

UDC 533.9.004.14; 621.039.6

<sup>1</sup>M.A. Ramos\*, <sup>1</sup>T. Pérez-Castañeda, <sup>2</sup>R.J. Jiménez-Riobóo,  
<sup>3</sup>C. Rodríguez-Tinoco, <sup>3</sup>J. Rodríguez-Viejo

<sup>1</sup>Laboratorio de Bajas Temperaturas, Departamento de Física de la Materia Condensada,  
 Universidad Autónoma de Madrid, E-28049 Madrid, Spain

<sup>2</sup>Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid, Consejo Superior de Investigaciones Científicas (ICMM-CSIC),  
 E-28049 Madrid, Spain <sup>3</sup>Nanomaterials and Microsystems Group, Physics Department,  
 and MATGAS Research Centre, Universitat Autònoma de Barcelona, E-08193 Bellaterra, Barcelona, Spain  
 \*E-mail: miguel.ramos@uam.es

### Do tunneling states and boson peak persist or disappear in extremely stabilized glasses?

We have investigated how extreme thermal histories in glasses can affect their universal properties at low temperatures. In particular, we have studied two materials which allow us to access highly-stable glassy states, as well as their corresponding conventional glasses, in two different ways: (i) amber [1], the fossilized natural resin, which is a glass which has experienced a hyperaging process for about one hundred million years; and (ii) ultrastable thin-film glasses of indomethacin [2] (an organic molecule commonly used in pharmaceuticals), prepared by physical vapor deposition at temperatures around 85% of its glass-transition temperature.

**Key words:** indomethacin, ultrastable glass, two-level system, the glass transition.

М.А. Рамос, Т. Перес-Кастанеда, Р.Д. Хименез-Риобу,  
 С. Родригез-Тиноко, Д. Родригез-Виейджо

### Сохраняются ли туннельные состояния и бозонные пики в сверхстабилизированных стеклах?

Нами исследовано влияние низких температур на универсальные свойства стекол, а именно, янтарь и сверхстабильные тонкопленочные стекла индометацина.

Мы изучали образцы янтаря, возраст которых 110 миллионов лет, добытые в Эль Соплао (Кантабрия, Испания). Измерения удельной теплоемкости  $C_p$  нетронутых, частично или полностью омоложенных образцов проводились в температурном диапазоне  $0,07 \text{ K} < T < 30 \text{ K}$ , а также при температуре стеклоперехода  $T_g = 150 \text{ C}$ . Путем сравнения двух видов высокостабильных стекол мы пришли к выводу, что исчезновение тунелирующих двухуровневых систем в сверхстабильных тонких пленках индометацина может быть вследствие квази-2D и анизотропного поведения этих стекол, что может, в свою очередь, быть подтверждением идеи фононного взаимодействия между двухуровневыми системами, предложенной Ю и Леджеттом.

**Ключевые слова:** индометацин, сверхстабильные стекла, двухуровневые системы, стеклопереход.

М.А. Рамос, Т. Перес-Кастанеда, Р.Д. Хименез-Риобу,  
 С. Родригез-Тиноко, Д. Родригез-Виейджо

### Аса тұрақтандырылған шынылардағы туннельдік жағдайлар және бозонды шыңы сақталады ма?

Біз төмен температура кезінде шынылардың температурасының өзгерісінің олардың ерекше қасиеттеріне әсерін зерттедік. Атап айтқанда, екі затты а) кәріптасты және ә) индометациннің аса тұрақты жұқа қабықшалы шыныларын зерттедік.

Біз 110 миллион жыл болған, Эль Соплаода (Кантабрия, Испания) табылған кәріптастың үлгісін зерттедік. Бұрын қолданылмаған, бөлшектей немесе толығымен жасартылған үлгілердің меншікті жылусыйымдылығын  $C_p$  өлшеу  $0,07 \text{ K} < T < 30 \text{ K}$  температуралық диапазонда, сонымен қатар  $T_g = 150 \text{ C}$  шыны ауысу температурасында жүргізілді. Жоғары тұрақтандырылған шынының екі үлгісін салыстыру жолымен біз индометациннің аса тұрақтандырылған жұқа қабықшаларында екі деңгейлі

тунельдеуші жүйелердің жоғалуы, өз кезегінде Ю және Леджетт ұсынған екі деңгейлі жүйелердің арасындағы өзара фонндық әсерлесу идеясын растайтын, осы шынылардың квази-2D және анизотропты тәртібінің әсерінен болуы мүмкін деген қорытындыға келдік.

**Түйін сөздер:** индометацин, аса тұрақтандырылған шынылар, екі деңгейлі жүйелер, шыныауысу.

We have investigated how extreme thermal histories in glasses can affect their universal properties at low temperatures. In particular, we have studied two materials which allow us to access highly-stable glassy states, as well as their corresponding conventional glasses, in two different ways: (i) amber [1], the fossilized natural resin, which is a glass which has experienced a hyperaging process for about one hundred million years; and (ii) ultrastable thin-film glasses of indomethacin [2] (an organic molecule commonly used in pharmaceuticals), prepared by physical vapor deposition at temperatures around 85% of its glass-transition temperature.

Specifically, we have studied 110-million-year-old amber samples from El Soplao (Cantabria, Spain). Specific heat  $C_p$  measurements of pristine, partially- and fully-rejuvenated samples were conducted in the temperature range  $0.07\text{K} < T < 30\text{K}$ , as well as around its glass-transition temperature  $T_g \approx 150^\circ\text{C}$ . A modest increase of the boson-peak

height (in  $C_p/T^3$ ) with increasing rejuvenation was observed, that can be related to a corresponding increase of the Debye coefficient. The amount of two-level systems, assessed at the lowest temperatures, was however found to be exactly the same for the pristine *hyperaged* amber as for the subsequently *rejuvenated* samples. On the other hand, we have observed an unexpected *suppression* of the two-level systems in the *ultrastable* glass of indomethacin, whereas conventionally prepared thin films of the same material exhibit the usual linear term in the specific heat below 1 K ascribed to these universal two-level systems in glasses.

By comparing both highly-stable kinds of glass, we conclude that the disappearance of the tunneling two-level systems in ultrastable thin films of indomethacin may be due to the quasi-2D and anisotropic behavior of this glass, what could support the idea of a phonon-mediated interaction between two-level systems, as suggested by Yu and Leggett [3].

#### References

- 1 T. Pérez-Castañeda, R. J. Jiménez-Riobóo and M. A. Ramos, Phys. Rev. Lett. 112, 165901 (2014).
- 2 T. Pérez-Castañeda, C. Rodríguez-Tinoco, J. Rodríguez-Viejo and M. A. Ramos, PNAS 111, 11275 (2014).
- 3 C. C. Yu and A. J. Leggett, Comments Cond. Mat. Phys. 14, 231 (1988).