сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

Р17-86-761

Г.М.Вуйичич*, Н.М.Плакида, С.Стаменкович*

НЕУПРУГОЕ РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ В СТЕКЛАХ

*Институт ядерных наук им.Б.Кидрича, СФРЮ

1986

Неупругое рассеяние нейтронов в стеклах показывает, что плотность колебательных состояний в них в области низких энергий, $\hbar\omega \lesssim 10$ мэВ, заметно превышает спектральную плотность частот акустических колебаний, а в металлических стеклах оказывается выше спектральной плотности частот соответствующих поликристаллических фаз (см. [1] и, например, [2]). Изучение влияния аморфизации на колебательную теплоемкость металлических сплавов подтверждает существование избыточной плотности колебательных состояний в аморфной фазе в этой же области энергий [3].

Хорошо известны также низкотемпературные аномалии в стеклах при $T \lesssim 1$ К, которые обычно связывают с наличием специфических возбуждений туннельного типа с энергией $\hbar\omega \lesssim 0{,}1$ мэВ, предложенных в [4,5]. Исследование их с помощью неупругого рассеяния нейтронов не проводилось, и, как показывают оценки в [6], оно представляет собой весьма сложную задачу.

Появление низколежащих колебательных возбуждений, как туннельного, так и резонансного типа, можно связать, в рамках более общей модели [7], с возникновением неодноямных атомных потенциалов, обусловленных флуктуациями ближнего порядка в топологически неупорядоченной системе. При этом взаимодействие резонансных, сильно ангармонических колебаний квазилокального типа с акустическими фононами и объясняет повышенную плотность колебательных состояний в стеклах, наблюдаемую при неупругом рассеянии нейтронов в [1,2] и при измерении теплоемкости в [3].

В настоящей работе рассматривается общая теория неупругого рассеяния нейтронов в стеклах. Помимо рассеяния на длинноволновых колебаниях акустического типа — фононах, которое обсуждалось, например в [8,9], в работе учитывается специфическое для стекол рассеяние на сильно ангармонических колебаниях (КЛК). Для описания последних использовано псевдоспиновое представление, как в модели двухуровневых систем в [4,5], но с другой функцией распределения энергий возбуждения. В первом разделе получено общее выражение для сечения неупругого рассеяния, в разделе 2 рассмотрено рассеяние на КЛК, в разделе 3 — на фононах, а в разделе 4 проведено сравнение интенсивностей обоих типов рассеяния и дано качественное сопоставление с экспериментом.

1. ОБЩЕЕ ВЫРАЖЕНИЕ ДЛЯ СЕЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ

Дифференциальное сечение рассеяния нейтронов, отнесенное к элементу телесного угла $d\Omega$ и интервалу энергий dE, согласно общей теории Ван Хова можно записать в следующем виде (см.,например,/10/):

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, dE} = \frac{p}{p_0}\frac{1}{N}\sum_{i,j}^{N} a_i a_j F_{ij}(\vec\kappa, \omega), \qquad (1)$$

где $\hbar\vec\kappa = \vec p_0 - \vec p$ и $\hbar\omega = E_0 - E$ — изменение импульса и энергии нейтрона при рассеянии, $\vec p_0$, $E_0 = p_0^2/2m$ и $\vec p$, $E = p^2/2m$ — импульсы и энергии падающего и рассеянного нейтрона, а a_i — амплитуда рассеяния нейтрона на i-м ядре. Корреляционная функция

$$F_{ij}(\vec\kappa, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} dt\, e^{-i\omega t} \langle e^{-i\vec\kappa \vec r_i(0)} e^{i\vec\kappa \vec r_j(t)} \rangle \equiv$$
$$\equiv \langle e^{-i\vec\kappa \vec r_i} | e^{i\vec\kappa \vec r_j} \rangle_\omega \qquad (2)$$

описывает пространственно-временную корреляцию в расположении ядер, координаты которых в момент времени t задаются операторами $\vec r_i(t)$. Статистическое среднее $\langle \dots \rangle$ вычисляется по равновесному состоянию системы N частиц.

Предположим, что временная зависимость координат атомов в стекле может быть записана в общем виде:

$$\vec r_i(t) = \vec R_i + \vec u_i(t) + t_i \vec x_i(t), \qquad (3)$$

где $\vec R_i = \langle \vec r_i(t) \rangle$ — равновесные положения атомов, которые задают топологически неупорядоченную сетку узлов в системе, $\vec u_i(t)$ — смещение атомов акустического типа и $\vec x_i(t)$ — характерные для стекол динамические смещения, описывающие сильно ангармонические колебания квазилокального типа. Проекционный оператор $t_i = 1$, если i-й атом участвует в КЛК, и $t_i = 0$ для остальных атомов. Концентрация таких атомов, $n_0 = (1/N)\sum_i^N t_i$, обычно мала: $n_0 \sim 10^{-4}$, но зависит от метода приготовления образца.

