

УДК 548.571; 548.4

© 1991

ПОГЛОЩЕНИЕ ЗВУКА ДВУХУРОВНЕВЫМИ СИСТЕМАМИ В МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОМ НИОБИИ

А. И. Морозов, А. С. Сигов

Рассмотрен вклад двухуровневых систем, образующихся в результате захвата водорода примесями О, N или С, в перенормировку скорости и поглощение звука в монокристаллах ниобия. Найдены температурные зависимости релаксационного и резонансного вкладов в указанные величины. Показано, что при низкой температуре существенную роль играет ранее не учитывавшийся релаксационный вклад в перенормировку скорости звука.

Эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов [1] и поглощению звука [2] в монокристаллах ниобия показывают, что при низких температурах имеет место захват водорода примесями (О, N или С). При этом у водорода существует несколько эквивалентных по энергии положений равновесия. Вследствие туннелирования между этими минимумами возникает двухуровневая система (ДУС) «водород—тяжелая примесь». Захват водорода тяжелой примесью при понижении температуры неизбежен, поскольку в результате взаимодействия подвижного дефекта в металле с любым точечным дефектом у первого возникает большое число связанных состояний, в которые он и попадает с понижением температуры [3].

Согласно данным работы [4], тяжелая (по сравнению с водородом) примесь занимает октаэдрическое междоузлие в ОЦК решетке ниобия, а двум эквивалентным положениям равновесия для атома водорода отвечают два ближайших друг к другу тетраэдрических междоузлия (рис. 1).

Как и в случае стекол, коэффициент поглощения звука ДУС α и перенормировка скорости звука вследствие взаимодействия с ДУС Δv задаются формулами [5]

$$\alpha_{\text{rel}} = \sum \frac{\gamma^2 \omega^2 \tau_{1i}}{4\rho v^3 T (1 + \omega^2 \tau_{1i}^2)} \left(\frac{\xi_i}{E_i} \right)^2 \text{ch}^{-2} \frac{E_i}{2T}, \quad (1)$$

$$\alpha_{\text{res}} = \sum_i \frac{\gamma^2 \varepsilon_0^2 \omega^2 \tau_2^{-1}}{\rho v^3 E_i (E_i^2 + \tau_2^{-2})^2} \text{th} \frac{E_i}{2T}, \quad (2)$$

$$\left(\frac{\Delta v}{v} \right)_{\text{rel}} = - \sum_i \frac{\gamma^2}{8\rho v^3 T (1 + \omega^2 \tau_{1i}^2)} \left(\frac{\xi_i}{E_i} \right)^2 \text{ch}^{-2} \frac{E_i}{2T}, \quad (3)$$

$$\left(\frac{\Delta v}{v} \right)_{\text{res}} = - \sum_i \frac{\gamma^2 \varepsilon_0^2}{4\rho v^2 E_i (E_i^2 + \tau_2^{-2})} \text{th} \frac{E_i}{2T}, \quad (4)$$

где индексы rel и res обозначают релаксационный и резонансный вклады в соответствующие величины, суммирование происходит по всем ДУС, ρ — плотность вещества, v — скорость звука, ω — его частота, T — температура. Асимметрия ДУС ξ_i равна разности энергий водорода в положениях равновесия в отсутствие туннелирования. Она возникает в результате действия на данную ДУС других ДУС и точечных дефектов. При $\xi_i = 0$ расщепление уровней ДУС равно ε_0 и обусловлено туннелированием. Величина

$$E_i = [\xi_i^2 + \varepsilon_0^2]^{1/2}. \quad (5)$$

В стеклах имеет место экспоненциально широкое распределение для величины ε_0 . Однако в монокристаллах в области малых концентраций дефектов можно считать, что всем ДУС соответствует одно и то же значение ε_0 . Продemonстрируем это.

Как показано в работе [3], дальнедействующая часть взаимодействия между точечными дефектами обусловлена косвенным взаимодействием через возникающие вокруг дефектов фриделевские осцилляции электронной плотности и упругим взаимодействием через акустические фононы (первое и второе слагаемое соответственно)

$$W(\mathbf{R}) = [W_{3,1} \cos 2k_F R + W_{\text{уп}}(\mathbf{h})] \Omega / R^3, \quad (6)$$

где k_F — фермиевский импульс электронов, Ω — объем элементарной ячейки, \mathbf{R} — расстояние между дефектами, $\mathbf{n} = \mathbf{R}/R$. Величина $W(\mathbf{n})$ изменяет знак в зависимости от ориентации вектора \mathbf{n} относительно кристаллографических осей. По порядку величины $W_{3,1} \sim N(0) |V(2k_F)|^2$, где $N(0)$ — плотность электронных состояний на поверхности Ферми, а $V(\mathbf{q})$ — Фурье-компонента потенциала взаимодействия электрона с дефектом. В металле $W_{3,1} \sim W_{\text{уп}} \sim 0.01 \div 1$ эВ.

