

АКАДЕМИЯ НАУК СССР

ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ
ФИЗИКИ

Том 94

(ОТДЕЛЬНЫЙ ОТТИСК)

МОСКВА · 1988

ПЛОТНОСТЬ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ В СТЕКЛАХ

Ю. М. Гальперин, В. Г. Карпов, В. Н. Соловьев

Предложена теория колебательных спектров стекол, основанная на учете статистических флуктуаций локальных упругих констант. Установлено существование двух характерных энергий, $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$, разделяющих спектр на области качественно различного поведения плотности состояний $n(\hbar\omega)$. При малых частотах, $\omega \ll \omega_1$, рост плотности состояний определяется аддитивными вкладами фононов и невзаимодействующих между собой квазилокальных колебаний в случайных мягких атомных потенциалах стекла. В промежуточной области, $\omega_1 \lesssim \omega \lesssim \omega_2$ квазилокальные колебания сильно взаимодействуют с фононами, что делает их вклады супераддитивными. При $\omega > \omega_2$ рост $n(\hbar\omega)$ замедляется. В результате $n(\hbar\omega)$ растет сначала быстрее, а затем медленнее, чем дебаевская плотность состояний. Аналитическое выражение $n(\hbar\omega)$ получено в формализме T -матрицы в области $\omega < \omega_2$, включающей область сильного рассеяния. Произведен численный расчет $n(\hbar\omega)$ в приближении когерентного потенциала. Теория предсказывает качественно универсальное поведение $n(\hbar\omega)$ в различных стеклах.

1. Введение

Эксперименты по измерению теплоемкости [1, 2], рассеяния нейтронов [3–5], комбинационного рассеяния света [6] свидетельствуют, что плотность колебательных состояний стекол $n(\hbar\omega)$ ведет себя более или менее универсально, мало меняясь от одного материала к другому. При этом она, однако, существенно отличается от плотности состояний кристаллов. В области самых низких энергий $\hbar\omega \lesssim 1$ К поведение $n(\hbar\omega) \approx \text{const}$ соответствует известной модели двухуровневых систем (ДУС) в двухъямных атомных потенциалах [7, 8]. Однако при более высоких энергиях, $\hbar\omega \gtrsim 10$ К, поведение $n(\hbar\omega)$ не описывается моделью ДУС. В этой области экспериментальные данные [3–5] демонстрируют сложную зависимость $n(\hbar\omega)$, которая сначала возрастает более резко, чем дебаевская плотность состояний $g(\hbar\omega) \propto \omega^2$, а затем становится более пологой, с тенденцией к дальнейшему спаду. Такое поведение изображено на рис. 1, а.

В недавних работах [9, 10] описанное поведение $n(\hbar\omega)$ объяснялось на основе постулата о фрактальной структуре стекол. Предполагалось, что возбуждения с длинами волн $\lambda < L$, называемые фрактонами, принадлежат выделенной фрактальной структуре с радиусом корреляции L и малой эффективной фрактонной размерностью $d \approx 1$. Плотность состояний фрактонов $n(\hbar\omega) \propto \omega^{d-1}$ при $\omega > s/L$ (s — скорость звука) сопоставлялась с пологим участком зависимости при высоких энергиях. В этом подходе оставался необъясненным вид плотности состояний $n(\hbar\omega) \approx \text{const}$ при малых энергиях. Кроме того, с нашей точки зрения, постулат о наличии в стеклах фрактальной структуры, ограничивающей распространение коротковолновых возбуждений, не имеет физических оснований.

В настоящей работе предложено иное объяснение зависимости $n(\hbar\omega)$ в широкой области энергий: от самых низких ($\hbar\omega \ll 1$ К) до энергий, сравнимых с дебаевской, $\hbar\omega \lesssim \hbar\omega_D$. Оно основано на учете флуктуаций локальных упругих констант в неупорядоченной атомной системе стекла и сводится к следующим утверждениям. В мягких атомных потенциалах, возникающих благодаря флуктуациям, реализуются квазилокальные колебательные состояния со случайными параметрами. При малых энергиях