Учитывая (3), корреляционную функцию (2) запишем в виде

$$F_{ij}(\vec\kappa, \omega) = e^{-i\vec\kappa(\vec R_i - \vec R_j)} \langle A_i^+ B_i^+ | A_j B_j \rangle_\omega, \qquad (4)$$

где

$$A_i = e^{i\vec\kappa \vec u_i}; \quad B_i = e^{i\vec\kappa \vec x_i t_i} \equiv (1 - t_i) + t_i e^{i\vec\kappa \vec x_i}. \qquad (5)$$

Упругое рассеяние в (1) определяется асимптотическим поведением временной корреляционной функции в (2) при $t \to \infty$. Вычитая упругий вклад, определим неупругую составляющую рассеяния. Она описывается корреляционной функцией

$$F'_{ij}(\vec x, \omega) = e^{-i\kappa(\vec R_i - \vec R_j)} e^{-w_i} e^{-w_j} \{ \langle \delta B_i^+ | \delta B_j \rangle_\omega +$$
$$+ f_i f_j \langle \delta A_i^+ | \delta A_j \rangle_\omega + f_i \langle \delta A_i^+ | \delta B_j \rangle_\omega + f_j \langle \delta B_i^+ | \delta A_j \rangle_\omega \}, \qquad (6)$$

где опущены члены с произведением $\delta A_i \delta B_i$ и введены обозначения:

$$\langle A_i \rangle = \langle e^{i\vec\kappa \vec u_i} \rangle = e^{-w_i}, \quad \delta A_i = A_i - \langle A_i \rangle,$$
$$\langle B_i \rangle = (1 - t_i) + t_i \langle e^{i\vec\kappa \vec x_i} \rangle \equiv f_i, \quad \delta B_i = B_i - \langle B_i \rangle. \qquad (7)$$

Учитывая, что концентрация атомов, участвующих в КЛК, обычно мала и поэтому $f_i \approx 1$, неупругое сечение рассеяния запишем в виде

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, dE}\right)_{inel} = \frac{p}{p_0}\frac{1 + N(\omega)}{\pi N}\sum_{ij} a_i a_j e^{-w_i} e^{-w_j} e^{-i\vec\kappa(\vec R_i - \vec R_j)} \times$$
$$\times \mathrm{Im}\{ \chi_{ij}^{11}(\vec\kappa, \omega) + \chi_{ij}^{22}(\vec\kappa, \omega) + \chi_{ij}^{12}(\vec\kappa, \omega) + \chi_{ij}^{21}(\vec\kappa, \omega) \}, \qquad (8)$$

где введены динамические восприимчивости:

$$\chi_{ij}^{\alpha\gamma} = - \langle\langle C_i^{(\alpha)+} | C_j^{(\gamma)} \rangle\rangle_\omega, \qquad (9)$$

выражающиеся через двухвременные запаздывающие функции Грина:

$\langle\langle A | B \rangle\rangle_\omega$ /11/, $C_i^{(1)} = \delta A_i$, $C_i^{(2)} = \delta B_i$; $N(\omega) = [\exp(\beta\omega) - 1]^{-1}$.

Первый член в (8) описывает неупругое рассеяние нейтронов на акустических колебаниях атомов, второй — на КЛК, третий и четвертый — интерференционное неупругое рассеяние.

2. РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ НА КВАЗИЛОКАЛЬНЫХ КОЛЕБАНИЯХ

Ввиду низкой концентрации атомов, участвующих в КЛК, можно предположить, что в отдельном КЛК участвует небольшая изолированная группа атомов, которую можно рассматривать как "молекулу", взаимодействующую с акустическими колебаниями. Обозначим координаты атомов, относящихся к ℓ-му КЛК (ℓ-й "молекуле"), как $\vec{x}_i(\ell)$ и введем локальные нормальные координаты для данного КЛК:

$$\xi_\lambda(\ell) = \sum_{i\in\ell} \vec{e}^{\,i}_\lambda(\ell)\,\vec{x}_i(\ell)\sqrt{M_i}\,, \tag{10}$$

где $\vec{e}^{\,i}_\lambda(\ell)$ — векторы поляризации моды λ для i-го атома с массой M_i. Низколежащие моды возбуждения "молекулы" соответствуют сильно ангармоническим колебаниям в эффективном неодноямном потенциале $U(\xi)$ (см. [7]). В работе [2], например, в качестве таких возбуждений рассматривались либрационные моды тетраэдра SiO_4. Учитывая лишь два низших уровня, гамильтониан КЛК запишем в псевдоспиновом представлении (см., например, [12]):

$$H = \sum_\ell H_\ell = \sum_\ell E_\ell S^z_\ell + \sum_\ell(\hat\lambda^x_\ell S^x_\ell + \hat\lambda^z_\ell S^z_\ell)\,\hat u(\ell)\,, \tag{11}$$

