

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
КИЇВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ  
імені ТАРАСА ШЕВЧЕНКА

На правах рукопису

Фелінський Станіслав Георгійович

УДК 537.86

АНОМАЛЬНА ДИСПЕРСІЯ ТА ВІДБИТТЯ ЕЛЕКТРОМАГНІТНИХ ХВИЛЬ  
ТЕРАГЕРЦОВОГО ДІАПАЗОНУ В ДІЕЛЕКТРИЧНИХ КРИСТАЛАХ

01.04.03 – радіофізика

Дисертація на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

Науковий керівник:  
Коротков Павло Андрійович  
доктор фізико-математичних наук,  
професор

Київ – 2016

## ЗМІСТ

<b>СПИСОК СКОРОЧЕНЬ</b> .....	4
<b>ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ</b> .....	5
<b>ВСТУП</b> .....	11
<b>РОЗДІЛ 1. Основи загальної теорії, експеримент та методи аналізу дисперсії електромагнітних хвиль в кристалах і метаматеріалах (огляд літератури)</b> .....	14
1.1. Тензор комплексної діелектричної проникності та його властивості.....	14
1.1.1 Тензор-функція діелектричної проникності як узагальнена характеристика електромагнітних властивостей середовища.....	15
1.1.2 Частотна і просторова дисперсії та магнітні властивості середовища.....	18
1.1.3 Тензор діелектричної непроникності .....	18
1.1.4 Визначення тензора діелектричної проникності на комплексній площині .....	19
1.1.5. Особливості частотної дисперсії в кристалооптиці та терагерцовому діапазоні .....	23
1.2. Дисперсія діелектричної проникності та динаміка кристалічної ґратки...	26
1.2.1 Квантові рівняння руху для визначення дисперсії діелектричної проникності.....	26
1.2.2 Дисперсійна формула Куросави та співвідношення Ліддейна-Сакса-Теллера .....	28
1.2.3 Особливості визначення дисперсійних параметрів за спектрами комбінаційного розсіяння.....	29
1.3 Експериментальні дослідження та методи дисперсійного аналізу діелектричної проникності.....	37
1.4 Особливості розповсюдження світла в середовищах з від’ємним показником заломлення та метаматеріалах .....	47
<b>Висновки до розділу 1</b> .....	52
<b>РОЗДІЛ 2. Області від’ємної діелектричної проникності в кристалах з одним полярним коливанням</b> .....	53
2.1 Вплив згасання на дисперсію діелектричної проникності.....	53
2.2 Критичне згасання та критерій існування смуги частот з від’ємною ДП в кристалі з одним полярним коливанням .....	56
2.3 Звуження смуги частот з від’ємною діелектричною проникністю в	

підкритичному режимі фононного згасання.....	59
2.4 Класифікація полярних коливань в кристалі за ступенем фононного демпфування .....	60
2.5 Особливості формування від'ємної ДП в кристалічних модифікаціях нітриду бора та кристалі $MnF_2$ .....	62
2.6 Метод фазових портретів для аналізу ефектів аномальної дисперсії та комплексного показника заломлення .....	74
<b>Висновки до розділу 2</b> .....	82
<b>РОЗДІЛ 3. Від'ємна діелектрична проникність та аномалії фотон-фононної взаємодії в нецентросиметричних кристалах.....</b>	<b>83</b>
3.1 Методика відновлення дисперсії тензора діелектричної проникності за спектрами КР .....	83
3.2 Від'ємна діелектрична проникність та аномальна рефракція в нелінійних кристалах $LiTaO_3$ , $LiIO_3$ та $LiNbO_3$ .....	86
3.3 Анізотропія областей від'ємної діелектричної проникності та аномалії показника заломлення в кристалах із складним фононним спектром.....	99
3.4 Фотон-фононна взаємодія за умови аномальної рефракції та колапс електромагнітної хвилі в області від'ємної діелектричної проникності.....	102
<b>Висновки до розділу 3</b> .....	<b>106</b>
<b>РОЗДІЛ 4. Терагерцові аномалії за межами області від'ємної діелектричної проникності в кристалах.....</b>	<b>107</b>
4.1 Виявлення терагерцових каналів аномально низького відбиття в спектрах полярних кристалів .....	107
4.2 Моделювання параметрів каналу аномально низького відбиття числовими методами.....	109
4.3 Аналіз фізичних умов формування терагерцових каналів аномально низького відбиття.....	114
4.4 Частотна ширина АВК .....	121
4.5 Перспективи застосування АВК .....	122
<b>Висновки до розділу 4</b> .....	<b>128</b>
Висновки .....	129
Перелік посилань.....	131

### СПИСОК СКОРОЧЕНЬ:

- АВК – антивідбиваючі канали.
- ДА – дисперсійний аналіз;
- ДП – діелектрична проникність;
- ІЧ – інфрачервоний. Може бути в контексті з діапазон, випромінювання тощо;
- КР - комбінаційне розсіяння;
- ЛСТ - Ліддейна-Сакса-Теллера співвідношення;
- НВЧ – надвисокі частоти;
- СКР - спонтанне комбінаційне розсіяння;
- Т-L-розщеплення – смуга частот між частотами поперечних та поздовжніх коливань;
- УФ - ультрафіолетовий. Може бути в контексті з діапазон, випромінювання тощо;
- ФДТ - флуктуаційно-дисипативна теорема;

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність.** Діелектричні та нелінійні властивості конденсованих середовищ в терагерцовому діапазоні корінним чином відрізняються від суміжних радіо- та оптичного діапазонів, які є більш освоєними частинами електромагнітного спектра. Під впливом дипольно активних коливань молекул в газі чи рідині або полярних фононів в кристалах з власними частотами в кілька терагерц резонансний відгук середовища принципово змінює його діелектричну проникність (ДП). Поблизу від резонансних частот уявна частина ДП зростає на багато порядків. Одночасно дійсна частина набуває знакозмінного характеру, її екстремальні значення змінюються в десятки разів, нормальна дисперсія переходить в аномальну, а потім навпаки, в результаті чого можуть утворюватися області з від'ємними значеннями ДП.

Вплив аномальної дисперсії на нелінійну сприйнятливості речовини виявляється не менш радикальним. Наприклад, ряд найбільш поширених електрооптичних матеріалів майже повністю втрачає ці свої властивості на частотах вище резонансів. До того ж надмірне згасання електромагнітної хвилі виключає їх застосування вже на частотах понад кілька сотень гігагерц. З іншого боку, фізичними наслідками аномальної дисперсії, як показали наші дослідження, є виникнення нових ефектів, серед яких екстремально низьке відбиття випромінювання за смугою залишкових променів. Загалом створення технології приладобудування для освоєння терагерцового діапазону вимагає додаткових досліджень не тільки властивостей кристалічного середовища, але й особливостей розповсюдження електромагнітного випромінювання в області аномальної дисперсії.

Дослідження фундаментальних процесів взаємодії електромагнітного випромінювання з кристалічним середовищем в області аномальної дисперсії, зокрема фізичних умов утворення від'ємної ДП, особливо актуалізувалися в останнє десятиріччя в зв'язку з проблемою синтезу метаматеріалів. В природніх умовах від'ємну ДП, яка є необхідною для створення метаматеріалів, виявляли експериментально протягом всієї понад вікової історії спектроскопічних

досліджень оптичних монокристалів [2]. Вони проводились методами інфрачервоної (ІЧ) спектроскопії та за допомогою комбінаційного розсіяння (КР) світла. Досить відмітити, що виявлені смуги залишкових променів, фактичною причиною утворення яких є від'ємна ДП, вже багато десятиліть застосовуються в техніці. В теорії поляритонів, особливо поверхневих, а також при описанні кутової дисперсії анізотропних фононів від'ємна ДП виникає як базове поняття. Однак, від загальноприйнятого в цій теорії наближення відсутності згасання доводиться відмовитися при описанні ефектів, що пов'язані з аномальною дисперсією. Кількісний аналіз фізичних умов утворення від'ємної ДП, що є принциповим питанням для проблеми метаматеріалів, вимагає застосування узагальнених підходів без використання обмежень малості уявної частини ДП в традиційній теорії дисперсії. При створенні метаматеріалів виникає низка нових прикладних проблем, серед яких кількісне визначення реальної смуги частот з від'ємною ДП, комплексного показника заломлення в області аномальної дисперсії та залежностей спектрів відбиття від згасання полярних фононів.

Отже дослідження терагерцових аномалій при взаємодії електромагнітних хвиль з кристалами є актуальними як для вирішення проблем синтезу метаматеріалів, так і для розвитку нових технологій для освоєння терагерцового діапазону електромагнітних хвиль.

**Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.** Робота виконана на кафедрі електрофізики Київського національного університету імені Тараса Шевченка в рамках держбюджетної теми №11БФ052-04 «Дослідження ефектів взаємодії електромагнітних та акустичних полів з впорядкованими, наноструктурованими та біологічними системами для створення новітніх технологій» (номер державної реєстрації 0111U005265).

**Мета і задачі досліджень.** Мета дисертаційної роботи полягає в дослідженні впливу аномальної дисперсії від терагерцових полярних коливань кристала на умови розповсюдження електромагнітного випромінювання та

матеріальні параметри кристалічного середовища. Відповідно до поставленої мети необхідно було вирішити такі задачі:

- розробка фізичних моделей, алгоритмів та програм відновлення повного тензора діелектричної проникності за експериментальними даними ІЧ та КР досліджень кристалів із складним фононним спектром;
- аналітичний аналіз фізичних умов утворення областей з від'ємною діелектричною проникністю в кристалі з одним полярним коливанням методами комп'ютерної алгебри;
- розробка узагальнених методів дослідження терагерцових аномалій на основі фазових портретів комплексних функцій ДП та показника заломлення в області від'ємної діелектричної проникності;
- вивчення мінімумів коефіцієнта відбиття в терагерцових спектрах модельних кристалів та кількісний аналіз параметрів каналу із екстремально низьким відбиттям електромагнітного випромінювання.

*Об'єкт досліджень* – полярні коливання кристалічної ґратки терагерцового діапазону частот як джерело формування діелектричних властивостей кристалу.

*Предмет досліджень* – вплив аномальної дисперсії та згасання полярних мод кристала в терагерцовому діапазоні частот на взаємодію з електромагнітним випромінюванням, в тому числі на формування областей з від'ємною діелектричною проникністю.

*Методи досліджень.* Дисперсійний аналіз експериментальних спектрів відбиття в далекому ІЧ (терагерцовому) діапазоні, а також спектрів спонтанного комбінаційного розсіяння полярних кристалів. Математичне моделювання особливостей виникнення аномальної дисперсії, процесів утворення областей з від'ємною діелектричною проникністю та екстремально низького відбиття електромагнітного випромінювання в терагерцовому діапазоні частот методами комп'ютерної алгебри.

**Наукова новизна одержаних результатів.** Комплексні дослідження дисперсії ДП із врахування згасання призвели до наступних результатів:

1. Вперше отримано критерій існування області від'ємної ДП та вираз для її реальної смуги частот у діелектричних кристалах. Показана застосовність отриманих аналітичних виразів для аналізу фізичних умов існування від'ємної ДП в кристалах зі складним фононним спектром. Базуючись на цих співвідношеннях запропонована кількісна класифікація ступеня демпфування полярного коливання.

2. Встановлено, що звуження області від'ємної ДП відносно T-L розщеплення та зменшення абсолютної величини  $\varepsilon'_{min} < 0$  стає помітним в експерименті для  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T)$  близьких до одиниці. При  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) > 1$  область від'ємної ДП повністю зникає.

3. Запропонована методика фазових портретів комплексних функцій ДП та показника заломлення для узагальненого аналізу терагерцових аномалій в кристалах, зокрема для кількісного визначення області від'ємної ДП.

4. Показано, що області від'ємних значень ДП в досліджених кристалах мають надкритичні значення коефіцієнта екстинкції, які приводять до колапсу терагерцових хвиль.

5. Нами вперше встановлено, що при резонансній взаємодії терагерцового випромінювання з полярними коливаннями в кристалічних середовищах утворюються частотні області з аномально низькими коефіцієнтами відбиття ( $R \leq 0,01\%$ ), тобто існують терагерцові антивідбиваючі канали (АВК).

**Практичне значення отриманих результатів.** Фундаментальні співвідношення, отримані в роботі, можуть бути використані для виявлення нових властивостей кристалічного середовища, що виникають в терагерцовій області електромагнітного спектра. Критерій від'ємної ДП є зручним інструментом для експрес-аналізу параметрів кристалів в області аномальної дисперсії за даними ІЧ відбиття, а у випадку нецентросиметричного середовища – за спектрами СКР. Введені ступені демпфування можуть бути покладені в основу класифікації полярних коливних мод в кристалах. Дослідження АВК є фундаментом для створення нового типу концентраторів

теплового випромінювання, а в подальшому – для перетворювачів теплової енергії в електричну.

**Особистий внесок здобувача** полягає у самостійному пошуку та аналізі літературних джерел, проведенні математичних розрахунків та обробці результатів. Автором отримані аналітичні вирази для критерію існування від’ємної ДП та її частотної смуги, а також кількісні співвідношення для основних параметрів каналів аномально низького відбиття. Постановку задач досліджень і узагальнення теоретичних результатів проведено спільно з науковим керівником проф. Коротковим П.А. В обговоренні результатів досліджень брав участь д. ф.-м. н. Фелінський Г.С. Особисто автором підготовлено окремі розділи у статтях [1-6], тезах доповідей [7-32]. Основні наукові результати доповідалися особисто автором на наукових конференціях і семінарах.

**Апробація результатів дисертації.** Основні наукові та практичні результати роботи оприлюднені та обговорені на таких конференціях: X, XI, XII, XIII Int. Young Scientists’ Conference on Applied Physics (Kyiv, 2010, 2011, 2012, 2013 pp.); VI, VII, VIII, IX Int. Conference “Electronics and Applied Physics” (Kyiv, 2010, 2011, 2012, 2013 pp.); IV міжнародній науково-практичній конференції «Матеріали електронної техніки та сучасні інформаційні технології» (МЕТІТ-4) (Кременчук, 2010 p.); 10<sup>th</sup>, 11<sup>th</sup>, 12<sup>th</sup> Int. Conference “Laser & Fiber-Optical Modeling” (LFNM 2010, 2011, 2013) (Sevastopol, 2010; Kharkov, 2011; Sudak, 2013); 2<sup>nd</sup> IEEE Int. Workshop on THz Radiation: Basic Research & Applications (TERA’ 2010) (Sevastopol, 2010; Kharkov, 2011); Конференціях молодих вчених з фізики напівпровідників «Лашкарьовські читання – 2011, 2012» з міжнародною участю (Київ, 2011, 2012 p.); I міжнародній науково-практичній конференції «Напівпровідникові матеріали, інформаційні технології та фотовольтаїка» (НМІТФ-1). (Кременчук, 2011 p.) II Всеукраїнська конференція молодих вчених «Сучасне матеріалознавство: матеріали та технології» (Київ, 2011 p.); XX, XXI Int. School-Seminar of Galyna Puchkovska “Spectroscopy Molecules & Crystals” (Beregove, Crimea, 2011, 2013); V

Українській науковій конференції з фізики напівпровідників (УНКФН-5) (Ужгород, 2011 р.); 6<sup>th</sup> Int. Conference on Advanced Optoelectronics and Lasers, (CAOL' 2013) (Sudak, 2013); IEEE 35<sup>th</sup> Int. Conference on Electronics and Nanotechnology (ELNANO) (Kyiv, 2015).

**Публікації.** Результати дисертації відображені у 32 публікаціях: 6 статей у провідних фахових журналах, 26 тез доповідей на конференціях.

**Структура і зміст роботи.** Дисертація складається із вступу, чотирьох розділів, висновків та списку використаних джерел. Вона містить 144 сторінки, із них 132 сторінки основного тексту, 35 рис. і 10 табл. на окремих аркушах, список використаних джерел з 132 найменувань на 14 сторінок.

## ВСТУП

Теорія дисперсії електромагнітного випромінювання, фундаментальні основи якої були закладені Г.А.Лоренцем [1-4] у його докторській дисертації 1875 року, була скоріше геніальним передбаченням фундатора сучасної теоретичної фізики, аніж результатом узагальнення існуючих експериментальних фактів. Вона була запропонована за два десятиліття до відкриття електрона (1897 р) як елементарної частинки та появи всіх загальноприйнятих потім моделей атома. Основна ідея про дипольно активний осцилятор як джерело дисперсії електромагнітної хвилі в речовині фактично виявилась безальтернативною для всіх наступних теоретичних підходів – квантового чи напівкласичного. Саме резонансний відгук власних внутрішніх коливань довільного середовища на дію зовнішнього електромагнітного випромінювання, яке вимушує дипольні коливання, сповільнює саму хвилю і спричиняє її частотну та просторову дисперсію [5,6]. Процес вимушених коливань в рівноважній системі зарядів є настільки фундаментальним, що не залежить і не потребує будь-якої конкретної моделі для внутрішньої будови атома, структури молекули газу чи рідини або кристалічної ґратки твердого тіла, а також різноманітних видів плазми вільних зарядів, в тому числі в металах і напівпровідниках.

У сучасному вигляді теорію дисперсії електромагнітного випромінювання будують на базі напівкласичного підходу, в якому хвилі описуються класичними рівняннями Максвелла, а середовище – на основі квантової механіки. Такий підхід є достатньо обґрунтованим при інтерпретації експериментальних даних як в ІЧ діапазоні [7,13], так і отриманих за допомогою спонтанного комбінаційного розсіяння [8-11]. Цілком очевидно, що ще менш суттєвими обмеження напівкласичного підходу є при описанні дисперсії електромагнітного випромінювання на нижчих частотах терагерцового діапазону.

Головна особливість терагерцового діапазону частот полягає в тому, що до нього належать частоти власних дипольних коливань в кристалах та інших

конденсованих середовищах. Фундаментальними наслідками резонансів на цих коливаннях є утворення смуг поглинання та відбиття випромінювання, а також пов'язаних з ними областей аномальної дисперсії у комплексної діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$  даного матеріалу. Радикальна зміна поглинання та ефекти аномальної дисперсії настільки змінюють властивості навіть відомих матеріалів, що створення технології приладобудування для освоєння терагерцового діапазону вимагає додаткових досліджень таких нових особливостей кристалів.

Смуги відбиття навколо дипольних коливань в кристалах є стандартним об'єктом досліджень ІЧ спектроскопії, а параметри полярних коливань у випадку нецентросиметричних кристалів можна прямо визначити методами спектроскопії СКР [12]. Існують описані нижче в розділі 1 методи дисперсійного аналізу [12], які дозволяють на основі цих експериментальних даних повністю відновити обидві частини комплексної діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$  як функції частоти. Однак при кількісному аналізі ефектів із області аномальної дисперсії виникає щонайменше дві обставини, яким раніше не приділялось достатньої уваги.

По-перше, на дисперсійній залежності діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega)$  від частоти  $\omega$  на відміну від нормальної дисперсії з  $d\varepsilon(\omega)/d\omega > 0$  області аномальної дисперсії  $d\varepsilon(\omega)/d\omega < 0$  є суміщеними зі смугою частот максимального поглинання електромагнітного випромінювання, тобто з максимумами  $\varepsilon''(\omega)$ . Отже, що треба особливо підкреслити, результати стандартної теорії дисперсії, в якій нехтують уявною частиною ДП  $\varepsilon''(\omega) \ll \varepsilon'(\omega)$ , виявляються повністю не придатними для прямого застосування до кількісного описання аномальної дисперсії. Саме тому в даній роботі виникла необхідність для дослідження терагерцових аномалій використати більш загальні методи числової обробки експериментальних даних, зокрема застосована методика фазових портретів для ДП та комплексного показника заломлення (розділ 2.6).

По-друге, використання наближення відсутності згасання  $\Gamma$  полярних фононів, яке поширене в теорії поляритонів [14,15], анізотропних фононів [16-20] і зустрічається навіть для аналізу розповсюдження хвиль в метаматеріалах [38-39], також є принципово непридатним в області аномальної дисперсії. Дійсно при  $\Gamma=0$  поряд із зануленням уявної частини ДП, аномальна дисперсія повністю випадає із теорії, оскільки дійсна частина ДП має тільки нормальну дисперсію з  $d\varepsilon(\omega)/d\omega > 0$  як до розриву на частоті резонансу, так і після цієї частоти.

Принципове значення згасання для аналізу терагерцових аномалій полягає також і в його визначальному впливі на існування областей із від'ємною ДП. В експериментальному аспекті згасання проявляється як ширина відповідної фононної лінії і є найбільш чутливим до змін температури у порівнянні з іншими параметрами коливання – резонансними частотами та силою осцилятора. Тому саме величина згасання є природнім параметром, який змінюється, при дослідженнях фізичних умов існування областей з від'ємною ДП, зокрема їх залежності від температури.

Наявність областей з від'ємними значеннями дійсної частини ДП фіксувалась при СКР та ІЧ дослідженнях фононних спектрів вже дуже давно, в тому числі і в нашій лабораторії [21-25]. Разом з тим виявлено, що далеко не всі полярні коливання в кристалах мають достатню аномальну дисперсію для утворення області з від'ємною ДП. Зауважимо, що області з від'ємною ДП є ефектом аномальної дисперсії в чистому вигляді, оскільки будь-яке зменшення проникності, особливо до від'ємних значень, і є аномальною дисперсією за означенням.

Однак, практична мотивація до кількісного аналізу параметрів від'ємної ДП та вивчення фізичних умов її формування в реальних кристалах актуалізувалась тільки останнім часом, головним чином в зв'язку з проблемою синтезу метаматеріалів і ці задачі вирішувалися в даній роботі.

**РОЗДІЛ 1.**  
**ОСНОВИ ЗАГАЛЬНОЇ ТЕОРІЇ, ЕКСПЕРИМЕНТ ТА МЕТОДИ АНАЛІЗУ**  
**ДИСПЕРСІЇ ЕЛЕКТРОМАГНІТНИХ ХВИЛЬ В КРИСТАЛАХ І**  
**МЕТАМАТЕРІАЛАХ (огляд літератури)**

Передуючи виклад основ загальної теорії, вважаємо доцільним відмітити відомі факти електродинаміки, але важливі для повноти аналізу досить нетрадиційних ефектів аномальної дисперсії. Частотна дисперсія є проявом залежності сповільнення хвилі у середовищі, тобто затримки у часі його поляризаційного відгуку, від частоти спектральних компонент зовнішнього випромінювання. Електромагнітна хвиля в діелектрику однозначно задається просторово-часовим розподілом електричного поля  $\overset{\cdot}{E}(\overset{\cdot}{r}, t)$  яке є дійсною вектор-функцією від тривимірного радіус-вектора  $\overset{\cdot}{r}$  і часу  $t$ . Дійсними функціями є інші змінні електромагнітного поля хвилі – електрична  $\overset{\cdot}{D}(\overset{\cdot}{r}, t)$  і магнітна  $\overset{\cdot}{B}(\overset{\cdot}{r}, t)$  індукції, а також магнітне поле  $\overset{\cdot}{H}(\overset{\cdot}{r}, t)$ . Однак, тензор-функція діелектричної проникності  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  визначена в оберненому просторі, є комплексною і пов'язує між собою не амплітуди хвилі, а їх Фур'є образи. Хоча перехід до оберненого простору не накладає жодних обмежень на  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$ , що гарантує Фур'є перетворення, все ж висновки щодо аномалій розповсюдження хвилі, наприклад при  $\varepsilon < 1$ , потребують зворотного переходу до реального простору  $\overset{\cdot}{r}$  і  $t$ .

### 1.1. Тензор комплексної діелектричної проникності та його властивості

Фізичний зміст полів  $\overset{\cdot}{E}(\overset{\cdot}{r}, t)$  и  $\overset{\cdot}{B}(\overset{\cdot}{r}, t)$  зрозумілий [6] із виразу для сили  $\overset{\cdot}{F} = e \left\{ \overset{\cdot}{E} + \frac{1}{c} [\overset{\cdot}{v} \overset{\cdot}{B}] \right\}$ , що діє на «точкову» частинку із зарядом  $e$  і швидкістю  $\overset{\cdot}{v}$ . Лоренцева концепція поляризації  $\overset{\cdot}{P}$  речовини у

електричному полі дозволяє записати зв'язок  $\dot{D} = \epsilon_0 \dot{E} + \dot{P}$  і викласти загальну теорію без явного використання поняття про струм зміщення. Тоді всі властивості середовища зосереджені у розподілі  $\dot{D}$  у просторі і часі або у виразі функції  $\dot{D}(\vec{r}, t)$  через змінні зовнішнього поля  $\dot{E}(\vec{r}, t)$  та  $\dot{B}(\vec{r}, t)$ .