E1 (DL) 083

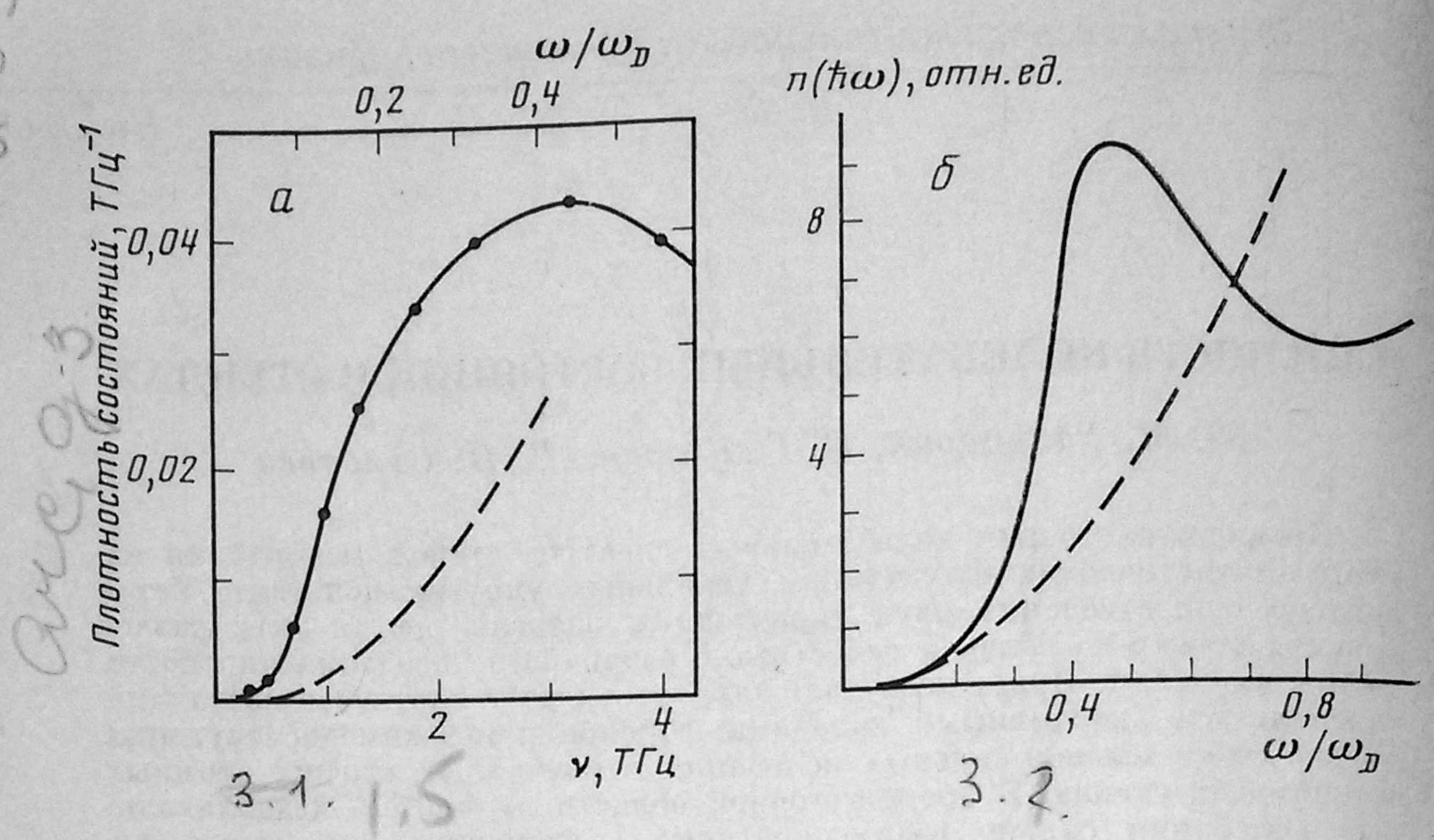


Рис. 1. а) Частотная зависимость плотности состояний в стеклообразном SiO_2 из работы [3]. Штрихом показана дебаевская плотность состояний. На верхней шкале для последующего сравнения мы отложили относительные значения энергии ω/ω_D , где $\hbar\omega_D$ — дебаевская энергия; б) энергетическая зависимость плотности состояний, рассчитанная в приближении когерентного потенциала. Штрихом показана дебаевская плотность состояний

они представляют ДУС с плотностью $n(\hbar\omega) \approx \text{const}$. Состояния с большими энергиями близки по типу к обычным колебаниям дефектов смягчения в кристаллах. Им отвечает быстро растущая с энергией плотность $n(\hbar\omega)$. При достаточно высоких энергиях состояний оказывается так много, что они сильно взаимодействуют и обобществляются. Такое изменение характера состояний приводит к выполаживанию зависимости $n(\hbar\omega)$, которое мы сопоставляем с верхней частью кривой рис. 1.

По постановке задачи наш подход в некоторой степени близок к рассмотрению Монгмери [11], который показал, что флуктуации упругих констант увеличивают плотность низкочастотных колебаний. Однако рассмотрение [11] было выполнено при двух сильных ограничениях. Во-первых, предполагалось, что флуктуации не приводят к появлению квазилокальных колебаний. Во-вторых, рассмотрение [11] ограничено гармоническим приближением. Эти ограничения не выполняются в наиболее интересной области малых частот, отвечающих сильному локальному смягчению упругих констант.

Предложенный нами подход свободен от этих ограничений. Он учитывает как наличие квазилокальных колебаний, так и эффекты ангармонизма в стекле. Наш подход позволяет при необходимости учесть также изотопический беспорядок. Его результаты качественно не зависят от типа беспорядка, тем самым объясняется универсальное поведение плотности состояний в стеклах.

Дальнейшее изложение организовано следующим образом. Сначала мы рассмотрим общую задачу о плотности колебательных состояний атомной системы с некоррелированными случайными локальными возмущениями. Полученные при этом результаты выражают $n(\hbar\omega)$ через параметры и заданную плотность $n_0(\hbar\omega)$ изолированных (не взаимодействующих между собой) случайных квазилокальных состояний в идеальной решетке. Затем будут конкретизированы плотность $n_0(\hbar\omega)$ и параметры изолированных колебаний для стекла. Сделанные таким образом заключения об энергетической зависимости плотности состояний $n(\hbar\omega)$ мы подкрепим численным расчетом в приближении когерентного потенциала.

2. Колебательная плотность состояний в случайной атомной системе

Постановка задачи этого раздела состоит в следующем. Предположим, что в упорядоченной атомной системе задан единственный дефект, характеризуемый узельным возмущением U , приводящий к появлению квазилокального состояния (на фоне сплошного спектра). Это состояние характеризуется энергией $\hbar\omega$ и шириной Γ , которые зависят от возмущения U и плотности $g(\hbar\omega)$ сплошного спектра упорядоченной системы. В рассматриваемой задаче случайные нескоррелированные возмущения имеются на каждом узле и характеризуются вероятностным распределением $\rho(U)$. Если бы узельные квазилокальные состояния не взаимодействовали между собой, то задача определения соответствующей затравочной плотности состояний $n_0(\hbar\omega)$ при заданном виде U , $\rho(U)$, $g(\hbar\omega)$ решалась бы тривиально. Основная трудность состоит в определении плотности $n(\hbar\omega)$ при учете взаимодействия между состояниями отдельных узлов.

Хотя сформулированная задача близка по постановке к известным задачам о плотности электронных состояний неупорядоченных систем (см., например, [12]), она имеет свою специфику: рассматриваемые здесь узельные возмущения являются не истинными потенциалами, а псевдопотенциалами, т. е. сами зависят от энергии, $U=U(\hbar\omega)$. Этот факт хорошо известен в теории колебаний дефектов в кристаллах. Например, для изотопического дефекта [13, 14]

$$U = \varepsilon \Delta M, \quad \varepsilon = (\hbar\omega)^2. \quad (1)$$

Для дефекта силовой постоянной κ также можно ввести эффективное локальное возмущение U , которое входит в уравнение для спектра $1 - UG^0$, где G^0 — функция Грина кристалла. В этом можно убедиться, рассмотрев конкретные модели дефектов силовой постоянной [13, 14]. Для значительных искажений силовой постоянной можно написать явное выражение [14]

$$U = \varepsilon \varepsilon_\kappa / (\varepsilon - \varepsilon_\kappa), \quad \varepsilon_\kappa = \hbar^2 \kappa / M, \quad (2)$$

где M — масса атомов решетки. Именно псевдопотенциальный характер узельных возмущений (в частности, зависимость $U \propto \varepsilon$ при $\varepsilon \rightarrow 0$) обеспечивает существование границы спектра при $\varepsilon = 0$ и его звуковой характер в пределе больших длин волн для неупорядоченной атомной системы.

Излагаемая ниже теория не использует явного вида зависимостей $U(\varepsilon)$ типа (1) или (2). Однако существование таких зависимостей неявно проявляется в энергетических зависимостях плотности n_0 затравочных состояний и их ширины Γ , через которые выражается искомая плотность состояний (см. ниже (22)).

