

03,04

Электродинамические характеристики стекол составов LaBGeO_5 и LaBSiO_5 в терагерцевом и ИК-диапазонах

© Г.А. Командин¹, В.Н. Сигаев², В.И. Торгашев³, С.В. Лотарев², О.Е. Породинков¹, И.Е. Спектор¹

¹ Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия

² Международная лаборатория функциональных материалов на основе стекла, Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева, Москва, Россия

³ Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: oporodinkov@ran.gpi.ru

(Поступила в Редакцию 16 апреля 2012 г.)

Сравниваются методы расчета функций диэлектрического отклика разупорядоченных веществ по пропусканию (субмиллиметровый диапазон) и отражению (ИК диапазон) на примере функциональных стекол LaBGeO_5 и LaBSiO_5 со структурой стиллвеллита. В рамках четырехпараметрической факторизованной модели дисперсии определены диэлектрические параметры стекол LaBGeO_5 и LaBSiO_5 и выполнено соотнесение спектральных полос с фрагментами структуры.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 11-02-00810-а).

1. Введение

Новые потребности фотоники диктуют необходимость создания и всестороннего исследования функциональных стеклокристаллических материалов, обладающих нелинейно-оптическими свойствами за счет выделения в стекольной матрице нецентросимметричных фаз. Исследования монокристаллов LaBGeO_5 и LaBSiO_5 [1–3], легко выделяющихся из стекол в системе $\text{La}_2\text{O}_3\text{–B}_2\text{O}_3\text{–SiO}_2(\text{GeO}_2)$ [4,5], установили наличие в них структурных фазовых переходов, формирующих сегнетоэлектрическое состояние. В своей нецентросимметричной фазе эти кристаллы обладают пьезоэлектрическим эффектом [6] и высоким коэффициентом преобразования при генерации второй гармоники [7]. Составы обоих монокристаллов лежат в области устойчивого стеклообразования, и кристаллы могут быть переплавлены в стекла. Эти стекла кристаллизуются как с поверхности, образуя совершенные текстуры [8], так и в объеме [9], обуславливая появление квадратичной оптической нелинейности. Разработана методика формирования локальных кристаллитов в стекольной матрице LaBGeO_5 посредством термического воздействия лазерного излучения [10].

Помимо применений в оптике в качестве основы для создания лазерных сред и наноструктурированных материалов с нелинейно-оптическими свойствами, стекла LaBGeO_5 и LaBSiO_5 имеют перспективу использования в электронике благодаря необычным диэлектрическим и пьезоэлектрическим свойствам стеклокристаллических материалов, получаемых их кристаллизацией. Огромные аномалии на температурных зависимостях диэлектрической проницаемости и нелинейно-оптические свойства открывают широкую перспективу формирования емкост-

ных, резонаторных и электрооптических интегральных элементов.

2. Методика дисперсионного анализа для стекла

Методы инфракрасной и субмиллиметровой спектроскопии позволяют напрямую рассчитывать действительную и мнимую части функции диэлектрического отклика. Таким способом можно получить практически значимые спектры диэлектрической проницаемости и потерь в данном материале, сформированные колебаниями дипольных подсистем.

Наибольшую трудность при описании и моделировании экспериментальных спектров отражения и пропускания стекол представляет диффузный характер их спектрального отклика. Существующие методики расчета, основанные на гармонических моделях, позволяют с хорошей точностью описать спектры отражения в ИК-диапазоне. Эти методики основаны на трехпараметрической аддитивной модели Лоренца, в рамках которой диэлектрический отклик можно представить суммой независимых гармонических осцилляторов

$$\varepsilon(\nu) = \varepsilon_\infty + \sum_{j=1}^n \frac{\Delta\varepsilon_j \nu_j^2}{\nu_j^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_j}. \quad (1)$$

Здесь $\Delta\varepsilon_j$ — диэлектрический вклад моды в статическую диэлектрическую проницаемость, ν_j — резонансная частота (частота поперечного оптического фонона), γ_j — затухание j -той моды.

В работе [11] дано развитие модели Лоренца в предположении частотного распределения осцилляторов со

статистическим весом σ . Предложенная модель представляет собой сумму гауссовых контуров

$$\hat{\varepsilon}(\nu) = \varepsilon_\infty + \sum_{j=1}^J \frac{S_j}{\sqrt{2\pi}\sigma_j} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp[-(x - \nu_j)^2/2\sigma_j^2]}{x^2 - \nu^2 - i\gamma_j\nu}, \quad (2)$$

где x — изменение собственной частоты осциллятора ν_j , S_j — сила осциллятора.

Учет взаимодействия пары осцилляторов с перекрывающимися контурами выполнен в [12]. Диэлектрический отклик получен в виде

$$\varepsilon(\nu) = \frac{s_1(\nu_2^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_2) + s_2(\nu_1^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_1) - 2\sqrt{s_1s_2}(\alpha + i\nu\delta)}{(\nu_1^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_1)(\nu_2^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_2) - (\alpha + i\nu\delta)^2}, \quad (3)$$

$$s_j = \Delta\varepsilon_j\nu_j^2,$$

где s_j — сила осциллятора ($j = 1, 2$), ν_j — собственная частота, γ_j — затухание, α — действительная часть константы взаимодействия, определяющая перенормировку частот ν_j , δ — мнимая часть константы взаимодействия, определяющая деформацию контуров поглощения взаимодействующих мод.

