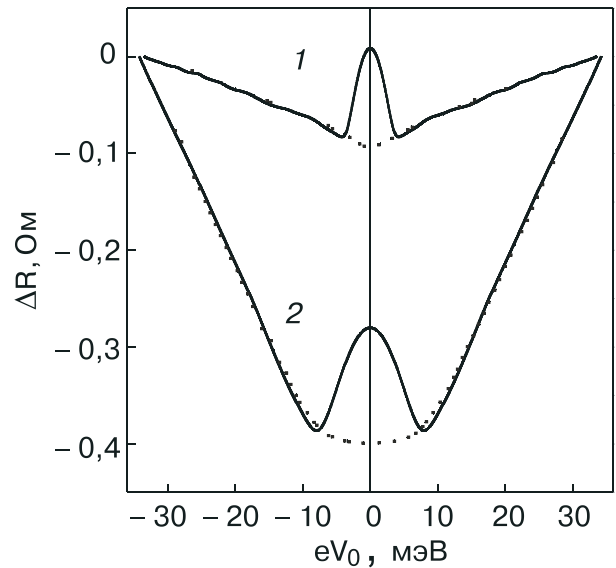


Рис. 4. Изменение дифференциального сопротивления контактов на рис. 2 (кривая 1) и рис. 3 (кривая 2) при измерениях на звуковой частоте (сплошные линии) и СВЧ (пунктир).

мируется из $Ni_{59}Nb_{41}$ с мелкодисперсной структурой, обуславливающей малую длину пробега электронов и, следовательно, ухудшающей спектроскопические свойства контакта. Концентрация компонентов в сплаве $Ni_{59}Nb_{41}$ близка к эвтектическому составу $Ni_{60}Nb_{40}$ [16]. Эвтектические сплавы имеют мелкодисперсную структуру и даже после длительного высокотемпературного отжига обладают повышенным электрическим сопротивлением (см., например, [26]) из-за значительного влияния межфазных границ. Эвтектический сплав в системе Ni–Nb состоит из смеси двух фаз: μ -фазы и металлического соединения Ni_3Nb со сложными ромбоэдрической и орторомбической структурами с несколькими атомами в элементарной ячейке [27]. Координатные числа и расстояния между соседними атомами для аморфного и кристаллического состояний в этих сплавах различаются незначительно [28]. Сложность кристаллической структуры $Ni_{59}Nb_{41}$ затрудняет осуществление МК спектроскопии фононов в этих сплавах.

Относительные изменения интенсивности спектральной линии ΔA при $|eV_0| \approx 5$ мэВ от частоты ω представлены на рис. 5 в полулогарифмическом масштабе. Символами на рисунке изображены экспериментальные значения

$$\Delta A = (A_{\omega} - A_{\min}) / (A_{\max} - A_{\min}),$$

где A_{\max} и A_{\min} — амплитуды пиков, измеренные соответственно на звуковой частоте и $4,72 \cdot 10^9$ Гц. В теории [11] предсказано спадание $\sim \omega^{-1}$ сигнала нелинейного преобразования от частоты для микро-

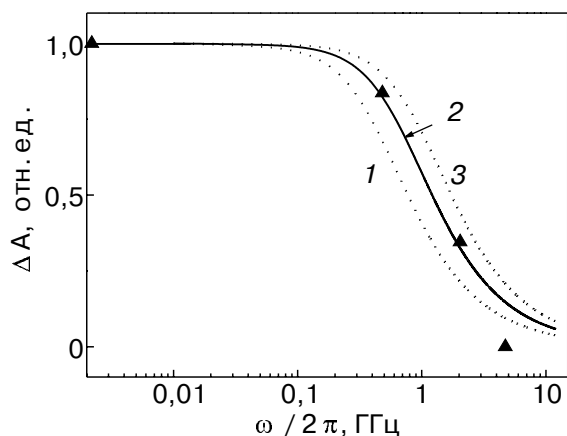


Рис. 5. Частотная дисперсия амплитуды низкоэнергетической спектральной особенности. Символами показаны экспериментальные значения. Линиями изображены частотные зависимости амплитуды сигнала, рассчитанные для $\Gamma/2\pi$, 10^9 Гц: 0,4 (1), 0,7 (2) и 1,0 (3).