Начнем с качественного анализа плотности состояний. Мы полагаем, что затравочная функция распределения $n_0(\hbar\omega)$ быстро убывает с уменьшением ω при $\omega \rightarrow 0$ (подробное обсуждение вида $n_0(\hbar\omega)$ дано в разд. 3). В пределе $\omega \rightarrow 0$ затравочная плотность n_0 оказывается очень малой. Соответственно мало и рассеяние фононов на этих состояниях. Поэтому следует ожидать, что при $\omega \rightarrow 0$ плотность состояний определяется аддитивными вкладами квазилокальных колебаний и фононов:

$$n(\hbar\omega) = n_0(\hbar\omega) + g(\hbar\omega), \quad (3)$$

С ростом ω значительно усиливается рассеяние фононов на резонансных квазилокальных колебаниях благодаря росту их плотности $n_0(\hbar\omega)$ и ширины $\Gamma(\hbar\omega)$. Приближение (3) полностью разрушается, когда соответствующая длина пробега $l \sim (n_0 \Gamma \lambda^2)^{-1}$ сравнивается с длиной волны λ , т. е.

$$\xi_1 = n_0 \Gamma \lambda^3 \sim 1. \quad (4)$$

Условие (4) определяет характерную энергию $\hbar\omega_1$, которая меньше дебаевской энергии $\hbar\omega_D$.

Заметим, что по смыслу условия (4) его можно представить в виде $\text{Im } \Sigma \sim \hbar\omega$, где Σ — массовый оператор, мнимая часть которого $\text{Im } \Sigma \sim n_0\Gamma/g$ описывает время жизни состояния, обусловленное рассеянием. Величина $\text{Im } \Sigma$ растет с ростом $\hbar\omega$. Такое зависящее от энергии уширение уровней очевидным образом приводит к «перекачке» части состояний из высоко-частотной части спектра в низкочастотную. Последнее означает, что при $\omega \geq \omega_1$ (т. е. при $\text{Im } \Sigma \geq \hbar\omega_1$) плотность состояний должна расти быстрее, чем по закону (3).

Приведенные аргументы и вывод о суперрадитивности плотностей квазилокальных колебаний и фононов перестают быть справедливыми в области достаточно больших энергий, при которых величина $\text{Im } \Sigma$ сравнивается с характерной шириной спектра $\hbar\omega_D$, т. е.

$$\xi_2 = n_0\Gamma/g\hbar\omega_D \sim 1. \quad (5)$$

Для предполагаемых резких зависимостей $n_0(\hbar\omega)$ и $\Gamma(\hbar\omega)$ характерная энергия $\hbar\omega_2$, определяемая условием (5), оказывается меньше $\hbar\omega_D$. Отсюда следует, что предсказанный выше быстрый рост результирующей плотности состояний $n(\hbar\omega)$ имеет место лишь при $\omega \lesssim \omega_2$, тогда как в области $\omega_2 < \omega < \omega_D$ зависимость $n(\hbar\omega)$ должна быть качественно иной. С учетом нормировки числа состояний

$$\int_0^{\infty} n(\hbar\omega) d\omega = \int_0^{\omega_D} g(\hbar\omega) d\omega \quad (6)$$

можно заключить, что при $\omega > \omega_2$ зависимость $n(\hbar\omega)$ должна быть в среднем по крайней мере слабее, чем дебаевская зависимость $g \sim \omega^2$. В итоге мы приходим к энергетической зависимости $n(\hbar\omega)$ типа изображенной на рис. 1, а.

Отметим здесь еще одну интерпретацию условия (5). В области сильного рассеяния $\text{Im } \Sigma > \hbar\omega$ роль длины волны возбуждения играет величина $\lambda \sim a\hbar\omega_D/\text{Im } \Sigma = a/\xi_2$, где a — постоянная решетки (вместо $\lambda \sim a\omega_D/\omega$ для фононов). Поэтому условие $\xi_2 \ll 1$ соответствует длинноволновому приближению $\lambda \gg a$, а условие (5) — нарушению этого приближения.

Перейдем к количественному рассмотрению плотности состояний. Пусть идеальной решетке соответствует функция Грина $G_{\alpha\beta}^0$, где α, β — индексы узлов. Стандартное выражение

$$G_{\alpha\beta} = G_{\alpha\beta}^0 + G_{\alpha\gamma}^0 T_{\gamma\delta} G_{\delta\beta}^0 \quad (7)$$

связывает функцию Грина $G_{\alpha\beta}$ рассматриваемой системы с $G_{\alpha\beta}^0$ посредством матрицы рассеяния $T_{\alpha\beta}$, удовлетворяющей уравнению

$$T_{\alpha\beta} = U_\alpha \delta_{\alpha\beta} + U_\alpha G_{\alpha\gamma}^0 T_{\gamma\beta}, \quad (8)$$

где U_α — узельное возмущение. Вводя t -матрицу отдельного дефекта

$$t_\alpha = U_\alpha / (1 - U_\alpha G_{\alpha\alpha}^0), \quad (9)$$

представим уравнение (8) в виде

$$\tilde{T}_{\alpha\beta} = \delta_{\alpha\beta} + G_{\alpha\gamma}^0 t_\gamma \tilde{T}_{\gamma\beta} (1 - \delta_{\alpha\gamma}), \quad (10)$$

где матрица $\tilde{T}_{\alpha\beta}$ связана с $T_{\alpha\beta}$ соотношением $T_{\alpha\beta} = t_\alpha \tilde{T}_{\alpha\beta}$. Уравнение (10) является точным, причем второе слагаемое в его правой части описывает взаимодействие между отдельными квазилокальными колебаниями, параметры которых определяются полюсами случайных амплитуд t_α .

Если уравнение (10) решено и тем самым определена функция Грина $G_{\alpha\beta}$ (7), плотность состояний можно найти, используя соотношение (см.

[14])

$$n(\varepsilon) = \frac{1}{\pi} \lim_{\gamma \rightarrow +0} \operatorname{Im} \sum_{\alpha} \left[\left(1 - \frac{dU_{\alpha}}{d\varepsilon} \right) G_{\alpha\alpha}(\varepsilon - i\gamma) \right]. \quad (11)$$

Здесь и далее используется обычное в теории колебаний представление

$$G_{\alpha\beta}^0(\varepsilon) = \sum_{\mathbf{k}} \frac{\exp[i\mathbf{k}(\mathbf{r}_{\alpha} - \mathbf{r}_{\beta})]}{\varepsilon - \varepsilon_{\mathbf{k}}} \equiv \sum_{\mathbf{k}} G_{\varepsilon\mathbf{k}}^0 \exp[i\mathbf{k}(\mathbf{r}_{\alpha} - \mathbf{r}_{\beta})] \quad (12)$$

с энергетическими переменными $\varepsilon = (\hbar\omega)^2$ и $\varepsilon_{\mathbf{k}} = (\hbar\omega_{\mathbf{k}})^2$, где \mathbf{k} — квази-волновой вектор фонона частоты $\omega_{\mathbf{k}}$ [13, 14]. При этом узловая функция Грина

$$G_{\alpha\alpha}^0 \equiv P(\varepsilon) = \sum_{\mathbf{k}} G_{\varepsilon\mathbf{k}}^0 = R^{-1}(\varepsilon) + i\pi g(\varepsilon), \quad (13)$$

где $R^{-1}(\varepsilon)$ обозначает вещественную часть.