Для любой из перечисленных моделей подбор параметров для описания спектра отражения стекла является достаточно неоднозначной процедурой ввиду сильного уширения полос. Не всегда понятно, как распределены по частоте осцилляторы и как соотносятся их диэлектрические вклады при количественном описании диэлектрического отклика. Применение метода Крамерса–Кронига [13–15] для получения спектров комплексной диэлектрической проницаемости заметно снижает ошибки в определении частот и вкладов модельных осцилляторов. Но прямое применение этого метода для анализа спектров стекол ограничено из-за наличия заметной дисперсии спектра отражения на низкочастотном крае экспериментального диапазона. Кроме того, в этом частотном диапазоне стекла достаточно прозрачны, и в плоскопараллельных образцах реализуются условия для многолучевой интерференции. Из-за этих эффектов спектры отражения в дальнем ИК-диапазоне содержат большие погрешности, и применение преобразований Крамерса–Кронига к таким экспериментальным данным приводит к неприемлемым для практики ошибкам.

Спектры пропускания, измеренные в области прозрачности в субмиллиметровом диапазоне, также демонстрируют интерференционную картину, которая, однако, содержит информацию об амплитуде и фазе прошедшей волны. В отличие от спектров отражения в дальней ИК-области, погрешности спектров пропускания в субмиллиметровом диапазоне малы и позволяют точно рассчитывать оптические и диэлектрические параметры материала, не прибегая к дисперсионному анализу или интегральным преобразованиям Крамерса–Кронига. Расчет оптических и диэлектрических параметров выполняется в этом случае в рамках модели плоскопарал-

лельного слоя, заполненного средой с комплексным показателем преломления $n^* = n + ik$ (k — коэффициент экстинкции). Величины коэффициента отражения и фазы отраженной волны в субмиллиметровом диапазоне рассчитываются по формулам

$$R(\nu) = \frac{[n(\nu) - 1]^2 + k^2}{[n(\nu) + 1]^2 + k^2},$$

$$\varphi(\nu) = \arctg\left(\frac{2k(\nu)}{n^2(\nu) + k^2(\nu) - 1}\right). \quad (4)$$

Расчетные значения коэффициента отражения объединяются с экспериментальными данными в ИК-области и формируют обобщенный спектр отражения, пригодный для расчета по методу Крамерса–Кронига.

На следующем этапе проводится аппроксимация всего набора полученных спектров отражения, пропускания, действительной и мнимой частей диэлектрической проницаемости дисперсионными моделями. Параметры дисперсионных моделей подбираются таким образом, чтобы минимизировать среднеквадратичное отклонение расчетных спектров от экспериментальных спектров отражения и пропускания. Одновременно характерная дисперсия в расчетных спектрах диэлектрической проницаемости должна соответствовать дисперсии в спектрах, полученных с помощью преобразований Крамерса–Кронига. Такой поэтапный процесс позволяет получить спектры комплексной диэлектрической проницаемости стекол в широком частотном диапазоне. Ниже он продемонстрирован на примере анализа спектрального отклика стекол LaBGeO_5 и LaBSiO_5 .

Спектры отражения в частотном диапазоне 30–3000 cm^{-1} измерены на инфракрасном Фурье-спектрометре Bruker IFS113v. Конфигурация оптического тракта спектрометра обеспечивала угол падения излучения на образец в пределах 10 градусов. В среднем ИК-диапазоне (от 1000 до 5000 cm^{-1}) получены спектры пропускания. Низкочастотный участок спектра расширен до 4 cm^{-1} с применением субмиллиметрового спектрометра [16]. В этом спектрометре в качестве источников излучения используются лампы обратной волны (ЛОВ). ЛОВ генерируют монохроматическое излучение мощностью 1–20 мВт с перестройкой по частоте около 30% от центрального значения. Набор из 10 ЛОВ перекрывает частотный участок 4–40 cm^{-1} и обеспечивает динамический диапазон 10^5 – 10^6 .

3. Экспериментальные результаты

Характерные спектры пропускания и отражения для LaBGeO_5 представлены на рис. 1. На левой части графика показан спектр пропускания в субмиллиметровом диапазоне. По мере уменьшения частоты образец становится прозрачным, и в нем наблюдается многолучевая интерференция. На правой части графика приведены экспериментальные спектры отражения для