где S^α_ℓ — операторы спина $S = 1/2$, $E_\ell = \epsilon_{1\ell} - \epsilon_{0\ell}$, $\hat\lambda^\alpha_\ell = \lambda^\alpha_{\mu\ell}$ — константы взаимодействия КЛК с локальной деформацией $\hat u(\ell) = u_\mu(\ell)$. Собственные энергии $\epsilon_{n\ell}$ и волновые функции $\psi_{n\ell}$ двух нижних уровней $n = 0,1$ определяются из уравнения $H_\ell\psi_{n\ell} = \epsilon_{n\ell}\psi_{n\ell}$.

Хотя гамильтониан (11) имеет тот же вид, что и используемый в модели туннельных возбуждений, в нашей модели псевдоспиновое представление (11) является лишь удобной формой описания сильно ангармонических КЛК. При этом при усреднении по распределению КЛК будем предполагать, что, в отличие от постоянной плотности в модели туннельных возбуждений, распределение энергий КЛК E имеет лоренцевский вид при $E \le E_0$:

$$P(E) = \frac{n_0}{\pi}\,\frac{\Delta}{(E_r - E)^2 + \Delta^2}\,, \tag{12}$$

с параметрами распределения: E_r — характерной энергией КЛК, шириной $\Delta \sim E_r$ и их концентрацией $n_0 = (N_\ell/N)$; E_0 — максимальная энергия КЛК ($E_0 \gg E_r$).

Псевдоспиновое представление удобно также при анализе восприимчивости (9) для КЛК, поскольку позволяет представить оператор B_i в (5) в виде (см., например, [12])

$$e^{i\vec\kappa\vec x_i} = \alpha_i(\kappa)\,I_\ell + 2\beta_i(\kappa)S^x_\ell + 2\gamma_i(\kappa)S^z_\ell\,, \tag{13}$$

где введены формфакторы для ℓ-го КЛК:

$$\alpha_i(\kappa) = \frac{1}{2}\int d\xi\, e^{i\vec\kappa\vec x_i}\,\{|\psi_0(\xi)|^2 + |\psi_1(\xi)|^2\}\,,$$

$$\beta_i(\kappa) = \int d\xi\, e^{i\vec\kappa\vec x_i}\,\psi_0(\xi)\psi_1(\xi)\,,$$
$$\gamma_i(\kappa) = \frac{1}{2}\int d\xi\, e^{i\vec\kappa\vec x_i}\,\{|\psi_0(\xi)|^2 - |\psi_1(\xi)|^2\}\,. \tag{14}$$

Вычисление формфакторов требует определенной модели КЛК. В случае достаточно большой величины потенциального барьера, разделяющего два состояния: "левое" $\psi_L(\xi)$ и "правое" $\psi_R(\xi)$, оценка их имеет вид (см. [12])

$$\alpha_i(\kappa) \approx \cos(\kappa d_i)\,,\quad \beta_i = i\sin(\kappa d_i)\,,\quad \gamma_i(\kappa) \approx \rho\cos(\kappa d_i)\,, \tag{14a}$$

где $2d_i$ — область смещений i-го атома при КЛК, $\rho = \langle\psi_L/\psi_R\rangle \sim \exp(-\lambda)$ — малый интеграл перекрытия.

В представлении (13) неупругое рассеяние на КЛК в (8) записывается в виде

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega\, dE}\right)_{КЛК} = \frac{p}{p_0}\,\frac{1+N(\omega)}{N}\sum_{\ell,\alpha=x,z}|G^\alpha_\ell(\kappa)|^2\,\frac{4}{\pi}\,\mathrm{Im}\,\chi^\alpha_\ell(\omega)\,, \tag{15}$$

где структурный фактор для ℓ-го КЛК

$$|G^x_\ell(\kappa)|^2 = \Big|\sum_{i\in\ell}\bar a_i\, e^{-W_i}\, e^{-i\vec\kappa\vec R_i}\,\beta_i(\kappa)\Big|^2 + \sum_{i\in\ell}\frac{\sigma_i}{4\pi}\,e^{-2W_i}|\beta_i(\kappa)|^2\,, \tag{16}$$

а $|G^z_\ell(\kappa)|^2$ определяется (16) при замене $\beta_i(\kappa)$ на $\gamma_i(\kappa)$; $\bar a_i$ — когерентная амплитуда рассеяния, а σ_i — некогерентное сечение рассеяния для i-го ядра. Соответственно, первое слагаемое в (16) описывает когерентную составляющую рассеяния. Динамическая восприимчивость $\chi^x_\ell = -\langle\langle S^x_\ell|S^x_\ell\rangle\rangle_\omega$ определяет резонансное рассеяние с возбуждением КЛК, а $\chi^z_\ell = -\langle\langle\delta S^z_\ell|\delta S^z_\ell\rangle\rangle_\omega$ — квазиупругое рассеяние, связанное с релаксацией КЛК. Рассмотрим оба вклада, учитывая явный вид функций $\chi^\alpha_\ell(\omega)$, полученных в общем виде для гамильтониана (11), например, в работе [13].