Загальне описання динаміки макроскопічних електромагнітних полів дають рівняння Максвела, в яких всі величини є функціями  $\vec{r}$  і  $t$ .

При наявності різких меж розділу необхідно використовувати граничні умови, що отримуються з рівнянь Максвела в результаті граничного переходу. Ці умови мають вигляд ( $\vec{n}$  – нормаль до межі розділу, спрямована із середовища 1 в середовище 2; індекси  $n$  та  $t$  відповідають нормальній і тангенціальній компонентам)

$$\left. \begin{aligned} \vec{E}_{1t} = \vec{E}_{2t}, \quad [\vec{n}, \vec{B}_2 - \vec{B}_1] &= \frac{4\pi}{c} (\vec{i} + \vec{i}_{ext}), \\ \vec{B}_{1n} = \vec{B}_{2n}, \quad D_{2n} - D_{1n} &= 4\pi(\sigma + \sigma_{ext}). \end{aligned} \right\}$$

Тут  $\vec{i}_{ext}$  та  $\sigma_{ext}$  – відповідно поверхневі густини зовнішніх струмів і зарядів, а густини  $\vec{i}$  та  $\sigma$  виражаються через  $\dot{D}$  шляхом інтегрування по глибині поверхневого шару (наприклад,  $\vec{i} = -\frac{1}{4\pi} \int_1^2 \frac{\partial \dot{D}}{\partial t} dl$ ; див. [6], § 1).

Система рівнянь Максвела є, як відомо, повною тільки тоді, коли вказано зв'язок (матеріальне рівняння), що дозволяє виразити  $\dot{D}$  через  $\dot{E}$ , а якщо потрібно, то і через  $\dot{B}$ . У конденсованому середовищі цей зв'язок зазвичай може вважатися лінійним, оскільки розглядаються поля незрівнянно більш слабкі, ніж поле атомних масштабів  $E_a \sim e/a^2 \sim 10^8$  в/см. З цієї причини нелінійні явища надалі не розглядаються.

### 1.1.1 Тензор-функція діелектричної проникності як узагальнена характеристика електромагнітних властивостей середовища

Вважаючи, таким чином, матеріальне рівняння лінійним, його можна записати в такому загальному вигляді:

$$D_i(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \hat{\varepsilon}_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') E_j(\mathbf{r}', t'). \quad (1.1)$$

Тут прийнято до уваги ще лише принцип причинності, в силу якого індукція в момент  $t$  визначається тільки полем в минулому і сьогодні, тобто в моменти  $t' \leq t$ . Якщо властивості середовища незмінні (однорідні) у часі, то ядро  $\hat{\varepsilon}_{ij}$  може залежати лише від різниці  $t - t'$ . Нарешті, якщо середовище просторово однорідне, так, що всі її точки (при неврахуванні флуктуації) рівноправні, то  $\hat{\varepsilon}_{ij}$  залежить тільки від різниці  $\mathbf{r} - \mathbf{r}'$ . За цих умов

$$D_i(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \hat{\varepsilon}_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') E_j(\mathbf{r}', t'). \quad (1.2)$$

В вакуумі  $\dot{D} = \varepsilon_0 \dot{E}$ , а в загальному випадку  $\dot{D}$  є сума  $\varepsilon_0 \dot{E}$  та  $\dot{P}$ . Тому, очевидно, ядро  $\hat{\varepsilon}_{ij}$  містить член типа дельта-функції, та іноді зручно записати зв'язок (1.2) у вигляді (те саме, звичайно, відноситься й до (1.1)).

$$\frac{1}{\varepsilon_0} D_i(\mathbf{r}, t) = E_i(\mathbf{r}, t) + \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \hat{\chi}_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') E_j(\mathbf{r}', t'). \quad (1.3)$$

На відміну від ядра  $\hat{\varepsilon}_{ij}$ , яке містить зазначену особливість, ядро  $\hat{\chi}_{ij}$  як можна вважати з фізичних міркувань, ніяких особливостей не має.

Корисно зауважити, що ядро  $\hat{\varepsilon}_{ij}$  можна інтерпретувати як індукцію, що виникає в якості «відгуку» на дельта-функційне поле  $\dot{E}$ . Дійсно, при  $\dot{E}(\mathbf{r}', t') = \mathbf{e} \delta(t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ ,  $e = 1$  і  $t' < t$  індукція  $D_i(\mathbf{r}, t) = \hat{\varepsilon}_{ij}(\mathbf{r}, t) e_j$  (см. (1.4)); у випадку (1.1)

$$D_i(\mathbf{r}, t) = \hat{\varepsilon}_{ij}(\mathbf{r}, 0, t, 0) e_j.$$

Перейдемо у формулах (1.2) – (1.3) до образів Фур'є, покладаючи

$$E_i(\mathbf{r}, t) = \int E_i(\omega, \mathbf{k}) e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} d\omega d\mathbf{k}$$

для образів  $E_i(\omega, \mathbf{k})$  та оригіналів  $E_i(\mathbf{r}, t)$  використовуються однакові позначення  $E$ , що не повинно призвести до плутанини у зв'язку із зазначенням аргументів (аналогічні позначення використовуються і для інших величин).

Часто для отримання  $D_i(\omega, \overset{\cdot}{k})$  замість явного застосування Фур'є-перетворення, розглядають «окрему гармоніку» поля, покладаючи в (1.2) - (1.3)

$$E_j(\overset{\cdot}{r}', t') = E_j(\omega, \overset{\cdot}{k}) e^{i(k\overset{\cdot}{r}' - \omega t')}$$

и аналогічно для  $D_i$ . В результаті ( $\tau = t - t'$ ,  $\overset{\cdot}{R} = \overset{\cdot}{r} - \overset{\cdot}{r}'$ )

$$\begin{aligned} D_i(\omega, \overset{\cdot}{k}) &= \varepsilon_0 \varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) E_j(\omega, \overset{\cdot}{k}), \\ \varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) &= \int_0^\infty d\tau \int dR e^{-i(k\overset{\cdot}{R} - \omega\tau)} \hat{\varepsilon}_{ij}(\tau, \overset{\cdot}{R}) = \delta_{ij} + \chi_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}), \\ \chi_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) &= \int_0^\infty d\tau \int dR e^{-i(k\overset{\cdot}{R} - \omega\tau)} \hat{\chi}_{ij}(\tau, \overset{\cdot}{R}). \end{aligned} \quad (1.4)$$

Важливо підкреслити, що розгляд «окремої гармоніки» поля дає той же результат, що і Фур'є-перетворення і фактично є його неявним проведенням. Дійсно в (1.4) зроблений перехід від реального розподілу полів  $D_i(\overset{\cdot}{r}, t)$  і  $E_j(\overset{\cdot}{r}, t)$ , для яких справедливі рівняння Максвелла, до відповідних Фур'є образів  $D_i(\omega, \overset{\cdot}{k})$  та  $E_j(\omega, \overset{\cdot}{k})$ , а від реального відгуку  $\hat{\varepsilon}_{ij}(\tau, R)$  у просторі і часі до тензор-функції  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  в оберненому просторі. Застосування математичної процедури Фур'є-перетворення є настільки загальним, що не накладає жодних фізичних обмежень на тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$ . Однак висновки про характер розповсюдження хвиль, особливо в аномальних областях  $\varepsilon'_{ij} < 0$ , слід робити після оберненого переходу до реального простору і часу.

Головний ефект від Фур'є-перетворення полягає в радикальному спрощенні обчислень, оскільки компоненти  $D_i(\omega, \overset{\cdot}{k})$  в (1.4) пов'язані тут тільки з компонентами  $E_j(\omega, \overset{\cdot}{k})$  при тих же значеннях  $\omega$  і  $\overset{\cdot}{k}$ . Це є фундаментальним наслідком часової і просторової однорідності середовища, тобто обумовлено залежністю  $\hat{\varepsilon}_{ij}$  лише від різностей  $\tau = t - t'$  и  $\overset{\cdot}{R} = \overset{\cdot}{r} - \overset{\cdot}{r}'$ .

Величина  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  є тензором комплексної діелектричної проникності; тензор  $\chi_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  називають діелектричною сприйнятливістю.

### 1.1.2 Частотна і просторова дисперсії та магнітні властивості середовища

Залежність тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$  від частоти відповідає частотній дисперсії, а залежність від хвильового вектора - просторовій дисперсії. Область, в якій ядро має помітні значення, визначається власними частотами полярних коливань середовища  $\omega_s$  (а також зворотними часом релаксації) і характерними розмірами  $a_s$ . Частоти  $\omega_s$  зазвичай лежать в досить широких межах. Розміри  $a_s$  («радіус молекулярного дії» і т. п.), навпаки, в цілому ряді випадків можуть вважатися малими. У рідинах і твердих тілах роль  $a_s$  зазвичай грають розміри молекул, відстані між атомами або постійні ґратки - всі ці величини зазвичай одного порядку і дуже малі в порівнянні з довжиною хвиль, що відносяться до оптичного діапазону частот. Зрозуміло тому, що просторова дисперсія в оптиці грає, взагалі кажучи, меншу роль, ніж частотна.

Тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$  повністю описує не тільки електричні, але **і магнітні властивості середовища**, тобто враховує вплив індукції  $\mathbf{B}$  на  $\mathbf{D}$  (або, що те ж, на індукований струм  $\mathbf{j} = \frac{1}{4\pi} \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{D} - \mathbf{E})$ ) [6]. Правда, при нехтуванні просторовою дисперсією в загальному випадку не можна покласти  $\varepsilon_{ij}(\omega, 0) = \varepsilon_{ij}(\omega)$ , а потрібно ввести також тензор магнітної проникності  $\mu_{ij}(\omega)$ . В [6] показано, що в оптиці неферомагнітних середовищ завжди можна і потрібно покласти  $\mu_{ij}(\omega) = \delta_{ij}$ . Тому надалі завжди буде прийматися, що

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k} \rightarrow 0) = \varepsilon_{ij}(\omega, 0) = \varepsilon_{ij}(\omega), \quad (1.5)$$

де  $\varepsilon_{ij}(\omega)$  – тензор комплексної діелектричної проникності при нехтуванні просторовою дисперсією.

### 1.1.3 Тензор діелектричної непроникності

Окрім тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ , в теорії застосовують зворотний тензор  $\varepsilon_{ij}^{-1}(\omega, \mathbf{k})$ , який має назву тензора діелектричної непроникності. Очевидно,

$$E_i(\omega, \mathbf{k}) = \varepsilon_{ij}^{-1}(\omega, \mathbf{k}) D_j(\omega, \mathbf{k}), \quad (1.6)$$

причому

$$\varepsilon_{ij}^{-1}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k}) = \frac{A_{ji}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})}{\|\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})\|}, \quad \varepsilon_{ij}\varepsilon_{ij}^{-1} = \delta_{ij}, \quad (1.7)$$

де  $\|\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})\|$  – визначник тензора (матриці)  $\varepsilon_{ij}$ , а  $A_{ij} = (-1)^{i+j} \Delta_{ij}$  и  $\Delta_{ij}$  – відповідно алгебраїчне доповнення та мінор, що відповідають елементу  $\varepsilon_{ij}$  у визначнику  $\|\varepsilon_{ij}\|$  (нагадаємо, що  $A_{il}\varepsilon_{jl} = A_{il}\varepsilon_{ij} = \|\varepsilon_{lm}\|\delta_{ij}$ ). У тих випадках, коли  $\|\varepsilon_{ij}\| \neq 0$  та тензор  $\varepsilon_{ij}^{-1}$  існує, використання обох тензорів  $\varepsilon_{ij}$  та  $\varepsilon_{ij}^{-1}$ , звичайно, рівноправно. Якщо же  $\|\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})\| = 0$ , то тензор  $\varepsilon_{ij}^{-1}$  отримує сингулярність і навпаки нулі діелектричної непроникності відповідають точкам сингулярності у тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})$ . Ця обставина буде використана в подальшому при визначенні власних частот поперечних та поздовжніх коливань кристалів. В нашій роботі в якості основного використовуватиметься тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})$ , а тензор  $\varepsilon_{ij}^{-1}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})$  вводиться в згоді з визначенням (1.7).

#### 1.1.4 Визначення тензора діелектричної проникності на комплексній площині

Конкретний аналіз питання про значення  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})$  в комплексній області [6] показує, що функція  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})$ , як і інші аналогічні вирази, що зустрічаються у фізиці, є аналітичною функцією своїх аргументів в деякій області їх зміни. З теорії аналітичних функцій відомо, що такі функції, якщо вони задані на деякому кінцевому інтервалі (наприклад, на ділянці дійсної осі), виявляються однозначно визначеними і в деякій околиці поза цим інтервалом, у тому числі в комплексній області. Тим самим існування функції  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\mathbf{1}}{k})$  при дійсних  $\omega$  і  $\overset{\mathbf{1}}{k}$  та припущення про її аналітичність в деякій області вже призводить до визначення  $\varepsilon_{ij}$  у всій цій комплексній області.

Отже, тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  має сенс не тільки при дійсних  $\omega$  і  $\overset{\cdot}{k}$ , але і в деякій області комплексних значень цих змінних. Знаходження цієї області - питання особливе, яке вирішується, наприклад, при обчисленні  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  для певної моделі. Використовуючи нижче тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  при комплексних  $\omega$  і  $\overset{\cdot}{k}$ , ми будемо, зрозуміло, припускати, що в розглянутій області значень цей тензор існує (є регулярною функцією  $\omega$  і  $\overset{\cdot}{k}$ ).

Вектор  $\overset{\cdot}{k}$  визначається трьома числами (компонентами), і тим самим при переході в комплексну область потрібно в загальному випадку розглядати три комплексні змінні, скажімо,  $k_x$ ,  $k_y$  і  $k_z$ . Іншими словами, в комплексній області вектор  $\overset{\cdot}{k}$  має вигляд  $\overset{\cdot}{k} = \overset{\cdot}{k}' + i\overset{\cdot}{k}''$ , де  $\overset{\cdot}{k}'$  і  $\overset{\cdot}{k}''$  - дійсні вектори. Якщо ці вектори не паралельні, хвилі називаються неоднорідними. Велику роль відіграють, проте, однорідні хвилі, для яких  $\overset{\cdot}{k} = (k' + ik'')\overset{\Gamma}{s} = k\overset{\Gamma}{s}$  де  $\overset{\Gamma}{s}$  одиничний дійсний вектор. У цьому випадку при заданому  $\overset{\Gamma}{s}$  ми маємо справу лише з однією комплексною змінною  $k = k' + ik''$ . Для нормальних хвиль  $\overset{\cdot}{k} = \overset{\cdot}{k}(\omega)$ , і якщо хвилі однорідні  $\overset{\Gamma}{k} = \frac{\omega}{c} n(\omega, \overset{\Gamma}{s})\overset{\Gamma}{s} = \frac{\omega}{c} (n + i\kappa)\overset{\Gamma}{s}$ , (див. (1)), тобто в цьому випадку  $k' = \frac{\omega}{c} n(\omega, \overset{\Gamma}{s})$  і  $k'' = \frac{\omega}{c} \kappa(\omega, \overset{\Gamma}{s})$ .

Тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  в загальному випадку не може вважатися ні ермітовим, ні симетричним. Тому буває зручно розділяти  $\varepsilon_{ij}$  на дійсну (Re) і уявну (Im) частини, а також на два ермітових тензора  $\varepsilon'_{ij}$  і  $\varepsilon''_{ij}$ :

$$\varepsilon_{ij} = \text{Re} \varepsilon_{ij} + i \text{Im} \varepsilon_{ij}, \quad (1.8)$$

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon'_{ij} + i\varepsilon''_{ij}, \quad (1.9)$$

В нашій роботі просторова дисперсія не враховується і за відсутності постійного магнітного поля тензор  $\varepsilon_{ij}$  є симетричним, в силу чого тензори  $\varepsilon'_{ij}$  і  $\varepsilon''_{ij}$  є дійсними і збігаються з  $\text{Re} \varepsilon_{ij}$  і  $\text{Im} \varepsilon_{ij}$ . Крім того, потрібно мати на увазі,

що часто замість проникності  $\varepsilon_{ij}$  вводиться провідність  $\sigma_{ij}$ . Найбільш поширене позначення

$$\varepsilon_{ij}'' = \frac{4\pi\sigma_{ij}}{\omega}, \quad (1.10)$$

Досить широко використовується також комплексна не ермітова провідність

$$\sigma_{ij} = \sigma'_{ij} + i\sigma''_{ij} = -\frac{i\omega}{4\pi} \{ \varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) - \delta_{ij} \} = -i\omega\chi_{ij}(\omega, \mathbf{k}), \quad (1.11)$$

яка зв'язує індукований струм  $\mathbf{j} = \frac{1}{4\pi} \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{D} - \mathbf{E})$  з полем  $\mathbf{E}$  (см. (1.4)):

$$\begin{aligned} j_i(\omega, \mathbf{k}) &= \sigma_{ij}(\omega, \mathbf{k}) E_j(\omega, \mathbf{k}) = -\frac{i\omega}{4\pi} [D_i(\omega, \mathbf{k}) - E_i(\omega, \mathbf{k})] = \\ &= -\frac{i\omega}{4\pi} [\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) - \delta_{ij}] E_j(\omega, \mathbf{k}) = -i\omega\chi_{ij}(\omega, \mathbf{k}) E_j(\omega, \mathbf{k}). \end{aligned} \quad (1.12)$$

Нижче величина  $\sigma_{ij}$ , як правило, вживатися не буде, і ми перейдемо до викладу загальних властивостей тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ . Дійсне поле  $\mathbf{E}$  призводить, звичайно, до дійсної індукції  $\mathbf{D}$ . Звідси випливає, що ядро  $\hat{\varepsilon}_{ij}(\tau, \mathbf{K})$  в (1.4) є дійсним і, отже,

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \varepsilon_{ij}^*(-\omega^*, -\mathbf{k}^*), \quad (1.13)$$

чи, що те ж саме,

$$\varepsilon_{ij}(\omega^*, \mathbf{k}^*) = \varepsilon_{ij}^*(-\omega, -\mathbf{k}). \quad (1.14)$$

Отже, при переході до дійсних полів та реального простору-часу, поле матиме наступний вигляд

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [\mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} + \mathbf{E}_0^* e^{-i(\mathbf{k}^*\mathbf{r} - \omega^* t)}]. \quad (1.15)$$

При цьому за визначенням

$$D_i(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 [\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) E_{0j} e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)} + \varepsilon_{ij}(-\omega^*, -\mathbf{k}^*) E_{0j}^* e^{-i(\mathbf{k}^*\mathbf{r} - \omega^* t)}]. \quad (1.16)$$

Цей вираз дійсний за умови (1.14), до якого ми, таким чином, приходимо, хоча і абсолютно еквівалентним, але, можливо, трохи більш очевидним чином.

Використання принципу симетрії кінетичних коефіцієнтів приводить до співвідношення

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}, \overset{\cdot}{B}_{ext}) = \varepsilon_{ji}(\omega, -\overset{\cdot}{k}, -\overset{\cdot}{B}_{ext}). \quad (1.17)$$

Тут  $\overset{\cdot}{B}_{ext}$  – постійна в часі індукція магнітного поля, відмінна від нуля при наявності зовнішнього магнітного поля або магнітної структури (феро- і антиферомагнетики). Для простоти ми зазвичай в обох цих випадках будемо називати  $\overset{\cdot}{B}_{ext}$  індукцією зовнішнього магнітного поля, що й відображено в позначеннях.

Середовище називається негіротропним, якщо

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) = \varepsilon_{ji}(\omega, \overset{\cdot}{k}). \quad (1.18)$$

причому вважається, звичайно, що це співвідношення має місце при всіх  $\omega$  і  $\overset{\cdot}{k}$ . При умові (1.18), як неважко перевірити,

$$\operatorname{Re} \varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) = \varepsilon'_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}), \quad \operatorname{Im} \varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) = \varepsilon''_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}).$$

тобто ермітові тензори  $\varepsilon'_{ij}$  і  $\varepsilon''_{ij}$ , стають дійсними (і симетричними).

Із (1.17) – (1.18) ясно, що для негіротропного середовища

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) = \varepsilon_{ij}(\omega, -\overset{\cdot}{k}). \quad (1.19)$$

Таким чином, в гіротропному середовищі повинен існувати принаймні один напрям, що не еквівалентний прямо протилежного напрямку. Іншими словами, тільки середовище без центру симетрії може бути гіротропним. Зворотний висновок невірний - середовище може не мати центру симетрії, але бути негіротропним, оскільки дотримання співвідношення (1.19) може забезпечуватися в силу наявності інших елементів симетрії. При відсутності просторової дисперсії умова (1.19) виконується автоматично.

У п. 1.1 вже згадувалося, що функції  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  не мають особливостей у верхній півплощині та на дійсній осі комплексної змінної  $\omega$  (цей важливий результат випливає в першу чергу з принципу причинності, в силу якого в (1.6) інтегрування ведеться лише в інтервалі  $0 < \tau < \infty$ ). Звідси випливає, що дійсна і

уявна частини  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  на дійсній осі  $\omega$  пов'язані між собою інтегральним чином - за допомогою так званих дисперсійних співвідношень, для яких в літературі закріпилася назва співвідношень Крамерса-Кроніга.

$$\begin{aligned}\varepsilon'_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) - \delta_{ji} &= \frac{2}{\pi} \text{v.p.} \int_0^{\infty} \frac{x \varepsilon''_{ij}(x, \overset{\cdot}{k})}{x^2 - \omega^2} dx, \\ \varepsilon''_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k}) &= -\frac{2\omega}{\pi} \text{v.p.} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\varepsilon'_{ij}(x, \overset{\cdot}{k}) - \delta_{ji}}{x^2 - \omega^2} dx.\end{aligned}\tag{1.20}$$

де інтеграли на комплексній площині беруться у сенсі головного значення. Співвідношення Крамерса-Кроніга (1.20) є теоретичною основою одного з методів дисперсійного аналізу, тобто встановлення повної тензор-функції  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  за даними експериментальних вимірювань. Подробиці методу дивись у п.1.3.

Відзначимо, що всі властивості симетрії, які має тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$ , переносяться і на зворотний тензор  $\varepsilon_{ij}^{-1}(\omega, \overset{\cdot}{k})$ , як це впливає безпосередньо з (1.7).

### 1.1.5. Особливості частотної дисперсії в кристалооптиці та терагерцовому діапазоні

При нехтуванні просторовою дисперсією, як уже відзначалася, тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  для немагнітного середовища (тобто при  $\mu_{ij} = \delta_{ij}$ ) переходить в тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega)$ , що використовується в класичній кристалооптиці та на довжинах хвиль терагерцового діапазону. Однак існування граничного переходу

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k} \rightarrow 0) = \varepsilon_{ij}(\omega).\tag{1.21}$$

хоча і цілком природно, але все ж не тривіально. Справді, існують величини, які навіть при  $\overset{\cdot}{k} \rightarrow 0$  продовжують залежати від  $\overset{\cdot}{s} = \overset{\cdot}{k} / k$  і тим самим не є аналітичними функціями  $\overset{\cdot}{k}$  при  $\overset{\cdot}{k} \rightarrow 0$ . У разі ж  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  регулярність при  $\overset{\cdot}{k} \rightarrow 0$  впливає з фізичних міркувань, оскільки в граничному випадку досить

довгих хвиль, тобто при переході до однорідного поля, індукція  $\overset{\cdot}{D}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  як функція поля  $\overset{\cdot}{E}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  не залежить від величини або від напрямку  $\overset{\cdot}{k}$ .

У наближенні класичної кристалооптики та терагерцового діапазону, згідно (1.13), маємо [6]

$$\varepsilon_{ij}(-\omega, \overset{\cdot}{B}_{ext}) = \varepsilon_{ij}^*(\omega^*, \overset{\cdot}{B}_{ext}). \quad (1.22)$$

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{B}_{ext}) = \varepsilon_{ji}(\omega, -\overset{\cdot}{B}_{ext}). \quad (1.23)$$

Якщо, крім того, зовнішнє магнітне поле відсутнє ( $\overset{\cdot}{B}_{ext} = 0$ ), то

$$\varepsilon_{ij}(\omega) = \varepsilon_{ji}(\omega) = \varepsilon'_{ij}(\omega) + i\varepsilon''_{ij}(\omega). \quad (1.24)$$

При цьому, очевидно, ермітові тензори  $\varepsilon'_{ij}$  і  $\varepsilon''_{ij}$  є дійсними і симетричними:

$$\varepsilon'_{ij}(\omega) = \text{Re } \varepsilon_{ij}(\omega), \quad \varepsilon''_{ij}(\omega) = \text{Im } \varepsilon_{ij}(\omega). \quad (1.25)$$

Відповідно до (1.22) на дійсній осі

$$\begin{aligned} \varepsilon_{ij}(-\omega) &= \varepsilon_{ij}^*(\omega); & \varepsilon'_{ij}(-\omega) &= \varepsilon'_{ij}(\omega), \\ \varepsilon''_{ij}(-\omega) &= -\varepsilon''_{ij}(\omega), & \omega'' &= \text{Im } \omega = 0. \end{aligned} \quad (1.26)$$

Отже, в силу (1.25) – (1.26) дисперсійні співвідношення (1.20) в класичній кристалооптиці та терагерцовому діапазоні, строго кажучи є справедливим при  $\overset{\cdot}{B}_{ext} = 0$ .