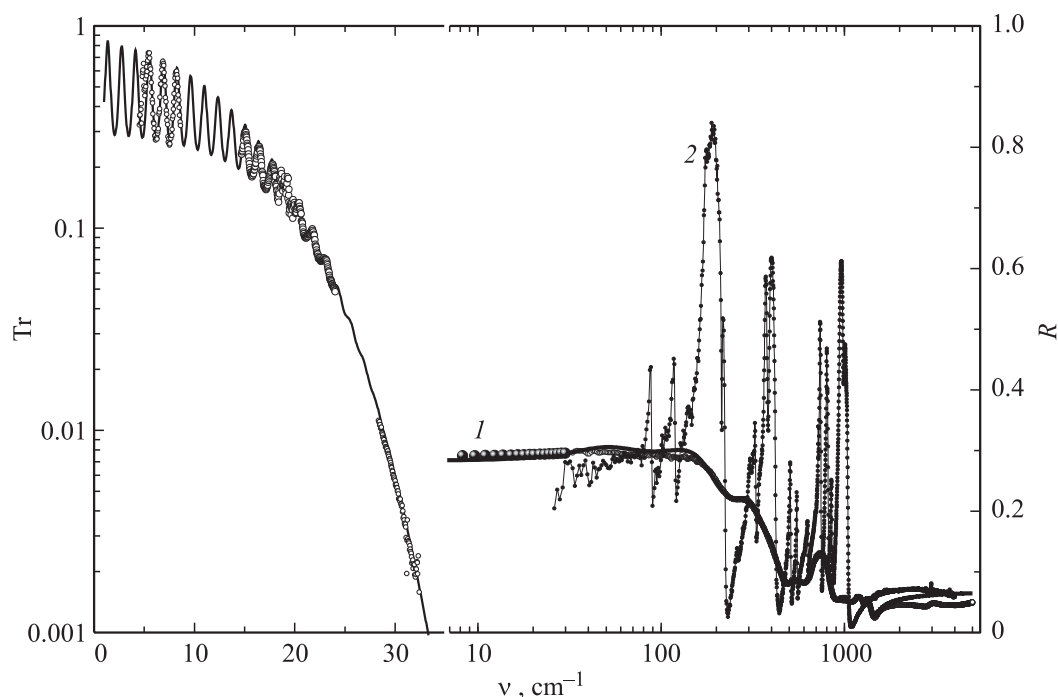


Рис. 1. Экспериментальные и расчетные спектры пропускания и отражения стекла LaBGeO_5 в субмиллиметровом и ИК-диапазонах. Символы — экспериментальные спектры, линии — расчетные спектры. 1 — спектры отражения стекла, 2 — спектры отражения монокристалла (ориентация \mathbf{E} параллельно сегнетоэлектрической оси).

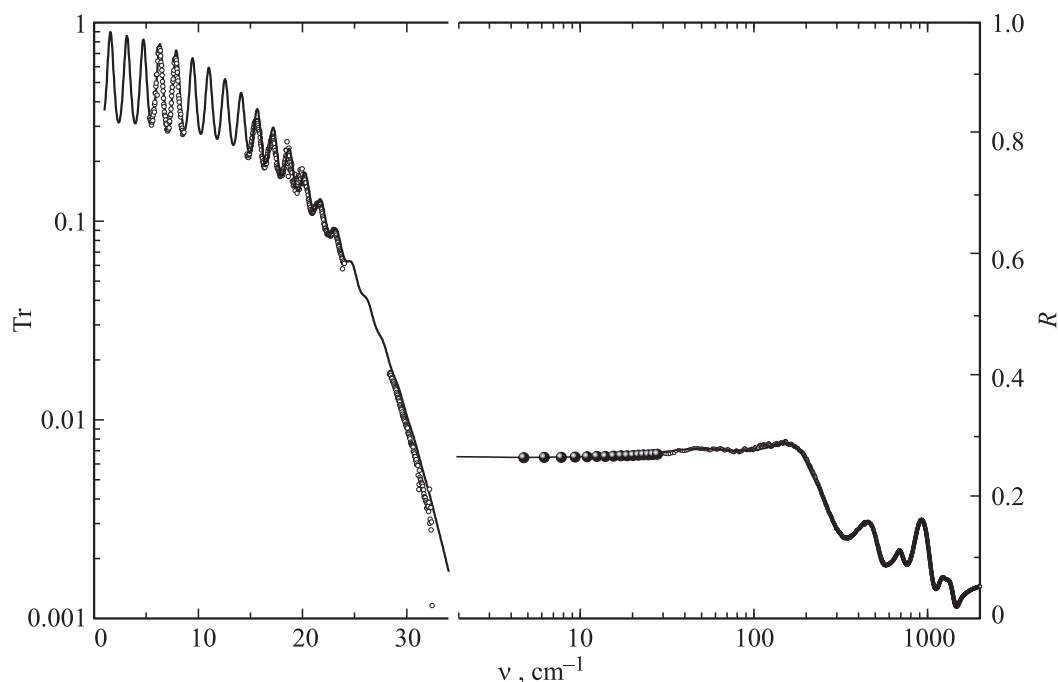


Рис. 2. Экспериментальные и расчетные спектры пропускания и отражения стекла LaBSiO_5 в субмиллиметровом и ИК-диапазонах. Символы — экспериментальные спектры, линии — расчетные спектры.

стекла и монокристалла (для сравнения). Спектр монокристалла измерен в геометрии, когда электрический вектор излучения \mathbf{E} параллелен сегнетоэлектрической оси. Низкочастотный участок спектра отражения стекла дополнен расчетными величинами, полученными из

спектра пропускания (крупные точки). Аналогичный набор экспериментальных спектров получен для стекла LaBSiO_5 (рис. 2). На обоих рисунках точками обозначены экспериментальные данные, сплошной линией — результаты подгонки дисперсионными моделями.

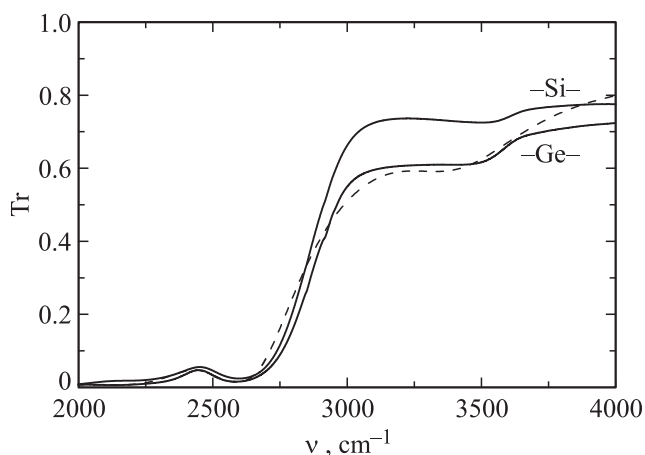


Рис. 3. Экспериментальные спектры пропускания стекол $LaBGeO_5$ и $LaBSiO_5$ в среднем ИК-диапазоне. Штриховая линия — расчетный спектр пропускания для стекла $LaBGeO_5$.