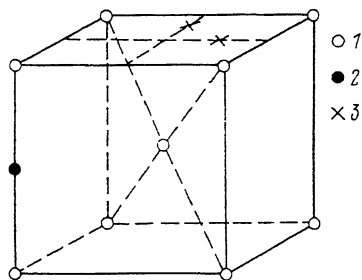


Рис. 1. Двухуровневая система в монокристалле ниобия: 1 — атомы ниобия, 2 — атом тяжелой примеси, 3 — положения равновесия для атома водорода.

Наличие взаимодействия с другими дефектами приводит к изменению величины квазиклассического действия S , определяющего вероятность туннелирования, на величину S'

$$S = S_0 + S'. \quad (7)$$

По порядку величины $S_0 = (M/m)^{1/2}$, где M — масса туннелирующей частицы, а m — масса электрона ($\hbar=1$) [6]. Основной вклад в изменение высоты и формы потенциального барьера между двумя положениями равновесия вносит быстро осциллирующее с расстоянием косвенное взаимодействие через электроны проводимости. Для величины S' имеем: $S' = S_0 W_{3,1} \Omega / UR^3$, где U — высота потенциального барьера для одиночной ДУС, а R — расстояние между ДУС и дефектом. Значение S' порядка $S' = (W_{3,1}/\omega_0) \Omega / R^3$, где ω_0 — локальная частота колебаний водорода в соответствующем междоузлии. В области малых концентраций дефектов $c \ll 1$ характерное значение $R^3 \sim \Omega/c$, а следовательно, $S' \sim c W_{3,1}/\omega_0 \ll \ll 1$. Поэтому можно пренебречь разбросом значений величины ε_0 .

Коэффициент γ определяется как $\gamma = d\xi/du$, где u — деформация, создаваемая звуковой волной. Под действием этой деформации происходит нарушение симметрии в расположении минимумов ДУС относительно тяжелой примеси. В случае, когда деформация происходит вдоль направления $[1 \ 1 \ 0]$, такое нарушение возникает только у 2/3 ДУС, для которых ближайшие к тяжелой примеси атомы ниобия расположены по направлениям $[1 \ 0 \ 0]$ и $[0 \ 1 \ 0]$. Величина γ имеет порядок энергии связи водорода с тяжелой примесью.

Как показано нами в работе [7], величина ξ_1 , обусловленная косвенным взаимодействием ДУС с точечным дефектом через фриделевские осцилляции электронной плотности, по порядку составляет $W_{3,1} \Omega / R^3$.

Механизм упругого взаимодействия ДУС с дефектом аналогичен рассмотренному выше механизму возникновения ξ_1 вследствие деформации, создаваемой звуковой волной. Поскольку деформация, вызванная точечным дефектом, зависит от R как $u_0 \Omega / R^3$, то соответствующее ей значение

$\xi_i = \gamma u_0 \Omega / R^3$ спадает с расстоянием как R^{-3} . Такая зависимость ξ_i (R) приводит к лоренцевскому распределению ξ_i с характерной шириной δ

$$\delta = c(u_0 \gamma + W_{a,1}). \quad (8)$$

Входящая в формулы (1) и (3) величина τ_{1i} представляет собой время релаксации заселенности уровней ДУС, которое в металле определяется взаимодействием ДУС с электронами проводимости

$$\tau_{1i}^{-1} = \nu_{1,2} + \nu_{2,1}, \quad (9)$$

где $\nu_{1,2}$, $\nu_{2,1}$ — частоты прямых и обратных переходов между уровнями (ранее мы ошибочно предположили, что $\tau_{1i}^{-1} = \nu_{1,2}$ [7]). Согласно работе [8],

$$\tau_{1i}^{-1} = g \frac{\varepsilon_0^2}{E_i} \operatorname{cth} \frac{E_i}{2T}, \quad (10)$$

где $g \sim N^2(0) \langle |V(\mathbf{q})|^2 \rangle$, усреднение происходит по поверхности Ферми. Характерные значения g в металлах порядка 0.1. Таким образом, в отличие от аморфных систем в монокристаллах отсутствует экспоненциально широкое распределение времен τ_{1i} , обусловленное экспоненциально широким распределением значений ε_0 . Для характерных значений $\varepsilon_0 \sim 1$ К величина $\omega \tau_{1i} \ll 1$ во всем экспериментально достижимом диапазоне частот.