Для немагнітної середовища вектори напруженості магнітного поля  $\overset{\cdot}{H}$  і магнітної індукції  $\overset{\cdot}{B}$  співпадають (за визначенням немагнітної середовища). Аналіз, проведений в [6], показує, що магнітні властивості середовища, пов'язані з відмінністю  $\overset{\cdot}{B}$  від  $\overset{\cdot}{H}$ , цілком укладені в  $\overset{\cdot}{D}$ , якщо тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k})$  враховує просторову дисперсію. Однак при нехтуванні просторовою дисперсією граничний перехід в (1.21), тобто  $\varepsilon_{ij}(\omega, \overset{\cdot}{k} \rightarrow 0)$ , пов'язаний з обома тензорами  $\varepsilon_{ij}(\omega)$  і  $\mu_{ij}(\omega)$ , причому

$$B_i(\omega) = \mu_{ij}(\omega)H_j(\omega), \quad \mu_{ij}(\omega) = \delta_{ij} + 4\pi\chi_{ij}^{(m)}(\omega). \quad (1.27)$$

де  $\mu_{ij}$  і  $\chi_{ij}^{(m)}$  – відповідно магнітна проникність і магнітна сприйнятливність.

Разом з цим, введення функції  $\mu_{ij}$  має сенс лише в порівняно невеликій області частот в околі точки  $\omega/k = 0$ , де  $1/k$  - характерний розмір неоднорідності поля в середовищі. З цієї причини в оптиці та терагерцовому діапазоні, якщо не розглядати ферромагнетики, треба [6] покласти  $\mu_{ij}(\omega) = \delta_{ij}$ .

Таким чином, в області низьких частот і довгих хвиль (у порівнянні із сталою ґратки кристалу) властивості лінійного середовища повністю описуються при введенні тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega)$ .

Зупинимось тепер на випадку ізотропного середовища (полікристали, а за деяких умов і кристали кубічної сингонії). В такому середовищі, за визначенням, відсутній будь-який виділений напрямок. При нехтуванні просторовою дисперсією тензор  $\varepsilon_{ij}$  не може також залежати від  $\vec{k}$  або  $\vec{s} = \vec{k} / k$  (див. (1.7)). Тому в ізотропному середовищі досить лише одного одиничного тензора 2-го рангу  $\delta_{ij}$  і, отже,

$$\varepsilon_{ij}(\omega) = \varepsilon(\omega)\delta_{ij}. \quad (1.28)$$

Для кристалів із симетрією не нижче ромбічної дисперсія осей відсутня і тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega)$  в системі головних осей кристала приводиться до діагонального вигляду, який зберігається у всьому частотному діапазоні

$$\varepsilon_{ij}(\omega) = \varepsilon_i(\omega)\delta_{ij}, \quad (1.29)$$

тобто містить лише 3 незалежні компоненти  $\varepsilon_1(\omega) = \varepsilon_{xx}(\omega)$ ,  $\varepsilon_2(\omega) = \varepsilon_{yy}(\omega)$  та  $\varepsilon_3(\omega) = \varepsilon_{zz}(\omega)$ . В одноосних кристалах число незалежних компонент тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega)$  зменшується до двох:  $\varepsilon_1(\omega) = \varepsilon_2(\omega) = \varepsilon_{\perp}(\omega)$  та  $\varepsilon_3(\omega) = \varepsilon_{\parallel}(\omega)$ .

Таким чином, розповсюдження електромагнітної хвилі терагерцового та оптичного діапазонів повністю визначається властивостями тензора  $\varepsilon_{ij}(\omega)$ . Однак, обернене твердження не справедливе, тобто відновити тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega)$  лише за параметрами хвилі не уявляється можливим. Обернена задача вирішується методами динаміки кристалічної ґратки.

## 1.2. Дисперсія діелектричної проникності та динаміка кристалічної ґратки

Сучасна квантова теорія макроскопічної поляризації [26] базується на обчисленнях квантово-механічного середнього для нормальної коливальної координати  $W$ , що визначається як  $W = \text{Sp}(\hat{\rho}\hat{W})$ , де  $\hat{\rho}$  – квантовий оператор густини,  $\hat{W}$  – оператор координати. Тоді взаємодію світла з полярними коливаннями ґратки можна описати в рамках напівкласичного підходу, в якому квантова динаміка кристалічної ґратки вже пов'язана з електромагнітним полем, що підкоряється класичним рівнянням.

### 1.2.1 Квантові рівняння руху для визначення дисперсії діелектричної проникності

В загальному випадку рівняння руху для квантово-механічного середнього від нормальної коливальної координати  $W$  приводяться до вигляду [26]:

$$\ddot{W} + \frac{2}{T_2} \dot{W} + \frac{1}{T_2^2} W = \frac{1}{\hbar^2} \langle [[\hat{W}, \hat{H}], \hat{H}] \rangle, \quad (1.30)$$

де  $T_2$  – час поперечної релаксації, квадратними дужками позначений комутатор операторів, а трикутними – квантово-механічне усереднення. Для дипольно-активного коливання повний гамільтоніан  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}'$  розділяється на незбурену частину квантового осцилятора  $\hat{H}_0 = \hbar\omega (a^+ a + 1/2)$  та гамільтоніан електричної дипольної взаємодії  $\hat{H}'$ , який дорівнює:

$$\hat{H}' = -\hat{p}E = -ZE\hat{W} = -ZE \left( \frac{\hbar}{2M\omega} \right)^{1/2} (a + a^+). \quad (1.31)$$

Тут  $M$  – зведена маса двох підґраток,  $\omega$  – власна частота коливання,  $p$  – дипольний момент, який виникає як результат відносного зсуву  $W$  двох підґраток,  $Z$  – ефективний заряд,  $E$  – макроскопічне електричне поле;  $a^+$ ,  $a$  – оператори народження та знищення фононів. Прямі обчислення комутатора у правій частині (1.19) дають [26]:  $\langle [[\hat{W}, \hat{H}], \hat{H}] \rangle = \hbar^2 \omega^2 W - \hbar^2 ZE / M$  і для випадку слабого згасання  $\omega^2 \gg 1/T_2^2$ . Якщо визначити сталу згасання як  $\Gamma = 2/T_2$ , то загальний вигляд квантового рівняння (1.30) повністю співпадає з класичним

рівнянням для вимушених коливань осцилятора під дією зовнішнього електричного поля.

Для анізотропних кристалів без центру симетрії картина фононного спектра виявляє досить складний характер. За рахунок анізотропії силових сталих частоти коливань атомів у різних напрямках стають суттєво різними. У кристалах ромбічної симетрії і вище, як вже відмічалось у п.1.1.5, можна вибрати систему головних осей, що співпадає з кристалографічними осями та діагоналізує тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega)$  в усьому діапазоні частот. Для кристалів, які мають  $N_k$  коливальних мод вводять набір нормальних координат  $W_i^k$ , ( $i=1-N_k$ ). Тоді:

$$W_i^k + \Gamma_i W_i^k + \omega_{ik}^2 W_i^k = \frac{Z_i}{M_i} E_k \quad (1.32)$$

$$P_k = \sum_{i=1}^{N_k} Z_i W_i^k + \varepsilon_k^\infty - 1 \varepsilon_0 E_k, \quad (1.33)$$

де  $P_k$  – компонента поляризації, а  $\varepsilon_k^\infty$  – головне значення діелектричного тензора на оптичних частотах. Дисперсійну залежність  $\varepsilon_k(\omega)$  знаходять з матеріального рівняння:

$$\varepsilon_0 \varepsilon_k E_k = \varepsilon_0 E_k + P_k \quad (1.34)$$

шляхом спільного розв'язку (1.32) та (1.33).

$$\varepsilon_k(\omega) = \varepsilon_k^\infty + \sum_{i=1}^{N_k} \frac{S_{ik} \omega_{ik}^2}{\omega_{ik}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_i}, \quad (1.35)$$

де  $S_{ik} = Z_i^2 / \omega_{ik}^2$  – сила осцилятора  $i$ -ого коливання ґратки, що виявляється з поляризацією вздовж  $k$ -ої осі. Сила осцилятора  $S_{ik}$  у формі запису (1.35) є безрозмірною величиною, що дає внесок у низькочастотну ДП  $\varepsilon(0) = \varepsilon(\omega \rightarrow 0)$  від окремого полярного коливання кристала. У прозорих анізотропних діелектриках  $\varepsilon_k^\infty = n_k^2$ , де  $n_k$  – показник заломлення для лінійно поляризованої оптичної хвилі з напрямом поляризації вздовж  $k$ -ої осі

Зауважимо, що дисперсійна формула (1.35) практично співпадає з результатами класичної теорії Лорентца, однак отримана шляхом розв'язку

загальних квантових рівнянь динаміки кристалічної ґратки. Цей факт можна розглядати як наслідок відомої теореми Еренфеста [27] про перехід квантової механіки мікрочастинок у класичні рівняння при описанні макроскопічних об'єктів.

Разом з цим, квантове обґрунтування співвідношення (1.35) дає надійну теоретичну основу для кількісного визначення дисперсії тензора  $\varepsilon_k(\omega)$  за експериментальними даними, зокрема у наших дослідженнях терагерцових аномалій. Параметри дисперсійної формули (1.35) – сили осциляторів  $S_{ik}$ , частоти поперечних коливань  $\omega_{ik}$  та сталі згасання  $\Gamma_i$  можна виміряти безпосередньо за спектрами ГЧ відбиття для полярних коливань (див. п.3). Особливості комбінаційного розсіяння на полярних коливаннях кристала розглядаються у п 1.2.3.

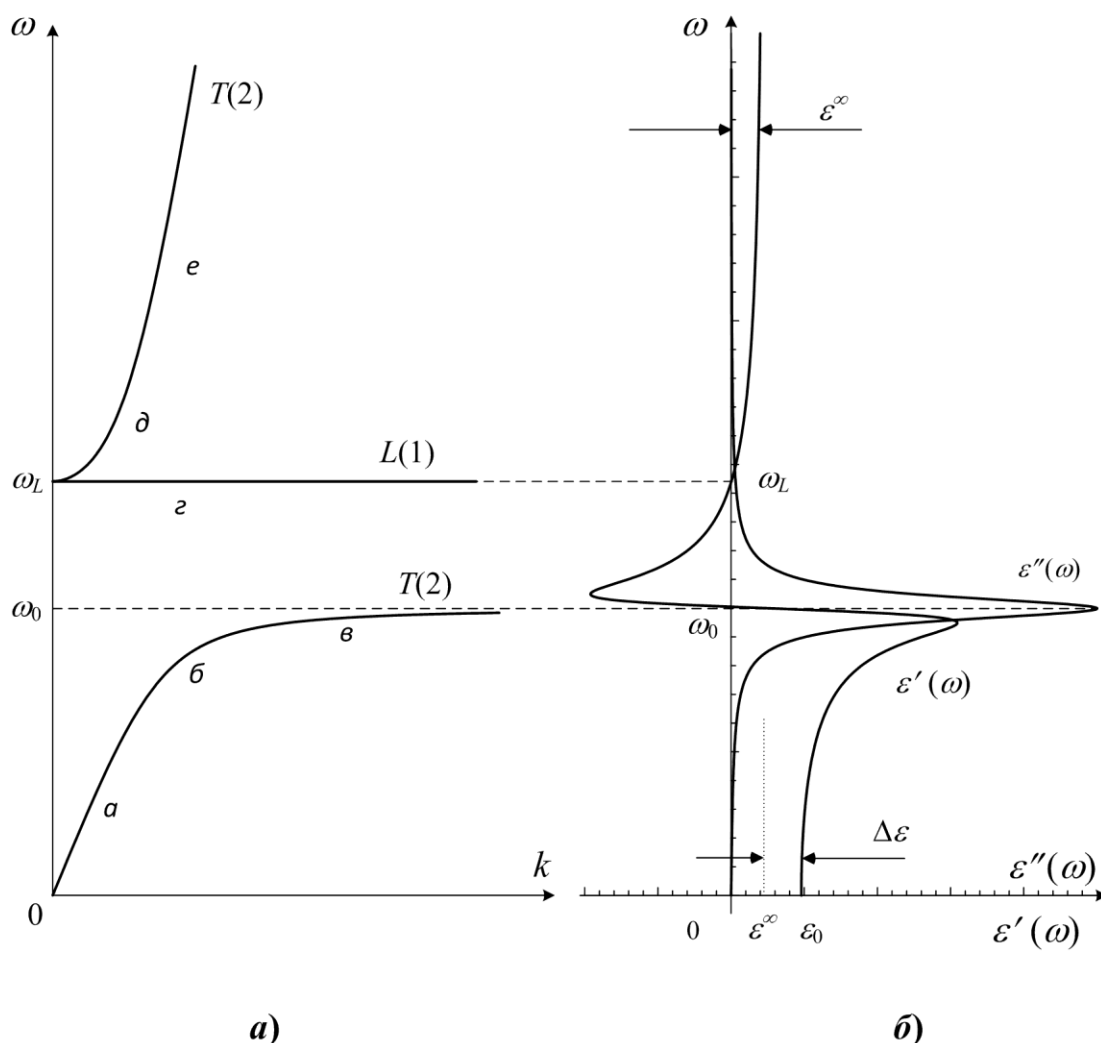
### 1.2.2 Дисперсійна формула Куросави та співвідношення Лідейна-Сакса-Теллера

У наближенні відсутності згасання фононів  $\Gamma_i=0$  компоненти тензора діелектричної проникності (1.35) можна виразити у загальному вигляді через частоти поздовжніх  $\omega_{ik}^L$  та поперечних  $\omega_{ik}^T$  коливань у вигляді співвідношення Куросави [28]:

$$\varepsilon_k(\omega) = \varepsilon_k^\infty \prod_{i=1}^{N_k} \frac{(\omega_{ik}^L)^2 - \omega^2}{(\omega_{ik}^T)^2 - \omega^2}, \quad (1.36)$$

яке є дійсною функцією, що виражає дисперсійну залежність ДП тільки через фундаментальні частоти полярного коливання та не містить сили осцилятора. Згідно з (1.36) всі нулі цієї дійсної функції  $\varepsilon_k(\omega)$  є частотами поздовжніх  $\omega_{ik}^L$  коливань, частотам поперечних  $\omega_{ik}^T$  коливань відповідають полюси. Відповідно для оберненого тензора діелектричної непроникуваності  $\varepsilon_k^{-1}(\omega)$  (див. п. 1.1.3) всі полюси є нулями дисперсійної функції  $\varepsilon_k(\omega)$  і навпаки.

Поляритонна дисперсія  $\omega = \omega(k)$  (а) та дисперсія обох части ДП  $\varepsilon'(\omega)$  і  $\varepsilon''(\omega)$  (б) для двоатомного кубічного кристала показані на рис. 1.1.



**Рис. 1.1.** а) Поляритонна дисперсія  $\omega = \omega(k)$  б) дисперсія обох частин ДП для двоатомного кубічного кристала

Область  $\omega_{ik}^T < \omega < \omega_{ik}^L$  називають Т-Л-розщепленням полярного коливання. Очевидно, що це область від'ємної ДП, але вона співпадає з Т-Л-розщепленням і завжди існує тільки при ідеалізованому описанні при  $\Gamma_i=0$ . Дослідження реальних кристалів та фізичних умов виникнення областей від'ємної ДП проводились в нашій роботі, а їх результати викладені в наступних розділах.

Саме у наближенні відсутності згасання фононів  $\Gamma_i=0$  загальне співвідношення (1.35) стає еквівалентним (1.36) і це дозволяє виразити силу

осцилятора  $S_{ik}$  через частоти поздовжніх  $\omega_{ik}^L$  та поперечних  $\omega_{ik}^T$  коливань у вигляді

$$S_i = \varepsilon^\infty \left[ \left( \frac{\omega_i^L}{\omega_i^T} \right)^2 - 1 \right] \prod_{j \neq i}^N \frac{(\omega_j^L)^2 - (\omega_i^T)^2}{(\omega_j^T)^2 - (\omega_i^T)^2}, \quad (1.37)$$

де для спрощення запису опущено індекс  $k$  для позначення поляризації. При обчисленнях сил осцилятора за допомогою (1.37) слід враховувати наступне. По-перше, T-L-розщеплення окремого полярного коливання однозначно визначає його силу осцилятора тільки для однієї коливної моди. Залежність кожної сили осцилятора в (1.37) від всіх без винятку коливних мод кристала може приводити до цілком очевидних утруднень при обрахунку реальних багато фонових спектрів внаслідок не повноти даних або перекриття відповідних спектральних ліній.

По-друге, значення сил осциляторів в (1.37) є результатом наближення відсутності згасання фонових  $\Gamma_i=0$ . Однак, аналіз впливу згасання [12] показує, що відповідні поправки до сил осциляторів при  $\Gamma_i>0$  є не суттєвими для сильних фундаментальних коливань, а помітним вони стають тільки для задемпфованих коливань з малим T-L-розщепленням.

Варто зазначити, що за двадцять років до Куросави [28] в роботі [29] було отримано наступне співвідношення

$$\frac{\omega_L}{\omega_T} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon^\infty}}, \quad (1.38)$$

яке отримало назву співвідношення Ліддейна-Сакса-Теллера або співвідношення ЛСТ за прізвищами авторів. Воно вперше встановило зв'язок між частотами поздовжніх і поперечних коливань та діелектричними параметрами кристала.

Зауважимо, що частоти поздовжніх і поперечних коливань можна визначати за спектрами комбінаційного розсіяння (КР) для нецентросиметричних кристалів.

### 1.2.3 Особливості визначення дисперсійних параметрів за спектрами комбінаційного розсіяння

Загальний підхід до спонтанних полярних коливань у кристалі, який не обмежений наближенням відсутності згасання фононів  $\Gamma_i=0$ , проводиться шляхом розгляду зсувів ґратки  $\dot{W}^i$  на базі флуктуаційно-дисипативної теореми (ФДТ) [30], тобто як величини, що має флуктуації. Якщо ці зсуви ґратки викликають появу дипольного моменту, то вони супроводжуються електричним полем,  $\dot{E}$ , яке також є величиною, що має флуктуації, а його середнє значення  $\langle |\dot{E}|^2 \rangle_\omega$  має вигляд [8,12,30]:

$$\langle |\dot{E}|^2 \rangle_\omega = \frac{\hbar}{\pi} [n(\omega) + 1] \text{Im}[\alpha^{30\text{вн}}(\omega)], \quad (1.39)$$

де  $n(\omega)$  – фактор Бозе-Ейнштейна;  $\text{Im}[\alpha^{6\text{н}}(\omega)]$  – уявна частина узагальненої сприйнятливості.

Відповідно до ФДТ, можна формально ввести поляризацію  $\dot{P}_{30\text{вн}}$  як узагальнену силу, відгуком на яку служать розглянуті флуктуації електричного поля [8]. Для знаходження узагальненої сприйнятливості скористаємося рівняннями Максвелла, які приводять до співвідношення:

$$\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \dot{P}' = \left( k^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \right) \dot{E} - k \overset{\text{r r}}{kE}, \quad (1.40)$$

де поляризація  $\dot{P}' = \dot{P} + \dot{P}_{30\text{вн}}$  є векторною сумою поляризації  $\dot{P}$  та  $\dot{P}_{30\text{вн}}$ , які виникають у середовищі, причому  $\dot{P}$  задовольняє співвідношенню (1.34).

Враховуючи (1.34), отримуємо вираз для компонент  $P_j^{30\text{вн}}$ :

$$\frac{4\pi\omega^2}{c^2} P_j^{30\text{вн}} = \left( k^2 - \varepsilon_j \frac{\omega^2}{c^2} \right) E_j - k_j \overset{\text{r r}}{kE}, \quad (1.41)$$

з якого випливає, що:

$$\alpha_{ij}^{30\text{вн}} = \frac{c^2}{4\pi\omega^2} \left[ \left( k^2 - \varepsilon_j \frac{\omega^2}{c^2} \right) \delta_{ij} - k_i k_j \right]. \quad (1.42)$$

Якщо (1.41) представити у тензорному вигляді –  $E_i = T_{ij} P_j^{306H}$ , то тензор  $T_{ij} = (\alpha_{ij}^{306H})^{-1}$  є оберненим до тензора узагальненої сприйнятливості (1.42) і має наступні компоненти:

$$T_{11} = -\frac{4\pi}{D} \left\{ k^2 k_1^2 - [\varepsilon_2(k_1^2 + k_3^2) + \varepsilon_3(k_1^2 + k_2^2)] \frac{\omega^2}{c^2} + \varepsilon_2 \varepsilon_3 \frac{\omega^4}{c^4} \right\},$$

$$T_{12} = -\frac{4\pi}{D} k_1^2 k_2^2 \left( k^2 - \varepsilon_3 \frac{\omega^2}{c^2} \right) = T_{21},$$
(1.43)

$$D = k^2(\varepsilon_1 k_1^2 + \varepsilon_2 k_2^2 + \varepsilon_3 k_3^2) - [\varepsilon_1(\varepsilon_2 + \varepsilon_3)k_1^2 + \varepsilon_2(\varepsilon_1 + \varepsilon_3)k_2^2 + \varepsilon_3(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)k_3^2] \frac{\omega^2}{c^2} + \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3 \frac{\omega^4}{c^4}. \quad (1.44)$$

Чотири компоненти  $T_{ij}$ , що залишилися, можна отримати шляхом простої циклічної перестановки індексів.

Для нашої роботи найважливішим результатом викладеної теорії є її узагальнення на випадок довільного фононного згасання в кристалах будь-якої симетрії. Внаслідок такого узагальнення дисперсійні співвідношення для поляритонів, які є фотон-фононою сумішшю, знаходяться у максимумах функції  $1/D(\omega)$ . Комплексна функція  $D(\omega)$  базується на представленні компонент тензора  $\varepsilon_k(\omega)$  без жодних обмежень на величину згасання.

На підтвердження загальності викладеного підходу розглянемо граничний перехід до випадку відсутності згасання. Дійсно, якщо знехтувати згасанням фононів  $\Gamma_1=0$ , то зазначена умова максимуму функції  $1/D(\omega)$  значно спрощується і набуває вигляду найпростішого виразу –  $D=0$ .

Зокрема для кубічних кристалів, у яких  $\varepsilon_1=\varepsilon_2=\varepsilon_3=\varepsilon$ , дисперсія фононів визначається добре відомими коренями рівняння  $\varepsilon(k^2 - \varepsilon\omega^2 / c^2)^2 = 0$ , яке має не вироджений корінь  $\varepsilon=0$  для подовжнього фонона та подвійно вироджений корінь  $k^2 c^2 / \omega^2 = \varepsilon$  для поперечного фонона. Якщо скористатися (1.36) для випадку одного полярного коливання, коли  $\omega_{ik}^T = \omega_0$ , то ці дисперсійні співвідношення матимуть вигляд:

$$\omega = \omega_L = \omega_0 (\varepsilon_0 / \varepsilon^\infty)^{1/2} \quad (1.45)$$

та

$$\frac{k^2 c^2}{\omega^2} = \frac{\omega_0^2 \varepsilon_0 - \omega^2 \varepsilon^\infty}{\omega_0^2 - \omega^2}. \quad (1.46)$$

Дисперсійні співвідношення (1.45) – (1.46) представлені на рис.1.1а та рис.1.2а для поляритона в двохатомному кубічному кристалі. Більш складні випадки анізотропних багатоатомних кристалів були розглянуті в [12].

Таким чином, у випадку відсутності згасання отримують аналітичні залежності для дисперсійних співвідношень полярних коливань кристалічної ґратки як у фононній, так і в поляритонній області для кристалів довільної симетрії. Однак, застосування ФДТ дозволяє також описати поведінку фононів у загальному випадку наявності згасання. Дійсно, поблизу від резонансу, тобто в районі власних збуджень кристалу, флуктуації коливань ґратки та електричного поля  $E(t)$  стають максимальними. Тому реальні поляритонні криві знаходяться як максимуми за  $k$  функції  $\text{Im}(\alpha^{3\text{овн}})$ , яка фігурує у формулі ФДТ. Ця умова є еквівалентною до знаходження максимуму функції  $\text{Im}[1/D(\omega)]$ .