Для поперечной восприимчивости $\chi^x_\ell(\omega) \equiv \chi_T(\omega)$ имеем согласно [13] представление

$$\mathrm{Im}\,\chi_T(\omega) = ES\,\frac{2\omega\,\Gamma_T(\omega)}{[E^2 - 2\omega R_T(\omega) - \omega^2]^2 + [2\omega\Gamma_T(\omega)]^2}\,, \tag{17}$$

где $S = -\langle S_\ell^z \rangle \approx (1/2)\,\mathrm{th}(\beta E/2)$ — средняя заселенность и введены действительная и мнимая части матрицы релаксации $N_T(\omega + i\epsilon) = 2R_T(\omega) - i2\Gamma_T(\omega)$, описывающей взаимодействие КЛК с акустическими фононами (для металлического стекла — и с электронами проводимости). Приведем здесь из [13] лишь выражение для $\Gamma_T(\omega)$ в случае слабой связи КЛК с фононами:

$$\Gamma_T(\omega) = \frac{E}{4\omega}\,\mathrm{cth}\frac{\beta E}{2}\,F''_{ph}(\omega) \approx \frac{\pi}{8}\Lambda\omega_D E Z(\omega)\,\mathrm{cth}\frac{E}{2T}, \tag{18}$$

где введены спектральная плотность акустических фононов $Z(\omega) \approx 3\omega^2/\omega^3$, безразмерная константа связи $\Lambda = (1/3\pi)(\omega_D/\omega_c)^2$, $\omega_D = sq_D$, $q_D^3 = (6\pi^2/v)$, $\omega_c^2 = 2\pi^2 s^5 \rho/|\lambda^x|^2$. Здесь s — усредненная скорость звука, $\rho = M/v$ — плотность, v — объем на один атом. Взаимодействие КЛК с электронами проводимости в случае металлических стекол существенно лишь в области низких температур, $E \lesssim 0{,}1$ мэВ (см., например, [14]), и поэтому далее не учитывается.

Заменяя теперь суммирование по ℓ в (15) на интегрирование по энергиям возбуждений КЛК с распределением (12), для функции резонансного рассеяния получим

$$S_{КЛК}(\kappa,\omega) = [1 + N(\omega)]\int_0^{E_0} P(E)\,dE\,|G_\ell^x(\kappa)|^2\,\frac{4}{\pi}\,\mathrm{Im}\,\chi_E^x(\omega) \approx$$

$$\approx [1 + N(\omega)]\,\langle |G_\ell^x(\kappa)|^2\rangle_\ell\,\frac{1}{\omega_D}D_T\Big(\frac{\omega}{\omega_D}\Big). \tag{19}$$

Предполагая, что структурный фактор (16) не зависит существенно от E, мы ввели его среднее значение $\langle |G_\ell^x(\kappa)|^2\rangle_\ell = (1/N_\ell)\sum_\ell |G_\ell|^2$ и усредненную безразмерную спектральную плотность состояний:

$$D_T(\nu) = \frac{n_0}{\pi}\int_0^{\epsilon_0}\frac{\delta\,d\epsilon}{(\epsilon_r - \epsilon)^2 + \delta^2}\,\frac{2\epsilon}{\pi}\,\mathrm{th}\frac{\epsilon}{2t}\,\frac{2\nu\gamma(\epsilon,\nu)}{[\epsilon^2 - \nu\tilde{R}(\nu) - \nu^2]^2 + 4\nu^2\gamma^2(\epsilon,\nu)}, \tag{20}$$

где введены безразмерные переменные: $\nu = \omega/\omega_D$, $\epsilon = E/\omega_D$, $\delta = \Delta/\omega_D$ и $t = (1/\beta\omega_D)$. При этом

$$\gamma(\nu,\epsilon) = \frac{1}{\omega_D}\Gamma_T(\omega) = \Lambda\frac{3\pi}{8}\epsilon\nu^2\,\mathrm{cth}\frac{\epsilon}{2t}. \tag{21}$$

В общем случае анализ частотной и температурной зависимости спектральной плотности (20) требует численного интегрирования. Для оценок рассмотрим два предельных случая:

1) $\gamma(\nu,\epsilon) \ll \epsilon$, $\gamma(\nu,\epsilon) \ll \delta \sim \epsilon_r \ll 1$;

2) $\delta \ll \epsilon_r$, $\delta \ll \gamma(\nu,\epsilon_r)$.

