

ОПТИКО-ФИЗИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИЗМЕРЕНИЙ

УДК 538.9

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СРЕДНЕКВАДРАТИЧНОЙ АМПЛИТУДЫ НАНОМЕТРОВЫХ ФЛУКТУАЦИЙ СДВИГОВОГО МОДУЛЯ В САЛОЛЕ МЕТОДОМ НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ СВЕТА

© С. В. Адищев, И. В. Зайцева, В. А. Зыкова, В. К. Малиновский, В. Н. Новиков

*Институт автоматизации и электрометрии СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Коптюга, 1
E-mail: novikov@iae.nsk.su*

Наличие среднего порядка в стеклообразных материалах, т. е. структурных корреляций на масштабах нанометра, приводит к флуктуациям упругих констант с таким же характерным радиусом корреляции. Вопрос о том, какова характерная амплитуда этих флуктуаций, представляет большой интерес как с прикладной точки зрения, так и с точки зрения фундаментального понимания структуры и динамики стеклообразных материалов. В данной работе находится величина среднеквадратичных флуктуаций сдвигового модуля на нанометровом масштабе в молекулярном стекле салоле (фенилсалицилате) и её зависимость от температуры при расплавлении стекла в переохлаждённую жидкость. Для этого используется теория упругости в среде с пространственными флуктуациями упругих констант при расчёте длины пробега фононов по теории возмущений. Кроме того, в переохлаждённом состоянии материала учитывается вклад релаксации структуры в затухание фононов. С использованием критерия Иоффе — Регеля для локализации поперечных фононов находится связь между величиной флуктуаций сдвигового модуля и частотой вызванного ими так называемого бозонного пика в спектре колебательных возбуждений стёкол. Эта частота определяется из экспериментальных данных по спектрам низкочастотного неупругого рассеяния света в салоле. Сравнение с теорией позволяет найти температурную зависимость величины среднеквадратичных флуктуаций сдвигового модуля на нанометровом масштабе. Кроме того, сравнивается эта зависимость с температурным поведением параметра Ландау — Плачека в салоле. Определяется также температурная зависимость радиуса структурных корреляций в салоле и глицерине и сравнивается с температурной зависимостью размера динамической неоднородности.

Ключевые слова: бозонный пик, флуктуации упругих констант, рассеяние света.

DOI: 10.15372/AUT20230301

Введение. В отличие от кристаллов в стеклообразных материалах структура не упорядочена и нет дальних корреляций в положении атомов. Тем не менее дифракционные данные свидетельствуют о наличии так называемого среднего порядка, т. е. корреляций структуры на масштабах одного или нескольких нанометров [1, 2]. Наличие среднего порядка в стеклообразных материалах приводит к флуктуациям упругих констант с таким же характерным радиусом корреляции. Вопрос о том, какова характерная амплитуда этих флуктуаций, представляет большой интерес как с прикладной точки зрения, так и с точки зрения фундаментального понимания структуры и динамики стеклообразных материалов. В данной работе находится величина среднеквадратичных флуктуаций сдвигового модуля на нанометровом масштабе в молекулярном стекле салоле (фенилсалицилате, $C_{12}H_{10}O_3$) и её зависимость от температуры при расплавлении стекла в переохлаждённую жидкость.

Этот подход основан на том, что нанометровые неоднородности упругих констант приводят к изменению спектра акустических колебательных возбуждений, информацию о

которых можно получить из спектров низкочастотного неупругого рассеяния света. Из-за неупорядоченной структуры стеклообразные материалы обладают гораздо более сложной колебательной и релаксационной динамикой, чем кристаллы. Наиболее заметной особенностью, отличающей спектр акустических колебаний в стёклах от спектра акустических колебаний в кристаллах, является бозонный пик, который как раз и является проявлением пространственной неоднородности сдвигового модуля на нанометровом масштабе [3]. Он виден в плотности колебательных состояний, нормированной на дебаевскую (которую можно было ожидать в соответствующем кристалле) как пик в области частот порядка 1 ТГц. Эта особенность спектра вызвана избыточными (по сравнению с дебаевским случаем) колебаниями с длиной волны, в несколько раз превышающей размер молекулы, что соответствует типичной длине среднего порядка 1–3 нм. Избыточные колебания проявляются в виде пика в спектрах рассеяния света и нейтронов, ИК-поглощения.