контактов с электрон-ДУС рассеянием. Такой же характер поведения сигнала предсказан ранее [19] для электрон-фононного взаимодействия. При этом амплитуда выпрямленного переменного ВЧ тока для электрон-фононного механизма нелинейной электропроводности контактов уменьшается как $[1 + (\omega/\omega_{\text{ph}})^2]^{-1/2}$ [19,20], где ω_{ph} — характерная частота релаксации фононов. Разумно предположить аналогичное поведение амплитуды выпрямленного тока, которая измерялась нами в экспериментах, и для нелинейного механизма, обусловленного взаимодействием электронов с двухуровневыми дефектами. Линии на рис. 5 изображают расчетные зависимости $\Delta A \sim [1 + (\omega/\Gamma)^2]^{-1/2}$ при трех значениях характерной частоты Γ релаксации ДУС. Как следует из рисунка, расчетная зависимость с $\Gamma/2\pi = 0,7 \cdot 10^9$ Гц (рис. 5, кривая 2) хорошо совпадает с экспериментальными точками. Оценка количества ДУС в исследованных контактах дает значения $10^2 - 10^4$ [14], поэтому результаты на рис. 5, как и величина $\Gamma/2\pi = 0,7 \cdot 10^9$ Гц, относятся не к индивидуальной ДУС, а являются некоторой эффективной характеристикой всей совокупности двухуровневых динамических дефектов в контакте, распределенных по частотам релаксации по закону (3).

Представленные выше результаты однозначно указывают на присутствие медленно релаксирующих ДУС в микроконтактах отожженных сплавов. Как уже отмечалось, рассеяние электронов на медленных ДУС в микроконтактах рассмотрено в теории Козуба — Кулика [11]. Авторы этой работы обращают особое внимание на важность упругих процессов рассеяния, в результате которых не происходит изменения состояния двухуровневых систем

в отличие от неупругих процессов, сопровождающихся переходом ДУС в возбужденное состояние. Вклад неупругого рассеяния в МК спектр, согласно результатам работы [7], пропорционален $(\Delta_0/E)^2$, а отношение интенсивностей неупругих и упругих процессов линейно зависит от отношения Δ_0/E [11]. Поэтому если в контакте присутствуют медленные ДУС, то упругий вклад в нелинейную особенность на МК спектре при малых энергиях $eV_0 \sim E$ будет определяющим. Таким образом, упругие процессы рассеяния происходят главным образом на медленных ДУС, имеющих асимметричный потенциал ($\Delta_0 \gg E$), тогда как неупругие процессы обусловлены в основном быстро релаксирующими структурными дефектами с почти симметричным потенциалом ($\Delta_0 \ll E$) [11].

Для сравнения полученных нами экспериментально результатов с теорией [11] мы рассчитали вклады неупругого и упругого рассеяний в МК спектр, т.е. значения вторых производных $d^2V/dI^2(eV_0)$, воспользовавшись соответствующими выражениями из работы [29]. Расчеты проведены для $T = 4,2$ К и одиночного структурного дефекта с $E = 1$ мэВ в центре чистого микроконтакта с баллистическим режимом движения электронов. Было учтено только рассеяние электронов на ДУС, взаимодействие ДУС с фононами не принималось во внимание (см. сноску на стр. 171). Результаты расчета представлены на рис. 6. Поскольку в экспериментальных МК спектрах наблюдали спектральные особенности отрицательного знака при $eV_0 > 0$, а неупругие процессы дают положительный вклад в спектр (сопротивление контакта растет с увеличением смещения из-за роста энергетических потерь электронов на возбуждение ДУС), то в расчетах принят отрицательный знак для разности сечений упругого рассеяния электронов на ДУС в основном и возбужденном состоянии ($(\sigma^+ - \sigma^-) < 0$). Как отмечали авторы работы [11], спектральная линия, вызванная упругим рассеянием, имеет асимметричную относительно $eV_0 = E$ форму (рис. 6, кривая 1) со спадающим крылом в области энергий $eV_0 > E$. Вместе с тем отметим наличие аналогичного крыла, но противоположного знака, и для линии неупругого рассеяния (рис. 6, кривая 2). Подобное поведение было ранее обнаружено в МК спектрах при возбуждении электронным потоком уровней кристаллического поля в YbBe_{13} и PrNi_5 [30,31]. Сравнение расчетных спектров (рис. 6) с данными экспериментальных измерений (рис. 2 и 3), как и экспериментально установленная частотная дисперсия сигнала (рис. 5), доказывают, что высокотемпературный отжиг аморфного сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ привел к образованию медленно релаксирующих ДУС.