Мы решим уравнение (10) в длинноволновом приближении $\xi_2 \ll 1$, которое включает режимы не только слабого ($\xi_1 \ll 1$), но и сильного ($\xi_1 \gg 1$) рассеяния фононов. Оказывается, что при $\xi_2 \ll 1$ можно заменить величину t_{γ} в (10) ее средним значением $t \equiv \langle t_{\gamma} \rangle$. Это соответствует приближению усредненной t -матрицы [12]. В Приложении показано, что поправки к решению таким методом в данной задаче малы по параметру ξ_2 . Физически возможность замены t_{γ} на t в условиях сильного рассеяния обусловлена самоусреднением амплитуд t_{γ} на больших пространственных масштабах $\lambda \gg a$, отвечающих резонансному рассеянию длинноволновых возбуждений. Самоусреднение связано со спецификой рассматриваемой задачи, в которой концентрация $n_0\Gamma$ резонансных квазилокальных состояний достаточно сильно растет с ростом энергии. Благодаря этому в объеме λ^3 (при $\lambda \gg a$) содержится большое число рассеивающих центров и их амплитуды t_{γ} самоусредняются.

В приближении усредненной t -матрицы уравнение (10) легко решается:

$$T_{\alpha\beta} = \sum_{\mathbf{k}} \frac{t_{\alpha} \exp[i\mathbf{k}(\mathbf{r}_{\alpha} - \mathbf{r}_{\beta})]}{1 + t[P(\varepsilon) - G_{\varepsilon\mathbf{k}}^0]}. \quad (14)$$

Вычисление сумм в выражении для плотности состояний (11) вновь проводится с учетом самоусредняемости величин t_{α} . Результат имеет вид

$$n(\varepsilon) = \frac{1}{\pi} \operatorname{Im} \left\{ P(\varepsilon - \Sigma) \left(1 - \frac{A[dU/d\varepsilon]}{A[1]} \right) \right\}, \quad (15)$$

где собственно-энергетическая часть усредненной функции Грина

$$\Sigma = t[1 + tP(\varepsilon)]^{-1}. \quad (16)$$

В выражении (15) фигурируют средние значения

$$A[f(U)] = \left\langle \frac{f(U)}{1 - UP} \right\rangle \equiv \lim_{\gamma \rightarrow +0} \int dU \rho(U) \frac{f(U)}{1 - U(\varepsilon - i\gamma)P(\varepsilon - i\gamma)}, \quad (17)$$

где $f(U)$ представляет U , $dU/d\varepsilon$ или 1. В рассматриваемых случаях вещественная часть интеграла (17) в основном определяется окрестностью $U=0$ максимума $\rho(U)$, в которой можно пренебречь отличием знаменателя от единицы. Мнимая часть определяется близким к вещественной оси полюсом подынтегрального выражения. В результате

$$A[f(U)] \approx \langle f(U) \rangle + i\pi[\rho(U)f(U)U]_{U=R}, \quad (18)$$

где $\langle f(U) \rangle$ обозначает обычное среднее.

Фигурирующие в (18) величины $\rho(R)$, $dU/d\varepsilon|_{U=R}$ можно выразить через характеристики изолированных квазилокальных колебаний: ε , $\Gamma(\varepsilon)$, $n_0(\varepsilon)$. Для этого рассмотрим изолированное квазилокальное колебание, порождаемое узельным возмущением U . Представим его энергетическую переменную в виде $\varepsilon + i\Gamma$ с $\Gamma \ll \varepsilon$ и запишем уравнение, определяющее полюса амплитуды t (9):

$$1 - \left(U + \frac{\partial U}{\partial \varepsilon} i\Gamma \right) P(\varepsilon) = 0. \quad (19)$$

Отделяя вещественную и мнимую части, получим

$$U = R(\varepsilon), \quad \Gamma = -\pi g R^2 (dU/d\varepsilon)|_{U=R}^{-1}. \quad (20)$$

Уравнения (20) определяют положение ε и ширину Γ изолированного колебания. Условие $\Gamma \ll \varepsilon$ соответствует низкочастотным колебаниям [13, 14]. Плотность таких колебаний

$$n_0(\varepsilon) = \rho[R(\varepsilon)] |dU/d\varepsilon|_{U=R}. \quad (21)$$

С учетом выражений (18), (20), (21) формула (15) для плотности состояний принимает вид

$$n(\varepsilon) = \frac{1}{\pi} [\text{Im } P(\varepsilon - \Sigma)] \left(1 + \frac{\pi R^2 g}{\Gamma} \frac{\xi_2^2}{1 + \xi_2^2} \right) + [\text{Re } P(\varepsilon - \Sigma)] \frac{R n_0}{1 + \xi_2^2}, \quad (22)$$

$$\Sigma = R \frac{i\xi_2 + \xi_2^2}{1 + \xi_2^2}, \quad \xi_2 = \frac{n_0 \Gamma}{gR}. \quad (23)$$

Заметим, что определение (23) для ξ_2 с точностью до несущественных численных сомножителей совпадает с (5). В этом можно убедиться, используя дебаевскую модель, в которой

$$g(\varepsilon) = \frac{3}{2\varepsilon_D a^3} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_D} \right)^{1/2}, \quad \lambda \approx a \left(\frac{\varepsilon_D}{\varepsilon} \right)^{1/2}, \quad (24)$$

$$R(\varepsilon) \approx R(0) = -\varepsilon_D/3 \text{ при } \varepsilon \ll \varepsilon_D \equiv (\hbar\omega_D)^2.$$

С этой же точностью параметр ξ_1 из (4) можно представить в виде

$$\xi_1 = |R/\varepsilon| \xi_2 = n_0 \Gamma / g\varepsilon. \quad (25)$$

Параметры ξ_1 и ξ_2 растут с ростом ε благодаря резким зависимостям $n_0(\varepsilon)$ и $\Gamma(\varepsilon)$ (см. разд. 3).

Выражение (22) в равной мере применимо как к беспорядку силовых констант, так и к изотопическому беспорядку; различие между этими случаями сводится лишь к надлежащему выбору Γ в (22). Кроме того, выражение (22) не ограничено гармоническим приближением: учет ангармонизма сказывается только на виде $P(\varepsilon)$ и Γ . Применимость выражения (22) ограничена помимо условия $\xi_2 \ll 1$ сравнительно низкочастотной частью спектра (практически $\varepsilon \lesssim \varepsilon_D/3$), в которой справедливы выражения (20), (24).