Расчет спектров диэлектрического отклика дисперсионным моделированием в приближении модели (1) приводит к хорошему соответствию с экспериментом только для спектров ИК-отражения. Большая ширина полос поглощения требует больших величин затухания для модельных осцилляторов, что в субмиллиметровом диапазоне приводит к большим потерям, чем это получается из эксперимента. Применение модели (3) также имеет определенные ограничения. Взаимодействие

вводится только для двух мод, имеющих одинаковую поляризацию. В стекле требование одинаковой поляризации не критично, но взаимодействует между собой гораздо большее число мод. Это видно из сравнения спектров отражения стекла и кристалла (рис. 1) [17,18]. В такой ситуации наиболее оправданным для расчета диэлектрических спектров стекла является применение четырехпараметрической факторизованной модели дисперсии Лиддена–Сакса–Теллера (LST) [19–21]. В ней взаимодействие мод учтено в мультипликативном характере модели, а асимметричность контуров поглощения — в разделении продольной γ_{LO} и поперечной γ_{TO} компонент затухания

$$\epsilon(\nu) = \epsilon_\infty \prod_j \frac{\nu_{jLO}^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_{jLO}}{\nu_{jTO}^2 - \nu^2 + i\nu\gamma_{jTO}} \tag{5}$$

Диэлектрический вклад каждой моды в модели LST (5) не присутствует явно, но может быть рассчитан из соотношения

$$\Delta\epsilon_j = \epsilon_\infty \frac{\nu_{jLO}^2 - \nu_{jTO}^2}{\nu_{jTO}^2} \prod_{k \neq j} \frac{\nu_{kLO}^2 - \nu_{jTO}^2}{\nu_{kTO}^2 - \nu_{jTO}^2} \tag{6}$$

На рис. 1 и 2 сплошными линиями показаны расчетные спектры отражения и пропускания, выполненные по этой модели.

На рис. 3 представлены экспериментальные спектры пропускания стекол $LaBGeO_5$ и $LaBSiO_5$ в среднем

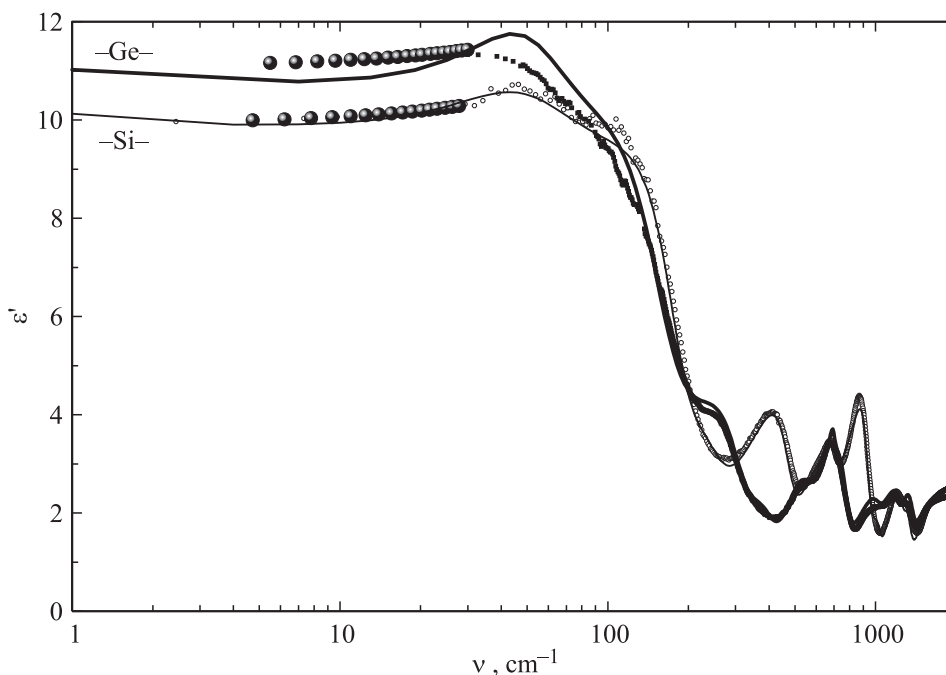


Рис. 4. Спектры действительной части диэлектрической проницаемости стекол. Ge — $LaBGeO_5$ и Si — $LaBSiO_5$. Крупные символы — значения ϵ' , рассчитанные из спектров пропускания в субмиллиметровом диапазоне; мелкие символы — результат интегральных преобразований по методу Крамерса–Кронига спектров отражения с добавлением значений, рассчитанных по субмиллиметровым данным; сплошные линии — расчет по модели (5).