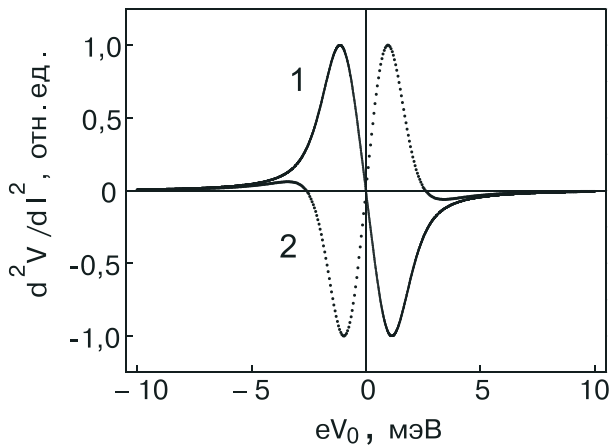


Рис. 6. Вид особенностей на микроконтактных спектрах, рассчитанных по теории [11] для процессов упругого (1) и неупругого (2) рассеяния электронов на одиночной ДУС, находящейся в центре контакта ($T = 4,2$ К, $E = 1$ мэВ).

Остановимся на возможной природе быстрых и медленных двухуровневых структурных дефектов. В работе [32] методами молекулярной динамики рассчитана атомная структура, параметры энергетических барьеров, эффективные массы и вероятности квантового туннелирования для особых участков линий винтовых дислокаций в кристалле меди. Оказалось, что движение перегиба (kink) линии дислокации, когда линия дислокации плавно смещается на постоянную решетки [33], включает в себя перемещение сотен атомов. При этом каждый атом сдвигается на очень малые расстояния $\sim 0,01$ Å. В результате эффективная масса и параметры туннельного барьера оказываются очень незначительными, что и обеспечивает высокую частоту туннельных переходов (см. формулу (1)). При перемещении ступенек (jogs) на линии дислокации, скачкообразный переход линии дислокации в соседнюю плоскость скольжения [33], процесс туннелирования захватывает только несколько атомов. Поэтому для такого структурного дефекта эффективная масса и параметры барьера оказываются значительными и частота переходов существенно уменьшается. Таким образом, ступенька на линии дислокации может ассоциироваться с медленной двухуровневой системой. Следует, однако, заметить, что в многокомпонентном сплаве ядро дислокации имеет более сложную структуру, так как содержит атомы разных сортов. Кроме того, нельзя исключать возможное влияние поверхности образца из-за возможного обогащения поверхностного слоя одним из элементов сплава и сегрегации компонентов на межфазных границах [21].

В аморфных сплавах ситуация кардинально меняется, так как в металлических стеклах нельзя определить линию дислокации как протяженный пространственный дефект. В связи с этим особую роль в образовании быстро релаксирующих ДУС в таких материалах могут играть межкластерные границы локально упорядоченных нанокластеров [34]. Размер отдельного кластера в металлических стеклах Ni-Nb определен в работе [16] из сравнения результатов рентгеновского и электронного дифракционного рассеяния с модельными расчетами для различных атомных структур. По оценке авторов [16], кластер содержит до 150 атомов и имеет эффективный диаметр $\sim 1,5$ нм. В исследованных нами микроконтактах с диаметром $d \sim 50-100$ нм находится около 10^4-10^5 кластеров, которые в своей совокупности и должны определять картину электронного рассеяния.

