Письма в ЖЭТФ, том 52, вып. 7, стр. 1017 - 1020 10 октября 1990 г.

ЧАСТОТНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ПЛОТНОСТИ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ В СТЕКЛАХ - ЛОГНОРМАЛЬНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ

Ю.В.Денисов, А.П.Рылев

Впервые показано, что частотная зависимость плотности колебательных состояний (ПКС) простейших стеклообразных систем в низкоэнергетической области спектра удовлетворяет логарифмически нормальному распределению с одинаковым для всех исследованных стекол значением дисперсии $\sigma = 1/\sqrt{2}$.

Частотная зависимость ПКС в диапазоне 15 $\div$300 см$^{-1}$, определяющая термодинамические, спектральные и некоторые другие характеристики стекол, не имеет до настоящего времени достаточно точного математического описания. Существует ряд моделей для объяснения ПКС. В модели упругого континуума [1] принято считать, что ПКС$-g(\omega)$ в стеклах имеет дебаевскую зависимость от частоты $g(\omega) \propto \omega^2$. Однако в ряде экспериментов, например в [2], было обнаружено отличие $g(\omega)$ от дебаевской. Состояние фрактальной модели [3] и модели мягких потенциалов [4] в настоящее время не дает возможности получить явное выражение $g(\omega)$ во всей указанной области колебательных частот. Прямая информация о ПКС в стеклах может быть получена из экспериментов по низкочастотному комбинационному рассеянию света (НЧ КРС) и рассеянию нейтронов.Из [5] следует, что интенсивность $I(\omega)$ стоксовой части спектра НЧ КРС дается соотношением

$$I(\omega) = C(\omega)g(\omega)(n(\omega) + 1)/\omega$$

где $C(\omega)$ - квадрат матричного элемента взаимодействия возбуждающего фотона с колебательными состояниями, $n(\omega)$ - функция распределения Бозе-Эйнштейна. Разные авторы полагают $C(\omega) \propto \omega^p$, где $p = 1$ или 2. Наряду с этим в модели упругого континуума получено более сложное выражение для $C(\omega)$ в предположении $g(\omega) \propto \omega^2$.

Авторами настоящего сообщения в процессе исследования стекол методом НЧ КРС найдено, что наилучшее приближение экспериментальных результатов достигается при использовании в качестве функции для $g(\omega)$ логнормального распределения (ЛНР) [6]. Применительно к ПКС логнормальное распределение запишем в виде

$$g(\omega) = (\sigma\omega_0\sqrt{2\pi})^{-1}\exp[-\{(\sigma\sqrt{2})^{-1}\ln(\omega/\omega_0)\}^2] \quad (1)$$

Тогда, если принять $C(\omega) \propto \omega^p$,

$$I(\omega) \propto (n(\omega)+1)\exp[-\{(\sigma\sqrt{2})^{-1}\ln(\omega/\omega_m)\}^2], \quad (2)$$

где $\omega_m = \omega_0\exp[p\cdot\sigma^2]$. Выражение (2) показывает, что если ПКС описывается соотношением (1), то $I(\omega)/(n(\omega)+1)$ будет иметь вид логнормального распределения независимо от значения p. В дальнейшем при аппроксимации экспериментальных кривых мы приняли $p=2$.

На рис.1 представлены результаты аппроксимации спектра НЧ КРС стеклообразной B_2O_3 с использованием ЛНР. На этом же рисунке приведены кривые (*3* и *4*), построенные по формулам работы [7] в модели упругого континуума. Сравнение кривых на рис.1 показывает лучшую аппроксимацию спектра НЧ КРС при логнормальном законе распределения для $g(\omega)$. Расхождение экспериментальных и расчетных кривых в области $\omega \le 15$ см$^{-1}$ возникает из-за вклада квазиупругого рассеяния.