В первом случае приближенное интегрирование динамической восприимчивости дает

$$D_T(\nu) \approx \frac{n_0}{\pi}\,\mathrm{th}\frac{\nu}{2t}\,\frac{\delta}{(\epsilon_r - \nu)^2 + \delta^2}. \tag{20а}$$

Во втором случае после интегрирования по распределению $P(\epsilon) \approx n_0\delta(\epsilon - \epsilon_r)$ получим

$$D_T(\nu) \approx n_0\,\mathrm{th}\frac{\epsilon_r}{2t}\,\frac{2\epsilon_r}{\pi}\,\frac{2\nu\gamma(\epsilon_r,\nu)}{(\epsilon_r^2 - \nu^2)^2 + 4\nu^2\gamma^2(\epsilon_r,\nu)}. \tag{20б}$$

Спектральная плотность (20а) или (20б) может быть достаточно высокой, $D_T(\nu \approx \epsilon_r) \gg n_0$ при $\delta \ll 1$ или $\gamma(\epsilon_r) \ll 1$ в области $t \lesssim \epsilon_r$. Сопоставление ее с фононной плотностью состояний будет проведено в разделе 4.

Квазиупругое рассеяние в (15) определяется продольной восприимчивостью: $\chi_\ell^z(\omega) \equiv \chi_L(\omega)$, которую согласно [13] представим в виде

$$\mathrm{Im}\,\chi_L(\omega) = \chi_L^\circ\,\frac{\omega\Gamma_L(\omega)}{\omega^2 + \Gamma_L^2(\omega)}, \tag{22}$$

где статическая продольная восприимчивость $\chi_L^\circ \approx [4T\,\mathrm{ch}^2(E/2T)]^{-1}$ и затухание, связанное с продольной релаксацией, имеет вид

$$\Gamma_L(\omega) = -\frac{1}{\chi_L^\circ}\mathrm{Im}N_L(\omega) = \frac{1}{8\omega\chi_L^\circ}\Big\{\Big(1 - \mathrm{th}\frac{E}{2T}\,\mathrm{cth}\frac{E+\omega}{2T}\Big)F''(\omega + E) +$$

$$+ \Big(1 - \mathrm{th}\frac{E}{2T}\,\mathrm{cth}\frac{E-\omega}{2T}\Big)F''(E - \omega)\Big\}. \tag{23}$$

Функция $F''(\omega)$, описывающая взаимодействие КЛК с фононами, определена в (18). При $\omega \to 0$ имеем $\Gamma_L(\omega \to 0) \approx (1/2)\,\mathrm{cth}(E/2T)\,F''(E) = 2\Gamma_T(\omega = E)$.

Подставляя (22) в (15) и выполняя усреднение по энергиям E с функцией (12) аналогично (19), для интенсивности квазиупругого рассеяния получим

$$\frac{1}{\omega_D}D_L\Big(\frac{\omega}{\omega_D}\Big) = \int_0^{E_0} P(E)\,dE\,\frac{4}{\pi}\,\mathrm{Im}\,\chi_L(\omega) =$$

$$= \frac{1}{\omega_D}\frac{n_o}{\pi}\int_0^{\epsilon_o}\frac{\delta d\epsilon}{(\epsilon_r-\epsilon)^2+\delta^2}\frac{1}{\pi t\,\mathrm{ch}\frac{\epsilon}{2t}}\frac{\nu\gamma_L(\nu,\epsilon)}{\nu^2+\gamma_L^2(\nu,\epsilon)}, \quad (24)$$

где введены безразмерные переменные, как и в (20), и $\gamma_L(\nu,\epsilon) = \Gamma_L(\omega)/\omega_D$. Учитывая, что основной вклад в квазиупругое рассеяние дает область частот $\nu\to 0$ и полагая $\delta \ll \epsilon_r$ и $\gamma_L(\nu=0,\epsilon) = 2\gamma_T(\epsilon_r)$, получим

$$D_L(\nu) = \frac{n_o}{\pi t}\frac{1}{\mathrm{ch}^2\frac{\epsilon_r}{2t}}\frac{2\nu\gamma_R(\epsilon_r)}{\nu^2+4\gamma_T^2(\epsilon_r)}. \quad (24a)$$

Более полный анализ интенсивности квазиупругого рассеяния (24) с учетом (23) требует численного интегрирования. Некоторые предельные случаи формулы (24) рассмотрены в [6] для модели туннельных возбуждений. В целом же экспериментальное наблюдение квазиупругого рассеяния (24) представляет весьма сложную задачу ввиду достаточно сильного упругого рассеяния в стеклах (см., например, [2]).