Рассмотрим МК спектры для микроконтакта с возможным проявлением тепловых эффектов (рис. 7). В отличие от данных на рис. 2, 3, экспериментальные зависимости измеренных сигналов для различных частот представлены на рис. 7 в абсолютных значениях. Амплитуды НЧ и ВЧ токов модуляции для данного контакта были стандартными и близкими к аналогичным величинам для контакта на рис. 2, имевшего такое же сопротивление $R = 7$ Ом. Однако значения сигналов при больших напряжениях ($V_0 > 30$ мВ) для этого контакта при НЧ и ВЧ измерениях отличаются в несколько раз, а не на 20–30%, как обычно наблюдалось. Монотонный рост амплитуды сигнала с увеличением приложенного к контакту напряжения, в отличие от насыщения сигнала

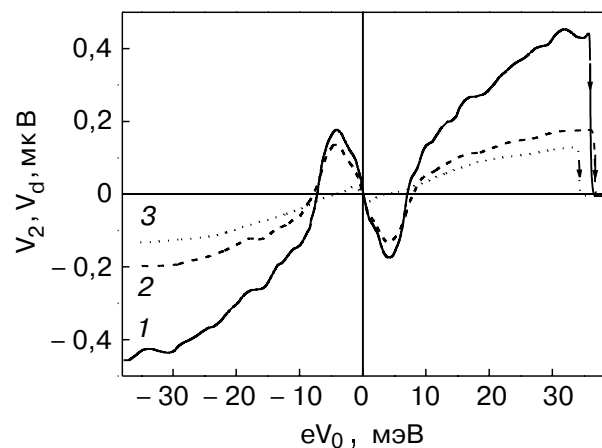


Рис. 7. Микроконтактные спектры контакта отоженно-го сплава $Ni_{59}Nb_{41}$ с Ag с заметным вкладом тепловых эффектов, измеренные на звуковой (1) и микроволновых частотах ω , 10^9 Гц: 0,48 (2) и 5,11 (3). Амплитуда низкочастотной модуляции для кривой 1 равна $V_{10} = 0,93$ мкВ. Сопротивление контакта $R = 7$ Ом.

на рис. 2 и 3, можно приписать разогреву контакта, т.е. росту его температуры с увеличением смещения. При этом сильное ослабление сигнала с повышением частоты измерений логично объяснить значительным уменьшением теплового вклада в сигнал на частотах, превышающих частоту тепловой релаксации $\omega \geq \omega_T \sim 10^8 - 10^9$ Гц [14]. Заметим, что для данного контакта также наблюдается существенное подавление амплитуды нулевой аномалии, подобное представленным на рис. 2 и 3, но в отличие от рис. 2, 3 тепловые эффекты приводят к видоизменению формы наблюдаемой особенности при разных частотах измерений, как было показано в работе [35].

Заключение

В настоящей работе методом высокочастотной МК спектроскопии исследовано влияние высокотемпературного отжига аморфных сплавов $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ на процессы электропроводности контактов $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ -Ag. Приведенные результаты демонстрируют, что в отожженных образцах сплава в диапазоне частот 10^8 Гц $< \omega/2\pi \leq 5 \cdot 10^9$ Гц наблюдается существенное уменьшение интенсивности низкоэнергетической спектральной особенности, обусловленной рассеянием электронов на двухуровневых системах. Характерная частота релаксации ДУС в отожженных образцах оценена как $\Gamma/2\pi \approx 0,7 \cdot 10^9$ Гц, в отличие от $\Gamma/2\pi > 10^{11}$ Гц для закаленных аморфных сплавов $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$.