При анализе поведения $n(\varepsilon)$ (22) выявляются два характерных значения ε . Меньшее из них, ε_1 , соответствует условию $\xi_1 = 1$, при котором $|\text{Im } \Sigma| = \varepsilon$. При $\xi_1 > 1 > \xi_2$ плотность $n(\varepsilon)$ растет с ростом ε несколько быстрее, чем (3), за счет усиления энергетической зависимости $P(\varepsilon - \Sigma)$ при $|\text{Im } \Sigma| > \varepsilon$, а также члена $\pi R^2 \xi_2^2 / \Gamma$ в (22). Рост $n(\varepsilon)$ замедляется вблизи другого характерного значения, $\varepsilon = \varepsilon_2 > \varepsilon_1$, отвечающего условию $\xi_2 = 1$ в (22). При $\xi_2 \gg 1$, т. е. при $\varepsilon \gg \varepsilon_2$, имеет место убывающая зависимость

$$n(\varepsilon) = \frac{R^2 g}{\Gamma} \text{Im}[P(\varepsilon - R)] \approx 0,3 \frac{\varepsilon_D g}{\Gamma}. \quad (26)$$

Однако эта зависимость реализуется вне области $\xi_2 \ll 1$ применимости полученных результатов. Строго аргументировать ослабление зависимости

$n(\varepsilon)$: при $\varepsilon \geq \varepsilon_2$ мы можем только на основании условия нормировки (6). Эти выводы соответствуют качественным соображениям, изложенным в начале настоящего раздела, и подтверждают критерии (4), (5). Характерные значения переменной связаны с введенными выше характерными энергиями: $\varepsilon_{1,2} = (\hbar\omega_{1,2})^2$.

3. Изолированные квазилокальные колебания

Рассмотрению изолированных колебаний в мягких потенциалах стекла посвящен ряд работ [15–18], и наше изложение будет кратким. Его основная цель — конкретизировать величины n_0 , ξ_1 , ξ_2 , Γ в выражении для плотности состояний.

Следуя [15–18], можно описать мягкие потенциалы одномоновым разложением

$$V(x) = \mathcal{E} [\eta(x/a_0)^2 + t(x/a_0)^3 + (x/a_0)^4] \text{ при } |\eta| \ll 1, \quad t^2 \ll 1. \quad (27)$$

Здесь $\mathcal{E} \sim Ms^2 \sim 10$ эВ — энергия атомного масштаба, $a_0 \sim 1$ Å — характерный атомный размер, η и t — случайные величины, распределение которых [17, 18]

$$P(\eta, t) = |\eta| P_0(\eta, t) \text{ при } |\eta| \ll 1, \quad (28)$$

где $P_0(\eta, t)$ — плавная, конечная при $\eta=0$ функция. Мягким потенциалам отвечает быстро убывающий при $|\eta| \ll 1$ хвост распределения $P(\eta, t)$. Потенциалы (27) могут быть как одноямными, так и двухъямными.

Рассмотрение [15, 16] динамики атомной частицы в потенциале (30) выявляет характерный параметр

$$\eta_L = (\hbar^2/2Ma_0^2\mathcal{E})^{1/3} \sim (\hbar\omega_D/\mathcal{E})^{2/3} \sim 10^{-2}, \quad (29)$$

смысл которого в том, что энергетические щели $E(\eta, t)$ между уровнями в потенциале (27) меняются на величины порядка самих себя при изменении параметра η на величину η_L или параметра t на величину $\eta_L^{1/2}$. Это позволяет полагать $P_0(\eta, t) = \text{const}$ при вычислении плотности состояний

$$n_0(\hbar\omega) = \langle \delta(\hbar\omega - E(\eta, t)) \rangle$$

в достаточно мягких потенциалах, поскольку характерные масштабы $\delta\eta$ и δt затухания распределения $P_0(\eta, t)$ по переменным η и t велики в смысле $\delta\eta > \eta_L$, $\delta t > \eta_L^{1/2}$ (реально $\delta t \geq \delta\eta \geq 0,1$ [15, 16]).

Основные результаты состоят в следующем. Существует характерная энергия

$$w = \mathcal{E} \eta_L^2 \sim \hbar\omega_D (\hbar\omega_D/\mathcal{E})^{1/3} \sim 10 \text{ К}, \quad (30)$$

по отношению к которой классифицируются возбуждения. При $\hbar\omega \ll w$ возбуждения представляют ДУС в двухъямных потенциалах (27) с $n_0(\hbar\omega) = \text{const}$. Плотность $n_0(\hbar\omega)$ заметно возрастает при энергиях $\hbar\omega \gtrsim w$, отвечающих возбуждениям в одноямных мягких потенциалах. Возбуждения с энергией $\hbar\omega \gg w$ реализуются в почти гармонических потенциалах (27). Их плотность [17] может быть выражена через переменную $\varepsilon = (\hbar\omega)^2$ следующим образом:

$$n_0(\varepsilon) = \frac{\gamma}{a^3 \varepsilon_D} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_D} \right)^{3/2}, \quad \gamma = \frac{\bar{n}_0 a^3 \varepsilon_D^{5/2}}{32w^4}, \quad (31)$$

где \bar{n}_0 — плотность состояний ДУС, известная из экспериментов. Если величина ε столь значительна, что при соответствующих ей параметрах ($\eta \lesssim \varepsilon/\varepsilon_D$ и $t^2 \lesssim \varepsilon/\varepsilon_D$) уже нельзя полагать $P_0(\eta, t) = \text{const}$, то зависимость $n_0(\varepsilon)$ оказывается более резкой, чем (31).

Интересующие нас особенности поведения $n(\hbar\omega)$ расположены при энергиях больше или порядка нескольких десятков градусов Кельвина

(см. рис. 1, а), т. е. заметно больших, чем энергия w (30). Поэтому в последующих оценках мы используем для n_0 формулу (31) (учитывая следующее за ней замечание).

Другая нужная нам величина — ширина Γ квазилокального состояния в мягком потенциале — имеет в гармоническом приближении известное выражение [14, 19]

$$\Gamma \approx \pi \varepsilon^2 g(\varepsilon) \quad (32)$$

(во избежание недоразумений подчеркнем, что речь идет о величине при нулевой температуре). Эффекты ангармонизма увеличивают Γ . Их влияние можно оценить методом [16], учитывая, что потенциал (27) записан в неинерциальной системе отсчета, движущейся вместе с длинноволновыми смещениями u колеблющейся среды. За счет этого в инерциальной системе отсчета появляется взаимодействие со смещениями

$$\mathcal{H}_{int} = V(x - \xi u) - V(x), \quad (33)$$

где ξ — безразмерный вектор, характеризующий пространственную ориентацию квазилокальной моды. Абсолютная величина ξ зависит от конкретной структуры центра и может быть порядка единицы или нескольких единиц. Линейное по x слагаемое в (33) соответствует гармоническому приближению (32). Параметрически оно является основным: все другие слагаемые дают вклады, пропорциональные $w^2/\varepsilon < 1$ или более высоким степеням этого отношения. Однако ангармонические вклады содержат большие численные коэффициенты. Кроме того, наряду с (33) имеются ангармонические вклады от взаимодействия с дилатацией вида

$$\left(\frac{x}{a_0}\right)^2 \nabla u + \frac{x}{a_0} (\nabla u)^2 + \dots,$$

также содержащие w^2/ε . В результате при ε порядка нескольких w^2 ангармонические вклады все еще могут значительно превышать (32), и следует рассматривать (32) как сильно заниженную оценку Γ .