### Обчислення інтенсивності ліній КР на полярних фононах у кристалах без центру інверсії

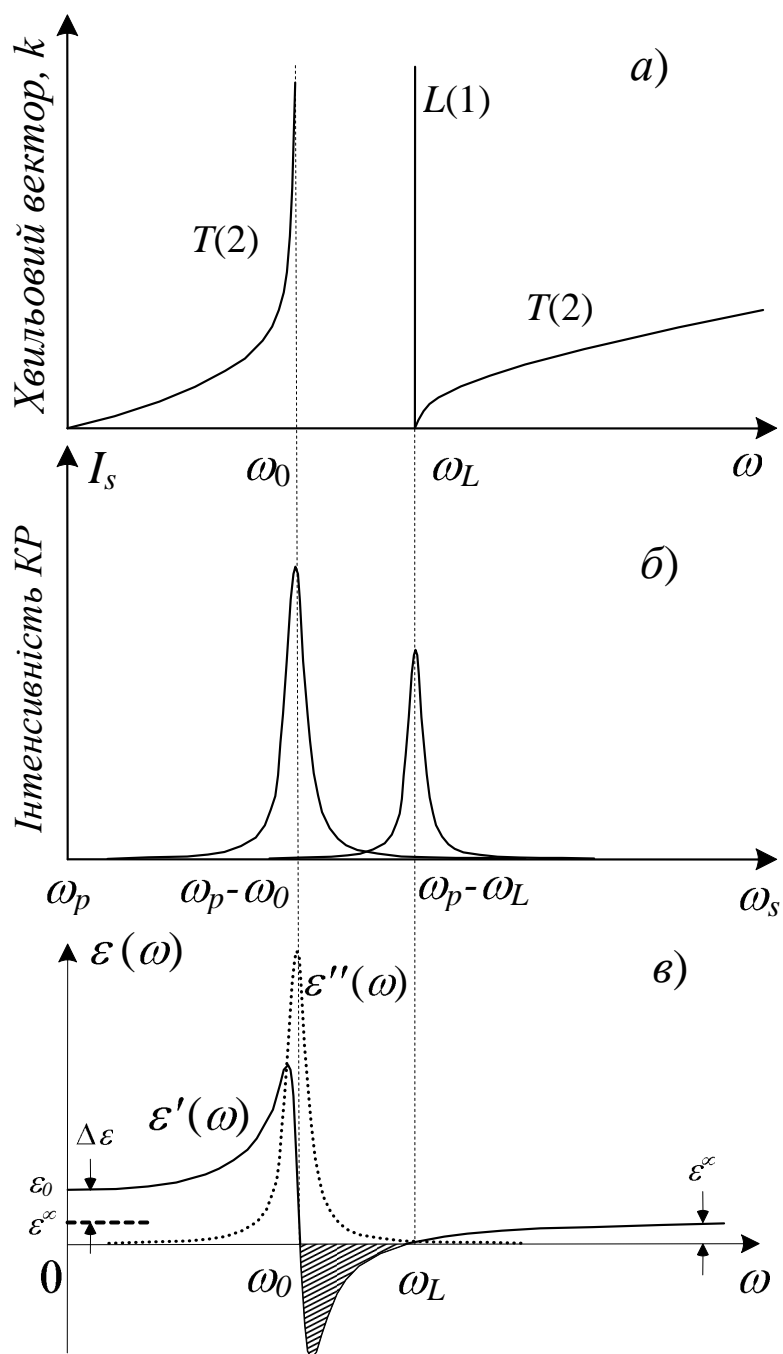
Поляризацію на стоксовій частоті  $\omega_s$ , як відомо [8,12], можна записати так:

$$P_i^s = \alpha_{ijk}^m E_j^l W_k^{m*} + \xi_{ijk} E_j^l E_k^*, \quad (1.47)$$

де за індексами, що повторюються (тобто  $m, j$  та  $k$ ), береться сума. Коефіцієнти  $\alpha_{ijk}^m$  та  $\xi_{ijk}$  є незалежними і для даного кристалу визначаються експериментально шляхом вимірювань перерізу КР та ефективності генерації другої гармоніки (ГДГ). За означенням, тензор КР – це  $\alpha_{ijk}^m = \partial \alpha_{ij} / \partial W_k^m \Big|_{W^m=0}$ . Якщо представити (1.47) у вигляді:

$$P_i^s = [\alpha_{ijk}^m \beta_k^m + \xi_{ijk}] E_j^l E_k^*, \quad (1.48)$$

то у квадратних дужках фігурує тензор нелінійної сприйнятливості другого порядку. Резонансна поведінка нелінійної сприйнятливості за цих умов явно проявляється у множниках  $\beta_{mk}$ .



**Рис. 1.2.** Динамічні властивості кристалічної ґратки двохатомного кубічного кристала.  
 а) дисперсійні криві; б) стоксів спектр КР;  
 в) залежність  $\epsilon = \epsilon(\omega)$

Інтенсивність спонтанного комбінаційного розсіяння (СКР) світла на стоксовій частоті визначається наведенням у середовищі нелінійної поляризації  $P_{NL}(\omega_s)$ . Ця поляризація збуджується полем лазерної хвилі з частотою  $\omega_p$  в результаті взаємодії зі спонтанними коливаннями ґратки з частотою  $\omega$ . Поперечний переріз розсіяння отримуємо, враховуючи випромінювання від осцилюючого диполя  $P_{NL}(\omega_s)$ , і він має вигляд:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_s} = \frac{n_s \omega_s^3 \omega_p V^2 \langle |P_{NL}|^2 \rangle_{\omega_s}}{n_p c^4 |E_p|^2}, \quad (1.49)$$

де  $V$  – об'єм, що розсіює,  $n_s$  та  $n_p$  – показники заломлення на частотах  $\omega_s$  та  $\omega_p$ .

На практиці безпосередньо вимірюється ефективність КР:

$$I = \frac{\omega_p}{A\omega_s} \left[ \int \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_s} \right) d\omega_s \right] \Delta\Omega, \quad (1.50)$$

де  $\Delta\Omega$  – тілесний кут, який обмежений спектрометром,  $A$  – освітлена площа кристала. Величина  $A$  разом з об'ємом розсіяння  $V$  визначає довжину розсіяння  $L=V/A$ .

Оскільки спонтанне розсіяння світла відбувається при змішуванні його з флуктуаціями зсувів у кристалі, то поперечний переріз розсіяння, відповідно до (1.49), зв'язаний із середньоквадратичними флуктуаціями нелінійного осцилятора  $P_{NL}$ . Ці флуктуації можна визначити на основі ФДТ, якщо відомою є узагальнена сприятливість або функція відгуку на зовнішню силу. Тоді, з урахуванням співвідношення (1.48), (1.49) набуде вигляду:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_s} = \frac{n_s V^2 \omega_s^3 \omega_p}{n_p c^4} \langle |e_i^s e_j^p (\alpha_{ijk}^m W_k^m + \xi_{ijk} E_k^*)|^2 \rangle_{\omega_s}, \quad (1.51)$$

де  $e^p$ ,  $e^s$  – вектори поляризації лазерного та розсіяного світла.

Коливні амплітуди  $W_{mk}$  збуджуються спонтанно. Тому їх розглядають як ті, що виникають під дією фіктивної сили  $F_{mj}^{30BH}$  й вводять функцію механічного відгуку [12]:

$$W_i^n = T_{ij}^{nm} F_{mj}^{30BH}. \quad (1.52)$$

Тензор  $T_{ij}^{nm}$  визначають з рівнянь руху (1.32)-(1.34) у вигляді:

$$T_{ij}^{nm} = \beta^n \beta^m T_{ij} + (\beta^n / Z_n) \delta_{nm} \delta_{ij}, \quad (1.53)$$

де  $\beta_n$  є лінійним відгуком зсуву  $W_{ni}$  на макроскопічне поле  $E_i$ , тобто:

$$W_i^n = \beta_i^n E_i, \quad (1.54)$$

причому, згідно до лінійних рівнянь руху, для  $W_{ni}$  отримуємо:

$$\beta_i^n = \frac{Z_n}{M_n (\omega_{jn}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_j)}. \quad (1.55)$$

Таким чином, диференціальний переріз КР для поперечних коливань набуде вигляду:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_s} = \frac{4\hbar n_s V \omega_s^3 \omega_p}{n_p c^4} [n(\omega) + 1] \times \text{Im} \left\{ \frac{(\alpha_{ijk}^m \beta_k^{m*} + \xi_{ijk})(\alpha_{ijk}^{n*} \beta_k^n + \xi_{ijk}^*)}{k^2 c^2 / \omega^2 - \varepsilon_j} + |\alpha_{ijk}^m|^2 \frac{\beta^m}{Z_m} \right\} \quad (1.56)$$

Оскільки у  $90^\circ$  розсіянні бере участь чисто фононне коливання, для якого  $k^2 c^2 / \omega^2 \gg \sqrt{\varepsilon_j}$ , то першим доданком у фігурних дужках нехтують, що значно спрощує (1.56) до наступного вигляду:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_s} = \frac{4\hbar n_s V \omega_s^3 \omega_p}{n_p c^4} [n(\omega) + 1] \cdot |\alpha_{ijk}^m|^2 \text{Im}(\beta^m / Z_m). \quad (1.57)$$

Форма лінії КР на поперечних фононах кристала, як бачимо, визначається частотною залежністю уявної частини  $\beta_m / Z_m$ . Наслідком (1.57) є те, що для досить вузьких ліній, які характерні для багатьох кристалів, зокрема для ніобату літію, коли можна вважати, що  $\Gamma_m / \omega_m \ll 1$ , форма лінії є близькою до лорентцевої. Враховуючи (1.55), із порівняння (1.57) з дисперсійною формулою ДП (1.35) безпосередньо витікає, що спектр КР на поперечних фононах кристала фактично повторює дисперсійну залежність уявної частини ДП, яку помножили на відносно повільну функцію  $n(\omega) + 1$  від частоти  $\omega$ .

Отже спектр КР на полярних оптичних фононах, нормований на Бозе-фактор  $n(\omega) + 1$  [та частотно-незалежні сталі в (1.35) та (1.57)], є дисперсійною залежністю уявної частини ДП. Це максимально спрощує процедуру дисперсійного аналізу тензора ДП  $\varepsilon(\omega)$  за спектрами КР. Дійсно,

фундаментальні частоти  $\omega_i^T$  та  $\omega_i^L$  є максимумами відповідних спектрів, напівширина лінії КР на поперечному фоні дає сталу згасання  $\Gamma_i$ , яка входить до дисперсійної формули (1.35).

Експериментальні обмеження і особливості методів аналізу дисперсії діелектричної проникності в терагерцовому діапазоні та в кристалах різних класів розглядаються в наступному підрозділі 1.3.

### 1.3 Експериментальні дослідження та методи дисперсійного аналізу

Терагерцовий діапазон від 1 ТГц до 10 ТГц (в хвильових числах відповідно від  $33 \text{ см}^{-1}$  до  $333 \text{ см}^{-1}$ ) останнім часом прийнято розглядати окремо від інфрачервоного (ІЧ) спектру частот та НВЧ діапазону радіохвиль. Окреме виділення терагерцового діапазону продиктовано найменшим освоєнням цих частот в практичному плані. Фундаментальними причинами майже повної відсутності практичних пристроїв управління електромагнітним випромінюванням є радикальна зміна умов розповсюдження хвиль та фізичних параметрів середовища не тільки завдяки різкому збільшенню нормальної дисперсії, а й появі аномальної дисперсії ДП в цьому діапазоні частот.

Джерелами дисперсії в кристалах, згідно з викладеною вище теорією, є полярні коливання ґратки. Власні частоти цих коливань реально знаходяться приблизно від  $50 \text{ см}^{-1}$  до  $1000 \text{ см}^{-1}$  і, отже, проникають у середину зазначених меж терагерцового діапазону. В результаті аномалії відгуку кристала, які збуджують хвилю, максимально наростають при наближенні частоти електромагнітного випромінювання до резонансної частоти з полярними модами кристала та переході через неї. Загалом аномальна дисперсія досить довго розглядалась виключно в якісному плані, а кількісні дослідження терагерцових аномалій, як і виділення терагерцових частот в окремий діапазон, актуалізувалися тільки останнім часом.

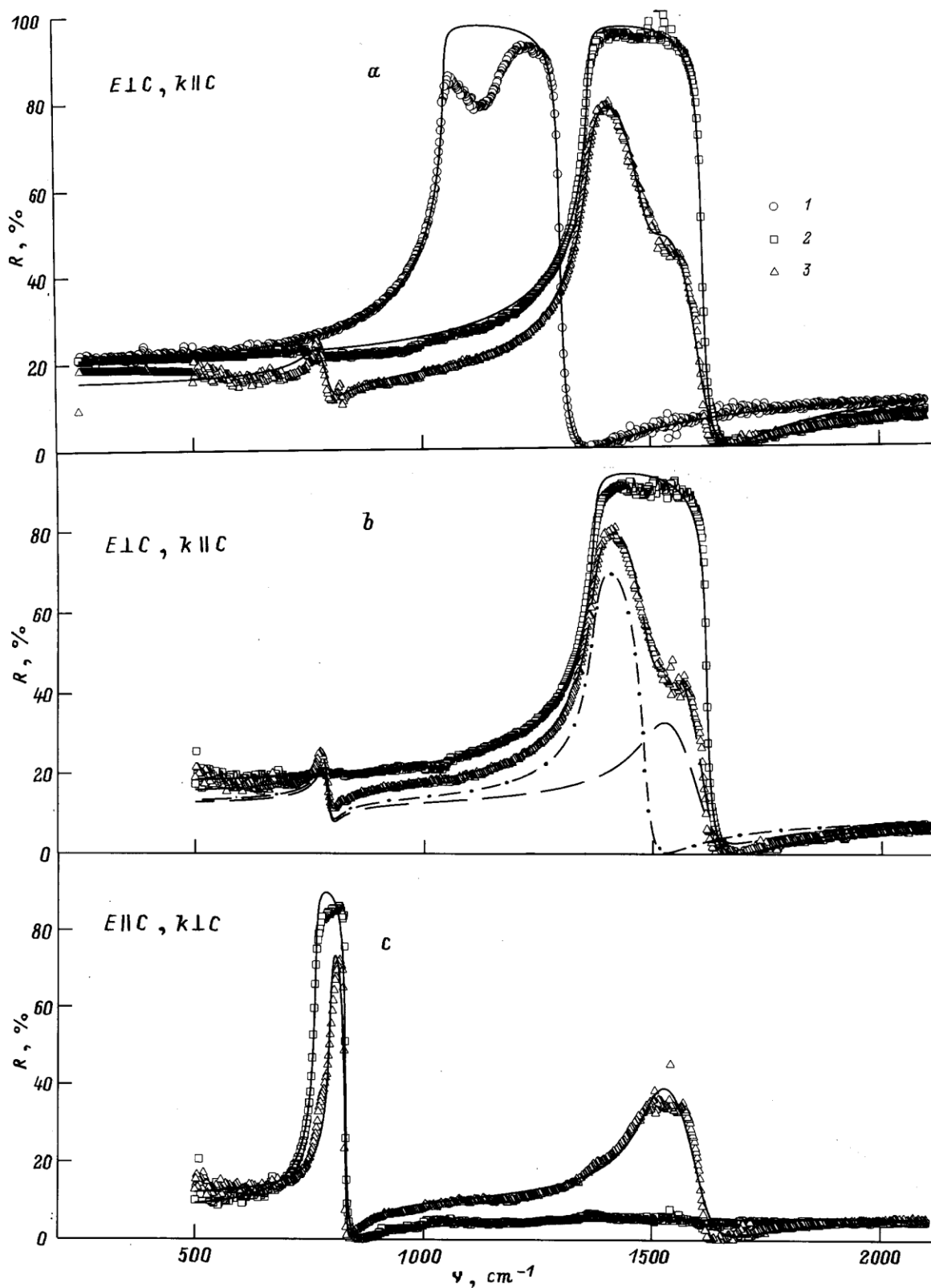
Разом з цим спектральні характеристики полярних коливань (безвідносно їх впливу на розповсюдження хвиль в середині кристалу) є предметом експериментальних досліджень методами коливної спектроскопії, яка

розвивається вже більш, ніж півтора сторіччя. До основних методів експериментальних досліджень джерел дисперсії відносять головним чином спектроскопію ІЧ відбиття, а для певного класу кристалів і спектроскопію КР. Загалом, з точки зору експериментальних методик дослідження діелектричної дисперсії, терагерцовий діапазон слід віднести скоріше до довгохвильової частини ІЧ спектру, аніж до НВЧ діапазону радіохвиль.

При порівнянні методик ІЧ та КР спектроскопії дипольних коливань вирішальну роль має відоме правило альтернативної заборони [13]. Альтернативна заборона є результатом теоретико-групового аналізу правил відбору для КР активних коливань – за наявності інверсії, як елементу симетрії в точковій групі кристалу, всі коливання в спектрі КР кристала є дипольно не активними та не проявляються в ІЧ спектрах відбиття. І навпаки, полярні коливання кристалу, що має центр симетрії, є тільки в ІЧ спектрі та відсутні в КР.

Отже, при вивченні джерел дисперсії тензора діелектричної проникності в кристалах універсальним методом експериментальних досліджень є тільки ІЧ спектроскопія. В центросиметричних кристалах всі коливні моди в спектрі не дають внесків у ДП і стають повністю безплідними для досліджень дисперсії. Але КР спектроскопія є потужним методом досліджень дисперсії у нецентросиметричних кристалах [21]. Хоча нецентросиметричні групи мають лише окремі кристалічні класи, але такі кристали є надзвичайно важливими матеріалами квантової електроніки, нелінійної та інтегральної оптики [25].

Кристали, як об'єкт досліджень в ІЧ області спектра, були від самого зародження спектрального аналізу, 150 річчя якого відзначалося у 2009 році. КР спектроскопія, була започаткована у 1928 році, але як інструмент експериментальних досліджень коливних станів в кристалах, отримала широке застосування з початком лазерної епохи в 1960-х роках в тому числі і в нашій лабораторії [21,22,25]. Обома методами зараз накопичено величезну кількість експериментальних даних, що містять, як показано далі в цій роботі, ефекти терагерцових аномалій.



**Рис. 1.3.** Спектри відбиття кубічної (1), ромбічної (2) та гексагональної (3) модифікацій нітриду бора за різних поляризацій та напрямів розповсюдження світла. Точки – експеримент, суцільні лінії – розраховані спектри з урахуванням всіх можливих осциляторів. із роботи [31].

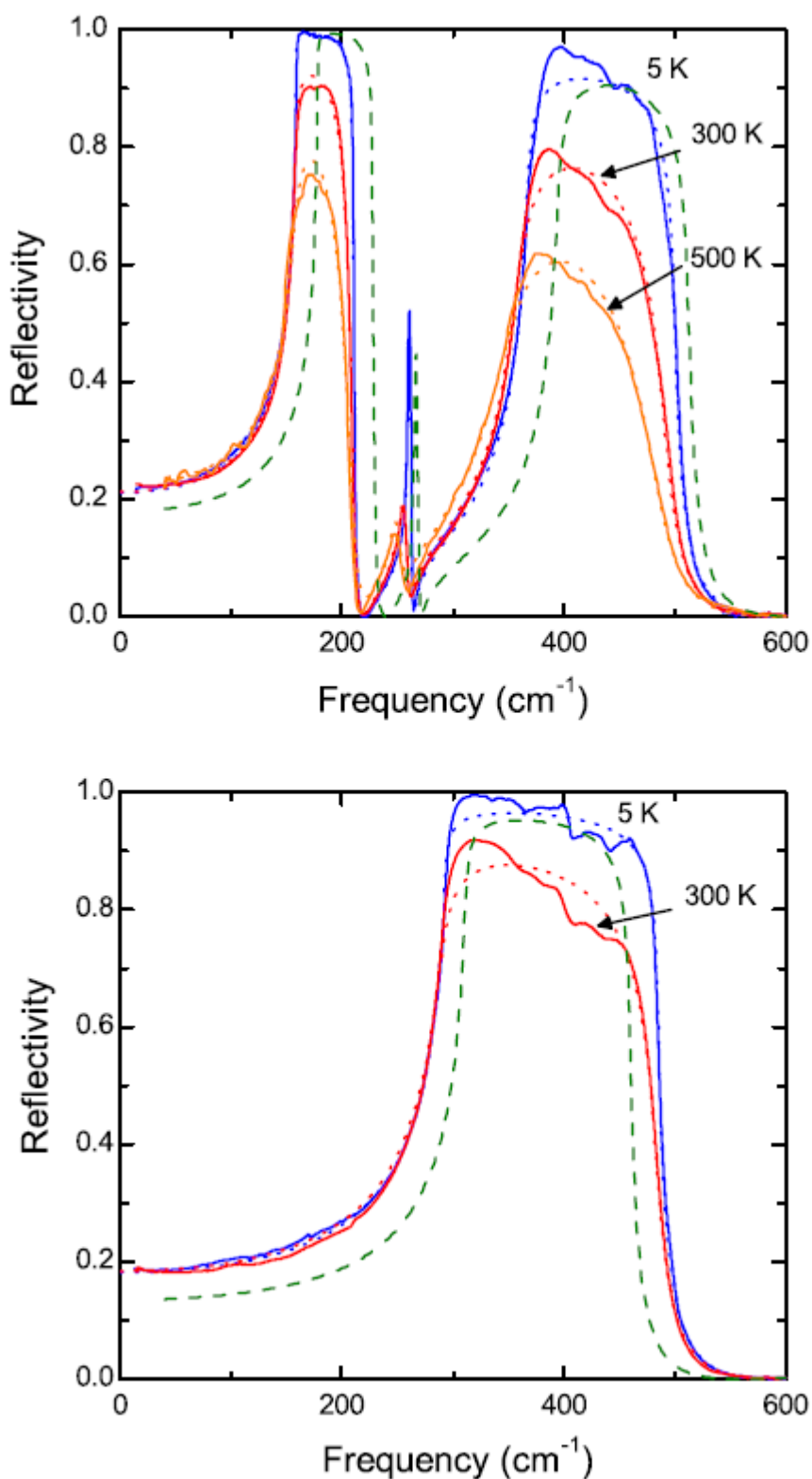
Серед них, деякі добре вивчені ефекти, з сучасної точки зору можна розглядати як ефекти прояву від'ємної ДП. Наприклад, смуги залишкових променів, що експериментально були зафіксовані ще за часів першої світової війни, а потім широко застосовувались як ІЧ фільтри, виникають в інтервалі  $T-L$  розщеплення [7] і отже в області від'ємної ДП.

При дослідженнях кристалів ІЧ спектроскопія майже виключно використовується за схемою реєстрації спектрів відбиття, оскільки величина поглинання є настільки значною, що пропускання можна зафіксувати лише за товщини зразка не більше 1 мкм або навіть ще менше. Труднощі виготовлення таких зразків, особливо з контрольованою механічними параметрами і товщиною, на практиці були непереборними без застосування найсучасніших нанотехнологій.

При моделюванні впливу згасання на області від'ємної ДП результати наших розрахунків ми порівнювали з експериментальними даними ІЧ відбиття із недавніх робіт [31,32]. Спектри відбиття для трьох кристалічних модифікацій нітриду бора BN згідно з [31] ми наводимо на рис.1.3. Саме наявність кількох кристалічних модифікацій BN дозволяє дослідити реальний вплив згасання на формування областей від'ємної ДП.

Спектри ІЧ відбиття кристала  $MnF_2$  із роботи [32], які ми наводимо на рис.1.4, є експериментальною ілюстрацією двох фактів, важливих для нашого наступного аналізу.

По-перше, представлені результати охоплюють широкий діапазон температур – від 5К до 500К. Частотне положення смуг відбиття, як видно на рис.1.4 та підтверджено даними дисперсійного аналізу, залишається майже незмінним у всьому діапазоні температур. Це означає дуже слабку залежність від температури (у кілька відсотків, тобто майже інваріантність) таких важливих параметрів полярного коливання, як частота поперечного  $\omega_T$  та частота поздовжнього  $\omega_L$  фононів. Отже незмінною буде і сила осцилятора кожної фононної моди. Головними змінами у спектрі, як видно на рис.1.4, є зменшення максимумів відбиття із ростом температури.



**Рис. 1.4.** Спектри ІЧ відбиття кристала  $\text{MnF}_2$  із роботи [32]. На верхній панелі відбиття світла з поляризацією в площині  $ab$ , а на нижній панелі – уздовж осі  $c$ . Суцільні лінії – експеримент, точкові лінії – результати ДА за формулою (1.35), пунктир – аналіз Крамерса-Кроніга за формулою (1.20).

