

ФРАКТАЛЬНЫЕ КОЛЕБАТЕЛЬНЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ В ПОЛИМЕРАХ

М.Г.Землянов, В.К.Малиновский, В.Н.Новиков,
П.П.Паршин, А.П.Соколов

Низкоэнергетические фрактальные колебательные возбуждения в полимерах исследованы методами неупругого рассеяния нейтронов и комбинационного рассеяния света. Определена спектральная размерность фрактонов $\bar{d} = 1,8$ и суперлокализационный показатель $d_\phi = 1,5$.

В последние годы большой интерес вызывают исследования динамических свойств фрактальных систем, в частности, поведение локализованных на фракталах колебательных возбуждений - фрактонов. Плотность состояний фрактонов определяется спектральной размерностью \bar{d}^{-1} :

$$g(E) \propto E^{\bar{d}-1}, \quad (1)$$

а волновая функция зависит от так называемого суперлокализационного показателя $d_\phi \gtrsim 1_{1,2}$:

$$\psi(r) \propto l_\omega^{-D/2} \exp [-(r/l_\omega)^{d_\phi}] \quad (2)$$

здесь D – фрактальная размерность, l_ω – длина локализации фрактона частоты ω . Ряд экспериментальных методик позволил оценить \bar{d} в некоторых фрактальных объектах^{3–6}. Однако суперлокализационный параметр d_ϕ известен гораздо хуже: надежных экспериментальных данных нет, а компьютерное моделирование проведено только для двумерных систем, причем имеющиеся две работы на эту тему дали несогласующиеся между собой значения d_ϕ ^{7,8}.

В настоящей работе приведены результаты исследования фрактальных колебательных возбуждений методом неупругого рассеяния нейтронов и комбинационного рассеяния света (КРС). Первый метод позволяет измерить плотность колебательных состояний и, следовательно, оп-

пределить спектральную размерность фрактонов \bar{d} . Второй метод дает информацию о волновой функции фрактонов (2), т. е. о параметрах \bar{d}, d_ϕ, D . Комбинация данных двух экспериментов позволила определить суперлокализационный параметр d_ϕ .

В качестве объекта исследований был выбран полиметилметакрилат (ПММА), обладающий, как и все разупорядоченные полимеры, фрактальной структурой⁹. Пленочные образцы ПММА изготавливались методом, подробно описанным в¹⁰.

Измерение спектра нейтронного рассеяния выполнялось по времязадержкой методике при углах рассеяния 30, 45, 60, 75 и 90°. Обработка результатов осуществлена по обычной процедуре с учетом всех необходимых поправок¹¹. В некогерентном приближении непосредственно из нейтронного эксперимента без привлечения модельных представлений может быть восстановлен так называемый обобщенный спектр колебаний $\theta(E)$, который связан с $g(E)$ согласно формуле:

$$\theta(E) = \sum_i \sigma_i c_i M_i^{-1} |\mathbf{e}_i(E)|^2 \exp(-2W_i/g(E)). \quad (3)$$

Здесь σ_i , M_i , c_i и \mathbf{e}_i — сечение рассеяния, масса, концентрация и вектор колебания атомов i -го сорта, W_i — фактор Дебая—Уоллера. При $E < 5,5$ мэВ производилось усреднение по переданному импульсу в диапазоне от 1 до 3 Å⁻¹. Деполяризованный спектр КРС измерялся в геометрии 90°-го рассеяния на приборе ДФС-24 при спектральной ширине щелей 1,5 см⁻¹ и длине волны возбуждения $\lambda = 647$ нм. Все измерения проводились при комнатной температуре.