Время τ_2 представляет собой характерное время сбоя фазы вследствие упругого взаимодействия с электронами проводимости. Оно равно

$$\tau_2^{-1} = 2gT. \quad (11)$$

Усреднение по величине ξ_i показывает, что при $T \gg \varepsilon_0$ основной вклад в релаксационное поглощение звука вносят ДУС с $\xi_i \sim T$, а при $T \ll \varepsilon_0$ — ДУС с $\xi_i \sim (T\varepsilon_0)^{1/2}$. В результате получаем для случаев $\delta \gg \varepsilon_0$ и $\delta \ll \varepsilon_0$ соответственно

$$\alpha_{\text{rel}} = \frac{x\gamma^2\omega^2}{\Omega\rho v^3 g \varepsilon_0^2} \begin{cases} C_1 \delta / T, & T \gg \delta, \\ C_2 T / \delta, & \delta \gg T \gg \varepsilon_0, \\ (2\varepsilon_0 T / \pi)^{1/2} \exp(-\varepsilon_0 / T) / \delta, & \varepsilon_0 \gg T, \end{cases} \quad (12)$$

$$\alpha_{\text{rel}} = \frac{x\gamma^2\omega^2}{\Delta\rho v^3 g \varepsilon_0^2} \begin{cases} C_1 \delta / T, & T \gg \varepsilon_0, \\ \delta (2/\pi\varepsilon_0 T)^{1/2} \exp(-\varepsilon_0 / T), & \varepsilon_0 \gg T \gg \delta^2 / \varepsilon_0, \\ (2\varepsilon_0 T / \pi)^{1/2} \exp(-\varepsilon_0 / T) / \delta, & \delta^2 / \varepsilon_0 \gg T. \end{cases} \quad (13)$$

Здесь x — концентрация ДУС, $C_1 \sim C_2 \sim 1$.

Зависимость величины ε_0 от T вследствие перенормировок, вызванных взаимодействием с электронами, имеет вид [9]

$$\varepsilon_0 = \varepsilon_{00} [\max(T, \varepsilon_0, \xi_i) / E_0]^\beta, \quad (14)$$

где ε_{00} — затравочный матричный элемент туннелирования, E_0 — ширина зоны электронов проводимости, $\beta \sim g$ ($\beta \ll 1$).

Таким образом, в случае $\delta \gg \varepsilon_0$ при $T \sim \delta$ имеет место максимум α_{rel} , а характер температурной зависимости изменяется с $\alpha_{\text{rel}} \propto T^{1-2\beta}$ при $T < \delta$ на $\alpha_{\text{rel}} \propto T^{-1-2\beta}$ при $T > \delta$ (рис. 2, а).

Основной вклад в резонансное поглощение звука также дают ДУС с $\xi_i \leq \delta$. Для $\varepsilon_0 \ll \delta$ и $\varepsilon_0 \gg \delta$ получаем соответственно

$$\alpha_{\text{res}} = \frac{x\gamma^2\omega^2}{\Omega\rho v^3} \begin{cases} \varepsilon_0^2 \tau_2^3 / 2T, & T \gg \tau_2^{-1} \gg \delta, \\ \varepsilon_0^2 \tau_2^2 / 4T\delta, & T, \delta \gg \tau_2^{-1} \gg \varepsilon_0, \\ (4\delta T \varepsilon_0 \tau_2)^{-1}, & T \gg \varepsilon_0 \gg \tau_2^{-1}, \\ 4/3 \pi \delta \varepsilon_0^2 \tau_2, & T \ll \varepsilon_0, \end{cases} \quad (15)$$

$$\alpha_{\text{res}} = \frac{x\gamma^2\omega^2 \varepsilon_0}{\Omega\rho v^3 \tau_2 (\varepsilon_0^2 + \tau_2^{-2})^2} \operatorname{th} \frac{\varepsilon_0}{2T}. \quad (16)$$

В интервале температур $\varepsilon_0 < T < \varepsilon_0/2g$ температурная зависимость α_{res} обусловлена только слабой температурной зависимостью ε_0 . Величина α_{re} достигает максимума при $T \sim \varepsilon_0$, а значение $(\alpha_{res})_{max}$ при $\delta \gg \varepsilon_0$ в g^2 раз меньше, чем величина α_{rel} при $T = \varepsilon_0$. Характерные температурные зависимости α_{rel} и α_{res} изображены на рис. 2. При $\delta \gg \varepsilon_0$ α_{res} дает существенный вклад в поглощение только при $T \ll \varepsilon_0$.