Зменшення відбиття на кілька десятків відсотків фактично є наслідком зміни сталих згасання фононних мод в межах від 3 до 10 разів [32]. Відмічаючи цей експериментальний факт, ми обґрунтовуємо використання сталої згасання як змінної величини в нашому моделюванні фізичних умов існування від'ємної ДП.

По-друге, рис.1.4 містить порівняння результатів від двох методів дисперсійного аналізу (ДА), які є фактичними стандартами для обробки даних спектрів ІЧ відбиття. Штриховою лінією наведені дані аналізу Крамерса-Кроніга, в якому тензор ДП беруть у вигляді (1.20), а точками показаний спектр відбиття, що отриманий за допомогою тензора ДП у формі (1.35). Задовільну точність апроксимації забезпечує другий метод. Причиною явного програшу методу Крамерса-Кроніга при визначенні  $\varepsilon(\omega)$ , як видно із рис.1.4, є наступне.

Принципова різниця між двома методами лежить у способі знаходження внесків у ДП від електронної підсистеми, значення власних частот якої та їх спектральне положення в ультрафіолеті (УФ) не відомі. Форма тензора ДП у вигляді (1.35) однозначно визначає дисперсію  $\varepsilon(\omega)$  тільки через параметри фононних мод, а константа  $\varepsilon^\infty$  – це і є інтегральний внесок у ДП від УФ смуг, який обчислюється за вимірними значеннями показника заломлення. Альтернативно, проблеми знаходження всіх без винятку (а не тільки коливних) власних частот полярних мод для тензора ДП у вигляді (1.20) є джерелом настільки значних похибок обчислень, що роблять аналіз Крамерса-Кроніга малопридатним для аналізу ІЧ спектрів відбиття.

До недоліків обох методів слід віднести ігнорування тонкої структури відбиття на вершині смуги залишкових променів (рис.1.4), яка пов'язана з формуванням поверхневих станів та нелінійностями ДП різних порядків. Такими ефектами ми нехтуємо в даній роботі, а тензор ДП розглядається у лінійній формі (1.35), всі параметри якого визначаються прямими

вимірюваннями із спектрів КР або шляхом дисперсійного аналізу спектрів ПЧ відбиття.

В загальних рисах алгоритм методу ДА [32] реалізують наступним чином. Спектр відбиття описують частотним розподілом коефіцієнта відбиття електромагнітної хвилі, який для випадку нормального падіння має наступний вигляд:

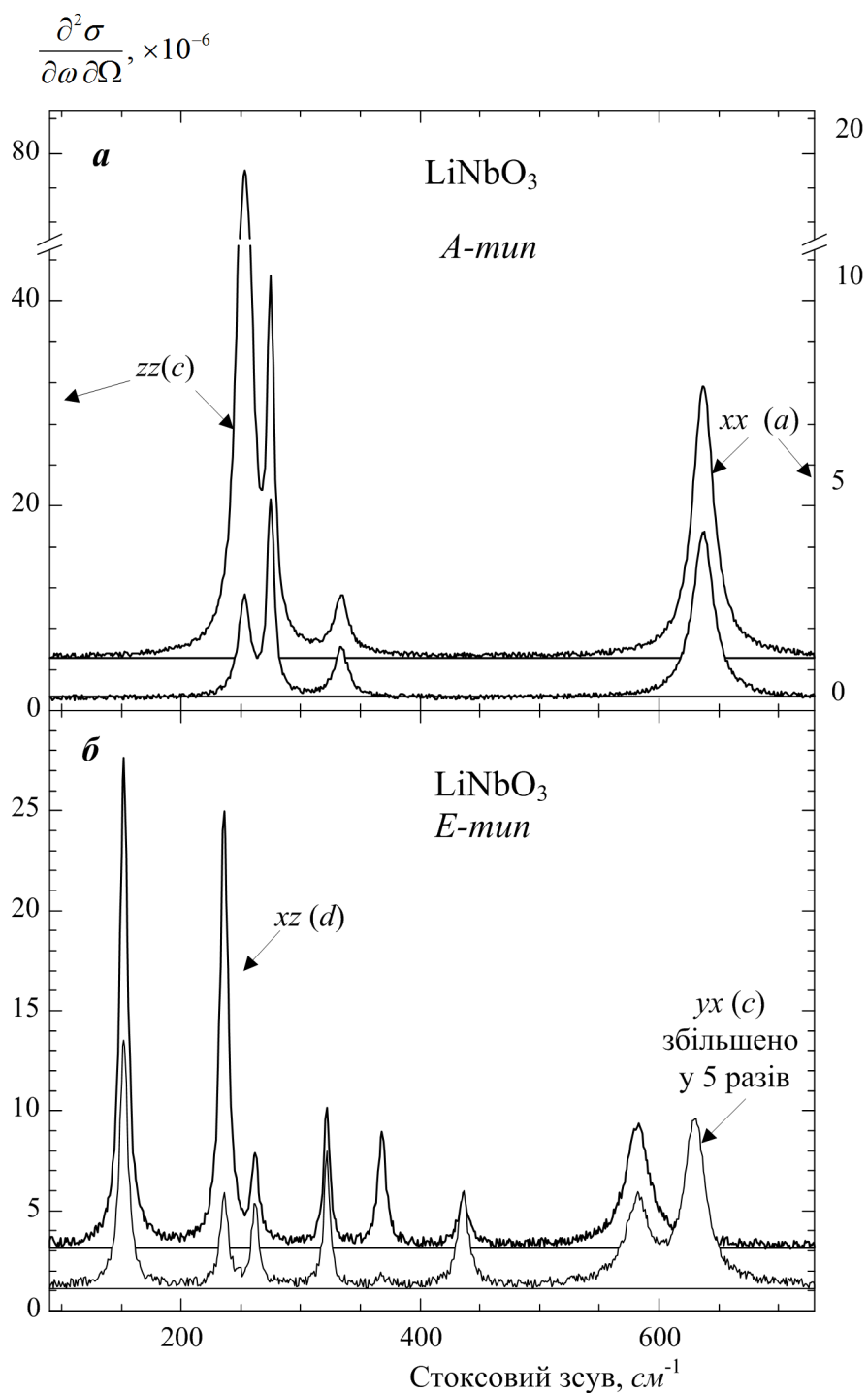
$$R(\omega) = \left| \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega)} - 1}{\sqrt{\varepsilon(\omega)} + 1} \right|^2, \quad (1.58)$$

де комплексний тензор ДП  $\varepsilon \omega$  розглядається у загальній формі (1.35). В першому наближенні частоти поперечного  $\omega_{ik}^T$  та поздовжнього  $\omega_{ik}^L$  фонових знаходять як відповідні точки перегину по обидві сторони від максимуму відбиття. Тоді сили осцилятора  $S_{ik}$  знаходять за допомогою (1.37), а значення сталих згасання  $\Gamma_{ik}$  на першому етапі можна залишати довільними, але в межах інтервалу  $0 < \Gamma_{ik} \ll \omega_{ik}^T$ . Далі підганяють розрахунковий спектр (1.58) під експериментальний шляхом варіації всіх параметрів формули (1.35). При досягненні максимальної відповідності отримують оптимальний набір параметрів  $\omega_{ik}^T$ ,  $S_{ik}$  та  $\Gamma_{ik}$ . В результаті комплексний тензор ДП  $\varepsilon \omega$  у формі (1.35) є повністю визначений.

В певних випадках, що аналізуються нижче, загальний вираз (1.58), ми конкретизуємо, використовуючи комплексний показник заломлення  $\mathcal{N}^2 = \varepsilon \omega$ ,  $\mathcal{N} = n + ik$ , де  $n$  і  $k$  - дійсна частина показника заломлення та коефіцієнт екстинції відповідно (подробиці див. у п.2.1).

Зазначимо, що спектр поглинання – це частотна залежність коефіцієнта поглинання  $\alpha \omega$  :

$$\alpha(\omega) = 4\pi\nu \operatorname{Im}[\sqrt{\varepsilon(\omega)}] = 4\pi\nu k(\omega), \quad (1.59)$$



**Рис. 1.5.** Абсолютні перерізи КР в кристалі LiNbO<sub>3</sub>. Спектри вимірювались в нашій лабораторії [33] при попередніх дослідженнях джерел електрооптичного ефекту.

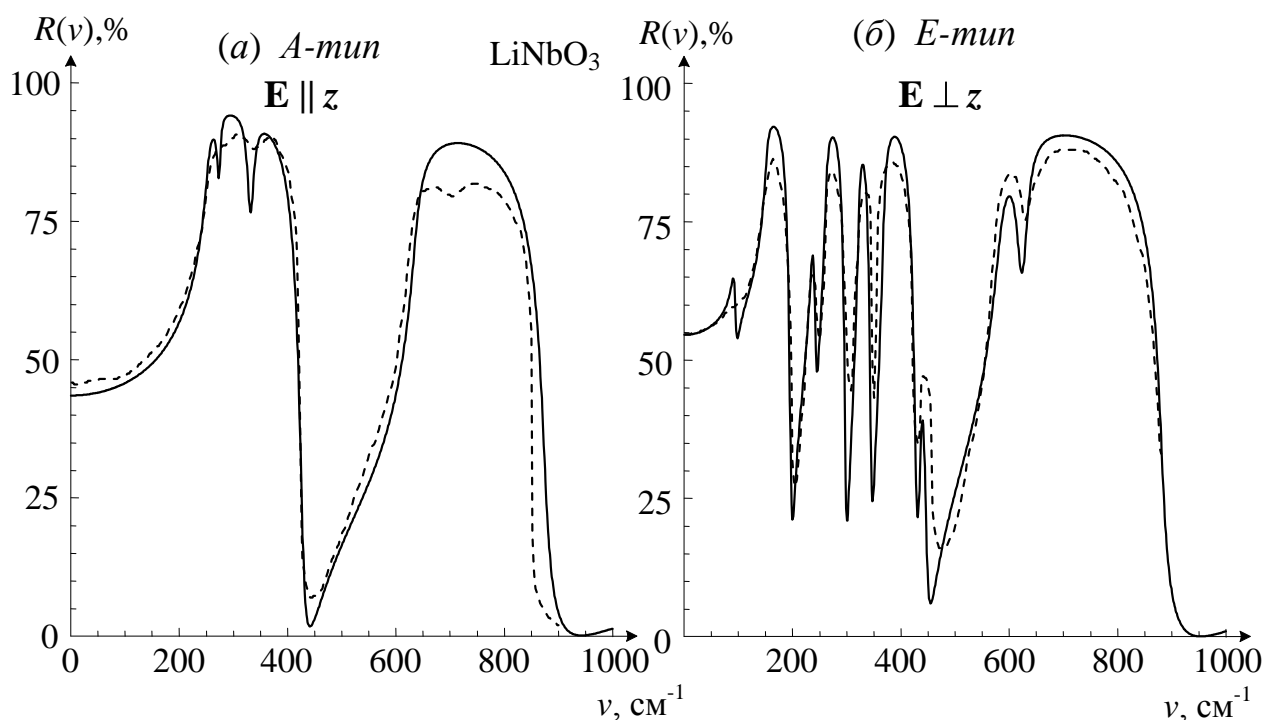
де  $\nu$  – хвильове число. Хоча спектр поглинання прямо зв'язаний з коефіцієнтом екстинції, однак у кристалах він виявляється недоступним для прямих вимірювань в ІЧ діапазоні навіть у тонких зразках [31].

Параметри дисперсійної формули  $S_{ik}$ ,  $\omega_{ik}^T$  та  $\Gamma_{ik}$ , як вже зазначалось у п.1.2.3, вимірюються безпосередньо із спектрів КР: по пікам інтенсивності визначають частоти поперечних та поздовжніх коливань, а по напівширині – сталу згасання.

В нашій лабораторії спектри СКР були отримані за допомогою лазерного КР - спектрометру на базі спектрометра ДФС-12А з наступними технічними характеристиками [12]. Джерелом збудження КР застосовувався іонний аргонний лазер "Игла -2". Інтерференційним фільтром виділялася одну із ліній генерації лазера з  $\lambda = 488$  нм або 514,5 нм, а лінійна поляризація випромінювання встановлювалася кристалічним поляризатором. Поворот кристалічних зразків на будь-який кут навколо трьох взаємно перпендикулярних осей здійснювався завдяки його монтажу на столику Федорова. Схема фотоелектричної реєстрації дозволяла впевнено фіксувати світлові потоки з інтенсивністю 50 фотонів за секунду завдяки малим шумам спеціально вибраного фотоелектронного помножувача (темновий струм  $\leq 3 \cdot 10^{-10}$  А). Експериментальна установки забезпечувала роздільну здатність не гірше, ніж  $1 \text{ см}^{-1}$ .

Поляризовані спектри СКР на поперечних фонах, які записувались за 90-градусною схемою реєстрації, наведено на рис.1.5. [33] для всіх можливих в кристалі  $\text{LiNbO}_3$  фундаментальних коливань (4А та 9Е). Коливання А-типу (рис.1.5а) дають внески у компоненту тензора ДП  $\varepsilon_3(\omega) = \varepsilon_p(\omega) = \varepsilon_{zz}(\omega)$ , де кристалографічна вісь  $z$  направлена вздовж головної оптичної осі кристала. Коливання Е-типу відповідно дають внески у дві рівні між собою компоненти тензора ДП  $\varepsilon_1(\omega) = \varepsilon_2(\omega) = \varepsilon_{\perp}(\omega)$ . Спектри дають можливість визначити з високою точністю не тільки фундаментальні частоти поперечних та поздовжніх (не показані на рис.1.5) фононів, але й їх сталі згасання. Таким чином всі

параметри дисперсійної формули (1.35) повністю визначені експериментальним шляхом.



**Рис. 1.6.** Виміряні (пунктир) та обчислені за даними КР (суцільна лінія) спектри ІЧ відбиття у кристалі ніобату літію для паралельної (а) та перпендикулярної (б) поляризації по відношенню до оптичної осі кристала [34].

На підтвердження достовірності дисперсійного аналізу ДП за спектрами СКР в попередній роботі [34] проведено відновлення спектру ІЧ відбиття, які порівнюються з прямими вимірюваннями із роботи [35]. Представлені на рис.1.6 дані порівняння свідчать про цілком задовільну відповідність розрахунків та експериментальних даних.

Ці експериментальні дані використані нами при дослідженнях терагерцових аномалій.

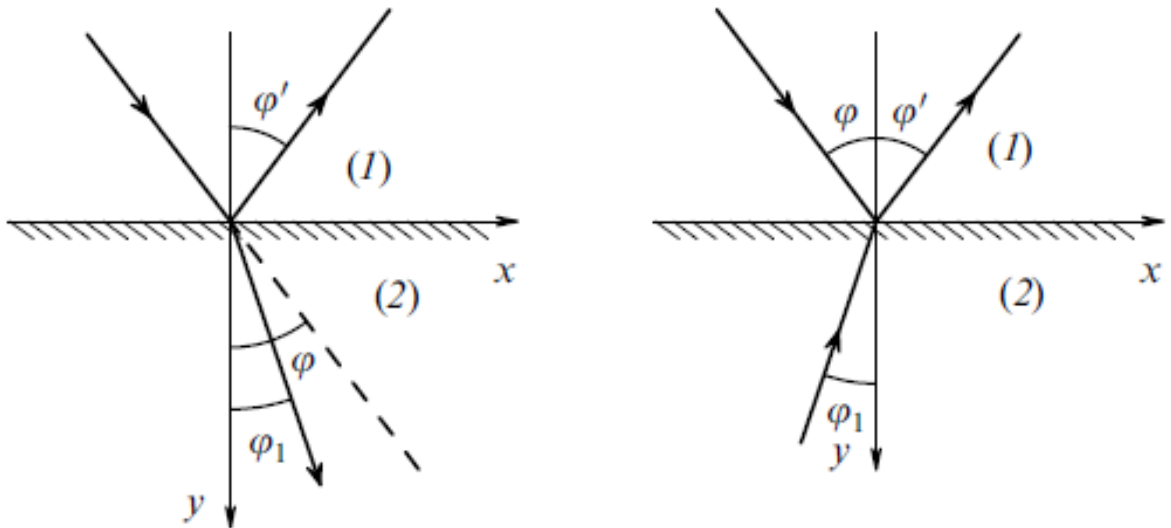
Отже, використання дисперсійної формули (1.35) спирається на солідну експериментальну основу у визначенні матеріальних параметрів кристалів, і саме цьому фундаменті ми в подальшому проводимо аналіз, теоретичне моделювання та розрахунки.

#### 1.4 Особливості розповсюдження світла в середовищах з від'ємним показником заломлення та метаматеріалах

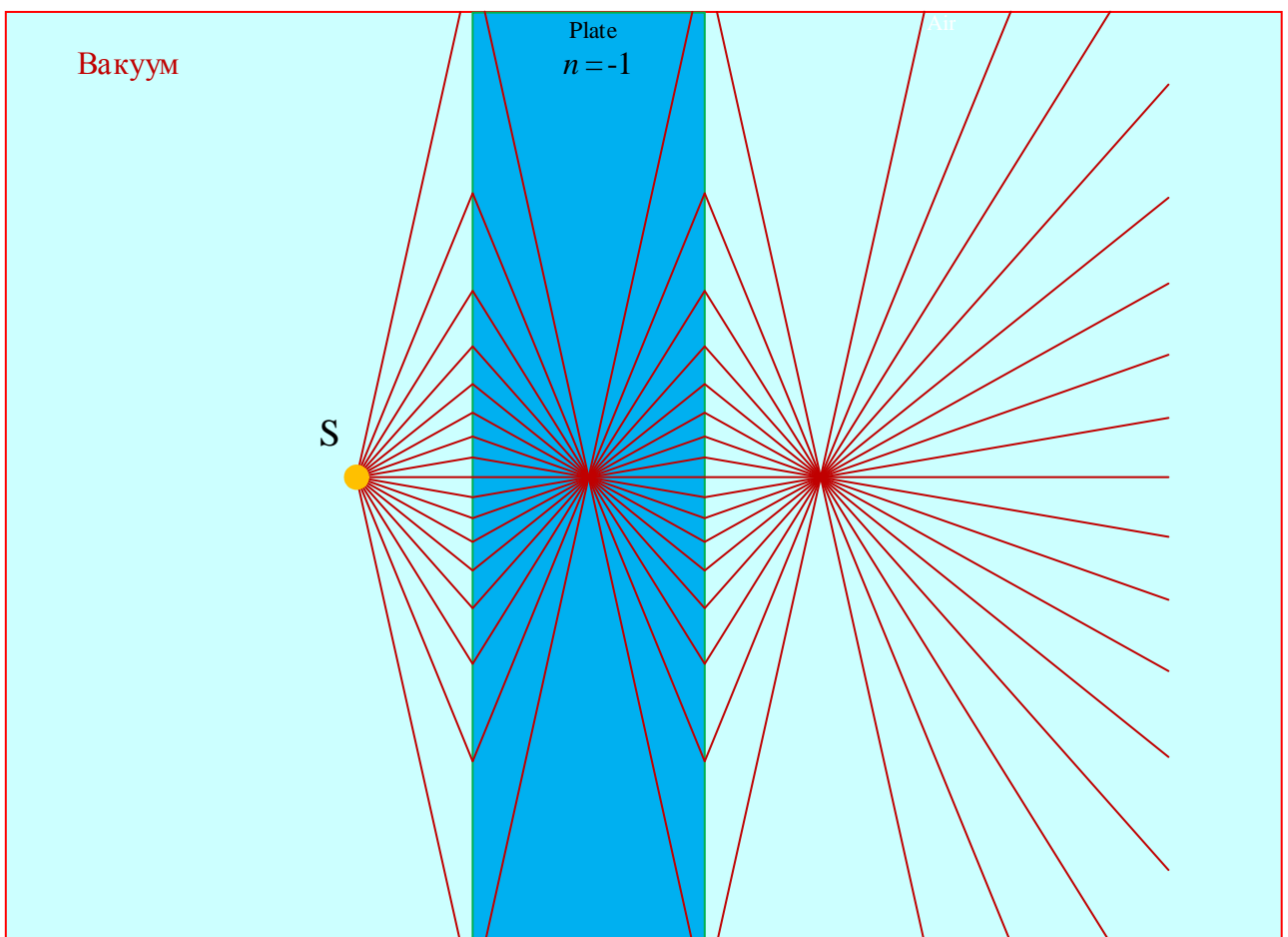
Сучасну хвилю дослідницької активності до аномального розповсюдження хвиль та їх практичного використання зазвичай пов'язують з роботою Д.Пендрі [36] про досконалу лінзу, в яку перетворюється плоско-паралельна пластинка речовини з від'ємним показником заломлення. Розрахунки в [36] спиралися на роботу [37] про не суперечливість електродинаміки та теоретичну можливість розповсюдження хвиль в матеріалах з від'ємним показником заломлення. Від'ємний показник заломлення  $n < 0$  повинен мати гіпотетичний матеріал, в якому діелектрична  $\varepsilon$  та магнітна  $\mu$  проникності одночасно є від'ємними, оскільки  $n = \pm\sqrt{\varepsilon\mu}$ . Для таких речовин, досі не знайдених у природньому стані, останнім часом закріпилася назва – метаматеріал та постала проблема штучного синтезу такого середовища. Вирішення проблем синтезу метаматеріалів обіцяє нові безпрецедентні можливості управління електромагнітними хвилями. Згідно з [38], в метаматеріалі тиск світла повинен змінюватися на відштовхування за рахунок від'ємної динамічної маси фотона, напрям групової швидкості буде протилежним до напрямку фазової швидкості, а напрям заломленої хвилі буде ліворуч від перпендикуляру (рис.1.7б). Саме закон заломлення хвиль у речовині з  $n < 0$  був підставою для більш ранньої назви – лівостороннього середовища.

Слід відмітити, що природа від'ємного заломлення світла обговорювалась задовго до роботи [37], а історія питання більш детально описана в [39]. Зокрема рис.1.7 наводив Л.І. Мандельштам в лекціях, що читалися у 1940-х роках, а ідею про протилежні напрями фазової та групової швидкостей сам Л.І. Мандельштам наводив з посиланням на гіпотезу Г.Лемба від 1904р.

Фокусування світла плоскопаралельною платівкою із метаматеріалу та хід променів від точкового джерела світла показаний на рис. 1.8.