Из (23), (25), (31), (32) следуют выражения

$$\xi_1 = \pi \gamma (\varepsilon/\varepsilon_D)^{5/2}, \quad \xi_2 = 3\pi \gamma (\varepsilon/\varepsilon_D)^{7/2}, \quad (34)$$

из которых видно, что протяженная область сильного рассеяния $\xi_1 \geq 1$ существует и описывается в рамках нашей теории ($\xi_2 \ll 1$), когда $\gamma \gg 1$. Значения параметров в выражении для γ (31) сравнительно мало различаются для различных стекол. Взяв как типичные параметры a -SiO₂: $a^3 \sim 10^{-22}$ см³, $\hbar\omega_D \sim 340$ К [20], $\bar{n}_0 \sim 10^{33}$ эрг⁻¹см⁻³ [1, 2] и полагая в согласии с (30) $w \sim 10$ К, находим $\gamma \sim 100$. При этом определяемые условиями (4), (5) характерные энергии

$$\hbar\omega_1 = \hbar\omega_D (\pi\gamma)^{-1/5}, \quad \hbar\omega_2 = \hbar\omega_D (3\pi\gamma)^{-1/7} \quad (35)$$

составляют $\hbar\omega_1 \approx 0,3\hbar\omega_D$ и $\hbar\omega_2 \approx 0,4\hbar\omega_D$. Видно, что по шкале частот описываемая теорией область сильного рассеяния $\omega_1 < \omega < \omega_2$ оказывается не слишком широкой (хотя параметры теории ξ_1 и ξ_2 меняются в широких пределах). Отметим, что с учетом сделанных выше замечаний оценки $\hbar\omega_1$, $\hbar\omega_2$ (35) нужно рассматривать как слегка завышенные.

4. Приближение когерентного потенциала. Численный расчет

В настоящее время считается, что наилучшее приближение для спектральных характеристик неупорядоченной системы дает метод когерентного потенциала [12, 21]. В этом методе каждому узлу системы приписывается эффективный потенциал $\sigma(\varepsilon)$, так что роль узельных возмущений играют величины $U_\alpha - \sigma$. Самосогласованное условие для определения

$\sigma(\epsilon)$ состоит в том, что среднее по ансамблю значение t -матрицы (9) равно нулю:

$$\langle t \rangle = \left\langle \frac{U_{\alpha-\sigma}}{1 - (U_{\alpha-\sigma})P(\epsilon-\sigma)} \right\rangle = 0, \quad (36)$$

т. е. система ведет себя как эффективно-когерентная (с характеристиками, зависящими от энергетической переменной ϵ). Узловая функция Грина

$$P(\epsilon-\sigma) = \int_0^{\infty} d\epsilon' \frac{g(\epsilon')}{\epsilon - \epsilon' - \sigma(\epsilon)}, \quad (37)$$

входящая в (36), в свою очередь, содержит σ . Поэтому выражения (36), (37) фактически представляют систему четырех уравнений (по два уравнения для действительных и мнимых частей) с неизвестными величинами $\text{Re } \sigma$, $\text{Im } \sigma$, $\text{Re } P$, $\text{Im } P$, подлежащими определению для каждого значения ϵ . Эта система интегральных уравнений решалась численно (методом градиента: см., например, [22]) для потенциала U вида (2) с затравочным распределением $n_0(\epsilon)$ (31) и дебаевской плотностью состояний когерентной среды $g(\epsilon)$ (24). Были найдены решения для ста значений энергетической переменной $\epsilon = 0,01N\epsilon_D$, $N = 1, 2, \dots, 100$. Относительная погрешность вычислений при всех энергиях не превышала 10%.

Для вычисления плотности состояний использовалось выражение

$$n(\epsilon) = \frac{1}{\pi} \text{Im} \left\langle P(\epsilon-\sigma) \left(1 - \frac{dU/d\epsilon}{1 - (U-\sigma)P(\epsilon-\sigma)} \right) \right\rangle, \quad (38)$$

которое следует из (11) с учетом условия (36). На рис. 1, б рассчитанная плотность состояний изображена в виде зависимости $n(\hbar\omega) = n[\epsilon(\hbar\omega)] d\epsilon/d(\hbar\omega)$ от фононной энергии $\hbar\omega = \epsilon^{1/2}$.

Как видно, найденная зависимость $n(\hbar\omega)$ подтверждает выводы аналитического рассмотрения разделов [2, 3]. Она качественно согласуется и с экспериментальной кривой рис. 1, а. В то же время между зависимостями рис. 1, а и рис. 1, б имеются заметные различия. Укажем в этой связи, что потенциал (2), использованный в произведенном расчете, отвечает гармоническому приближению для спектра изолированного дефекта. Учет ангармонизма и отличия $n_0(\epsilon)$ от зависимости (31) должен сдвинуть пик на кривой $n(\hbar\omega)$ в область меньших энергий (см. разд. 3). Это могло бы несколько улучшить согласие между кривыми рис. 1, а и рис. 1, б.

5. Заключение

Полученные результаты имеют качественный характер. Для систем с флуктуирующими упругими константами теория устанавливает существование характерных энергий $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$, разделяющих спектр колебаний на области различной природы. При $\omega \ll \omega_1$ рассеяние фононов на квазилокальных состояниях слабое и фононы являются хорошо определенными возбуждениями. В области сильного рассеяния $\omega \gtrsim \omega_1$ фононные состояния затухают на масштабах λ , меньших длины волны фонона, причем λ быстро уменьшается с ростом ω . Длина затухания λ сравнивается с постоянной решетки при $\omega \sim \omega_2$.

Полученные результаты приводят к следующим выводам об энергетической зависимости плотности колебательных состояний в типичных стеклах. При $\hbar\omega \ll \omega \sim 10$ К плотность $n(\hbar\omega) \approx \text{const}$ обусловлена ДУС¹⁾ в двухъямных потенциалах (27). При $\hbar\omega \gtrsim \omega$ возрастающая зависимость $n(\hbar\omega)$ соответствует росту плотности изолированных колебаний $n_0(\hbar\omega)$.

¹⁾ При очень низких энергиях важную роль могут играть эффекты взаимодействия между ДУС, рассмотренные в недавней работе Малеева [23].