Теория неоднородной упругости позволяет выразить такие параметры бозонного пика, как его частота и амплитуда, через радиус и амплитуду пространственных флуктуаций модуля сдвига в стёклах на нанометровом масштабе. Соответственно может быть решена и обратная задача — по экспериментальным данным о параметрах бозонного пика и радиуса корреляции можно оценить среднеквадратичные флуктуации модуля сдвига. В представленной работе этот метод используется для нахождения среднеквадратичных флуктуаций модуля сдвига в стеклообразном и переохлаждённом жидком состоянии салола в зависимости от температуры. Параметры бозонного пика находились по спектрам неупругого рассеяния света, а радиус корреляции — по ширине первого острого дифракционного пика. С помощью критерия Иоффе — Регеля [4] для поперечных акустических колебаний найдена связь между частотой бозонного пика и среднеквадратичной флуктуацией модуля сдвига. Вклад эффектов структурной релаксации в затухание фононов становится существенным при повышении температуры и, таким образом, в значительной степени определяет температурную зависимость среднеквадратичных флуктуаций модуля сдвига.

Был найден также параметр Ландау — Плачека, т. е. отношение интеграла по рэлеевскому рассеянию света к интегралу по дублету бриллюэновских линий для салола. Как рэлеевское рассеяние, так и бозонный пик в этих материалах связаны с пространственными флуктуациями упруго-оптических констант, поэтому можно ожидать корреляций в температурном поведении таких разных спектральных черт.

Теория. Пространственные флуктуации модулей упругости приводят к рассеянию акустических колебаний. В данной работе подход основан на расчёте длины свободного пробега колебания $l(\omega)$ или связанного с ним времени жизни $\tau(\omega) = l(\omega)/c$, где c — скорость звука. Интерес представляют поперечные акустические колебания и соответственно сдвиговый модуль упругости G , так как именно они определяют параметры бозонного пика [3]. Время жизни поперечного акустического колебания $\tau(\omega)$ можно вычислить, используя теорию упругости и теорию возмущений по малому параметру — относительной среднеквадратичной флуктуации упругого модуля на масштабах среднего порядка:

$$\gamma^2 = \frac{\langle(\delta G)^2\rangle}{\langle G\rangle^2}. \quad (1)$$

Получив $\tau(\omega)$ как функцию γ^2 , далее применим критерий Иоффе — Регеля для локализации акустических колебаний, который заключается в том, что рассмотрение фонона как распространяющейся плоской волны теряет смысл, если длина свободного пробега становится равной порядку длины волны колебания [4]. В терминах времени жизни этот критерий принято записывать в виде

$$\tau^{-1}(\omega) = \omega/2\pi. \quad (2)$$

Учитываем два вклада в затухание фонона на частотах вблизи бозонного пика, первый из которых вызван статическим беспорядком структуры и соответствующим фононным затуханием $\tau_s^{-1}(\omega)$, а второй является релаксационным вкладом, возникающим из-за локальной быстрой (пикосекундной) β -релаксации [5]:

$$\tau^{-1}(\omega) = \tau_s^{-1}(\omega) + \tau_{rel}^{-1}(\omega). \quad (3)$$

Время жизни определяется собственно энергетической функцией колебания $\Sigma(k, \omega)$:

$$\tau^{-1}(\omega) = \text{Im } \Sigma(k, \omega)|_{k=\omega/c_t}, \quad (4)$$

которая входит в колебательную восприимчивость $\chi(k, \omega)$:

$$\chi(k, \omega) = \frac{1}{\omega_k^2 - \omega^2 - \omega_k \Sigma(k, \omega)}, \quad (5)$$

где $\omega_k = c_t k$, c_t — поперечная скорость звука, k — волновой вектор. Расчёт затухания поперечных фононов в стёклах за счёт рассеяния на статических флуктуациях упругих модулей с аккуратным учётом всех трёх ветвей акустических колебаний (продольной и двух поперечных) был произведён в [6]. Для расчёта $\Sigma(k, \omega)$ использовалась теория возмущений по γ^2 и вводилась функция корреляции флуктуаций сдвигового модуля в виде

$$F(r) = \langle \delta G(\mathbf{R}) \delta G(\mathbf{r} + \mathbf{R}) \rangle / \langle G \rangle^2 = \gamma^2 e^{-r/R_c}, \quad (6)$$