**Рис. 1.7.** Відбиття та заломлення хвиль: а) в середовищі з  $n > 1$ , б) у матеріалі з  $n < 0$ .



**Рис. 1.8.** Суперлінза

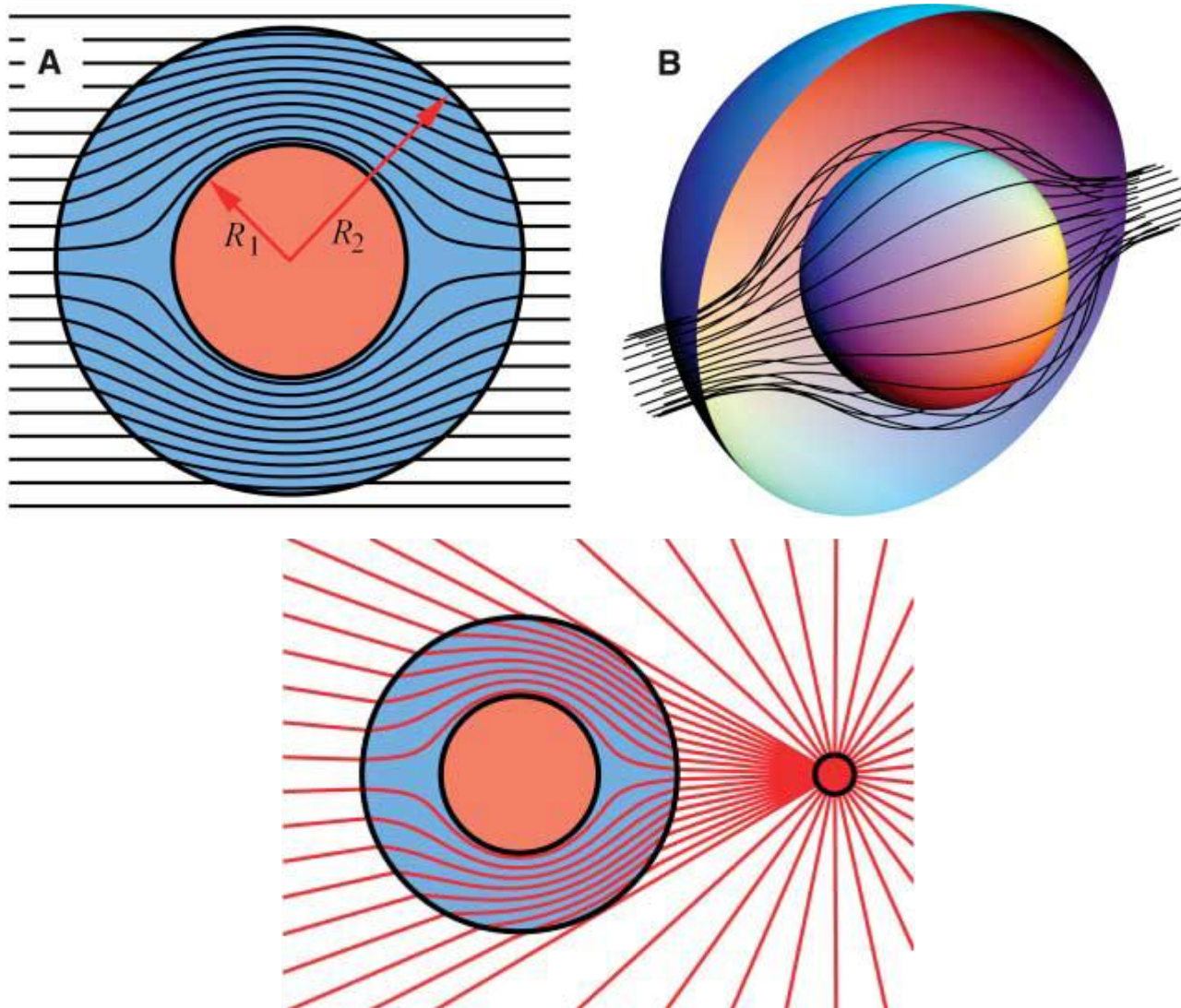
Якщо показник заломлення метаматеріалу підтримувати на рівні  $n = -1$ , то така платівка стає суперлінзою [36], тобто ідеальним оптичним приладом, який переносить зображення предмета з простору об'єктів в простір зображень без жодних спотворень. Однак такий перенос можливий лише для предметів, які віднесені від пластинки на відстань не більшу, ніж товщина самої пластинки. Тому платівка не може фокусувати в точку паралельний пучок, що надходить із нескінченності. Разом з цим, значна кількість досліджень [40-51] присвячена конструктивним особливостям реалізації суперлінзи, що можуть мати практичне застосування, хоча і не розглядають фундаментальних питань формування від'ємної діелектричної проникності в реальних матеріалах.

Активність досліджень розповсюдження світла в середовищах з від'ємним показником заломлення та метаматеріалах ще більш зросла у 2006 році [52], коли дві незалежні команди фізиків – англійці [53] та шотландець [54] одночасно запропонували схему «плаща-невидимки». Хід променів у плащі-невидимці, що обчислений в [53], ми наводимо на рис.1.9, де маскуванню об'єкта в середині двох концентричних сфер відбувається не тільки від плоскої електромагнітної хвилі довільної частоти (рис.1.9а,б), а й від стаціонарного поля точкового заряду (рис.1.9в).

Незабаром подібні схеми створення області невидимості були запропоновані для НВЧ випромінювання [55-56], в оптиці [57-59] та для терагерцового маскування [60-62].

На цій основі з'явилась трансформаційна оптика (ТО) [63-64] як новий напрям в науці про світло, який став можливий завдяки зазначеним досягненням в області метаматеріалів. Саме успіхи провідних дослідницьких груп з розробки оптичних метаматеріалів надають розробнику безпрецедентну гнучкість в управлінні світловими потоками як у нано-, так і в макроскопічному масштабі. Трансформаційна оптика, за аналогією із загальною теорією відносності [63], в якій час і простір викривлені, показує, що простір, в якому поширюється світло, можна вигнути майже довільним наперед заданим чином.

### Плащ-невидимка



**Рис. 1.9.** Обчислений хід променів у плащі-невидимці, за умови, що  $R_2 \gg \lambda$ . Промені наслідують напрям вектора Пойнтінга. (А) Двовимірний (2D) переріз променів, які огинають систему та дозволяють маскувати об'єкти за допомогою кільцевого простору  $R_1 < r < R_2$ , оскільки промені з'являються на протилежному боці не відхиленими від свого початкового напрямку. (В) 3D вид того ж процесу.

С – Екранування поля від точкового заряду за допомогою сфери із метаматеріалу. Сфера може бути в ближній зоні, якщо  $R_2 \ll \lambda$ . Поле повністю зникає в замаскованій області, але виходить незбуреним із сфери невидимості. Ефект екранування підкреслений більш густим нанесенням силових ліній поблизу сфери.

Однак описані теоретичні можливості та різноманітні модельні конструкції для імітації розповсюдження електромагнітних хвиль в середовищі з від'ємним показником заломлення самі по собі не вирішують прикладних проблем створення реальних метаматеріалів. В недавньому огляді [65] відмічалось, що відсутність надійних технологічних методів виготовлення таких матеріалів як і раніше стоїть на заваді їх широкому практичному застосуванню.

Ще більш важливою вважається можливість конструювання та виготовлення оптичного метаматеріального простору, що обіцяє вражаючі реалії для управління світловими потоками з точністю до нанометрів [63].

Успіхи модельного проектування та виготовлення зразків на фоні невирішених проблем синтезу реальних середовищ з від'ємним показником заломлення привели навіть до розширеного трактування самого терміну «метаматеріал». Останнім часом вважається [65], що метаматеріали – це електромагнітні матеріали зі штучно створених субхвильових структур, конструкція яких спрямована на забезпечення максимально сильного зв'язку з магнітною та / або електричною складовою падаючої електромагнітної хвилі. Еволюцію поглядів на метаматеріал від середовища з від'ємним показником заломлення до багатoelementної резонансної субхвильової структури можна знайти в [66-76].

Такі унікальні властивості, як аномальне відбиття чи заломлення, повне поглинання та можливість фокусування без хвильових обмежень реалізують зміною зв'язку між структурою і падаючими хвилями. В межах розширеної трактовки метаматеріали є основою створення сенсорів [77-84], інтегрованих фотонних та оптоелектронних пристроїв [85-89], ідеальних поглиначів [90-93] та концентраторів енергії [94,95].

Проблеми технології виявляються не суто технічними, а носять фундаментальний характер. Серед них не останнє місце займають питання фізичних умов формування областей з від'ємною ДП під впливом згасання фононів в реальних кристалах.

## Висновки до розділу 1

Проведений аналіз літератури показав:

1. Тензор  $\varepsilon(\omega, \vec{k})$  є узагальненою функцією при кількісному описанні всіх електричних і магнітних явищ в кристалі, а також повністю визначає характер розповсюдження електромагнітних хвиль в середовищі, в тому числі в терагерцовому діапазоні. При вивченні терагерцових аномалій в діелектричному кристалі можна знехтувати просторовою дисперсією, а тензор магнітної проникності  $\mu_{ij}(\omega) = \delta_{ij}$ .

2. Практичне використання дисперсійної формули (1.35) для тензора ДП  $\varepsilon(\omega)$  має надійну експериментальну основу у визначенні всіх матеріальних параметрів кристалу із спектрів інфрачервоного відбиття та комбінаційного розсіяння світла. Саме на цьому фундаменті ми в подальшому проводимо аналіз терагерцових аномалій, теоретичне моделювання фізичних умов утворення областей з від'ємною ДП та порівняння результатів наших розрахунків з експериментом.

3. Вивчення слабо досліджених фундаментальних процесів формування областей з від'ємною ДП, зокрема впливу фононного згасання, є важливими для вирішення принципових проблем як в технології синтезу метаматеріалів, так і для створення засобів управління випромінюванням на базі середовищ з від'ємним показником заломлення.

## РОЗДІЛ 2. ОБЛАСТІ ВІД'ЄМНОЇ ДІЕЛЕКТРИЧНОЇ ПРОНИКНОСТІ В КРИСТАЛАХ З ОДНИМ ПОЛЯРНИМ КОЛИВАННЯМ

Незважаючи на тривалу історію досліджень дисперсії проблема з'ясування фізичних умов утворення області від'ємної ДП, як показав аналіз публікацій із попереднього розділу, не тільки залишається актуальною, а й набуває важливого прикладного значення для проектування пристроїв трансформаційної оптики. Роль згасання при формуванні від'ємної ДП виявляється недооціненою насамперед в загальному теоретичному плані і як наслідок – при створенні прикладного програмного забезпечення всіх перерахованих вище пристроїв на основі метаматеріалів. Досить зауважити, що дійсна  $n$  та уявна  $k$  частини комплексного показника заломлення кристалів майже при всіх розрахунках розглядаються як повністю незалежні величини, причому за умови  $n \ll k$ . З точки зору фізичного обґрунтування такий підхід приводить до протиріччя, оскільки не відноситься або до реальних вихідних матеріалів, або до області їх від'ємної ДП, як буде показано в цьому розділі.

### 2.1 Вплив згасання на дисперсію діелектричної проникності

Дисперсійна залежність діелектричних властивостей, згідно з першим розділом, виникає в результаті взаємодії світлової хвилі з полярними коливаннями кристалічної ґратки. Для аналізу впливу фононного згасання на дисперсію діелектричної проникності та отримання аналітичних виразів для критерію існування областей від'ємної ДП ми [96,97] надалі розглянемо випадок однієї коливної моди в ізотропному кристалі, коли  $\varepsilon_{ij}(\omega) = \varepsilon(\omega)\delta_{ij}$ . Тоді загальний вираз (1.35) для комплексного тензора ДП, що наведений в п. 1.2.1 зводиться до співвідношення:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega) = \varepsilon^\infty + \frac{S\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}, \quad (2.1)$$

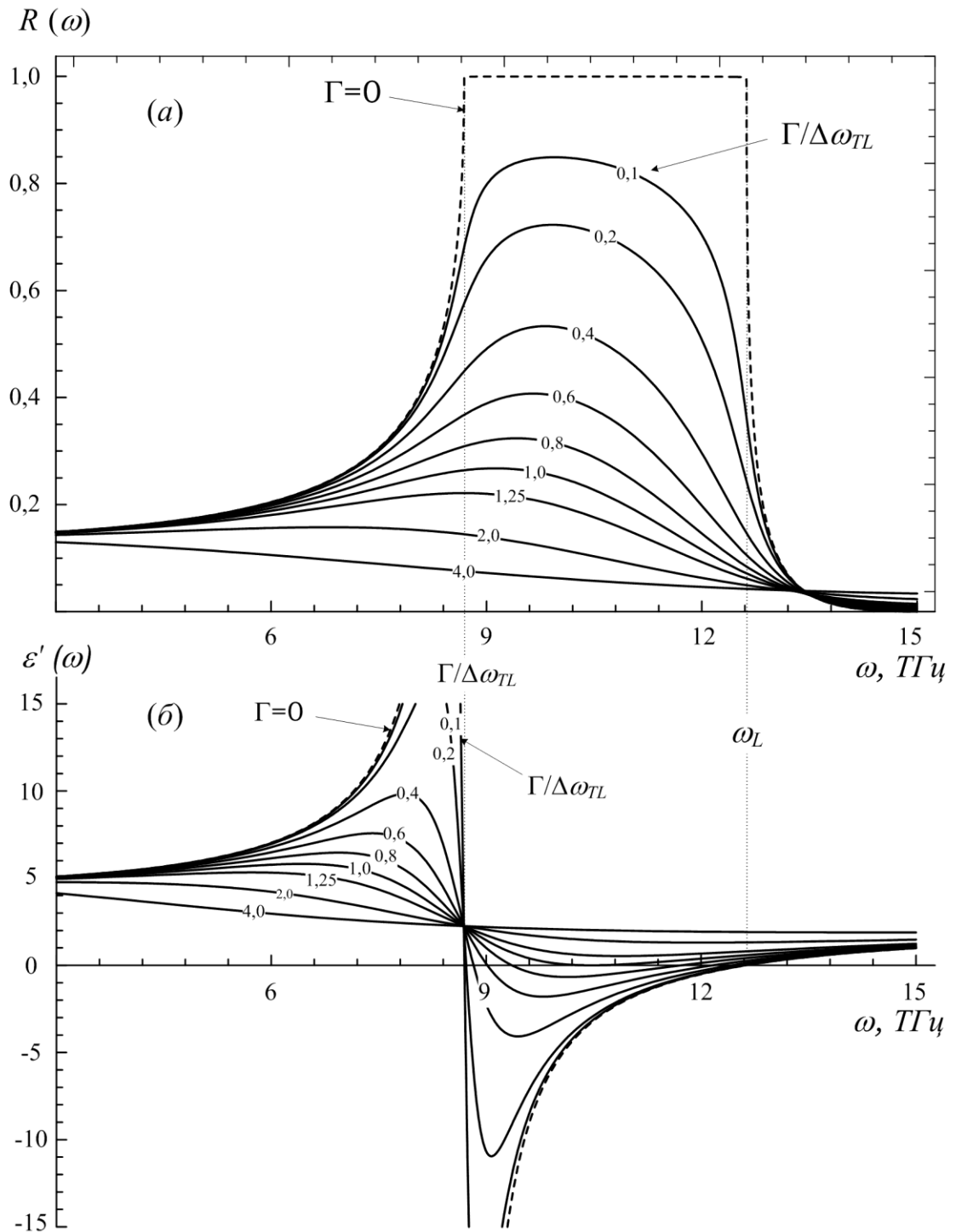
де сила осцилятора  $S$  визначається як  $S = \varepsilon_0 - \varepsilon^\infty$ ,  $\varepsilon_0 = \varepsilon(0)$ , а власна резонансна частота  $\omega_0 = \omega_T$  відповідає частоті поперечного фонона. Загальний вираз співвідношення Куросави в цьому випадку приймає вигляд:

$$\varepsilon_k(\omega) = \varepsilon_k^\infty \frac{\omega_L^2 - \omega^2}{\omega_T^2 - \omega^2}, \quad (2.2)$$

Варто зазначити, що із рівняння (2.2) безпосередньо випливає, що від'ємні значення ДП повинні з'являтися між частотами поперечних  $\omega_T$  та поздовжніх  $\omega_L$  фононів (Т-Л розщеплення або «смуга залишкових променів»). Отже, при  $\Gamma = 0$  в середині такого інтервалу  $\varepsilon(\omega) \rightarrow -\infty$ , якщо  $\omega \rightarrow \omega_T$  для довільної пари частот  $\omega_T < \omega < \omega_L$  (рис. 2.1, б).

За допомогою співвідношення Куросави (2.2) можна оцінити смугу від'ємної ДП, ґрунтуючись на експериментальних значеннях поперечних  $\omega_T$  та поздовжніх  $\omega_L$  частот фононів, що отримані зі спектрів ІЧ відбиття або вимірювань спектрів комбінаційного розсіяння. Однак (2.2) визначає лише максимальну ширину області від'ємної діелектричної проникності і дає лише необхідну умову (але не достатню умову) її існування в межах наближення відсутності згасання ( $\Gamma = 0$ ). Від'ємна область завжди буде присутня тільки в цьому ідеальному випадку, для всіх частот, що потрапляють в область Т-Л розщеплення. Однак у реальному кристалі з ненульовим згасанням, коли  $\Gamma > 0$ , область аномальної дисперсії діелектричної проникності (2.1) може і не досягати від'ємних значень.

На рис. 2.1 а побудовані спектри ІЧ відбиття для модельного кристалу з одним коливанням. На рис. 2.1 б суцільною лінією зображено графік залежності дійсної частини діелектричної проникності, а пунктиром зображено графік функції для дійсної частини  $\varepsilon'(\omega)$  (2.1) при відсутності згасання ( $\Gamma=0$ ). Саме згасання оптичного фонону усуває розрив, як це видно на рис. 2.1 б і фактично визначає аномальну дисперсію хвиль у кристалі та область від'ємної діелектричної проникності.



**Рис. 2.1.** Спектри ІЧ відбиття (а) та дисперсійна залежність дійсної частини діелектричної проникності (б) в області резонансу на полярному коливанні.

Дійсно, зі зростанням  $\Gamma$  значення  $\varepsilon'(\omega_{min})$  також зростає з одночасним звуженням смуги частот із від'ємною ДП. За певного „критичного” згасання –  $\varepsilon'(\omega_{min}) = 0$  ( $\Gamma / \Delta\omega_{TL} = 1$  на рис. 2.1 б) смуга частот з від'ємною ДП повністю зникає.

Варто зауважити, що по спектру ІЧ відбиття неможливо спрогнозувати існування від'ємної діелектричної проникності (рис. 2.1 а), тому в попередніх наших роботах [98-100] було проаналізовано вплив зміни згасання полярних коливань на від'ємні значення ДП в області аномальної дисперсії. Було виявлено існування критичного згасання (про яке йшла мова вище), що приводить до повного зникнення від'ємної діелектричної проникності. Саме згасання коливань має вирішальний вплив як на мінімальне значення ДП, так і на звуження спектрального діапазону області існування від'ємної ДП щодо T-L розщеплення фононних частот в полярних кристалах. Тому вплив згасання доцільно дослідити аналітично.

## 2.2 Критичне згасання та критерій існування смуги частот з від'ємною ДП в кристалі з одним полярним коливанням

Граничні обмеження, які накладає фононне згасання на формування області від'ємної ДП, ми проаналізували аналітично [99] для моделі одного коливання. В цьому випадку, розділивши дійсну та уявну частини  $\varepsilon(\omega)$  (2.1), можна записати:

$$\begin{cases} \varepsilon' = \varepsilon^\infty + \frac{S \omega_T^2 \omega_T^2 - \omega^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - \omega^2 \Gamma^2}, \\ \varepsilon'' = \frac{S \omega_T^2 \omega \Gamma}{\omega_T^2 - \omega^2 - \omega^2 \Gamma^2}. \end{cases} \quad (2.3)$$

Від'ємні значення, згідно з (2.3), приймає лише дійсна частина ДП  $\varepsilon'(\omega)$ , причому тільки в обмеженому інтервалі значень  $\Gamma$  (рис. 2.1б), тоді як уявна частина  $\varepsilon''(\omega)$ , яка відповідає за поглинання, завжди залишається додатною. Уявна частина  $\varepsilon''(\omega) = 0$ , якщо  $\Gamma = 0$ . За відсутності згасання (пунктир на

рис. 2.1) відбиття у смузї залишкових променів між  $\omega_T$  та  $\omega_L$ , як бачимо, досягає свого максимуму  $R=1$ , тобто як ідеальне дзеркало повністю блокує проникнення випромінювання в область від'ємної ДП. Зауважимо, що тенденція до зростання  $R$  майже впритул до 100% із зменшенням  $\Gamma$  виразно проявляється в експерименті у  $\text{MnF}_2$  із зниженням температури до 5 К. Подробиці ми наводимо нижче, у п.2.5.

На частотах, де дійсна частина ДП (2.3) досягає своїх екстремумів, повинна задовольнятися умова:

$$\frac{\partial \varepsilon'}{\partial \omega} = 0. \quad (2.4)$$

Згідно з (2.4), після диференціювання першого рівняння з системи (2.3), та відкинувши не нульовий спільний знаменник, отримаємо проміжне рівняння:

$$\begin{aligned} -2S\omega_T^2\omega(\omega_T^2 - \omega^2)^2 - 2S\omega_T^2\omega^3\Gamma^2 + \\ + 4S\omega_T^2\omega(\omega_T^2 - \omega^2)^2 - 2S\omega_T^4\omega\Gamma^2 + 2S\omega_T^2\omega^3\Gamma^2 = 0 \end{aligned} \quad (2.5)$$

Після спрощення вираз (2.5) буде мати наступний вигляд:

$$(\omega_T^2 - \omega^2)^2 = \omega_T^2\Gamma^2. \quad (2.6)$$

Частотне положення мінімуму  $\varepsilon'(\omega)$  визначається одним із коренів рівняння (2.6), а саме тим, що належить до інтервалу частот  $\omega > \omega_T$ . Причому точка  $\omega$  буде точкою мінімуму ( $\omega_{min}$ ) за умови:

$$\omega_{min} = \sqrt{\omega_T^2 + \omega_T\Gamma}. \quad (2.7)$$

Підставивши  $\omega_{min}$  у перше рівняння системи (2.3), отримаємо мінімальне значення діелектричної функції  $\varepsilon'(\omega)$ . Зазначимо, що згідно (2.7) частотне положення мінімуму, а також мінімальне значення  $\varepsilon'(\omega)$  (2.3) помітним чином залежить від параметра згасання  $\Gamma$  (рис. 2.1 (б)). Отже, для існування області від'ємної діелектричної проникності, де  $\varepsilon'(\omega) < 0$  необхідно щоб:

$$\varepsilon'(\omega_{min}) < 0, \text{ де } \varepsilon'(\omega_{min}) = \varepsilon'_{min} = \varepsilon^\infty - \frac{S\omega_T^2}{2\omega_T\Gamma + \Gamma^2}, \quad (2.8)$$

звідки безпосередньо витікає наступна нерівність:

$$\Gamma^2 + 2\omega_T\Gamma - \frac{S}{\varepsilon^\infty}\omega_T^2 < 0. \quad (2.9)$$

Зміни мінімального значення ДП ( $\varepsilon'_{\min}$ ) в залежності від сталої згасання  $\Gamma$ , які спостерігаються на рис. 2.1 (б), повністю описуються аналітичною залежністю (2.8). Зокрема, якщо в (2.8)  $\Gamma \rightarrow 0$ , то  $\varepsilon'_{\min} \rightarrow -\infty$ , як і у співвідношенні Куросави (2.2).

Нерівність (2.9) для значень  $\Gamma > 0$ , приводить до наступної умови:

$$\Gamma < \omega_T \left( \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon^\infty}} - 1 \right), \quad (2.10)$$

яка в межах одноосциляторної моделі кристалу дає досить простий кількісний критерій існування смуги частот з від'ємною ДП. Він заснований на співвідношенні сталої згасання фонона з частотою  $\omega_T$  до таких матеріальних параметрів кристалу як  $\varepsilon_0$  та  $\varepsilon^\infty$ .

Нерівність (2.10) визначає умову існування від'ємної ДП для кристала с одним коливанням. Оскільки  $S = \varepsilon_0 - \varepsilon^\infty$ , то (2.10) можна представити в еквівалентній формі через силу осцилятора  $S$ :

$$S > \varepsilon^\infty \frac{\Gamma}{\omega_T} \left( \frac{\Gamma}{\omega_T} + 2 \right), \quad (2.11)$$

Це друга форма нашого критерію – для сили осцилятора  $S$ , яку виражено через відносне згасання фононів  $\Gamma/\omega_T$ . Нерівність (2.11) дає нижню межу для сили осцилятора полярного коливання, яке може утворити від'ємну ДП. Нарешті, підстановка співвідношення ЛСТ у вираз (2.10), приводить до ще однієї альтернативної форми критерію:

$$\Gamma < \omega_L - \omega_T \quad \text{або} \quad \frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T} < 1. \quad (2.12)$$

Той факт, що область від'ємної діелектричної проникності існує доки значення сталої згасання фонона не перевищує T-L розщеплення для цього фонона є безпосереднім наслідком (2.12).

Отже, згідно з (2.10) – (2.12) легко визначити критичне згасання  $\Gamma_{cr}$ , яке (як було показано вище), відповідає верхній границі фононного демпфування і обмежує область існування від'ємної ДП у кристалі:

$$\frac{\Gamma_{cr}}{\omega_T} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon^\infty}} - 1 = \frac{\omega_L}{\omega_T} - 1 \text{ або } \Gamma_{cr} = \omega_L - \omega_T. \quad (2.13)$$

Дисперсійна залежність  $\varepsilon'(\omega)$  за критичного згасання  $\Gamma_{cr}/\omega_T=0,085$  зображена кривою на рис. 2.1 (б), коли мінімум дійсної частини діелектричної проникності дорівнює нулю.

При  $\Gamma < \Gamma_{cr}$  навколо мінімуму ДП утворюється певна смуга частот із від'ємними значеннями ДП в межах Т-Л розщеплення частот для цього коливання. І навпаки при  $\Gamma > \Gamma_{cr}$  ( $\Gamma/\omega_T=0,1$  на рис. 2.1 (б)) функція  $\varepsilon'(\omega)$  залишається додатною, в тому числі і в смузі залишкових променів (Т-Л).

Нерівності (2.11) – (2.13) являють собою три еквівалентні форми кількісного критерію існування від'ємної ДП в кристалах в залежності від ступеню демпфування коливних мод. Межі застосування критеріїв (2.11) – (2.13) визначаються в загальному випадку умовою існування осцилюючого розв'язку (1.32), наслідком якого є представлення  $\varepsilon(\omega)$  у вигляді (1.35), тобто умовою  $\Gamma/\omega_T < 1$ . Зауважимо, що це обмеження є майже несуттєвим з практичної точки зору, оскільки визначає саму область існування окремої фононної моди. Крім того, для ізольованих коливань, як бачимо, критерій в формах (2.12) и (2.13) виявляється застосовним у кристалах із складним спектром, виходячи за рамки початкової одноосциляторної моделі [101,102].