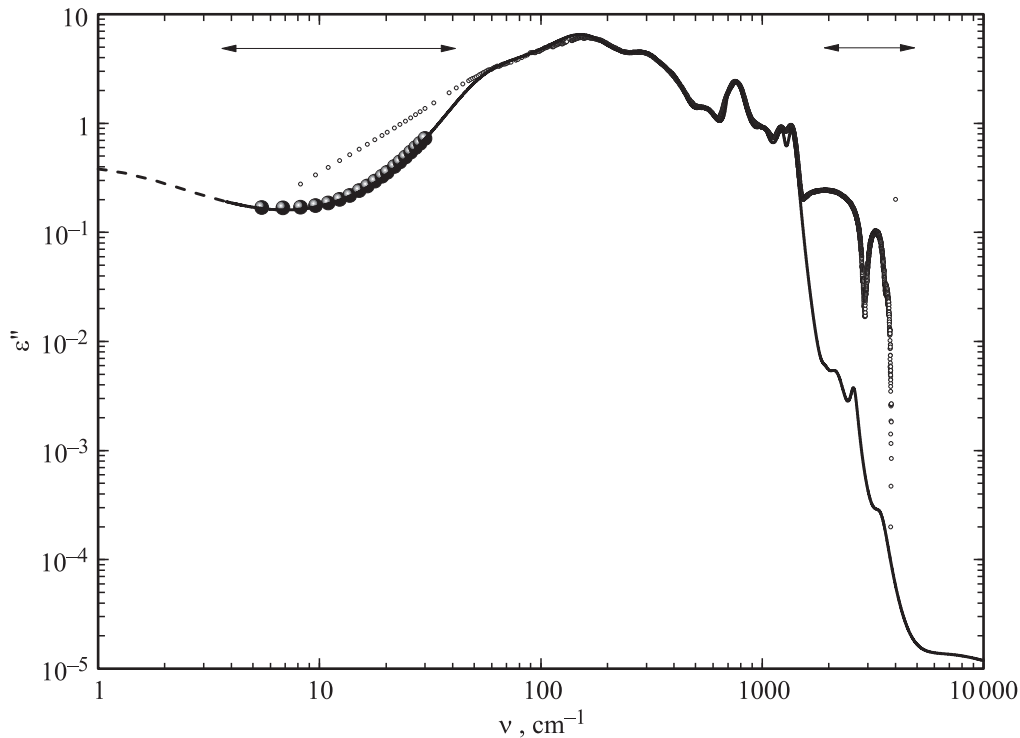


Рис. 5. Спектр мнимой части диэлектрической проницаемости стекла LaBGeO_5 . Мелкие окружности — результат расчета по методу Крамерса–Кронига; крупные точки — расчет по формулам плоскопараллельного слоя; сплошная линия — расчет по параметрам дисперсионной модели (5); пунктир — экстраполяция на низкие частоты. Стрелками показаны области прозрачности.

ИК-диапазоне. Штриховой линией показан результат моделирования спектра пропускания стекла LaBGeO_5 . Расхождения между экспериментальным и расчетным спектрами на частотах выше 3500 cm^{-1} обусловлены интерференцией в области прозрачности образца. Экспериментально в этом частотном диапазоне интерференция не получена из-за необходимости высокого разрешения спектрометра и высокого оптического качества приготовления образца.

На рис. 4 приведены спектры действительной части диэлектрической проницаемости стекол LaBGeO_5 и LaBSiO_5 . Мелкими точками показаны значения, полученные из спектров отражения по методу Крамерса–Кронига с учетом данных в субмиллиметровом диапазоне. Величины $\epsilon'(\nu)$, рассчитанные по формулам пропускания плоскопараллельного слоя (4), показаны крупными точками. Сплошная линия — расчет по модели (5). Наблюдаются заметные различия между расчетным спектром по модели (5), данными субмиллиметровых измерений и расчетом по методу Крамерса–Кронига. Эти расхождения обусловлены необходимостью компромисса в описании полного набора экспериментальных данных. Добавление спектров пропускания в среднем ИК-диапазоне в набор данных для расчета диэлектрической функции традиционно приводит к противоречиям между симметричным контуром в модели (1) и высоким поглощением на высоких частотах, а также резким просветлением образца на частотах выше ν_{LO} . Проблема

решается подбором величин продольных и поперечных затуханий всех мод в модели LST таким образом, чтобы минимизировать среднеквадратичные отклонения расчетных спектров от экспериментальных по полному набору экспериментальных данных. Ранее отмечено, что такой набор данных содержит спектры пропускания в субмиллиметровом и среднем ИК-диапазонах, спектры отражения в ИК-диапазоне и спектры комплексной диэлектрической проницаемости, рассчитанные по методу Крамерса–Кронига.

На рис. 5 приведен спектр мнимой части диэлектрической проницаемости стекла LaBGeO_5 . Стрелками на рисунке обозначены области высокой прозрачности образца. На этих частотных участках наблюдается максимальное расхождение между спектрами, полученными по дисперсионным моделям и по преобразованиям Крамерса–Кронига. В субмиллиметровом диапазоне расхождения определены слабой чувствительностью коэффициента отражения к дисперсии в $\epsilon''(\nu)$. Поэтому определение диэлектрических потерь с достаточной точностью возможно только из расчетов по спектрам пропускания плоскопараллельного слоя.