где R_c — корреляционный радиус, который был найден из данных [7] по ширине первого острого дифракционного пика ΔQ как $R_c = 2\pi/\Delta Q$ (здесь ΔQ — полная ширина на полувысоте). Для относительной среднеквадратичной флуктуации упругого модуля на масштабах среднего порядка [6] результатом расчёта является выражение

$$\gamma_0^2 = \frac{R_b^3}{4\pi f R_c^3}, \quad (7)$$

где $R_b = c_t/\omega_b$ — характерная длина волны поперечных колебаний на частоте бозонного пика ω_b , а f — безразмерная функция параметров R_c/R_b и c_t/c_l :

$$f = \frac{c_t^5}{c_l^5} \left[Z_2\left(\frac{1}{R_b}, \frac{1}{R_b} \frac{c_t}{c_l}\right) - Z_4\left(\frac{1}{R_b}, \frac{1}{R_b} \frac{c_t}{c_l}\right) \right] + Z_4\left(\frac{1}{R_b}, \frac{1}{R_b}\right) - \frac{3}{4} Z_2\left(\frac{1}{R_b}, \frac{1}{R_b}\right) + \frac{1}{4} Z_0\left(\frac{1}{R_b}, \frac{1}{R_b}\right).$$

Здесь функции $Z_n(k, k_1)$ определяются выражением

$$Z_n(k, k_1) = \int_{-1}^1 \frac{x^n dx}{(1 + k_1^2 R_c^2 + k^2 R_c^2 - 2kk_1 R_c^2 x)^2}.$$

В уравнении (7) индекс 0 подчёркивает, что это значение γ^2 получено без учёта релаксационного вклада. Для учёта релаксационного вклада в затухание колебаний в собственно энергетическую функцию в (4) необходимо добавить релаксационный член. Будем использовать приближение одного времени релаксации. Как показано в [8], в этом случае затухание колебания можно описать как его взаимодействие с некоторой релаксационной модой, которая характеризуется временем релаксации τ и параметром взаимодействия с

колебательной модой δ . Для колебательной моды с частотой Ω имеет место соотношение $\delta = \delta_0 \Omega$ [8], где δ_0 — безразмерная константа, характеризующая интенсивность релаксации. В этом приближении релаксационная добавка описывается дебаевской функцией $\delta^2/(1 + i\omega\tau)$, так что релаксационный вклад в затухание, определяемый уравнениями (3) и (4), вблизи бозонного пика будет иметь вид

$$\tau_{rel}^{-1}(\omega_b) = \frac{\delta_0^2 \omega_b^2 \tau}{1 + \omega_b^2 \tau^2}. \quad (8)$$

Таким образом, применяя критерий Иоффе — Релея (2) на частоте бозонного пика, имеем

$$\tau^{-1}(\omega_b) = \frac{\omega_b}{2\pi} = h\gamma^2 + \tau_{rel}^{-1}(\omega_b),$$

где h — некоторая константа, определяющая вклад статических флуктуаций G . Она может быть найдена из соотношения Иоффе — Релея для случая, когда релаксационный вклад не учитывается:

$$\frac{\omega_b}{2\pi} = h\gamma_0^2,$$

где γ_0^2 определено уравнением (7). В результате имеем

$$\gamma^2 = \gamma_0^2 \left(1 - \frac{2\pi\delta_0^2 \omega_b \tau}{1 + (\omega_b \tau)^2} \right). \quad (9)$$

Как видно из (9), учёт структурной релаксации уменьшает рассчитанное значение среднеквадратичных флуктуаций, причём этот фактор тем больше, чем выше температура, так как интенсивность релаксации δ_0 , очевидно, растёт с температурой.

Схема расчёта γ^2 , таким образом, заключается в том, чтобы, зная экспериментальные значения частоты бозонного пика ω_b , скоростей звука c_t и c_l , а также корреляционный радиус R_c , вычислить γ_0^2 по формуле (7), затем, определив релаксационные параметры δ_0 и τ подгонкой спектров бозонного пика и быстрой релаксации, найти γ^2 из (9).