Если $\delta \ll \varepsilon_0$, то α_{res} и α_{rel} достигают максимума при одной и той же температуре, а отношение

$$\frac{(\alpha_{re})_{max}}{(\alpha_{rel})_{max}} = g^2 \delta / \varepsilon_0. \quad (17)$$

Таким образом, в сверхчистых образцах резонансный вклад в поглощение ДУС может стать основным. Однако он тогда будет намного меньше, чем вклад в поглощение свободных электронов. Сравним максимальное значение α_{rel} с электронным вкладом в поглощение α_e [10, 11]

$$\alpha_e = n \varepsilon_F \omega^2 \tau_e / \rho v^3. \quad (18)$$

Здесь n — концентрация электронов проводимости, ε_F — их энергия Ферми, τ_e — время релаксации электронов.

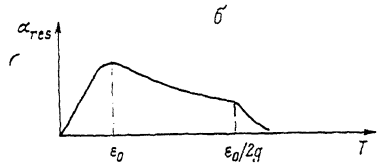
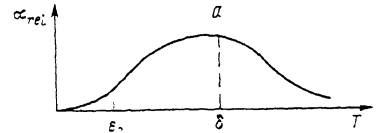


Рис. 2. Температурные зависимости релаксационного (а) и резонансного (б) вкладов ДУС в поглощение звука при $\delta \gg \varepsilon_0$.

В области низких температур, когда релаксация обусловлена рассеянием электронов на точечных дефектах, τ_e имеет порядок величины $(gc\varepsilon_F)^{-1}$. При этом

$$\frac{(\alpha_{rel})_{max}}{\alpha_I} = \frac{cx\gamma^2}{\varepsilon_0^3}. \quad (19)$$

Для $c \sim x \sim 10^{-2} \div 10^{-3}$, $\varepsilon_0 \sim 1$ К и $\gamma \sim 10^2 \div 10^3$ К вклад ДУС в поглощение звука сравним с электронным. Но даже если он мал, то его можно выделить по температурной зависимости на фоне постоянного электронного вклада. Температурная зависимость релаксационного поглощения звука ДУС в сверхпроводнике рассмотрена нами в работе [7]. Поглощение звука при $T \ll T_c$ (T_c — температура сверхпроводящего перехода) обусловлено ДУС, максимум релаксационного поглощения наблюдается при температуре $T_{max} = \Delta / \ln [g\varepsilon_0^3 \Delta / \omega \max(\delta^2, \varepsilon_0^2)]$ и в $g\varepsilon_0 \min(\varepsilon_0, \delta) / \omega T_{max} \gg 1$ раз превосходит соответствующее значение в нормальной фазе металла (Δ — ширина сверхпроводящей щели в спектре электронных возбуждений). Резонансный вклад ДУС в поглощение сверхпроводника мал из-за экспоненциального роста τ_2 в сверхпроводящей фазе.

Перейдем теперь к рассмотрению перенормировки скорости звука. Усредняя по распределению ξ_i , получаем для релаксационного вклада в перенормировку для случаев $\delta \gg \varepsilon_0$ и $\delta \ll \varepsilon_0$ соответственно

$$\left(\frac{\Delta v}{v} \right)_{rel} = - \frac{x\gamma^2}{8\Omega\rho v^2} \begin{cases} T^{-1}, & T \gg \delta, \\ 4/\pi\delta; & \delta \gg T \gg \varepsilon_0, \\ 4(2T/\pi\varepsilon_0)^{1/2} \delta^{-1} \exp(-\varepsilon_0/T), & \varepsilon_0 \gg T, \end{cases} \quad (20)$$

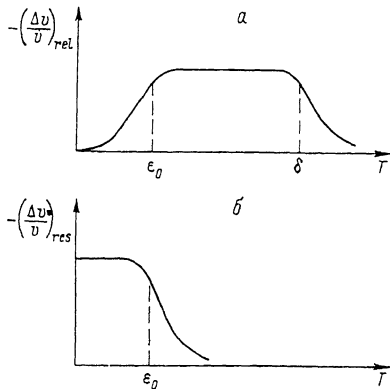
$$\left(\frac{\Delta v}{v} \right)_{rel} = - \frac{x\gamma^2}{8\Omega\rho v^2} \begin{cases} \delta/\varepsilon_0 T, & T \gg \varepsilon_0, \\ 4\delta(2/\pi T \varepsilon_0^3)^{1/2} \exp(-\varepsilon_0/T), & \varepsilon_0 \gg T \gg \delta^2/\varepsilon_0, \\ 4(2T/\pi\varepsilon_0)^{1/2} \delta^{-1} \exp(-\varepsilon_0/T), & \delta^2/\varepsilon_0 \gg T. \end{cases} \quad (21)$$