До сих пор имеющиеся экспериментальные результаты по нулевым аномалиям в МК спектрах поликристаллических металлов [4,6] трактовались в рамках модели Владара—Завадовского [10] для быстро релаксирующих ДУС, либо, как в работе [3], допускали удовлетворительное объяснение на основе обеих моделей [10,11]. Последующий отжиг исследованных образцов в отличие от наших результатов приводил к значительному уменьшению или даже полному исчезновению низкоэнергетической особенности в МК спектрах [3,4]. Небольшой вклад медленно релаксирующих ДУС в нулевую аномалию удалось экспериментально обнаружить лишь при высокочастотных исследованиях микроконтактов аморфных сплавов [12,13].

Таким образом, впервые показано, что кристаллизация аморфного сплава $\text{Ni}_{59}\text{Nb}_{41}$ приводит к образованию качественно новых структурных дефектов. Взаимодействие электронов проводимости с этим новым типом ДУС в микроконтактах хорошо описывается теоретической моделью Козуба—Кулика [11]. Остается, однако, неизвестной микроскопическая атомная структура этих динамических дефектов. Область металлического стекла на фазовой диаграмме системы Ni-Nb простирается на

30–40 ат.%. Поэтому определенную информацию о внутренней природе ДУС могли бы дать дальнейшие исследования методом ВЧ МК спектроскопии при различных температурах на образцах различного состава, подвергнутых различной термообработке, т.е. с различной степенью кристалличности атомной решетки.

1. P.W. Anderson, B.I. Halperin, and C.M. Varma, *Philos. Mag.* **25**, 1 (1972).
2. J.L. Black in: *Glassy metals I*, H.J. Guntherodt and H. Beck (eds.) Springer-Verlag, New-York (1981), p. 167.
3. R.J.P. Keijsers, O.I. Shklyarevskii, and H. van Kempen, *Phys.Rev.* **B51**, 5628 (1995).
4. J. von Delft, D.C. Ralph, R.A. Buhrman, S.K. Upadhyay, R.N. Louie, A.W.W. Ludwig, and V. Ambegaokar, cond - mat/9702048 (1998).
5. R. Harris and J.O. Strom-Olsen in: *Glassy metals II*, H.J. Guntherodt and H. Beck (eds.) Springer-Verlag, New-York (1981), p. 325.
6. D.L. Cox and A. Zawadowski, *Adv. Phys.* **47**, 599 (1998).
7. В.И. Козуб, *ФТТ* **26**, 1955 (1984).
8. А.М. Загоскин, И.О. Кулик, А.Н. Омелянчук, *ФНТ* **13**, 589 (1987).
9. A. Zawadowski, *Phys. Rev. Lett.* **45**, 211 (1980).
10. K. Vldar and A. Zawadowski, *Phys. Rev.* **B28**, 1564 (1983); *ibid.* **28**, 1582 (1983); *ibid.* **28**, 1596 (1983).
11. В.И. Козуб, И.О. Кулик, *ЖЭТФ* **91**, 2243 (1986).
12. О.П. Балкашин, R.J.P. Keijsers, H. van Kempen, Yu.A. Kolesnichenko, and O.I. Shklyarevskii, *Phys. Rev.* **B58**, 1294 (1998).
13. О.П. Балкашин, I.K. Yanson, A. Halbritter, and G. Mihály, *Solid State Commun.* **118**, 623 (2001).
14. О.П. Балкашин, И.К. Янсон, А. Халбриттер, Г. Михали, *ФНТ* **27**, 1386 (2001).
15. О.П. Балкашин, Ю.А. Пилипенко, *ФТТ* **33**, 2584 (1991).
16. R.C. Ruhl, B.C. Giessen, M. Cohen, and N.J. Grant, *Acta Metall.* **15**, 1693 (1967).
17. И.К. Янсон, А.В. Хоткевич, *Атлас микроконтактных спектров и электрон-фононного взаимодействия в металлах*, Наукова думка, Киев (1986).
18. И.О. Кулик, М.В. Москалец, *ФНТ* **15**, 405 (1989).
19. И.О. Кулик, *Письма в ЖЭТФ* **41**, 302 (1985).
20. И.К. Янсон, О.П. Балкашин, Ю.А. Пилипенко, *Письма в ЖЭТФ* **41**, 304 (1985).
21. В.В. Немошкаленко, А.В. Романова, А.Г. Ильинский, А.В. Маслов, Д.Ю. Падерно, Ю.В. Корнюшин, Б.Г. Никитин, М.Е. Осинковский, И.Я. Дехтяр, Э.Г. Мадатова, М.А. Васильев, Т.И. Братусь, В.М. Пан, А.С. Шпигель, М.П. Воронько, *Аморфные металлические сплавы*, Наукова думка, Киев (1987).
22. О.П. Балкашин, И.И. Кулик, *ФНТ* **21**, 45 (1995).
23. Ю.Г. Найдюк, Н.Н. Грибов, О.И. Шкляревский, А.Г.М. Янсен, И.К. Янсон, *ФНТ* **11**, 1053 (1985).
24. О.П. Балкашин, *ФНТ* **24**, 1151 (1998).