Эксперимент. Салол был приобретён у компании Aldrich. Образец жидкости помещался в кювету общей толщиной 3 мм с толщиной внутреннего пространства 1 мм. Эксперимент по рассеянию деполяризованного света проводился в конфигурации обратного рассеяния на 3 + 3 проходном тандемном интерферометре Фабри — Перо конструкции Сандеркока. Рассеяние света возбуждалось твердотельным лазером с длиной волны 532,1 нм и мощностью 200 мВт. В эксперименте использовалось несколько свободных спектральных диапазонов от 7 до 300 ГГц. Измерения при разных температурах проводились с помощью азотного проточного криостата. Образец салола был исследован в интервале температур от 210 до 260 К. Кроме того, спектр рассеяния света измерялся в спектральном диапазоне от 5 до 530 см⁻¹ на многоканальном рамановском спектрометре с тройной решёткой TriVista 777. Комбинация спектров комбинационного рассеяния и тандемного спектра позволила получить спектры рассеяния света в салоле от 0,4 ГГц до 7 ТГц. Другие детали об использованной аппаратуре можно найти в [9].

Спектры Рэля — Бриллюэна в геометрии 90° рассеяния измерялись на самодельном интерферометре Фабри — Перо. Свободный спектральный диапазон равнялся 18,75 ГГц. Экспериментальная добротность оптического интерферометра составляла ~30. Рассеяние света возбуждалось твердотельным лазером (Excelsior, Spectra Physics) с длиной волны 532,1 нм и мощностью 100 мВт.

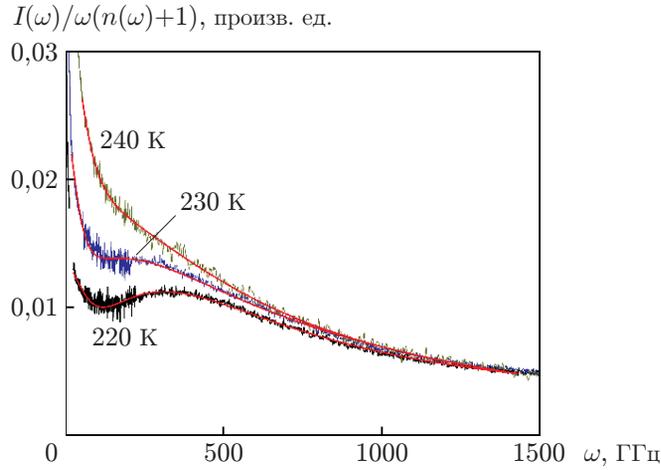


Рис. 1. Спектры рассеяния света в салоле, нормированные на температуру (сплошные линии — подгонка уравнением (10))

Результаты. Спектры рассеяния света в салоле в стеклообразном состоянии и выше температуры стеклования $T_g = 218$ К (переохлаждённая жидкость) показаны на рис. 1. Они приведены в нормировке на $\omega(n(\omega) + 1) \sim T$, чтобы убрать тривиальный рост интенсивности с температурой T за счёт увеличения числа фононов, пропорциональный Бозе-фактору $n(\omega) = 1/(\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1)$. Чтобы найти параметры бозонного пика и быстрой релаксации, спектры рассеяния света подгонялись интегральной функцией, предложенной в [8]:

$$I(\omega) = \frac{2}{\pi} \int \frac{I_0(\Omega) \delta_0^2 \Omega^4 \tau / (1 + (\omega\tau)^2)}{(\Omega^2 - \omega^2 - \delta_0^2 \Omega^2 / (1 + (\omega\tau)^2))^2 + (\delta_0^2 \Omega^2 \omega \tau / (1 + (\omega\tau)^2))^2} d\Omega, \quad (10)$$

где $I_0(\Omega)$ — спектр бозонного пика при отсутствии релаксации, который описывается лог-нормальной функцией

$$I_0(\omega) = B \exp\left(-\frac{(\ln(\omega/\omega_b))^2}{2\sigma^2}\right). \quad (11)$$

Все параметры в уравнениях (10), (11) зависят от температуры. Скорости звука c_t и c_l при различных температурах были взяты из работы [10]. Данные о температурной зависимости ширины первого острого дифракционного пика, из которых находится радиус структурных корреляций R_c , приведены в работе [7] и аппроксимируются линейной функцией $R_c = 15,5 - 0,0232T$, где T измеряется в кельвинах, а R_c — в ангстремах. При $T = T_g$ эта формула даёт $R_c \sim 1$ нм.