### **2.3 Звуження смуги частот з від'ємною діелектричною проникністю в підкритичному режимі фононного згасання**

На відміну від ідеалізованого випадку відсутності згасання ( $\Gamma=0$ ), яке описує співвідношення Куросави (2.2), частотний діапазон області від'ємної ДП реально не співпадає з Т-Л розщепленням. В підкритичному режимі фононного згасання, тобто при  $\Gamma < \Gamma_{cr}$ , зі збільшенням сталої згасання, як видно з рис. 2.1 (б), область від'ємної ДП звужується відносно Т-Л розщеплення аж до

повного її зникнення при  $\Gamma = \Gamma_{cr}$ . Тому для кількісного визначення частотної смуги від'ємної ДП доцільно знайти нулі функції  $\varepsilon'(\omega)$  в аналітичному вигляді. Саме аналітичний вираз для нулів функції  $\varepsilon'(\omega)$ , які залежатимуть від згасання  $\Gamma$ , дасть можливість обчислити смугу частот з від'ємною діелектричною проникністю та відслідкувати її звуження під впливом змін сталої згасання  $\Gamma$  [102,103].

Введемо позначення частот [102], нехай,  $\omega_-$  – це частота при якій ДП починає приймати від'ємні значення, а  $\omega_+$  – частота при якій ДП виходить з від'ємної області. Якщо до першого рівняння системи (2.3) підставити співвідношення для сили осцилятора  $S = \varepsilon_0 - \varepsilon^\infty$ , то:

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon^\infty \left[ 1 + \frac{(\omega^2 - \omega_T^2)(\omega_T^2 - \omega_L^2)}{\Gamma^2 \omega^2 + (\omega^2 - \omega_T^2)^2} \right]. \quad (2.14)$$

Частоти  $\omega_-$  та  $\omega_+$  знаходяться з умови рівності дійсної частини ДП, яка описується виразом (2.14), нулю  $\varepsilon'(\omega)=0$ . Залишаючи лише додатні розв'язки отриманого біквдратного рівняння, маємо [104]:

$$\omega_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\omega_L^2 + \omega_T^2 - \Gamma^2 \pm \sqrt{(\omega_L^2 + \omega_T^2 - \Gamma^2)^2 - 4\omega_L^2 \omega_T^2}}^{1/2}. \quad (2.15)$$

Якщо у виразах (2.15) спрямувати сталу згасання до нуля, то отримаємо:  $\omega_- = \omega_T$ , а  $\omega_+ = \omega_L$ .

Нехай  $\Delta\omega = \omega_+ - \omega_-$ , реальна смуга частот з від'ємною ДП. Явний вираз для  $\Delta\omega$  легко знайти за допомогою співвідношень (2.15), отже, маємо:

$$\Delta\omega = \omega_L - \omega_T \sqrt{1 - \left( \frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T} \right)^2}. \quad (2.16)$$

Співвідношення (2.16) описує процес звуження смуги частот з від'ємною діелектричною проникністю в підкритичному режимі фононного згасання при  $\Gamma < \Gamma_{cr}$ . Додатне дійсне значення кореня в (2.16) відповідає реальній смузі частот з від'ємною ДП при  $\Gamma < \Gamma_{cr} = \omega_L - \omega_T$ , причому  $\Delta\omega = 0$ , якщо  $\Gamma = \Gamma_{cr}$ . Загальний вираз (2.16) із зменшенням  $\Gamma$ , при граничному переході  $\Gamma \rightarrow 0$ , дає ідеальний випадок відсутності згасання, оскільки якщо  $\Gamma=0$ , то  $\Delta\omega = \omega_L - \omega_T$ .

## 2.4 Класифікація полярних коливань в кристалі за ступенем фононного демпфування

Важливою особливістю (2.16) є те, що це співвідношення дозволяє конкретизувати дещо туманне поняття „задемпфованої” моди, яке часто використовується в прикладній спектроскопії [105,106]. Співвідношення (2.16) кількісно визначає зміну смуги від’ємної ДП від сталої згасання  $\Gamma$  та може бути покладено в основу наступної класифікації ступеня демпфування полярного коливання:

1. Слабо задемпфована мода:  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) \leq 0,1$ ; тоді  $\Delta\omega = \omega_L - \omega_T$  (з точністю не менше 99%), що також супроводжується значними, від’ємними значеннями ДП ( $\varepsilon'_{min} \sim -100$ );
2. Задемпфована мода:  $0,1 < \Gamma/(\omega_L - \omega_T) \leq 0,5$ , при яких стає помітним звуження смуги від’ємної ДП, оскільки реальна смуга частот  $\Delta\omega$  складатиме 86 % – 99 % від T-L розщеплення.
3. Сильно задемпфована мода:  $0,5 < \Gamma/(\omega_L - \omega_T) < 1$ , коли  $\Delta\omega$  складатиме менше ніж 85 % від T-L розщеплення.
4. Критичне згасання:  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) = 1$ , яке супроводжується наступними параметрами:  $\Delta\omega = 0$ ,  $\varepsilon'_{min} = 0$
5. Передемпфована мода:  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) > 1$ , в цьому випадку  $\Delta\omega = 0$  (аналогічно до попереднього випадку), а мінімальне значення ДП знаходиться в діапазоні від 0 до 1 ( $0 < \varepsilon'_{min} < 1$ ).
6. Гіпердемпфована мода:  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) \gg 1$ , коли мінімальне значення ДП більше за 1 ( $\varepsilon'_{min} > 1$ ).

Запропонована в нашій роботі [105] класифікація полярних коливань в кристалі за ступенем фононного демпфування, можливо, не є повністю беззаперечною і може бути предметом подальшого обговорення як за кількістю градацій, так і за числовими значеннями роздільних меж, що визначають вказані нами величини відносного згасання  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T)$  та від’ємної смуги частот  $\Delta\omega$ . Однак така класифікація, безвідносно можливих уточнень, завжди

матиме точний кількісний вираз та дозволяє однозначно пов'язати кожне полярне коливання із експериментального спектра з його впливом на діелектричні властивості кристала, зокрема на області від'ємної ДП.

Всі можливі градації за ступенем фононного демпфування були представлені на рис.2.1, де дисперсійні зміни ДП порівнюються з відповідними змінами у спектрі відбиття кристалу. Зауважимо, що безпосередньо із спектрів відбиття не можливо зробити висновок про наявність або відсутність від'ємної ДП для даної конкретної коливної моди [106]. Однак, така оцінка стає можливою при застосуванні нашої класифікації відразу після визначення фундаментальних частот та сталої згасання.

Проведений нами аналіз показує, що велика кількість кристалів, які мають одне яскраво виражене коливання в ІЧ області, зокрема такі класичні об'єкти як лужно-галоїдні кристали (NaCl, KBr, NaF, LiF та багато інших) в області аномальної дисперсії досягають досить значних за абсолютною величиною значень від'ємної ДП. Для таких кристалів різниця  $\omega_L - \omega_T$  може складати кілька ТГц (сотні  $\text{cm}^{-1}$ ), тоді як за кімнатних та низьких температур стала згасання  $\Gamma$  є реально меншою за один ТГц (менше  $10 \text{ cm}^{-1}$ ). Тому відношення  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) < 0,1$  і згідно з наведеною класифікацією ці сполуки відносяться до кристалів з однією слабо задемпфованою модою. Отже, згідно з п.1 нашої класифікації кристал у смузі  $\Delta\omega$ , яка практично співпадає з Т-Л розщепленням частот  $\Delta\omega = \omega_L - \omega_T$  (з точністю не менше 99%) повинен мати значні від'ємними значеннями ДП ( $\varepsilon'_{min} \sim -100$ ), що і спостерігається на практиці.

Проте, відсутність від'ємної ДП при відносному загасанні  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) > 1$ , тобто наявність передемпфованих мод серед інших фононних коливань, нещодавно [102, 107-109] ми виявили в деяких кристалічних модифікаціях нітриду бора [107,108], а також в кристалі  $\text{MnF}_2$  [109].

## 2.5 Особливості формування від'ємної ДП в кристалічних модифікаціях нітриду бора та кристалі $MnF_2$

Кристали нітриду бору BN були вирощені відносно недавно, а їх фононні спектри досить повно досліджені в [31].

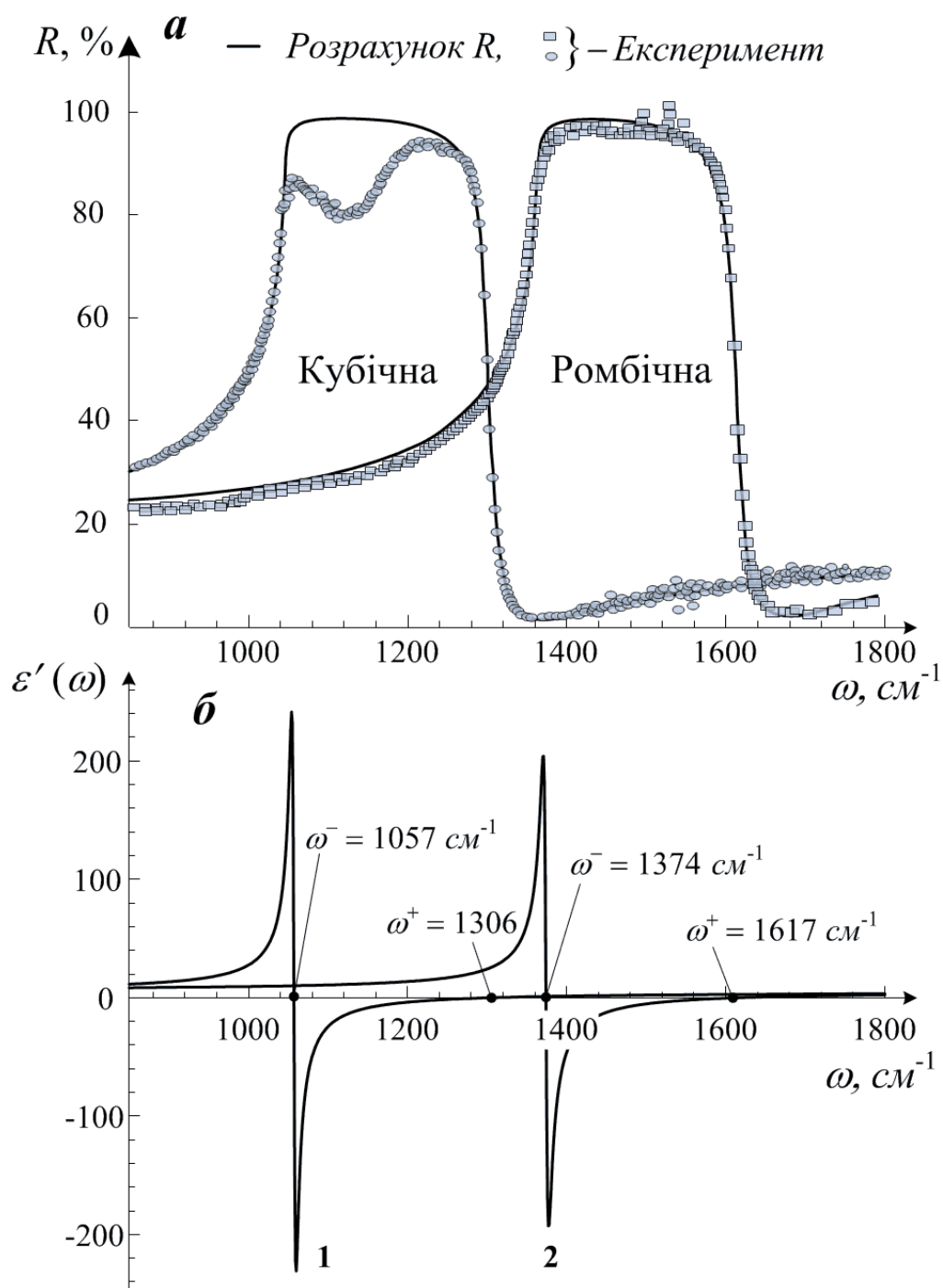
Ми проаналізували вплив згасання та анізотропії на дисперсію  $\varepsilon'(\omega)$  для трьох сингоній кубічної, ромбічної та гексагональної структури BN, які спостерігалися при різних орієнтаціях хвильового вектора  $\mathbf{k}$  і вектора електричного поля  $\mathbf{E}$  електромагнітної хвилі відносно осі C. Вісь C визначає напрямок переважної орієнтації кристалографічних осей кристалів, що співпадає з нормаллю до поверхні осаду-росту кристала. Значення сталої згасання  $\Gamma$ , T і L частот, що наведені у таблиці 2.1, відповідають даним роботи [31], відносно згасання  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T)$ , частоти  $\omega_+$  та  $\omega_-$ , ширину області від'ємної ДП  $\Delta\omega$  ми визначили за допомогою наведених вище виразів (2.12), (2.15) і (2.16) відповідно, а мінімально від'ємне значення дійсної частини ДП - порахували чисельно.

Зазначимо різну кількість коливань у спектрі в залежності від сингонії кристалу. В кубічній та ромбічній модифікації проявляється по одному коливанню, а гексагональна (для відповідних орієнтацій векторів  $\mathbf{k}$ ,  $\mathbf{E}$  відносно C) – має три ( $\mathbf{E} \perp C$ ) та два ( $\mathbf{E} \parallel C$ ) коливання відповідно.

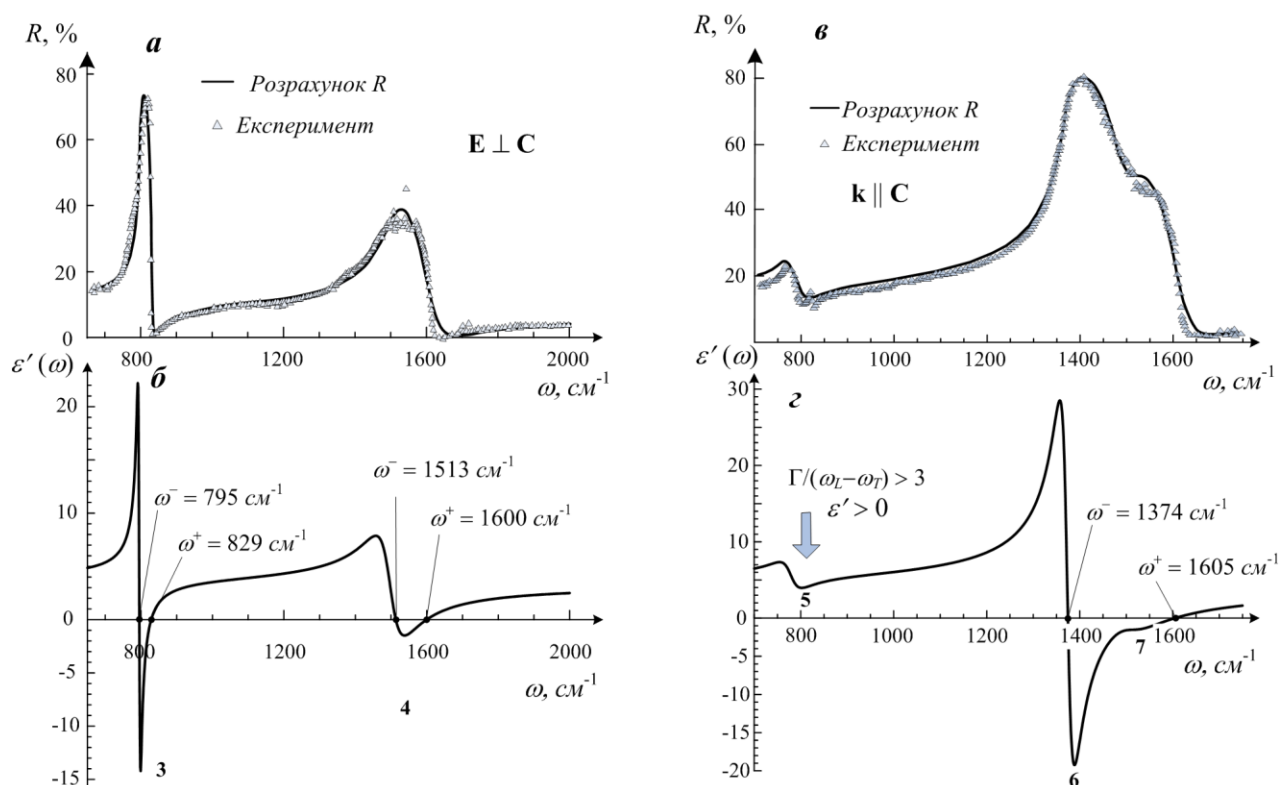
Експериментальні спектри ІЧ відбиття у поєднанні з результатами наших розрахунків дисперсійних залежностей тензора діелектричної проникності  $\varepsilon'$  ми показуємо на рис. 2.2 для двох кристалографічних модифікації BN, що належать до кубічної (1) та ромбічної (2) сингоній (орієнтація  $\mathbf{k} \parallel C$ ).

Відносно згасання  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T)$  в ізотропному випадку кубічної модифікації нітриду бора складає 0,02, що відповідно до (2.12) вказує на наявність від'ємної ДП. Ця слабо задемпфована мода розташовується в діапазоні частот від 31,71 ТГц до 39,18 ТГц (рис. 2.2 а), який зовсім не відрізняється від T–L розщеплення (таблиця 2.1), що при таких відносних згасаннях добре корелює з виразом (2.16). Оскільки компоненти тензора діелектричної проникності  $\varepsilon_{||}(\omega) = \varepsilon_{\perp}(\omega)$ , то ця область не залежить від поляризації випромінювання, що проникає в

кристал. На відміну від цього, поляризаційна залежність від'ємної ДП з'являється в обох анізотропних модифікаціях нітриду бора: як у ромбічній, так і в гексагональній (рис. 2.3 б, в).



**Рис. 2.2.** Спектри ІЧ відбиття (а) та дисперсійні залежності  $\epsilon'(\omega)$  (б) для модифікації BN, що належать до кубічної (1) та ромбічної (2) сингоній (орієнтація  $\mathbf{k} \perp \mathbf{C}$ ).



**Рис. 2.3.** Спектри ІЧ відбиття (а,в) та дисперсійна залежність  $\varepsilon'(\omega)$  (б,г) для гексагональної модифікації BN, для орієнтацій  $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$  (а,б) та  $\mathbf{k} \parallel \mathbf{C}$  (в,г).

**Таблиця 2.1.** Дисперсійні параметри та області від'ємної ДП для різних кристалічних модифікацій нітриду бору.

$\omega_L$ (ТГц)	$\omega_T$ (ТГц)	$\Gamma$ (ТГц)	$\omega_L - \omega_T$ (ТГц)	$\frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T}$	$\omega_+$ (ТГц)	$\omega_-$ (ТГц)	$\Delta\omega$ (ТГц)	$\varepsilon'_{min}$
1	2	3	4	5	6	7	8	9
Кубічна $\varepsilon^\infty=4,60$ ; $\varepsilon_0=7,00$								
39,18	31,71	0,16	7,47	0,02	39,18	31,71	7,47	-228
Ромбічна ( $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$ ) $\varepsilon^\infty=2,70$ ; $\varepsilon_0=3,18$								
24,81	22,86	0,13	1,95	0,07	24,81	22,86	1,95	-39
Ромбічна ( $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$ ) $\varepsilon^\infty=5,20$ ; $\varepsilon_0=7,20$ .								
48,51	41,22	0,21	7,29	0,03	48,51	41,22	7,29	-102
Гексагональна ( $\mathbf{E} \parallel \mathbf{C}$ ) $\varepsilon^\infty=3,20$ ; $\varepsilon_0=4,05$								
24,87	23,85	0,22	1,02	0,22	24,86	23,86	1,00	-13
48,48	44,94	2,43	3,54	0,69	47,98	45,41	2,58	-1,5
Гексагональна ( $\mathbf{E} \perp \mathbf{C}$ ) $\varepsilon^\infty=3,80$ ; $\varepsilon_0=5,25$								
23,82	23,37	1,47	0,45	3,27				
44,61	41,19	0,95	3,42	0,28	44,54	41,25	3,29	-19
48,45	45,24	3,08	3,21	0,96	47,28	46,36	0,92	-1,5

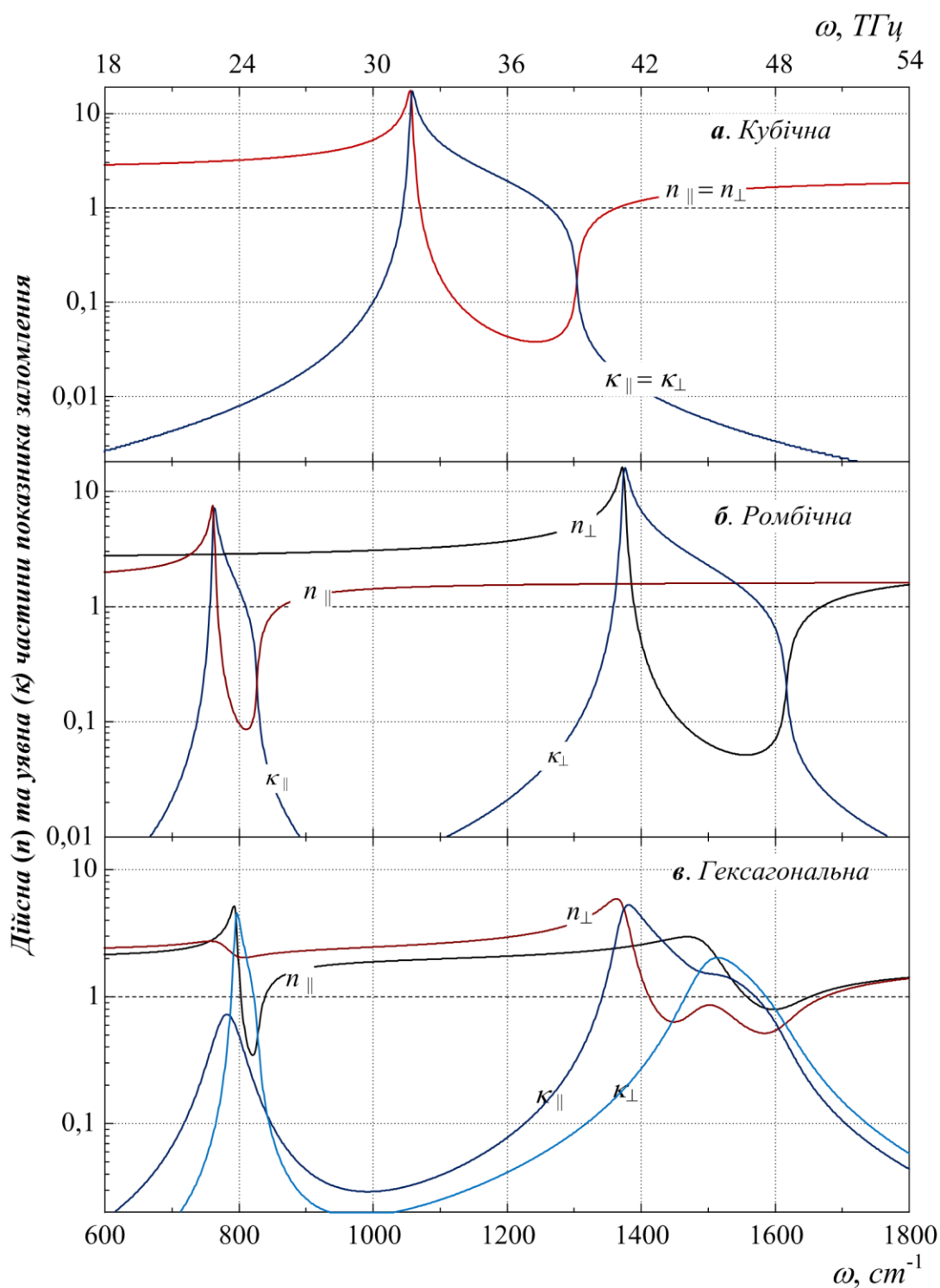
У ромбічної модифікації нормальна мода ізотропного кристала під впливом анізотропії, майже симетрично розщеплюється на два нормальних коливання зі взаємно перпендикулярними напрямками дипольного моменту. Обидві моди слабо затухають, і тому частотна область від'ємної ДП практично не відрізняється від T-L розщеплення, як і в ізотропному випадку.