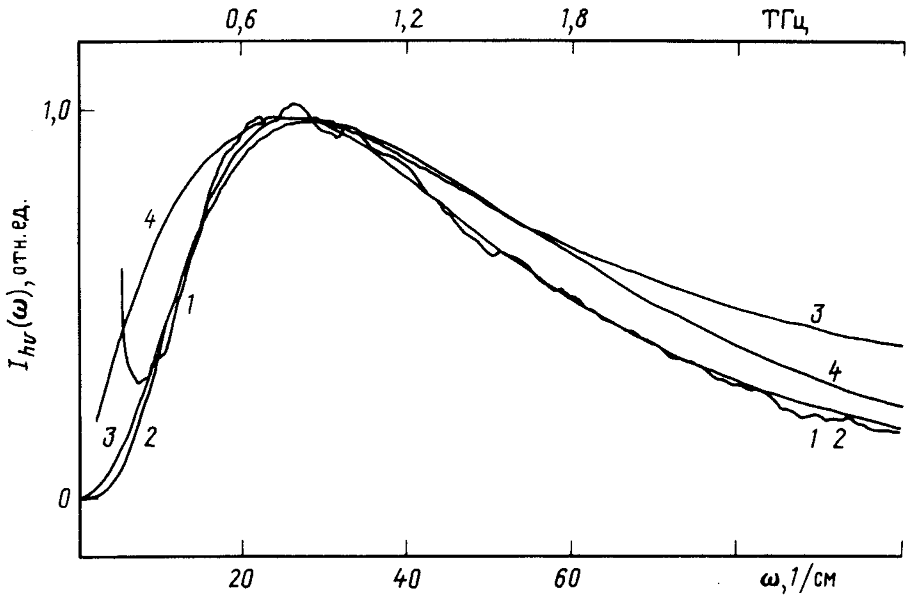

Рис. 1. Низкочастотный деполяризованный колебательный спектр стеклообразной B_2O_3 - *1*, и аппроксимация: *2* – $I(\omega) = (n(\omega)+1)\omega\exp[-\{\ln(\omega/\omega_0)\}^2]$, *3* – $I(\omega) = (n(\omega)+1)\omega^3/(\omega^2+\omega_1^2)^2$, *4* – $I(\omega) = (n(\omega)+1)\omega^2\exp[-(\omega/\omega_2)]$

Представление о применимости ЛНР для описания плотности колебательных состояний различных стеклообразных систем дает рис.2 . Изображенные на них кривые ПКС вычислены по формуле

$$g(\omega) = I_{h\nu}(\omega)/[\omega(n(\omega)+1)],$$

где $I_{h\nu}(\omega)$ -деполяризованный спектр .Наилучшее совпадение экспериментальных и расчетных графиков для всех исследованных нами стекол получается при одном и том же значении $\sigma = 1/\sqrt{2}$. Если учесть отмеченное в [7] подобие спектров НЧ КРС для стеклообразных SiO_2, As_2S_3, $Mg_{70}Zn_{30}$, то можно сделать вывод: логарифмически нормальный закон распределения описывает частотную зависимость ПКС простейших стеклообразных систем синтезированных разными методами. При этом для ширины функции $g(\omega)$ на уровне 0.5 выполняется общее для всех стекол соотношение

$$\Delta\omega_{0,5}/\omega_m = 2\mathrm{sh}(\sqrt{\ln 2})\,.$$

В многокомпонентных системах $g(\omega)$ может иметь более сложную форму, зависящую от состава [8], и контур $g(\omega)$ можно представить в виде суперпозиции логнормальных кривых.