Высокочастотный участок спектра, рассчитанный по методу Крамерса–Кронига, имеет существенные погрешности, определяемые особенностями регистрации спектра отражения плоскопараллельной пластины в области прозрачности методами ИК-Фурье-спектроскопии. Критическими факторами при этом являются разрешающая

Таблица 1. Результаты дисперсионного анализа экспериментальных спектров по модели (5) для стекла LaBGeO_5 ($\epsilon_\infty = 2.869$, $n = 1.694$)

N	ν_{TO}, cm^{-1}	$\gamma_{TO}, \text{cm}^{-1}$	ν_{LO}, cm^{-1}	$\gamma_{LO}, \text{cm}^{-1}$	$\Delta\epsilon$	f, cm^{-2}	Соотнесение
1	4.92	31.65	5.11	31.88	0.823	19.9	Релаксация
2	54.6	60.6	57.8	72.8	1.22	3637.0	Бозонный пик
3	162.6	136.9	207.0	155.2	4.06	107334.4	Смещение La [25]
4	314.1	161.6	357.2	146.1	1.34	132202.8	$\delta\text{-GeO}_4$ and BO_4 [25]
5	407.5	134.2	444.2	124.1	0.42	69743.6	$\delta\text{-GeO}_4$ and BO_4 [25]
6	553.1	148.4	575.1	156.6	0.21	64243.1	$\delta\text{-BO}_4$ [25]
7	697.8	39.7	699.7	44.6	0.02	9738.5	$\nu\text{-GeO}_4$ and BO_4 [25]
8	767.4	137.6	816.9	158.7	0.33	194337.9	$\nu\text{-GeO}_4$ [25]
9	1027.5	162.1	1040.3	154.3	0.06	63345.4	$\nu\text{-BO}_4$ [25]
10	1245.5	114.0	1252.8	96.2	0.03	46538.1	3 coord B
11	1370.0	157.5	1399.3	143.8	0.1	187690.0	3 coord B
12	1930.00	200	1930.05	200	0.00013	484.2	$e\text{-La}$
13	2160.00	500	2160.47	500	0.00115	5365.4	Примеси + $e\text{-La}$
14	2595.00	230	2592.12	230	0.00025	1683.5	Примеси + $e\text{-La}$
15	3415.00	600	3415.02	600	0.00003	349.9	$e\text{-La}$

Таблица 2. Результаты дисперсионного анализа экспериментальных спектров по модели (5) для стекла LaBSiO_5 ($\epsilon_\infty = 2.993$, $n = 1.694$)

N	ν_{TO}, cm^{-1}	$\gamma_{TO}, \text{cm}^{-1}$	ν_{LO}, cm^{-1}	$\gamma_{LO}, \text{cm}^{-1}$	$\Delta\epsilon$	f, cm^{-2}
1	6.87	49.9	7.01	50.25	0.413	19.5
2	54.9	76.6	58.38	89.75	1.18	3556.5
3	185	126.8	219.3	115.7	3.35	107334.4
4	253.7	127.75	293.05	146.1	0.915	58892.8
5	476.2	147.4	521.2	130.5	0.715	162138.0
6	589.8	136.5	598.9	145	0.079	27477.5
7	697.8	87	710.6	94.3	0.11	53561.7
8	930.4	140.5	987.2	158.2	0.398	344526.4
9	1044	84	1058.6	84.9	0.045	49047.1
10	1273	104.9	1278.4	89.1	0.03	48998.5
11	1344	157.1	1387	134.6	0.139	251080.7
12	2245.00	280	2245.08	280	0.00019	957.6
13	2611	270	2611.12	270	0.00025	1704.3
14	3620.00	500	3620.01	500	0.00002	262

способность спектрометра и метод оцифровки интерферограммы.

Сплошной линией показан спектр, полученный по модели (5). Высокочастотный участок рассчитан по спектрам пропускания в ИК-диапазоне и отражает поглощение на многочастичных переходах. На низкочастотном участке подгонка выполнена по субмиллиметровым данным (показаны крупными точками). В области полос поглощения получена высокая точность совпадения расчетных спектров, полученных по модели (5) и по методу Крамерса–Кронига. Параметры дисперсионной модели (5) для стекол LaBGeO_5 и LaBSiO_5 приведены в табл. 1 и 2.

Формально первый осциллятор моделирует высокочастотный хвост от динамического вклада низкочастотных α - и β -релаксаций. Он отвечает за слабый рост ϵ'' по

мере понижения частоты. На рис. 5 экстраполяция на низкие частоты спектра $\epsilon''(\nu)$ в рамках этой модели показана пунктиром для частот ниже 3 cm^{-1} .

Осцилляторы со 2 по 11 описывают полосы дипольного поглощения, зарегистрированные в спектрах отражения. Для них характерны большие величины диэлектрического вклада и силы осциллятора (табл. 1 и 2).

Осцилляторы с 12 по 15 описывают полосы поглощения в спектрах пропускания в среднем ИК-диапазоне. Низкочастотные полосы на спаде коэффициента пропускания (рис. 4) следует отнести к многочастичным процессам, примесному поглощению и электронным переходам иона La, валентные орбитали которого расщеплены кристаллическим полем. Малая величина диэлектрической проницаемости в этой области свидетельствует о высокой чистоте образцов.