в мягких одноямных потенциалах (27). Этот участок простирается до $\hbar\omega_1 \sim 100$ К. В интервале между $\hbar\omega_1$ и $\hbar\omega_2$ теория предсказывает некоторое усиление зависимости $n(\hbar\omega)$. Однако этот интервал оказывается столь узким, что предсказанное усиление практически не проявляется. При $\omega \gg \omega_2$ зависимость $n(\hbar\omega)$ выполаживается, а затем становится убывающей. Описанное поведение качественно согласуется с данными рис. 1, а. Приближенный характер теории не позволяет рассчитывать на количественное согласие. Другая причина расхождений может крыться в пространственной корреляции узельных возмущений, которая нами совершенно не учитывалась.

Изложенная теория приводит к выводу о качественно универсальном характере поведения $n(\hbar\omega)$ типа, изображенного на рис. 1, для некристаллических систем. По-видимому, наиболее надежной проверкой этого вы-

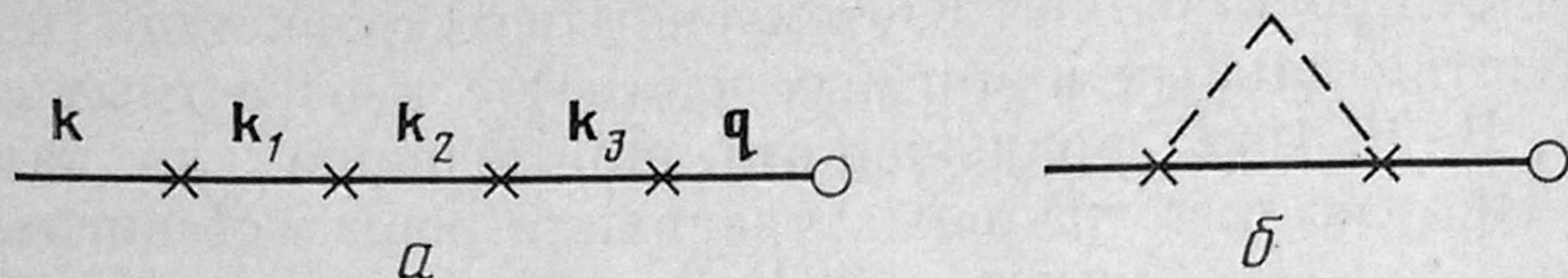


Рис. 2

вода было бы систематическое исследование неупругого рассеяния нейтронов. Такие данные имеются пока для не очень многих некристаллических систем: SiO_2 [3], полимеров [4, 5], металлических стекол [24].

Мы благодарим В. Л. Гуревича, С. В. Малеева, Д. А. Паршина и Б. Л. Альтшулера за полезные обсуждения результатов работы.

Приложение

Для анализа поправок к приближению усредненной t -матрицы удобно представить t -матрицу дефекта в виде $t_\mu = t + \tau_\mu$, $\langle \tau_\mu \rangle = 0$, а также перейти к фурье-компонентам по формуле

$$A_{\mu\nu} = \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}} A(\mathbf{k}, \mathbf{q}) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}_\mu - i\mathbf{q}\mathbf{r}_\nu). \quad (\text{П.1})$$

Разлагая решение уравнения (10) по степеням τ_μ , получаем следующее выражение для общего члена разложения:

$$\tilde{T}^{(i+1)}(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = \mathcal{G}(\mathbf{k}) \sum_{\mathbf{s}} \tau(\mathbf{k}-\mathbf{s}) \tilde{T}^{(i)}(\mathbf{s}, \mathbf{q}), \quad (\text{П.2})$$

где $\mathcal{G}(\mathbf{k}) = g(\mathbf{k}) / (1 - tg(\mathbf{k}))$, а $g(\mathbf{k})$ есть фурье-компонента величины $G_{\alpha\gamma}^0(1 - \delta_{\alpha\gamma})$. Учитывая, что

$$\tilde{T}^0(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \mathcal{G}(\mathbf{k}) / g(\mathbf{k}),$$

получаем, что каждый член ряда можно представить в виде диаграммы типа изображенной на рис. 2, а. Здесь каждой линии соответствует пропагатор $\mathcal{G}(\mathbf{k})$, правому кружку — величина $g^{-1}(\mathbf{q})$, а кресту — фурье-компонента случайной t -матрицы $\tau(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_{i+1})$. При этом нужно выполнить суммирование по всем внутренним импульсам.

Для конкретности оценим ту часть поправки к плотности состояний, которая описывается мнимой частью $\text{Sp } G$. Нетрудно убедиться, что

$$\text{Sp } \delta G = \sum_{\mathbf{q}} (G_{\varepsilon\mathbf{q}}^0)^2 \langle T \rangle_{\mathbf{q}},$$

где $\delta G = G - G^0$. Мы также учли, что после усреднения по ансамблю осцилляторов величина $\langle T_{\alpha\beta} \rangle$ может зависеть лишь от разности $\mathbf{r}_\alpha - \mathbf{r}_\beta$. Учитывая связь между $T_{\alpha\beta}$ и $\tilde{T}_{\alpha\beta}$, получаем, что поправка к затравочной плот-

ности состояний определяется суммой двух средних величин:

$$t \langle \tilde{T}(\mathbf{q}, \mathbf{q}) \rangle + \left\langle \sum_s \tau(\mathbf{q}-\mathbf{s}) T(\mathbf{s}, \mathbf{q}) \right\rangle.$$

Способы оценки обоих слагаемых аналогичны, поэтому рассмотрим графики для первого слагаемого. График n -го порядка содержит общий множитель $t\mathcal{G}^2(\mathbf{q})/g(\mathbf{q})$ и часть, содержащую n крестов и $n-1$ пропагаторов, зависящих от промежуточных импульсов, по которым нужно интегрировать. Эту величину следует усреднить по ансамблю случайных величин τ . Процедуру усреднения можно изобразить, соединяя кресты в пучки. В каждом пучке содержится более одного креста ($\langle \tau \rangle = 0$). Кроме того, пучку соответствует закон сохранения импульса, снимающий одно интегрирование по промежуточным импульсам. Учетное нами приближение усредненной t -матрицы содержит один крест, а низшая поправка к нему изображается графиком рис. 2, б.

Вследствие точечного характера рассеяния величины τ естественно считать не зависящими от переданного импульса. В итоге отношение данной поправки к учтенной составляет

$$\frac{\langle \tau^2 \rangle}{t} \sum_{\mathbf{k}} \mathcal{G}(\mathbf{k}) = - \frac{\langle \tau^2 \rangle}{t^2} (P\Sigma)^2. \quad (\text{П.3})$$

Считая $\langle \tau^2 \rangle \sim t^2$ и учитывая выражение для Σ , приходим к выводу, что поправка (П.3) мала при $\xi_2 \ll 1$. Анализ следующих порядков теории возмущений показывает, что при $\xi_2 \ll 1$ главную роль играют графики с непересекающимися пучками и с минимальным числом крестов в пучке. В таких графиках содержится минимальное число интегрирований, а $\mathcal{G}(\mathbf{k})$ при малых \mathbf{k} имеет вид $\mathcal{G}(\mathbf{k}) = (\varepsilon - \varepsilon_{\mathbf{k}} - t)^{-1}$. Отсюда легко усмотреть, что высшие поправки малы по параметру (П.3).