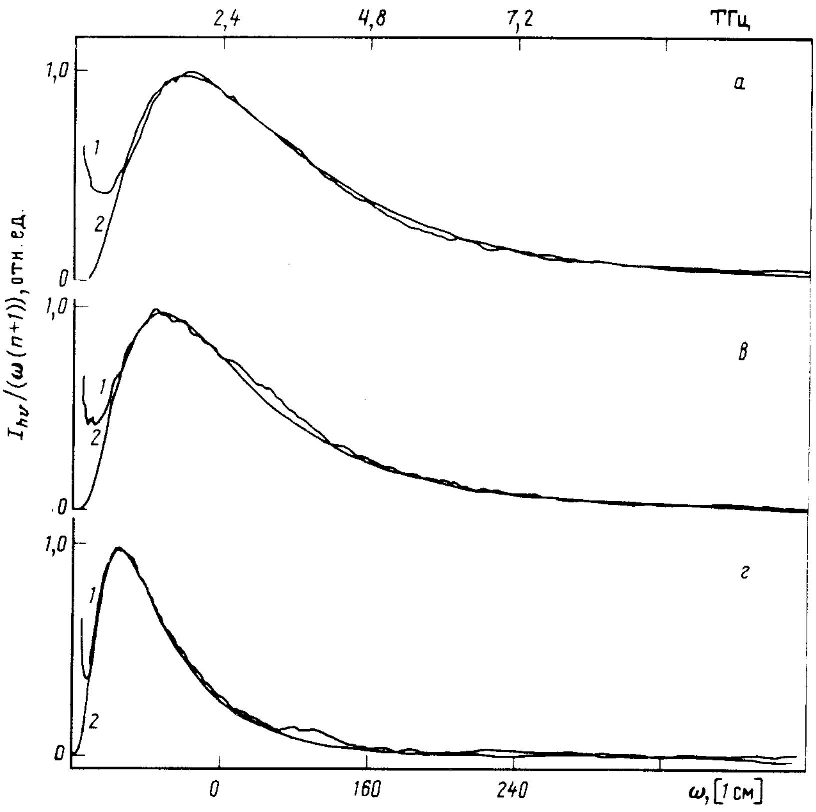

Рис. 2. Экспериментальный контур ПКС - 1 и ЛНР - 2 для стекол: *a* - $(Li_2O)_{0,3} : (B_2O_3)_{0,7}$; *b* - SiO_2; *c* - B_2O_3; ЛНР - $g(\omega) = \exp[-\{\ln(\omega/\omega_0)\}^2]$

Возможная интерпретация полученного результата нам видится следующей. В стеклообразной матрице можно выделить группы атомов с энергией связи внутри группы большей, чем энергия связи наружных атомов с окружением. Существование таких структурных группировок отмечалось в литературе [9]. Каждой группе поставим в соответствие осциллятор с массой, равной сумме масс атомов в группировке, и жесткостью, определяемой энергией связи внешних атомов группировки с окружением. Если предположить, что энергия связи группировки с окружением уменьшается при увеличении характерного размера осциллятора R как $f \propto 1/R^q$, то, в первом приближении, для частоты осциллятора можно принять $\omega \propto 1/R^s$, где s - действительное число. При образовании стекла, например, из расплава в структурной сетке возникает статистический по R набор упомянутых группировок, который и определяет статистическое распределение ПКС. Не трудно показать, что при ЛНР $g(\omega)$ распределение структурных группировок по радиусу будет также ЛНР с дисперсией $\sigma_R = \sigma/s$. Если представить ЛНР в виде

$$(\sigma x_0\sqrt{2\pi})^{-1}\exp[-\{(1/(\sigma x_0\sqrt{2}))\int_{x_0}^{x}\frac{dx}{x}\}^2],$$

где x - любая случайная величина, то можно сказать, что оно описывает случайные процессы с относительными приращениями.

Результаты работы показывают, что плотность колебательных состояний стекол разных составов в области $15 \div 300$ см$^{-1}$ описывается логарифмически нормальным распределением с одним параметром. При формировании структур (обуславливающих ПКС) во время стеклования, заметную роль играет статистика относительных изменений параметров структурной сетки стекла.

Литература

1. *Martin A.J., Brening W.* Phys. Stat. Sol. (b), 1974, 64, 163.
2. *Buchenau U. et al.* Phys. Rev. B, 1986, 57, 757.
3. *Fontana A., et al.* Phys. Rev. Lett., 1987, 58, 503.
4. *Гальперин Ю.М. и др.* ЖЭТФ, 1988, 94, 373.
5. *Shuker R., Cammon R.W.* Phys. Rev. Lett., 1970, 25, 222.
6. *Хастингс Н., Пикок Дж.* Справочник по статистическим распределениям. М.: Статистика, 1980.
7. *Malinovsky V.K., Sokolov A.P.* Sol. St. Comm., 1986, 57, 757.
8. *Денисов Ю.В. и др.* Письма в ЖЭТФ, 1990, 51, N12.
9. *Guha S., Walrafen G.T.* J. Chem. Phis., 1984, 80, 3807.

Московский
физико-технический институт

Поступила в редакцию
4 июля 1990 г.
После переработки
30 августа 1990 г