3. РАССЕЯНИЕ НА ФОНОНАХ

Неупругое рассеяние нейтронов на акустических колебаниях атомов определяется первым членом в (8), который в однофононном приближении описывается следующей функцией рассеяния:

$$S_{ph}(\kappa,\omega) = [1+N(\omega)]\frac{1}{N}\sum_{i,j}^{N} a_i a_j e^{-w_i}e^{-w_j}e^{-i\vec\kappa(\vec R_i-\vec R_j)}\times$$
$$\times[-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}\langle\langle\vec\kappa\vec u_i|\vec\kappa\vec u_j\rangle\rangle_{\omega+i\epsilon}]. \quad (25)$$

Учитывая, что в длинноволновом приближении акустические смещения атомов приближенно описываются плоскими волнами [8,9]:

$$u_i^\alpha = \frac{1}{\sqrt{NM}}\sum_{q\lambda} e_{q\lambda}^\alpha e^{i\vec q\vec R_i} u_{q\lambda},$$

фононную функцию Грина в (25) представим в виде

$$\langle\langle\vec u_i\vec\kappa|\vec u_j\vec\kappa\rangle\rangle_\omega = \frac{1}{NM}\sum_{q\lambda} e^{i\vec q(\vec R_i-\vec R_j)}(\vec\kappa\vec e_{q\lambda})^2\frac{1}{\omega^2-\omega_{q\lambda}^2}, \quad (26)$$

где $M=(1/N)\sum_i M_i$ - средняя масса атомов, $e_{q\lambda}^\alpha$ и $\omega_{q\lambda}\approx s_\lambda q$ — векторы поляризации и частоты акустических колебаний ($\lambda=1,2$ — поперечных и $\lambda=3$ — продольных), s_λ — скорость звука. Функция рассеяния в этом приближении принимает вид

$$S_{ph}(\kappa,\omega) = [1+N/\omega)]\frac{1}{N}\sum_{q\lambda}|G_{q\lambda}(\kappa)|^2\frac{\omega}{|\omega|}\delta(\omega^2-\omega_{q\lambda}^2), \quad (27)$$

где

$$|G_{q\lambda}(\kappa)|^2 = \frac{1}{N}\left|\sum_i \bar a_i e^{-w_i}e^{-i(\vec\kappa-\vec q)\vec R_i}\frac{(\vec\kappa\vec e_{q\lambda})}{\sqrt M}\right|^2 +$$
$$+\frac{1}{N}\sum_i\frac{\sigma_i}{4\pi}e^{-2w_i}\frac{(\vec\kappa\vec e_{q\lambda})^2}{M} \quad (27a)$$

— структурный фактор однофононного рассеяния. Первый член в (27а) описывает когерентное, а второй — некогерентное рассеяние (ср. с (16)). Усреднение структурного фактора по направлению вектора рассеяния $\vec\kappa$ приводит к следующему выражению для функции рассеяния (27) [9]:

$$S_{ph}(\kappa,\omega) = [1+N(\omega)]\frac{\kappa^2}{M}\frac{Z(\omega)}{2\omega}[\tilde I_0^K(\kappa)+I_0^{HK}(\kappa)], \quad (28)$$

где введены спектральная плотность фононных состояний:

$$Z(\omega) = \frac{1}{3N}\sum_{q\lambda}\delta(|\omega|-\omega_{q\lambda}), \quad (29)$$

и структурные факторы когерентного и некогерентного рассеяния. В длинноволновом приближении ($q\ll\kappa$) первый из них описывается формулой

$$\tilde I_0^K(\kappa) = \frac{1}{2}\int_{-1}^{1}dz\, I_0^K[(\kappa^2+q^2+2\kappa qz)^{1/2}]\times$$
$$\times[\frac{1}{2}(1-z^2)(|\vec e_{q1}|^2+|\vec e_{q2}|^2)+z^2|\vec e_{q3}|^2]\approx\frac{1}{2}\int_{-1}^{1}dz\,I_0(\kappa+qz), \quad (30)$$

где q — средний импульс фонона при заданной частоте $\omega\approx sq$,

$$I_0^K(\kappa) = \frac{1}{N}\sum_{ij}\bar a_i\bar a_j e^{-w_i}e^{-w_j}\frac{\sin(\kappa R_{ij})}{\kappa R_{ij}},\quad R_{ij} = |\vec R_i-\vec R_j| \quad (30a)$$

— интенсивность упругого когерентного рассеяния. При выводе (30) было учтено, что в пределе длинных волн $|\vec e_{q\lambda}|^2 = 1$. Некогерентный вклад в (28) пропорционален интенсивности упругого некогерентного рассеяния:

$$I_0^{НК}(\kappa) = \frac{1}{N}\sum_i \frac{\sigma_i}{4\pi} e^{-2w_i} . \tag{31}$$