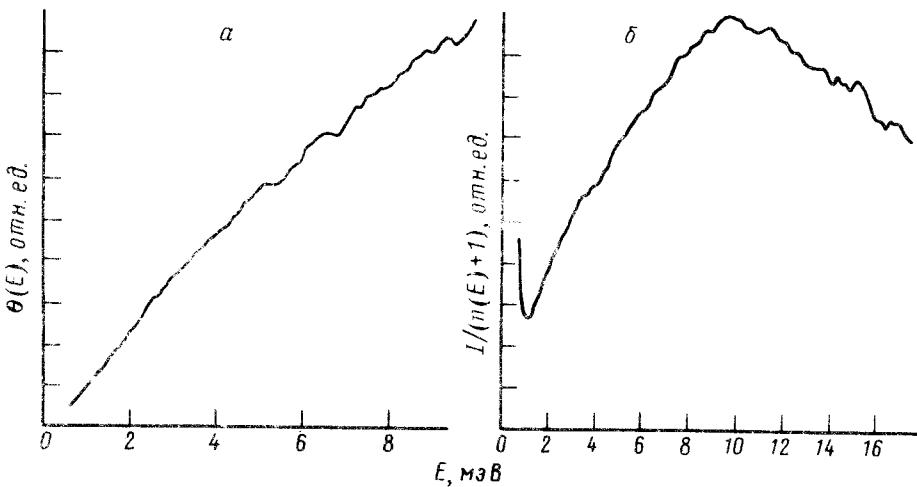


Рис. 1. Низкоэнергетические спектры пленок ПММА при $T = 300$ К. a — нейтронные данные; b — спектр КРС

На рис. 1 приведены низкоэнергетические спектры $\theta(E)$ и нормированной на бозевский фактор интенсивности КРС. Анализ полученных нами спектров в log-log-координатах (рис. 2) показывает наличие степенного участка E^μ в значительном интервале энергий — от 2 до 10 мэВ. В случае $\theta(E)$ наклон составляет $\mu = 0,8 \pm 0,05$, а для КРС $\mu = 0,7 \pm 0,15$. Этот участок спектра соответствует фрактальному режиму колебательных возбуждений. Сравнение μ для $\theta(E)$ с (1) позволяет оценить спектральную размерность фрактонов в исследованном образце: $\bar{d} = 1,8$.

Для интерпретации данных КРС необходима теория неупругого рассеяния света на фраконах. Мы предлагаем континуальную модель, которая коротко изложена ниже. Матричный элемент M_i взаимодействия света с фрактоном, локализованным в точке \mathbf{r}_i , определяется

градиентом волновой функции на фрактале:

$$M_i \propto \int d^D r \nabla \psi(|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|) \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}). \quad (4)$$

В (4) $\mathbf{q} = |\mathbf{k} - \mathbf{k}'|$, где \mathbf{k} и \mathbf{k}' – импульс падающего и рассеянного фотона. В области интегрирования $qr \ll 1$. Из (2) и (4) получаем $M_i \propto l_{\omega}^{(D/2) - d} \phi \exp(i\alpha_i)$, где α_i – случайная фаза. Квадрат матричного элемента, просуммированный по всем фрактонам, зависит от корреляционных свойств фазового множителя:

$$M^2 \propto \sum_{i,j} \exp(i\alpha_i) \exp(-i\alpha_j). \quad (5)$$

Можно выделить две ситуации: 1) некогерентные колебания, $\langle \exp(i(\alpha_i - \alpha_j)) \rangle = \delta_{ij}$. В этом случае $M_{\text{неког}}^2 \propto l_{\omega}^{D - 2d} \phi$. 2) Радиус когерентности колебаний – порядка длины локализации фрактонов l_{ω} . В этом случае сумма в (5) пропорциональна l_{ω}^D и $M_{\text{ког}}^2 \propto l_{\omega}^{2D - 2d} \phi$. Учитывая, что для фрактонов в $l_{\omega} \propto \omega^{-\bar{d}/D} \approx 1$ и воспользовавшись золотым правилом Ферми с $g(E)$ из (1) получаем для интенсивности КРС, нормированной на бозевский фактор: $I/(n+1) \propto E^{\mu}$, где $\mu = \frac{2d}{D} - 2$ в некогерентном случае и $\mu = \frac{2\bar{d}d}{D} - \bar{d} - 2$ в когерентном. Подставляя в эти выражения экспериментальные значения $\mu = 0,7$