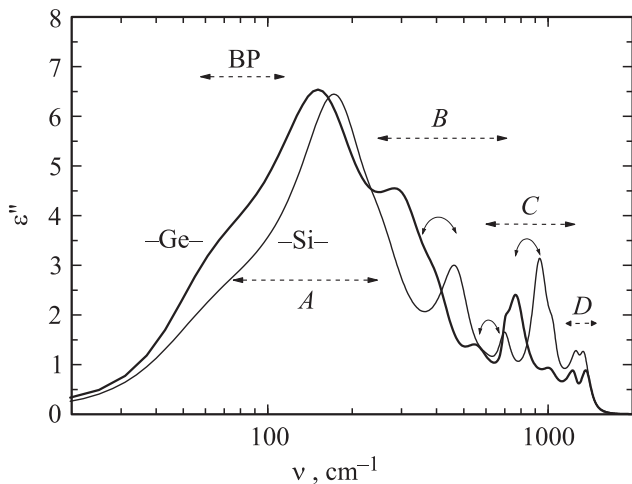


Рис. 6. Спектры мнимой части диэлектрической проницаемости стекол LaBGeO₅ — жирная линия, LaBSiO₅ — тонкая линия. Отмечены области: BP — бозонный пик, A — смещение La, вращение цепочек B(Ge/Si)O₅, качение (Ge/Si)O₄ и RUM2, B — угловые деформационные колебания в тетраэдрах δ(Ge/Si)O₄, δ(BO₄) и RUM1, C — растягивающие колебания в тетраэдрах ν(Ge/Si)O₄ и ν(BO₄), D — колебания трехкоординатного бора.

На рис. 6 приведены сравнительные спектры $\epsilon''(\nu)$ для стекол LaBGeO₅ и LaBSiO₅. Уменьшение частот нескольких поперечных оптических колебаний (осцилляторы 1, 3 и 6) сопровождается ростом диэлектрической проницаемости в LaBGeO₅ и обусловлено большей массой Ge по сравнению с Si. В субмиллиметровом диапазоне диэлектрическая проницаемость стекла LaBGeO₅ на 10% больше, чем стекла LaBSiO₅.

Высокочастотный участок колебательного спектра сформирован откликом бор-кислородных структурных элементов. Структурные трансформации в подсистеме бора определяют отличие высокочастотного участка спектров отражения монокристалла и стекла (рис. 1). Высокочастотный пик отражения кристалла определяется колебаниями тетраэдрически координированного бора. В стеклообразном же состоянии часть бора оказывается в треугольной координации [22]. Смещение колебаний на высокие частоты указывает на увеличение констант жесткости связей в бор-кислородных структурных элементах.

Интерпретация полос поглощения в спектрах $\epsilon''(\nu)$ выполнена по данным работы [23] с учетом частотного сдвига полос при замене Ge на Si. Область бозонного пика (BP) характерна только для стеклообразного состояния и не имеет аналогов в спектрах кристаллического образца. Поглощение в области A формируется смещениями иона La, вращением цепочек B(Ge/Si)O₅, качением (Ge/Si)O₄, колебаниями GeO₄/SiO₄ тетраэдров и моды жестких структурных элементов (rigid-unit modes [24] — RUM2). В области B преобладают угловые деформационные колебания в тетраэдрах δ(Ge/Si)O₄, δ(BO₄) и RUM1.

В диапазоне частот C доминирующий вклад сформирован внутренними модами тетраэдров. Согласно терминологии [23] это — валентные колебания в тетраэдрах ν(Ge/Si)O₄ и ν(BO₄).

Наличие высокочастотной полосы поглощения D характерно для обоих стекол. Это означает, что превращение „кристалл–стекло“ в процессе плавления кристалла и последующего охлаждения расплава сопровождается снижением координационного числа бора по кислороду с образованием заметного количества треугольных группировок BO₃, полностью отсутствующих в кристаллах со структурой стиллвеллита. Абсолютные величины высокочастотных пиков бор-кислородных колебаний в спектрах $\epsilon''(\nu)$ для LaBSiO₅ выше, чем в стекле LaBGeO₅. К этому эффекту приводит смещение остальных полос на высокие частоты при замене Ge на Si.

Рис. 7 иллюстрирует разложение спектра $\epsilon''(\nu)$ на контуры модельных осцилляторов. Модель (5) не позволяет напрямую рассчитать форму контура в силу ее мультипликативности. Однако форма рассчитанного контура отражает частотное поведение $\epsilon''(\nu)$, определяемое продольным и поперечным затуханиями.

Область дисперсии дипольных колебаний, включая бозонный пик, отличается резкими границами поглощения на низко- и высокочастотных границах диапазона. Бозонный пик показан серым цветом. Его низкочастотный участок имеет малую величину затухания. Это следует из необходимости подбора коэффициента пропускания в субмиллиметровом диапазоне. Заштрихованный высокочастотный контур соответствует асимметричному пику поглощения бор-кислородных тетраэдров.

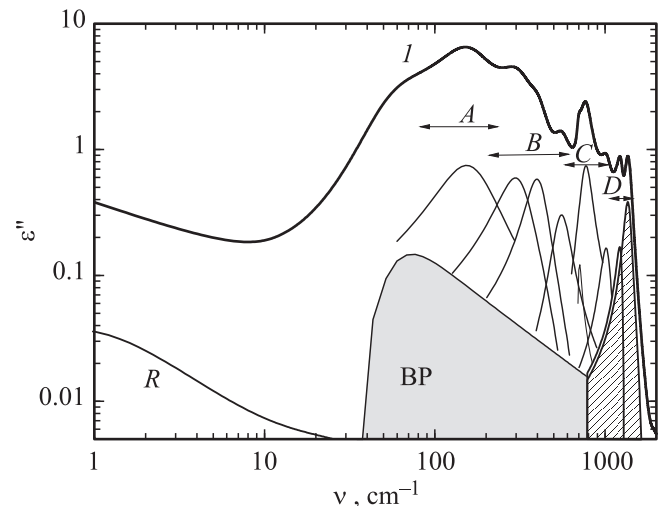


Рис. 7. Разложение спектра $\epsilon''(\nu)$ — 1 стекла LaBGeO₅ на полосы. R — релаксация, BP — бозонный пик, A — смещение La, вращение цепочек B(Ge/Si)O₅, качение (Ge/Si)O₄ и RUM2, B — угловые деформационные колебания в тетраэдрах δ(Ge/Si)O₄, δ(BO₄) и RUM1, C — растягивающие колебания в тетраэдрах ν(Ge/Si)O₄ и ν(BO₄), D — колебания трехкоординатного бора.