Температурная зависимость частоты бозонного пика и обратного времени быстрой релаксации τ^{-1} , полученные подгонкой экспериментальных спектров рассеяния света формулой (10), показаны на рис. 2. При температурах выше 250–260 К крыло быстрой релаксации настолько сильно перекрывает бозонный пик, что его не видно в спектре даже в виде небольшого плеча, поэтому подгонка спектра бозонного пика формулой (10) становится ненадёжной. Оба параметра падают с ростом температуры, при этом их отношение лежит в диапазоне 0,26–0,31, что хорошо соответствует данным в других стёклах [5]. На рис. 3 приведена температурная зависимость параметра δ_0 , описывающего интенсивность быстрой релаксации. Он растёт с температурой, что соответствует увеличению вклада быстрой релаксации в затухание фононов.

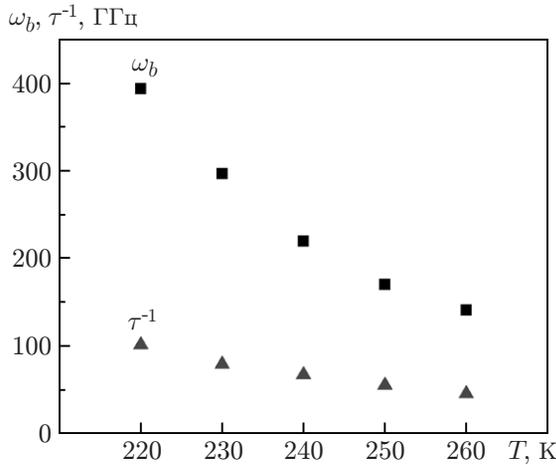


Рис. 2

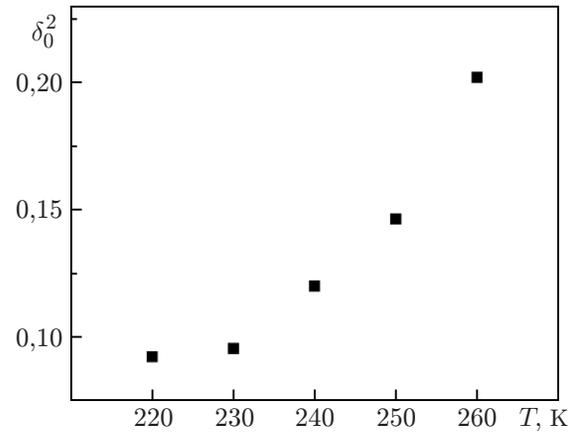


Рис. 3

Рис. 2. Частота бозонного пика (квадраты) и обратное время быстрой релаксации (треугольники), полученные подгонкой экспериментальных спектров рассеяния света формулой (10)

Рис. 3. Параметр интенсивности быстрой релаксации δ_0^2 , полученный подгонкой экспериментальных спектров рассеяния света формулой (10)

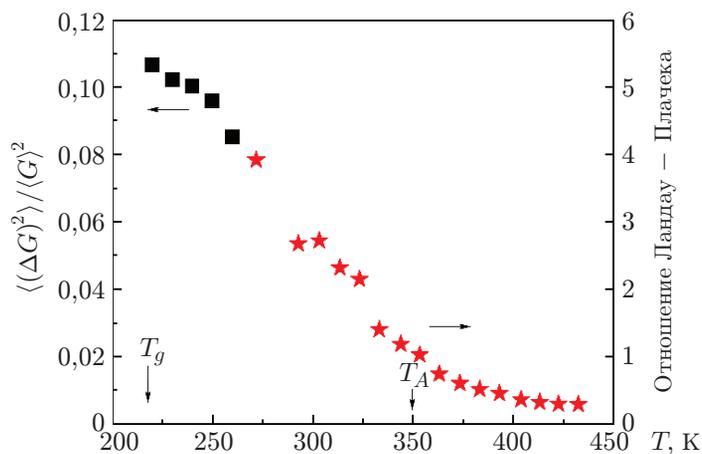


Рис. 4. Температурная зависимость относительных среднеквадратичных флуктуаций сдвигового модуля γ^2 (квадраты) и отношения Ландау — Плачека (звёздочки)