Отметим, что когерентное рассеяние в стеклах носит диффузный характер, поскольку в них, в отличие от кристаллов, закон сохранения квазиимпульса $\vec{\kappa} = \vec{\tau} \pm \vec{q}$ ($\vec{\tau}$ — вектор обратной решетки) не выполняется, хотя оно и имеет четко выраженную зависимость от вектора рассеяния κ (в отличие от некогерентного рассеяния), определяемую когерентным упругим формфактором (30). Как и в кристаллах, рассеяние на фононах с $q \ll \kappa$ происходит "с перебросом", когда импульс нейтрона отдается всей системе.

Таким образом, суммарное (когерентное и некогерентное) неупругое однофононное рассеяние в стеклах оказывается пропорциональным интенсивности полного упругого рассеяния $I_0(\kappa)$:

$$S_{ph}(\kappa, \omega) = [1 + N(\omega)]\frac{\kappa^2}{M}\frac{Z(\omega)}{2\omega} I_0(\kappa), \tag{32}$$

что позволяет рассчитать функцию однофононного рассеяния (32), если интенсивность $I_0(\kappa)$ известна из независимых измерений упругого рассеяния (см. [2, 9]).

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Согласно полученным в настоящей работе результатам полную функцию неупругого рассеяния, учитывая (8), (32) и (19), можно записать в виде

$$S(\kappa, \omega) = [1 + N(\omega)]\left\{\frac{\kappa^2}{M}\frac{Z(\omega)}{2\omega} I_0(\kappa) + \langle|G_\ell^x(\kappa)|^2\rangle_\ell \frac{1}{\omega_D} D_T\left(\frac{\omega}{\omega_D}\right)\right\}, \tag{33}$$

где мы не учли вклада интерференционных членов (см. (8)) и опустили вклад квазиупругого рассеяния на КЛК (24). Сравнение функции полного рассеяния (33) с экспериментально измеренной интенсивностью неупругого рассеяния и независимое вычисление однофононного вклада (32) позволяет определить интенсивность "добавочного" рассеяния, которое мы связываем с рассеянием на КЛК — вторым членом в (33).

Подобный расчет был проведен в работе [2] при анализе неупругого рассеяния в стекле SiO_2. Полученный авторами дополнительный вклад в рассеяние $\Delta Z(\nu) \sim 10^{-2}$ (ТГц)$^{-1}$, который они связали с локальными либрационными колебаниями изолированной группы тетраэдров SiO_4, оказался сравнимым с плотностью туннельных состояний

в стеклах, известной из других экспериментов, и позволил качественно объяснить избыточную в законе Дебая ($\sim T^3$) теплоемкость, наблюдаемую в стеклах при $T \sim 1 \div 10$ К. Аналогичная дополнительная плотность колебательных состояний: $\Delta Z(\nu) \sim (3 \div 4)\cdot 10^{-3}$ (мэВ)$^{-1}$, наблюдается в металлических стеклах в области энергий $\hbar\omega \lesssim 10$ мэВ (см. обзор [1], § 7.6.3). Измерения же избыточной теплоемкости, возникающей при аморфизации металлических сплавов, прямо указывает на квазилокальный характер появляющихся при этом дополнительных колебательных возбуждений (см. [3]).

Оценим в связи с этим дополнительный вклад в рассеяние, обусловленный вторым членом в (33). Учитывая явные выражения для структурных факторов при рассеянии на КЛК (16) и на фононах (30), (31), получим оценку

$$\frac{\langle|G_\ell^x(\kappa)|^2\rangle_\ell}{I_0(\kappa)} \sim n_\ell \langle|\beta(\kappa)|^2\rangle_\ell , \tag{34}$$

где n_ℓ — среднее число атомов, участвующих в КЛК. Поскольку среднее значение формфактора согласно (14) $\langle|\beta(\kappa)|^2\rangle_\ell \lesssim 1$, то отношение (34) близко к единице. Следовательно, для отношения интенсивностей рассеяния на КЛК и на фононах имеем оценку

$$\frac{S_{КЛК}(\kappa,\omega)}{S_{ph}(\kappa,\omega)} \approx \frac{(1/\omega_D)\, D_T(\omega/\omega_D)}{(\kappa^2/2M\omega)\, Z(\omega)} \equiv \frac{\Delta Z(\nu)}{Z(\nu)} . \tag{35}$$