Если же $\xi_2 \gtrsim 1$, то все графики с произвольным числом пучков имеют один и тот же порядок и построенная теория перестает работать. Таким образом, условием применимости построенной теории является неравенство $\xi_2 \ll 1$ (что не исключает области $\xi_1 \gg 1$).

Литература

1. Amorphous Solids. Low Temperature Properties/Ed. by W. A. Phillips. Berlin — Heidelberg — New York: Springer-Verlag, 1981.
2. Hunklinger S., Raychaudhuri A. K. // Progr. Low Temp. Phys. 1986. V. 9. P. 267.
3. Buchenau U., Prager M., Nücker N. et al. // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. P. 5665.
4. Nichols C. J., Rosenberg H. M. // J. Phys. C. 1984. V. 17. P. 1165.
5. Dianoux A. J., Page J. N., Rosenberg H. M. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. P. 886.
6. Stolen R. H. // Phys. Chem. Glasses. 1970. V. 11. P. 83.
7. Anderson P. W., Halperin B. I., Varma C. M. // Phil. Mag. 1972. V. 25. P. 1.
8. Phillips W. A. // J. Low Temp. Phys. 1972. V. 7. P. 351.
9. Alexander S., Laermans C., Orbach R., Rosenberg H. M. // Phys. Rev. B. 1983. V. 28. P. 4615.
10. Aharony A., Alexander S., Entin-Wohlman O., Orbach R. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. P. 2565.
11. Montgomery C. G. // J. Low Temp. Phys. 1980. V. 39. P. 13.
12. Лифшиц И. М., Гредскул С. А., Пастур Л. А. Введение в теорию неупорядоченных систем. М.: Наука, 1982.
13. Марадудин А., Монтролл Э., Вейсс Дж. Динамическая теория кристаллической решетки в гармоническом приближении. М.: Мир, 1965.
14. Косевич А. М. Физическая механика реальных кристаллов. Киев: Наук. думка, 1981.
15. Карпов В. Г., Клиндер М. И., Игнатьев Ф. Н. // ЖЭТФ. 1983. Т. 84. С. 760.
16. Карпов В. Г., Паршин Д. А. // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. С. 2212.
17. Ильин М. А., Карпов В. Г., Паршин Д. А. // ЖЭТФ. 1987. Т. 92. С. 291.
18. Кривоглаз М. А. // Труды института физики АН ЭССР. 1986. Т. 59. С. 31.
19. Кривоглаз М. А., Пинкевич И. П. // ФТТ. 1969. Т. 11. С. 96.
20. Freeman J. J., Anderson A. C. // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. P. 5684.
21. Займан Дж. Модели беспорядка. М.: Мир, 1982.

22. Демидович Б. П., Марон И. А. Основы вычислительной математики. М.: Физматгиз, 1963.
23. Малеев С. В. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. Вып. 1. С. 280.
24. Suck J. B., Rudin H. // Glassy Metals II/Ed. by H. Beck, H. J. Guntherodt. Berlin — Heidelberg: Springer-Verlag, 1983. (Пер. Под ред. В. А. Алексеева, Е. Г. Максимова. Металлические стекла. Вып. II. М.: Мир, 1986.)

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
1.IV.1988

DENSITY OF VIBRATIONAL STATES IN GLASSES

Yu. M. Galperin, V. G. Karpov, V. N. Solovyov

A theory of the vibrational spectra in glasses is proposed which is based on the taking into account the statistical fluctuations of the local elastic constants. The existence of two characteristic energies $\hbar\omega_1$ and $\hbar\omega_2$ is found which divide the spectrum into regions of qualitatively different behavior of the density of states $n(\hbar\omega)$. For low frequencies $\omega \ll \omega_1$, the growth of the density of states is determined by the additive contributions of the phonons and noninteracting quasilocal oscillations in the random soft atomic potentials of the glass. In the intermediate region $\omega_1 \leq \omega \leq \omega_2$ the quasilocal vibrations interact strongly with the phonons thus rendering their contributions superadditive. For $\omega > \omega_2$ the growth of $n(\hbar\omega)$ slows down. As a result $n(\hbar\omega)$ at first increases more rapidly than the Debye density of states and then more slowly. An analytic expression for $n(\hbar\omega)$ is obtained in the T-matrix formalism for the region $\omega < \omega_2$ which includes the strong scattering region. A numerical calculation of $n(\hbar\omega)$ is carried out in the coherent potential approximation. The theory predicts qualitatively an universal behavior of $n(\hbar\omega)$ in various glasses.

Главный редактор А. С. БОРОВИК-РОМАНОВ

Редколлегия:

В. Г. БАРЬЯХТАР, Б. К. ВАЙНШТЕЙН, В. Г. ВЕСЕЛАГО,
М. Б. ВОЛОШИН (отв. секретарь), А. В. ГАПОНОВ-ГРЕХОВ,
В. Н. ГРИБОВ, Ю. М. КАГАН, Н. Г. КОВАЛЬСКИЙ (зам. гл. редактора),
Ю. В. КОПАЕВ (зам. гл. редактора), В. С. ЛЕТОХОВ,
В. С. ЛИСИЦА (зам. гл. редактора), С. Ю. ЛУКЬЯНОВ, В. И. ОЖОГИН,
А. Я. ПАРШИН (зам. гл. редактора), В. И. ПЕРЕЛЬ,
Д. Е. ХМЕЛЬНИЦКИЙ (зам. гл. редактора), А. Е. ЧУДАКОВ,
Д. В. ШИРКОВ

Зав. редакцией Н. И. Янкелевич

Редакторы: Е. В. Голосова, В. Н. Державина, Л. Б. Кульчицкая, Т. Н. Малашенко

Адрес редакции: 117334 Москва, В-334, ул. Косыгина, 2. Тел. 137-56-22

Технический редактор Н. И. Демидова

Сдано в набор 18.08.88 Подписано к печати 05.11.88 Т-16009 Формат бумаги 70×108^{1/16}
Высокая печать Усл. печ. л. 33,6 Усл. кр. отт. 63,4 тыс. Уч.-изд. л. 35,5 Бум. л. 12,
Тираж 1868 экз. Зак. 1922

Ордена Трудового Красного Знамени издательство «Наука»,
103717 ГСП, Москва, К-62, Подсосенский пер., 21
2-я типография издательства «Наука», 121099, Москва, Г-99, Шубинский пер., 6