Рассчитанные значения относительных среднеквадратичных флуктуаций γ^2 показаны на рис. 4. Как видно из рисунка, пространственная неоднородность сдвигового модуля на нанометровом масштабе уменьшается при росте температуры выше T_g , когда салон находится в состоянии переохлаждённой жидкости. В данной работе имеется в виду высокочастотный модуль упругости, который определяет колебательные свойства на пикосекундных временах, в частности скорость звука c_t для поперечных колебаний. Величина γ^2 уменьшается примерно на 13 % при увеличении температуры от точки стеклования на 20 %.

На рис. 4 также произведено сравнение температурной зависимости γ^2 и отношения Ландау — Плачека. Последнее определяется как отношение $R_{LP} = I_c/2I_B$ при каждой температуре, где I_c — это интегральная интенсивность центрального рэлеевского пика, а I_B — интегральная интенсивность бриллюэновской линии. В качестве примера спектр

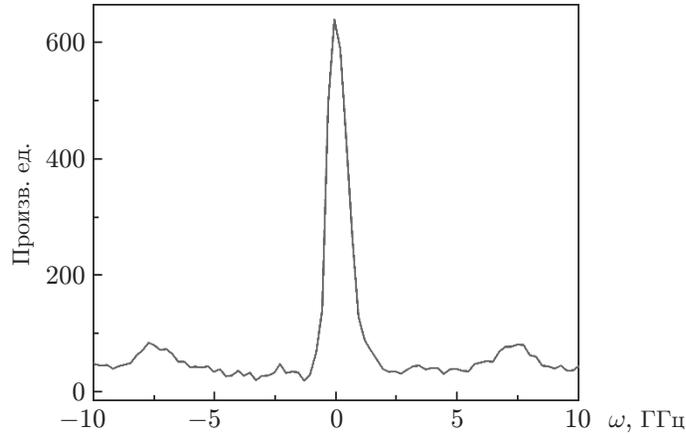


Рис. 5. Спектр центральной линии с бриллюэновскими линиями в салоле при $T = 238$ К

центральной линии с бриллюэновскими линиями в салоле показан на рис. 5.

Как рэлеевское рассеяние, так и бозонный пик в этих материалах связаны с пространственными флуктуациями структуры, и поэтому можно ожидать корреляции температурного поведения γ^2 и отношения Ландау — Плачека R_{LP} . Из рис. 4 видно, что R_{LP} падает с температурой, становясь константой вблизи так называемой температуры T_A , при которой происходит переход к аррениусовскому режиму (т. е. с постоянной энергией активации) в температурной зависимости времени структурной α -релаксации в переохлаждённых жидкостях при нагревании. Обычно $T_A \sim 2T_g$, а в салоле $T_A = 250$ К. В работе [11], в которой измерялся R_{LP} в ряде молекулярных и с водородными связями жидкостей, в том числе в салоле, предполагается, что при температуре ниже T_A в жидкости начинают возникать так называемые предпочтительные локальные структуры и структурная и динамическая неоднородности нанометрового масштаба. При дальнейшем понижении температуры увеличение R_{LP} связывается с ростом такой неоднородности. Это вполне соответствует картине роста γ^2 и появлению бозонного пика за счёт усиления нанонеоднородностей при понижении T , найденной по спектрам рассеяния света в районе бозонного пика. Данные о γ^2 и R_{LP} не перекрываются на рис. 4, и масштаб вертикальных осей выбран так, чтобы добиться соответствия наклонов в точке, где данные наиболее близки друг к другу.