Полагая здесь $Z(\omega) \approx 3\omega^2/\omega_D^3$ и выбирая характерные значения $\kappa \approx 2$ Å, $M = 60$ а.е.м., $\hbar\omega_D = 30$ мэВ, получим $3\hbar^2\kappa^2/2M\omega_D \approx 10^{-2}$, так что

$$\frac{\Delta Z(\nu)}{Z(\nu)} \approx \frac{10^2}{\nu} D_T(\nu) \approx \frac{10^2}{\nu} n_0\, \mathrm{th}\frac{\nu}{2t}\, \frac{\delta}{(\epsilon_r - \nu)^2 + \delta^2} , \tag{36}$$

где мы воспользовались оценкой (20а). Следовательно, в области низких энергий, $\nu = (\omega/\omega_D) \sim 0{,}1$, дополнительное неупругое рассеяние на КЛК становится сравнимым с рассеянием на фононах даже при низкой концентрации КЛК. Например, при $n_0 = 10^{-4}$ и $\nu = \epsilon_r \approx \delta = 0{,}1$ в области температур $t < \nu$ получаем согласно (36)

$$\Delta Z(\nu) = \frac{D_T(\nu)/\omega_D}{\kappa^2/2M\omega} \approx Z(\omega) \approx 10^{-3} \text{ мэВ}^{-1} , \tag{37}$$

что соответствует наблюдаемой в экспериментах [1,2] дополнительной плотности состояний.

Специфическая температурная зависимость $\mathrm{th}(\nu/2t)$ в (36) связана с псевдоспиновым представлением (11) (двухуровневым приближением) для КЛК. В более общей модели, учитывающей бозевский характер возбуждений для сильно ангармонических КЛК, эта зависимость отсутствует. Эту модель, а также более детальное сопоставление теории с экспериментом предполагается рассмотреть в отдельной работе.

В заключение один из авторов (Н.П.) хотел бы поблагодарить за гостеприимство дирекцию ИЯН им.Б.Кидрича, где эта работа была начата.

ЛИТЕРАТУРА

1. Suck J.B., Rudin H. — In: Glassy metals II (Ed. H.Beck, H.J.Guntherodt). Berlin, Springer, 1983, p.217.
2. Buchenau U., Nucker N., Dianoux A.J. — Phys.Rev.Lett., 1984, v.53, p.2316.
3. Панова Г.Х. и др. — ЖЭТФ, 1985, т.88, с.1012.
4. Anderson P.W. et al. — Phil.Mag., 1972, v.25, p.1.
5. Phillips W.A. — J.Low Temp.Phys., 1972, v.7, p. 351.
6. Maleyev S.V. — J.Phys.C., 1986, v.19, p.1657.
7. Карпов В.Г., Клингер М.И., Игнатьев Ф.Н. — ЖЭТФ, 1983, т.84, с.760.
8. Carpenter J.M., Pelizzari C.A. — Phys.Rev.B, 1975, v.12, p.2391, 2397.
9. Buchenau U. — Zeit.Phys.B, 1985, v.58, p.181.
10. Динамические свойства твердых тел и жидкостей. Исследования методом рассеяния нейтронов (под ред. С.Лавси, Т.Шпрингер). М., Мир, 1980.
11. Боголюбов Н.Н., Тябликов С.В. — ДАН СССР, 1959, т.126, с.53.
12. Аксенов В.Л., Плакида Н.М., Стаменкович С. Рассеяния нейтронов сегнетоэлектриками. М., Энергоатомиздат, 1984.
13. Vujičić G.M., Plakida N.M. — Physica, 1984, v.128A, p.541.
14. Black J.L. — In: Glassy metals, v.1 (Ed. H.J.Guntherodt, H.Beck), Berlin, Springer, 1981.

Рукопись поступила в издательский отдел
26 ноября 1986 года.

Вуйичич Г.М., Плакида Н.М., Стаменкович С. P17-86-761

Неупругое рассеяние нейтронов в стеклах

Рассмотрена модель стекла, в которой помимо акустических фононов учитываются сильно ангармонические низкочастотные квазилокальные колебания (КЛК). Получено общее выражение для сечения неупругого рассеяния и проведена оценка сечений рассеяния на фононах и КЛК. Показано, что в области низких энергий (2-3 мэВ) оба вклада одного порядка даже при низкой концентрации ($\sim 10^{-4}$) КЛК.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод авторов

Vujičić G.M., Plakida N.M., Stamenković S.S. P17-86-761

Inelastic Neutron Scattering in Glasses

A model of glass is considered where in addition to the acoustic phonons strongly anharmonic low-frequency quasilocal vibrations (QLV) are taken into account. A general expression for the inelastic-scattering cross section is obtained and the cross sections due to the phonons and QLV are evaluated. It is shown that in the low-frequency range (2-3 MeV) both the contributions are of the same order even for a low concentration ($\sim 10^{-4}$) of QLV.

The investigation has been performed at the Laboratory of Theoretical Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986