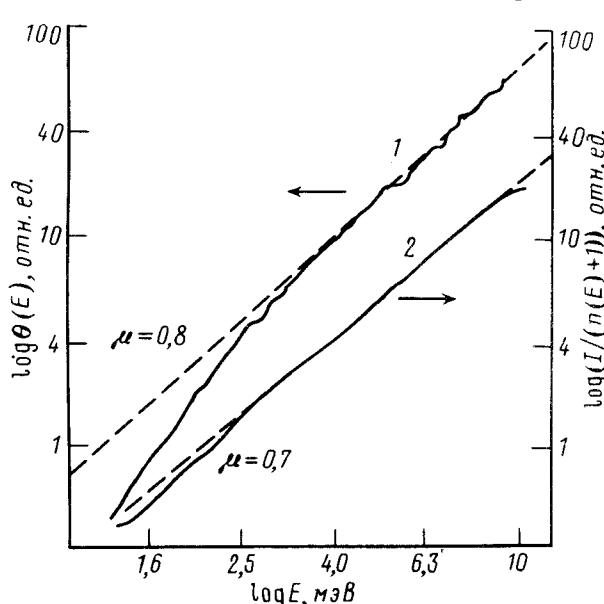


Рис. 2. Плотность состояний (1) и интенсивность КРС (2) в $\log-\log$ -координатах

(рис. 2), $\bar{d} = 1,8$ и учитывая, что для полимеров $D \approx 2^9$ находим суперлокализационный показатель d_{ϕ} : $d_{\phi}^{\text{неког}} = 1,5$ и $d_{\phi}^{\text{ког}} = 2,5$. Выбрать правильное значение d_{ϕ} из полученных двух позволяют результаты работы ¹², где методом КРС был определен параметр d_s , связывающий между собой евклидовское расстояние r и кратчайший путь по фракталу между двумя точками l : $l \propto r^{d_s}$. Значения параметров d_{ϕ} и d_s должны быть близки в случае экспоненциального затухания волновой функции фрактона вдоль фрактала: $\psi \propto \exp(-l/l_0)$ (ср. с (1)). Точная связь между d_s и d_{ϕ} неизвестна, однако справедливо условие $1 \leq d_{\phi} \leq d_s$. Согласно ¹² в силикагеле, где параметры \bar{d} и D не сильно отличаются от случая полимеров, $d_s \approx 1,5$, что хорошо согласуется с нашим значением для $d_{\phi}^{\text{неког}}$. Это свидетельствует о некогерентности фрактонов в разупорядоченном полимере. Отметим, что выражение для $d_{\phi}^{\text{неког}}$, полученное в ¹³ дает $d_{\phi} \approx 0,5$, что указывает на неприменимость этого выражения для полимеров.

Авторы выражают благодарность Багрянскому В.А. за предоставленные образцы ПММА.

Литература

1. Alexander S., Orbach R. J. Phys. (Paris), 1982, **43**, L625.
2. Alexander S. et al. Phys. Rev. B, 1985, **32**, 6447.
3. Courtens E. et al. Europhys. Lett., 1988, **6**, 245.
4. Dianoux AJ. et al. Phys. Rev. Lett., 1987, **58**, 886.
5. Boukenter A. et al. J. Phys. C, 1988, **21**, 541.
6. Malinovsky U.K. et al. Chem. Phys. Lett., 1988, **143**, 111.
7. Yakubo K., Nakayama T. Phys. Rev. B, 1989, **40**, 517.
8. Uries P. et al. Phys. Rev. Lett., 1989, **62**, 2515.
9. Wiltzius P. Phys. Rev. Lett., 1987, **58**, 710.
10. Багрянский В.А., Толкачев В.А. Высокомол. соединения Б, 1987 , **29**, 909.
11. Землянов М.Г. и др. Письма в ЖЭТФ, 1982, **42**, 176.
12. Courtens E., Uacher R. Proc. Roy. Soc. London. A, 1989, **423**, 55.
13. Boukenter A. et al. Phil. Mag. B, 1989, **59**, 125.

Институт автоматики и электрометрии
Сибирского отделения Академии наук СССР

Поступила в редакцию
22 января 1990 г.