Интересно сравнить температурную зависимость корреляционной длины структуры R_c с данными о характерных размерах неоднородностей, найденных из динамики структурной α -релаксации. Одним из параметров неоднородностей является активационный объём ΔV_a , характеризующий изменение активационной энергии в температурной зависимости времени α -релаксации, при приложении небольшого давления:

$$\tau_\alpha(T, P) = \tau_\alpha(T, 0) \exp\left(\frac{P \Delta V_a}{kT}\right).$$

Соответствующая длина $L_a = \Delta V_a^{1/3}$, как и R_c , порядка нанометра (0,8 нм в салоле при $T = T_g$ [7]) характеризует нанонеоднородность упругих констант, так как ΔV_a по смыслу определяется местами с наиболее слабыми упругими константами. Данные о температурной зависимости V_a в салоле были взяты из работы [12]. Сравнение температурной зависимости L_a и R_c показано на рис. 6. Для удобства сравнения параметры нормированы на их значения при T_g . Из рисунка видно, что их температурные зависимости несколько отличаются наклоном, динамическая длина L_a спадает круче, чем R_c (наклоны $-0,7$ и $-0,45$ соответственно).

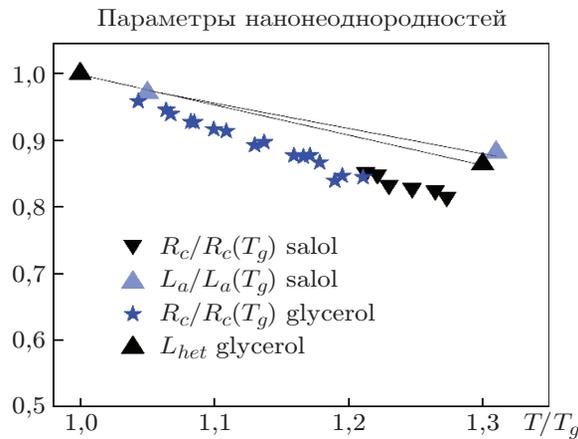


Рис. 6. Температурная зависимость R_c и L_a для салола и R_c и L_{het} для глицерина. Все длины нормированы на единицу при $T = T_g$

Динамические неоднородности, связанные с локальной неоднородностью коэффициента диффузии молекул, измерялись методами 4-мерного ядерного магнитного резонанса [13, 14] и нелинейной диэлектрической восприимчивости [15]. Для салола таких данных нет, поэтому сравним R_c с характерным размером динамических неоднородностей L_{het} , найденным методом нелинейной диэлектрической восприимчивости в глицерине [15]. Данные построены для величин, нормированных на их значения при T_g . Для глицерина $T_g = 186$ К. На рис. 6 показаны температурные зависимости R_c , найденные по ширине первого острого дифракционного пика [7], и L_{het} — по данным из работы [13]. Видно, что L_{het} , как и в случае салола, спадает с температурой несколько круче, чем R_c . Таким образом, характерные динамические и статическая структурные длины и в глицерине, и в салоле, хотя качественно ведут себя одинаково, количественно показывают разницу в наклонах температурной зависимости ($-0,70$ для L_{het} и L_a , $-0,45$ в салоле и $-0,35$ в глицерине для R_c), причём в нормированных координатах температурная зависимость примерно одна и та же для соответствующих величин в салоле и глицерине.

Заключение. С применением теории упругости в среде с пространственно-неоднородным сдвиговым модулем, теории возмущений по величине относительной неоднородности, а также критерия Иоффе — Регеля для локализации фононов с поперечной поляризацией на частоте бозонного пика была определена величина среднеквадратичных пространственных флуктуаций сдвигового модуля в салоле на масштабе нанометра, характерном для колебаний, образующих бозонный пик. Для получения численных значений использовались литературные данные о поперечной и продольной скоростях звука и ширине первого острого дифракционного пика, а также измеренные методом неупругого рассеяния света спектры бозонного пика и быстрой β -релаксации при разных температурах.

Было определено, что относительная величина флуктуации, или амплитуды нанеоднородностей сдвигового модуля γ^2 , равная 0,11 при $T = T_g$, уменьшается при дальнейшем увеличении температуры, и это делает среду динамически более однородной. При увеличении температуры на 20 % γ^2 падает на ~ 13 %. Найденная температурная зависимость γ^2 может быть плавно сшита с зависимостью от температуры отношения Ландау — Плачека R_{LP} при более высоких температурах, что может служить подтверждением модели, использующей возникновение локальных предпочтительных структур (locally favored structures [16]), или твердоподобных нанометровых кластеров при охлаждении жидкости ниже T_A ($\sim 2T_g$) для объяснения аномального роста R_{LP} при T ниже T_A [10].