Асимметрия контура бозонного пика может объясняться двумя причинами: наличием взаимодействий с областью медленных и быстрых релаксаций и особенностью формирования плотности колебательных состояний при трансформации „кристалл–стекло“ [25,26]. Детальное обсуждение этого вопроса выходит за рамки данной работы.

4. Заключение

Таким образом, мы показали, что применение метода формирования частотных панорам функции диэлектрического отклика дает точную информацию о дисперсии оптических и диэлектрических параметров на низкочастотном крае области дипольных колебаний. Это позволило получить полный набор данных для численного моделирования и корректного определения параметров полос дипольного поглощения.

Список литературы

- [1] Y. Uesu, N. Horiuchi, E. Osakabe, S. Omori. *V.A. Strukov. J. Phys. Soc. Jpn.* **62**, 2522 (1993).
- [2] E.L. Belokoneva, W.I.F. David, J.B. Forsyth, K.S. Knight. *J. Phys.: Condens. Matter.* **9**, 3503 (1997).
- [3] Б.А. Струков, А. Онодера, Е.П. Рагула, С.Ю. Стефанович, И.В. Шнайдштейн, С.В. Архангельская. *ФТТ* **40**, 1310 (1998).
- [4] V.N. Sigaev, S.V. Lotarev, E.V. Orlova, S.Yu. Stefanovich, P. Pernice, A. Aronne, E. Fanelli, I. Gregora. *J. Non-Cryst. Solids.* **353**, 1956 (2007).
- [5] *Mater. Sci. Eng.* **B 32**, 17 (1995).
- [6] Е.В. Милов, Б.А. Струков. *ФТТ* **43**, 495 (2001).
- [7] J. Campany, J. Garsia Solé. *Appl. Phys. Lett.* **70**, 19, 2517 (1997).
- [8] В.Н. Сигаев, Е.В. Лопатина, П.Д. Саркисов и др. *Физика и химия стекла* **22**, 2, 153 (1996).
- [9] P. Gupta, H. Jain, D.B. Williams, O. Kanert, R. Kuechler. *J. Non-Crystalline Solids* **349**, 291 (2004).
- [10] A. Stone, M. Sakakura, Y. Shimotsuma, G. Stone, P. Gupta, K. Miura, K. Hirao, V. Dierolf, H. Jain. *Optics Express* **17**, 23 284 (2009).
- [11] A.M. Efimov. *J. Non-Cryst. Solids* **203**, 1 (1996).
- [12] A.S. Barker, J.J. Hopfield. *Phys. Rev.* **135**, A1732 (1964).
- [13] R. de Kronig. *J. Opt. Soc. Am.* **12**, 547 (1926).
- [14] H.A. Kramers. *Atti Cong. Intern. Fisica (Transaction of Volta Centenary Congress) Como (1927).* V. 2. P. 545.
- [15] T.S. Robinson. *Progr. Roy. Soc. London* **1365**, 910 (1952).
- [16] G. Kozlov, A. Volkov. *Topics in applied physics. V. 74. Millimeter and submillimeter spectroscopy of solids / Ed G. Gruner. Springer (1998).* P. 51.
- [17] I. Hruby, S. Kamba, J. Petzelt, I. Gregora, Z. Zikmund, D. Ivannikov, G. Komandin, A. Volkov, B. Strukov. *Phys. Stat. Sol.* **B 214**, 423 (1999).
- [18] Э.Н. Смелянская, В.Н. Сигаев, А.А. Волков, В.В. Войцеховский, Г.А. Командин, В.Д. Шигорин, А.А. Каминский. *Физика и химия стекла* **23**, 436 (1997).
- [19] R.H. Lyddane, R.G. Sachs, E. Teller. *Phys. Rev.* **59**, 673 (1941).
- [20] Tatsumi Kurosawa. *J. Phys. Soc. Jpn.* **16**, 1298 (1961).
- [21] A.S. Chaves, S.P.S. Porto. *Solid State Commun.* **13**, 865 (1973).
- [22] P. Gupta, H. Jain, D.B. Williams, O. Kanert, R. Kuechler. *J. Non-Cryst. Solids* **349**, 291 (2004).
- [23] M.V. Smirnov, A.V. Menschikova, I. Kratochvilova-Hruby, Z. Zikmund. *Phys. Stat. Sol.* **B 241**, 1017 (2004).
- [24] K.D. Hammonds, M.T. Dove, A.P. Giddy, V. Heine, B. Winkler. *Am. Mineral.* **81**, 1057 (1996).
- [25] R. Zorn. *Phys. Rev.* **B 81**, 054208 (2010).
- [26] В.К. Малиновский, В.Н. Новиков, А.П. Соколов. *Физика и химия стекла* **C 15**, 331 (1989).