Резонансный вклад ДУС в перенормировку скорости звука для случаев $\varepsilon_0 \ll \delta$ и $\varepsilon_0 \gg \delta$ равен

$$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_{\text{res}} = -\frac{x\gamma^2}{4\Omega\rho v^2} \begin{cases} \varepsilon_0^2\tau_2^2/2T, & T \gg \tau_2^{-1} \gg \delta, \\ \varepsilon_0^2\tau_2/2T\delta, & T, \delta \gg \tau_2^{-1} \gg \varepsilon_0, \\ \varepsilon_0/2T\delta, & T \gg \varepsilon_0 \gg \tau_2^{-1}, \\ 2/\pi\delta, & \varepsilon_0 \gg T, \end{cases} \quad (22)$$

$$\left(\frac{\Delta v}{v}\right)_{\text{res}} = -\frac{x\gamma^2\varepsilon_0}{4\Omega\rho v^2(\varepsilon_0^2 + \tau_2^{-2})} \text{th} \frac{\varepsilon_0}{2T}. \quad (23)$$

Соответствующие температурные зависимости изображены на рис. 3. Легко заметить, что в случае $\delta \gg \varepsilon_0$ величина $(\Delta v/v)_{\text{res}}$ остается постоянной при $T < \varepsilon_0$ и начинает убывать при дальнейшем росте температуры.



В то же время величина $(\Delta v/v)_{\text{rel}}$ в интервале $\varepsilon_0 \ll T \ll \delta$ не зависит от температуры и равна в точности тому же значению, что и $(\Delta v/v)_{\text{res}}$ при $T < \varepsilon_0$. Это свидетельствует о существенном релаксационном вкладе ДУС в перенормировку скорости звука, который не учитывался в работе [2] при обра-

Рис. 3. Температурные зависимости релаксационного (а) и резонансного (б) вкладов ДУС в перенормировку скорости звука при $\delta \gg \varepsilon_0$.

ботке экспериментальных результатов. Таким образом, наблюдаемый в эксперименте суммарный вклад ДУС в перенормировку скорости звука остается практически неизменным вплоть до $T \sim \delta$.

При $\delta \ll \varepsilon_0$ резонансный вклад в перенормировку скорости звука преобладает. В исследуемой системе он был рассмотрен теоретически при $T=0$ в работе [12].

Проведенное нами исследование температурных зависимостей вклада ДУС в поглощение и перенормировку скорости звука позволяет на основе экспериментальных данных определить величины ε_0 и δ и исследовать их температурные и концентрационные зависимости, что в свою очередь крайне важно для изучения проблемы квантового туннелирования в металлах.

Список литературы

- [1] Neumaier K., Steinbinder D., Wipf H., Blank H., Kearley G. // Z. Phys. B. 1989. V. 76. N 3. P. 359—363.
- [2] Morr W., Müller A., Weiss G., Wipf H., Golding B. // Phys. Rev. Lett. 1989. V. 63. N 19. P. 2084—2087.
- [3] Морозов А. И., Сигов А. С. // ЖЭТФ. 1989. Т. 95. № 1. С. 170—177.
- [4] Magerl A., Rush J. J., Rowe J. M., Richter D., Wipf H. // Phys. Rev. B. 1983. V. 27. N 2. P. 927—936.
- [5] Jäckle J., Piche L., Arnold W., Hunklinger S. // J. Non-Cryst. Solids. 1976. V. 20. N 3. P. 365—391.
- [6] Fukai Y., Sugimoto H. // Adv. Phys. 1985. V. 34. N 2. P. 263—326.
- [7] Морозов А. И., Сигов А. С. // ЖЭТФ. 1990. Т. 98. № 4. С. 1454—1464.
- [8] Black J. L. // Glassy Metals I. Berlin: Springer Verlag, 1981. P. 167—190.
- [9] Kondo J. // Physica B. 1984. V. 123. N 2. P. 175—182.
- [10] Pippard A. B. // Phil. Mag. 1955. V. 46. N 391. P. 1104—1114.
- [11] Абрикосов А. А. Основы теории металлов. М.: Наука, 1987. 520 с.
- [12] Каган Ю., Прокофьев Н. В. // ЖЭТФ. 1990. Т. 97. № 5. С. 1698—1727.