Сравнивая температурную зависимость радиуса структурных корреляций с характерным размером динамической неоднородности, мы показали, что первая убывает с температурой медленнее, чем вторая в салоле и глицерине, и что нормированные на их значения при T_g длины зависят от температуры одинаково в салоле и глицерине, несмотря на разницу в типах химической связи (ван-дер-ваальсовая в салоле и водородная в глицерине).

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 20-02-00314).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Greaves G. N., Sen S.** Inorganic glasses, glass-forming liquids and amorphizing solids // Adv. Phys. 2007. **56**, Iss. 1. P. 1–166.
2. **Малиновский В. К.** Нанонеоднородности в стёклах и релаксорах: как, когда и почему они возникают? (Обзор) // Автометрия. 2014. **50**, № 6. С. 30–41.
3. **Schirmacher W.** The boson peak // Phys. Status Solidi B. 2013. **250**, Iss. 5. P. 937–943.
4. **Ioffe A. F., Regel A. R.** Non-crystalline, amorphous, and liquid electronic semiconductors // Prog. Semicond. 1960. **4**, Iss. 89. P. 237–291.
5. **Novikov V. N.** Vibration anharmonicity and fast relaxation in the region of the glass transition // Phys. Rev. B. 1998. **58**, Iss. 13. P. 8367–8378.
6. **Novikov V. N.** Upper bound of fragility from spatial fluctuations of shear modulus and boson peak in glasses // Phys. Rev. E. 2022. **106**, Iss. 2. 024611.
7. **Voylov D. N., Griffin P. J., Mercado B. et al.** Correlation between temperature variations of static and dynamic properties in glass forming liquids // Phys. Rev. E. 2016. **94**, Iss. 6. 060603(R).
8. **Gotchiaev V. Z., Malinovsky V. K., Novikov V. N., Sokolov A. P.** The structure of the Rayleigh line wing in liquids // Phil. Mag. B. 1991. **63**, Iss. 3. P. 777–787.
9. **Окотруб К. А., Зыкова В. А., Адищев С. В., Суровцев Н. В.** Определение ориентации фосфолипидных молекул в планарных структурах по спектрам комбинационного рассеяния света // Автометрия. 2019. **55**, № 5. С. 86–92. DOI: 10.15372/AUT20190512.
10. **Zykova V. A., Adichtchev S. V., Novikov V. N., Surovtsev N. V.** Second order derivative analysis of structural relaxation time in the elastic model of glass-forming liquids // Phys. Rev. E. 2020. **101**, Iss. 5. 052610.
11. **Popova V. A., Surovtsev N. V.** Temperature dependence of the Landau-Placzek ratio in glass forming liquids // Journ. Chem. Phys. 2011. **135**, Iss. 13. 134510.
12. **Hong L., Novikov V. N., Sokolov A. P.** Dynamic heterogeneities, boson peak and activation volume in glass-forming liquids // Phys. Rev. E. 2011. **83**, Iss. 6. 061508.
13. **Tracht U., Wilhelm U., Heuer A. et al.** Length scale of dynamic heterogeneities at the glass transition determined by multidimensional nuclear magnetic resonance // Phys. Rev. Lett. 1998. **81**, Iss. 13. P. 2727–2730.
14. **Qiu X., Ediger M. D.** Length scale of dynamic heterogeneity in supercooled D-sorbitol: comparison to model predictions // Journ. Phys. Chem. B. 2003. **107**, Iss. 2. P. 459–464.
15. **Crauste-Thibierge C., Brun C., Ladieu F. et al.** Evidence of growing spatial correlations at the glass transition from nonlinear response experiments // Phys. Rev. Lett. 2010. **104**, Iss. 16. P. 165703.
16. **Tanaka H.** Two-order-parameter description of liquids. I. A general model of glass transition covering its strong to fragile limit // Journ. Phys. Chem. 1999. **111**, Iss. 7. P. 3163–3174.

Поступила в редакцию 16.01.2023

После доработки 23.01.2023

Принята к публикации 10.04.2023