25. Ф. Блатт, *Физика электронной проводимости в твердых телах*, Мир, Москва (1971).
26. Б.Г. Лившиц, *Физические свойства металлов и сплавов*, Гос. научно-техн. изд. машиностр. лит., Москва (1959).
27. П.И. Крипякевич, *Структурные типы интерметаллических соединений*, Наука, Москва (1977).
28. G. Kreuch and J. Hafner, *J. Non-Cryst. Solids* **189**, 227 (1995).
29. L. Borda, A. Halbritter, and A. Zawadowski, *cond-mat/0107590* (2001).
30. О.П. Балкашин, Г.Л. Суходуб, И.К. Янсон, в кн: *XXXI Совецание по физике низких температур*, Москва (1998), с. 29.
31. О.П. Balkashin, Т.М. Brill, А.Г.М. Jansen, G.L. Sukhodub, Р. Wyder, and I.K. Yanson, *ФНТ* **27**, 90 (2001).
32. T. Vegge, J.P. Sethna, Siew-Ann Cheong, K.W. Jacobsen, С.Р. Myers, and D.C. Ralph, *Phys.Rev.Lett.* **86**, 1546 (2001).
33. А.Н. Орлов, *Введение в теорию дефектов в кристаллах*, Высшая школа, Москва (1983).
34. А.С. Бакай, *Поликластерные аморфные тела*, Энергоатомиздат, Москва (1987).
35. О.П. Балкашин, И.К. Янсон, В.С. Соловьев, А.Ю. Красногоров, *ЖТФ* **52**, 811 (1982).

Point-contact spectroscopy of relaxation dynamics of two-level systems at structure reconstruction of metal glasses Ni—Nb

O.P. Balkashin, I.K. Yanson, A. Halbritter, and G. Mihaly

The PC spectra (the energy dependences of the second derivatives of current-voltage characteristics) for bimetal contacts of an amorphous alloy of Ni₅₉Nb₄₁ with silver are studied in a frequency band 10³–5·10⁹ Hz. In the contacts from the quenched alloy the spectral feature at small energies caused by conduction electrons scattering in the two-level tunnel systems (TLS) is clearly seen in a microwave range. This confirms our previous conclusion for homocontacts (O.P.Balkashin et al., *Solid State Commun.* **118**, 623 (2001)) about the availability of fast relaxing TLS with characteristic relaxation frequency $\Gamma > 10^{11}$ Hz in metal glasses. After a high temperature annealing of the amorphous alloy ($T = 800^\circ\text{C}$ for 1 hours) and its crystallization the spectral feature intensity in the region of small biases on the contact increased essentially. A sharp frequency dispersion of the feature amplitude to its complete disappearance is detected in the measurements at frequencies up to $\sim 5 \cdot 10^9$ Hz. The data obtained testify to the formation of qualitatively new slowly relaxing TLS in the annealed amorphous alloys Ni—Nb. The estimation of the characteristic relaxation frequency from the frequency dispersion of the signal measured gives $\Gamma/2\pi \approx 0.7 \cdot 10^9$ Hz. Possible reasons for formation of two-level systems in point contacts are considered.