Головна відмінність ромбічної модифікації від ізотропної структури полягає в появі сильної поляризаційної залежності від'ємної ДП, а саме, в існуванні двох окремих слабо задемпфованих мод, що рознесені в спектрі на 18,36 ТГц і мають різні мінімальні значення ДП:  $\varepsilon'_{min} = -39$  для паралельної, і  $\varepsilon'_{min} = -102$  для перпендикулярної поляризацій.

Особливістю гексагональної структури є виникнення додаткових нормальних мод в обох поляризаціях, яке супроводжується різким збільшенням згасання фононів. У результаті наявності додаткової сильно задемпфованої моди в гексагональній модифікації на високих частотах (від 45,41 ТГц до 47,28 ТГц) з'являється невелика область від'ємної ДП, загальна для обох поляризацій.

Запропонований нами аналіз, який оснований на (2.12), дозволяє передбачати наявність або відсутність від'ємної ДП. Наприклад, параметри низькочастотного коливання для перпендикулярної поляризації гексагонального VN складають:  $\omega_T = 23,37$  ТГц,  $\omega_L = 23,82$  ТГц, и  $\Gamma = 1,47$  ТГц, а відносне згасання  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) = 3,3$ , тобто в три рази вище, ніж критичне. Згідно з наведеною класифікацією це є гіпердемпфована мода. Тому дисперсія зберігає  $\varepsilon'$  повністю додатнім, без утворення будь-якої від'ємної ДП в повній відповідності як до критерію (2.12), так і з побудованою залежністю  $\varepsilon_{\perp}(\omega)$ , що показана на рис. 2.2 в.

Перевага критерію (2.12) для передбачення області існування від'ємної ДП полягає в можливості його застосування для аналізу досить складних спектрів поглинання на фонах. Дійсно, відповідно до нашого критерію ми припускаємо утворення від'ємних значень ДП для верхніх коливальних частот в перпендикулярній поляризації гексагонального VN (рис. 2,2 в). Тут відносні згасання рівні 0,28 і 0,96, відповідно.



**Рис. 2.4.** Нормальна та аномальна дисперсія показника заломлення (суцільна лінія) і спектри коефіцієнта екстинкції (пунктирна лінія) для трьох кристалічних модифікацій нітриду бору; *a* - оптично ізотропна (кубічна) кристалічна структура, і одноосні кристалічні структури: *б* - ромбічна модифікація, *в* - гексагональна модифікація.

Такі мінімальні від'ємні значення  $\varepsilon'$  реально існують і відповідно становлять  $-19$  і  $-1,5$ . Тим не менш, спостережувані смуги від'ємної ДП мають певні особливості, пов'язані з формуванням значного перекриття фононних ліній поглинання на поперечних частотах  $\omega_T$  41,19 ТГц і 45,24 ТГц відповідно.

Результатом такого об'єднання двох смуг, що перекриваються, є загальна область з початком на частоті 41,25 ТГц, яка зсунута на 0,6 ТГц від  $\omega_T$  для першого фонона (задемпфована мода), а кінцева частота 47,28 ТГц, що на 1,17 ТГц менше, ніж відповідна частота  $\omega_L$  для другого фонона (сильно задемпфована мода).

Визначення параметрів дисперсії ДП дозволяє досліджувати вид нормальної і аномальної дисперсії показника заломлення кристала для всіх модифікації нітриду бора, а результати наших розрахунків спільно зі спектрами коефіцієнта екстинкції представлені на рис. 2.3. Головна особливість аномальної дисперсії показника заломлення в області від'ємної ДП полягає в його зниженні до значень  $n < 1$ . У цьому випадку коефіцієнт поглинання в більшій частині діапазону більший за  $n$  ( $\kappa > n$ ). При таких умовах стандартні вирази для швидкості електромагнітної хвилі  $v$  дають значення  $v > c$  (вище за швидкість світла у вакуумі  $c$ ) як для фазової, так і для групової швидкості. Це питання заслуговує окремого обговорення і до його більш детального аналізу ми повернемося у п.3.4 наступного розділу 3.

### **Дисперсія ДП у кристалі $\text{MnF}_2$**

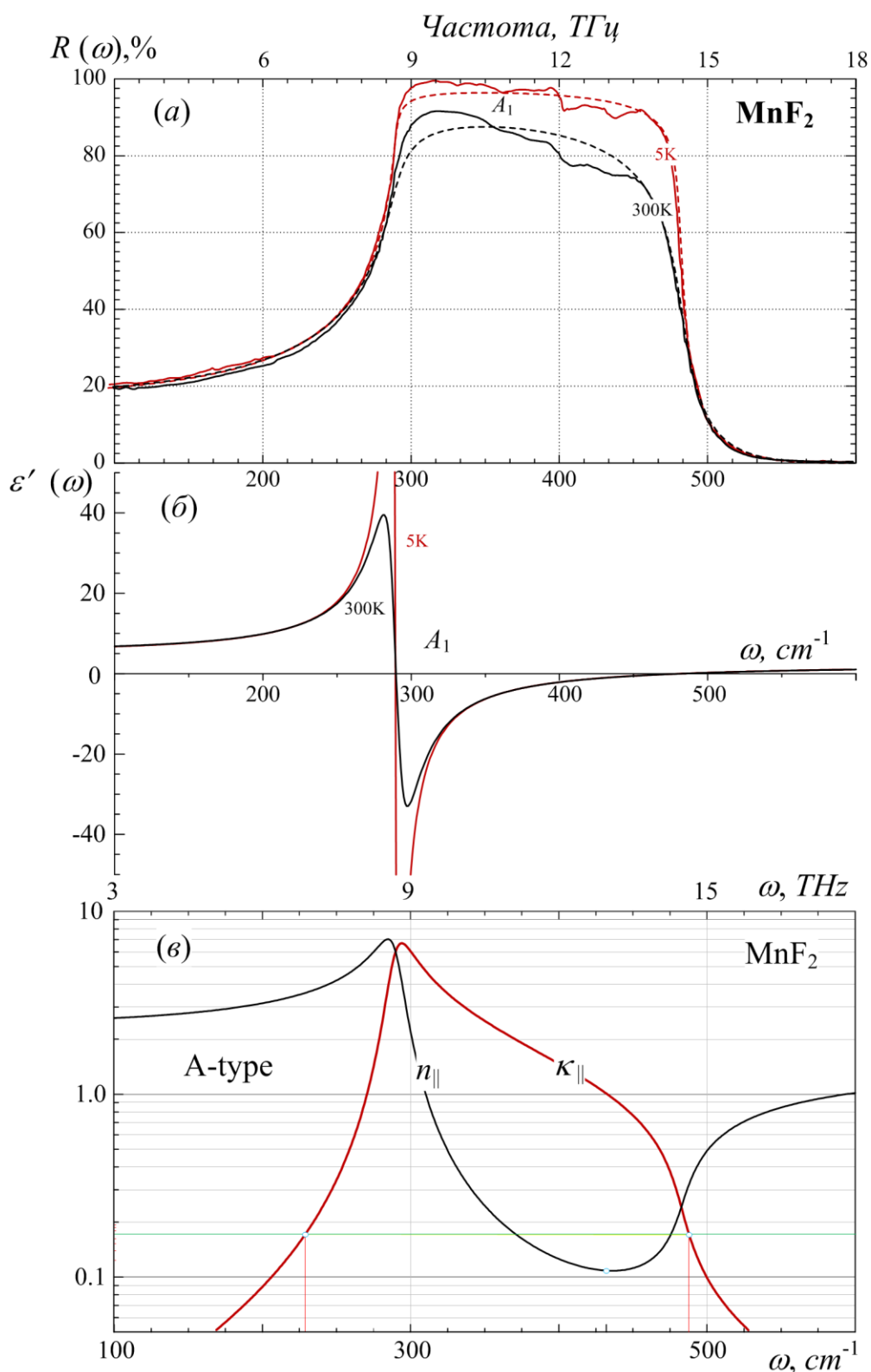
Метод дисперсійного аналізу спектрів відбиття, що був апробований на кристалі нітриду бора, ми застосували [109] для кристалу  $\text{MnF}_2$  з метою визначення областей від'ємної ДП. Даний об'єкт викликає особливий інтерес для наших досліджень, оскільки для цього кристалу опубліковані спектри відбиття в надзвичайно широкому діапазоні зміни абсолютної температури від 5К до 500К. За таких змін температури найбільш помітним чином, а саме у багато разів змінюються сталі згасання фононів.

Спектри відбиття при нормальному падінні електромагнітних хвиль для двох напрямів поляризації випромінювання в кристалі  $\text{MnF}_2$  разом із

результатами ДА (пунктир) із недавньої роботи [32] наведені на рис. 2.5а та рис. 2.6а. На цих же рисунках ми наводимо результати наших обчислень дисперсійних залежностей компонент тензора ДП ( $\hat{\epsilon}$ ) та обох частин комплексного показника заломлення. Спектри разом з нашими графічними даними представлені в діапазоні 0-18 ТГц (0-600 $\text{cm}^{-1}$ ). Параметри фононних мод, що оптимізують розрахунковий спектр під експериментальний, представлені у колонках 1-4 таблиці 2.1, а значення  $\omega_L$  – це відповідні нулі функції (1.35) при  $\Gamma=0$ . В шостій колонці наведено значення параметра відносного згасання для кожного полярного коливання для прямого застосування критерію та класифікації полярних коливань в кристалі за ступенем фононного демпфування.

**Таблиця 2.2. Спектроскопічні параметри та нормоване згасання фононних мод у кристалі  $\text{MnF}_2$  [110]**

Тип коливання	$\omega_T$ , $\text{cm}^{-1}$	S	$\Gamma$ , $\text{cm}^{-1}$	$\omega_L$ , $\text{cm}^{-1}$	$\frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T}$	$\epsilon_{\min}$
1	2	3	4	5	6	
$T=300\text{K}$ ( $\epsilon_p^\infty = 2.25$ ; $\epsilon_\perp^\infty = 2.16$ )						
A <sub>1</sub>	289.6	4.01	16.01	483.1	0.080	-33,0
E <sub>1</sub>	158.5	3.59	3.48	210.0	0.070	-75,9
E <sub>2</sub>	255.1	0.09	6.88	258.7	1.920	+1,5
E <sub>3</sub>	357.9	1.51	21.70	491.1	0.160	-10,8
$T=5\text{K}$ ( $\epsilon_p^\infty = 2.25$ ; $\epsilon_\perp^\infty = 2.16$ )						
A <sub>1</sub>	295.5	3.93	4.37	489.7	0.020	-127
E <sub>1</sub>	158.4	3.56	0.25	210.9	0.004	-445
E <sub>2</sub>	259.8	0.08	1.56	263.0	0.420	-3,0
E <sub>3</sub>	367.0	1.48	7.00	499.7	0.050	-36,8

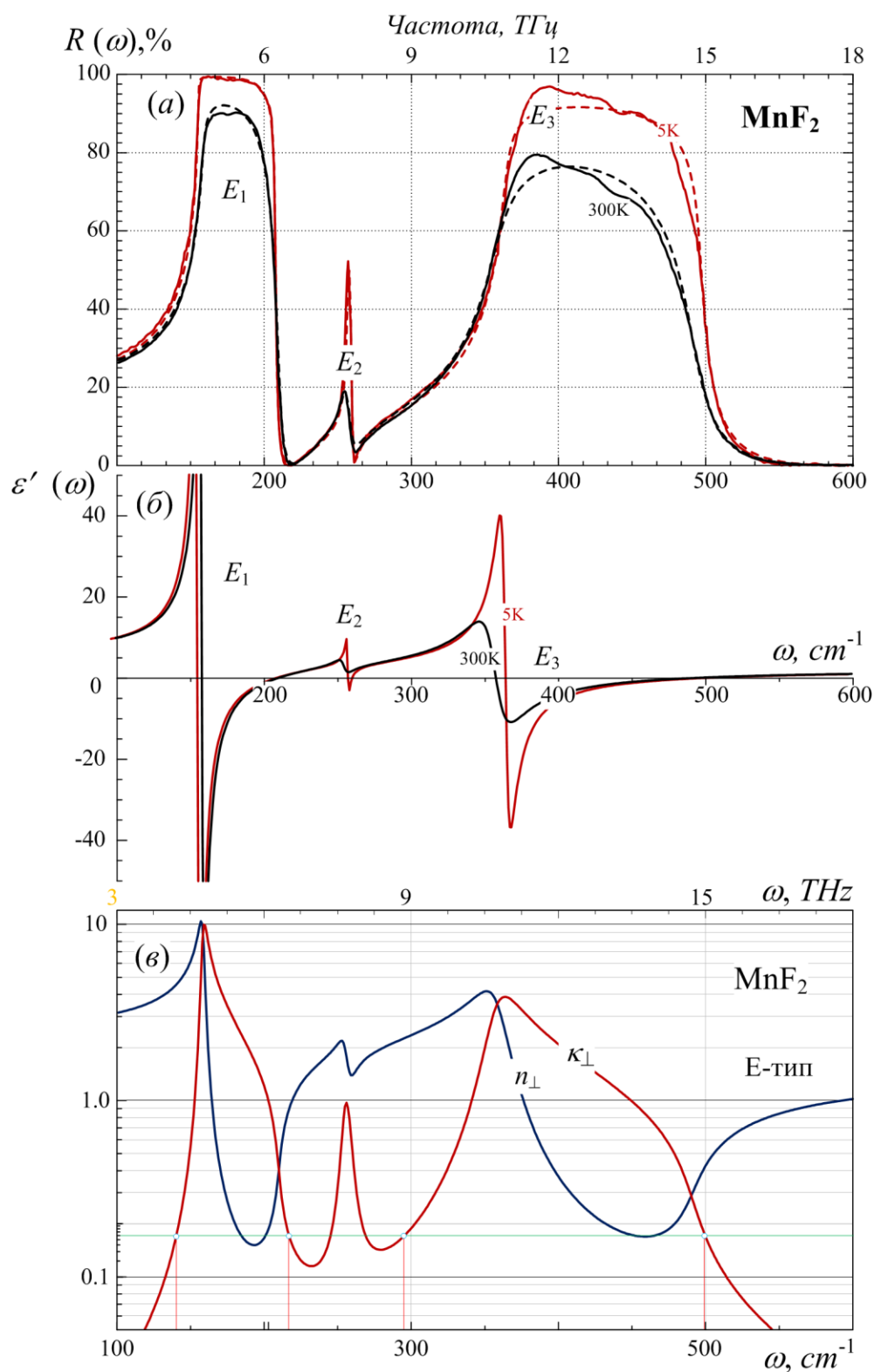


**Рис. 2.5.** *a* – експериментальні (суцільна лінія) та розрахункові (пунктир) спектри відбиття; *б* – дисперсія дійсної частини ДП; *в* – дисперсія показника заломлення  $n_p$  та коефіцієнта екстинкції  $\kappa_p$  в паралельній поляризації падаючого випромінювання на кристал MnF<sub>2</sub> для двох температур 5К та 300К

Найбільш помітними змінами в спектрі на рис. 2.5а є зростання абсолютного коефіцієнта відбиття від  $R_{max} = 87,5\%$  при 300К до  $R_{max} = 96,4\%$  із зниженням температури до 5К. За даними таблиці 2.2 головним чинником цього зростання є температурне зменшення сталої фононного згасання приблизно у 4 рази при майже незмінній величині фундаментальної частоти як для поперечного, так і поздовжнього коливання.

На рис. 2.5б ми наводимо відповідні температурам 5К та 300К криві дисперсії  $\epsilon'_p(\omega)$ , які в  $MnF_2$  утворює єдиний фонон, що має симетрію  $A_1$ -типу. Згідно з нашою класифікацією цей фонон  $A_1$ -типу залишається слабо задемпфованою модою у всьому температурному діапазоні від 5К до 300К і тому смуга частот від'ємної ДП повинна співпадати з T-L- розщепленням, що і підтверджує рис. 2.5б. Однак, відносне згасання чотирикратна зміна фононного згасання приводить до зменшення мінімального значення ДП від  $\epsilon_{min} = -33,0$  при  $T=300K$  до  $\epsilon_{min} = -127$  при  $T=5K$ .

Дисперсія показника заломлення  $n_p$  та коефіцієнта екстинкції  $\kappa_p$  показана на рис. 2.5в у логарифмічному масштабі за вертикальною віссю. Аномальна дисперсія спостерігається для обох частин комплексного показника заломлення майже у всій смузі від'ємної ДП, яка в даному випадку співпадає з T-L- розщепленням. Відмітимо, що внаслідок аномальної дисперсії відразу після частоти поперечного фонона величина показника заломлення  $n_p$  швидко спадає до рівня  $n_p < 1$ . Одночасно значно менша аномальна дисперсія коефіцієнта екстинкції  $\kappa_p$  приводить до нерівності  $n_p < \kappa_p$ , яка виконується також майже в усій смузі від'ємної ДП. Зазначені особливості дисперсії обох частин комплексного показника заломлення будуть характерні для всіх слабо задемпфованих мод і тому фізичні наслідки такої ситуації ми обговоримо пізніше, після узагальнення експериментальних фактів.



**Рис. 2.6.** *a* – експериментальні (суцільна лінія) та розрахункові (пунктир) спектри відбиття; *б* – дисперсія дійсної частини ДП; *в* – дисперсія показника заломлення  $n_{\perp}$  та коефіцієнта екстинкції  $\kappa_{\perp}$  в перпендикулярній поляризації падаючого випромінювання на кристал MnF<sub>2</sub> для двох температур 5К та 300К.

Результати досліджень кристала  $\text{MnF}_2$  в перпендикулярній поляризації падаючого випромінювання для двох температур 5К та 300К представлені на рис.2.6. Слабо загасаючі моди  $E_1$  та  $E_3$ , як видно із рис. 2.6а, відбивають ІЧ випромінювання на рівні від 80% до  $\sim 100\%$  при відносно слабкому відбитті на фоні  $E_2$ . При цьому зростання коефіцієнта відбиття із зниженням температури знов таки ж пов'язане із багаторазовими змінами сталих згасання відповідних фононів (див. таблицю 2.2).

На рис. 2.6б ми наводимо криву дисперсії  $\varepsilon'_\perp(\omega)$ , яку в  $\text{MnF}_2$  утворюють фонони Е-типу симетрії. Фононні моди  $E_1$  та  $E_3$  є слабо задемпфованими при  $T=5\text{К}$  і тому області від'ємної ДП, що створені ними, співпадають з інтервалом частот від  $\omega_T$  до  $\omega_L$ . Однак відносне згасання моди  $E_3$  при  $T=300\text{К}$  складає вже  $\Gamma / \Delta\omega_{TL} = 1.92$ , що переводить її на стадію задемпфованої моди, яка проявляється на відповідній кривій дисперсії ДП у значному підвищенні  $\varepsilon_{min}$  та помітному звуженні області від'ємної ДП. Найбільші температурні зміни виявляє передемпфована при  $T=300\text{К}$  мода  $E_2$  і тому вона не створює від'ємних значень ДП ( $\varepsilon_{min}=+1,5$ ) за цієї температури, а максимум її коефіцієнта відбиття знижується до  $\sim 20\%$ . При  $T=5\text{К}$  коливання  $E_2$  має задемпфовану стадію фононного згасання і тому  $\varepsilon_{min}=-3,0$ .

Криві дисперсії показника заломлення  $n_\perp$  та коефіцієнта екстинкції  $\kappa_\perp$  в перпендикулярній поляризації падаючого випромінювання на кристал  $\text{MnF}_2$  представлені нами на рис. 2.6в. В даному випадку, як і для паралельної поляризації, внаслідок аномальної дисперсії відразу після всіх трьох частот поперечних фононів величина показника заломлення  $n_\perp$  швидко спадає до рівня  $n_\perp < 1$ . Одночасно нерівність  $n_\perp < \kappa_\perp$ , також виконується майже по всій ширині смуги від'ємної ДП.

Зазначимо, що крім кристалів, які розглянуті в цьому підрозділі та досліджувались методами спектроскопії ІЧ відбиття, існує цілий клас немагнітних середовищ коли присутні всі типи демпфованих мод. В наступному розділі ми наводимо результати досліджень таких нелінійних

кристалів як  $\text{LiIO}_3$ ,  $\text{LiNbO}_3$ ,  $\text{LiTaO}_3$ , для яких параметри  $\Gamma$ ,  $\omega_T$ ,  $\omega_L$  безпосередньо вимірюються зі спектрів комбінаційного розсіювання.

Підсумовуючи виклад результатів цього підрозділу, ми відзначаємо, що терагерцові аномалії при розповсюдженні електромагнітних хвиль в кристалах пов'язані, в першу чергу із формуванням областей від'ємної ДП під впливом згасання полярних коливань і в умовах різкого зростання анізотропії кристалічного середовища. Зазначені аномалії в кристалічних модифікаціях ВН та кристалі  $\text{MnF}_2$  проаналізовані нами шляхом застосування виведених аналітичних виразів (2.11), (2.14), (2.15). Проста модель одного осцилятора виявилась корисною у випадку багатьох коливань і ці співвідношення надалі використовуються нами для КР досліджень нелінійних кристалів без центра інверсії.

Разом з цим нами продемонстрована не застосовність наближення малого згасання хвилі, яке є загальноприйнятим в теорії дисперсії і полягає в нехтуванні уявною частиною комплексного показника заломлення. Тому для аналізу ефектів аномальної дисперсії та комплексного показника заломлення ми застосовуємо загальні методи конформних відображень для функцій комплексної змінної, зокрема метод фазових портретів.

## **2.6 Метод фазових портретів для аналізу ефектів аномальної дисперсії та комплексного показника заломлення**

Детальне описання процесу проникнення хвиль в область  $\epsilon' < 0$  та подальшого розповсюдження цієї хвилі в кристалі в загальному ізотропному випадку ми розглядаємо [110] за допомогою введення комплексного показника заломлення  $\mathcal{N}(\omega) = n(\omega) + ik(\omega)$ , який пов'язаний із комплексною функцією діелектричної проникності  $\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)$  як:

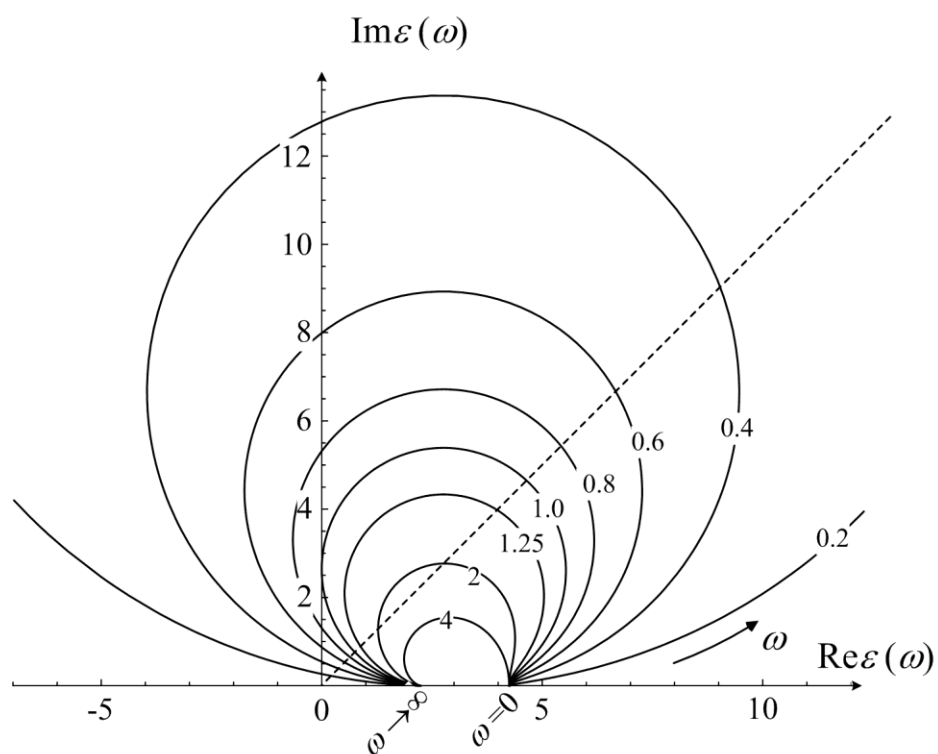
$$\begin{aligned} \mathcal{N}^2(\omega) &= [n(\omega) + ik(\omega)]^2 = \epsilon(\omega), \\ \mathcal{N}(\omega) &= \sqrt{\epsilon(\omega)} \end{aligned} \quad (2.17)$$

де уявна частина  $\mathcal{N}(\omega)$ , а саме  $k(\omega)$  – це коефіцієнт екстинкції, а дійсна частина  $n(\omega)$  – це показник заломлення, який буде дорівнювати відношенню швидкості

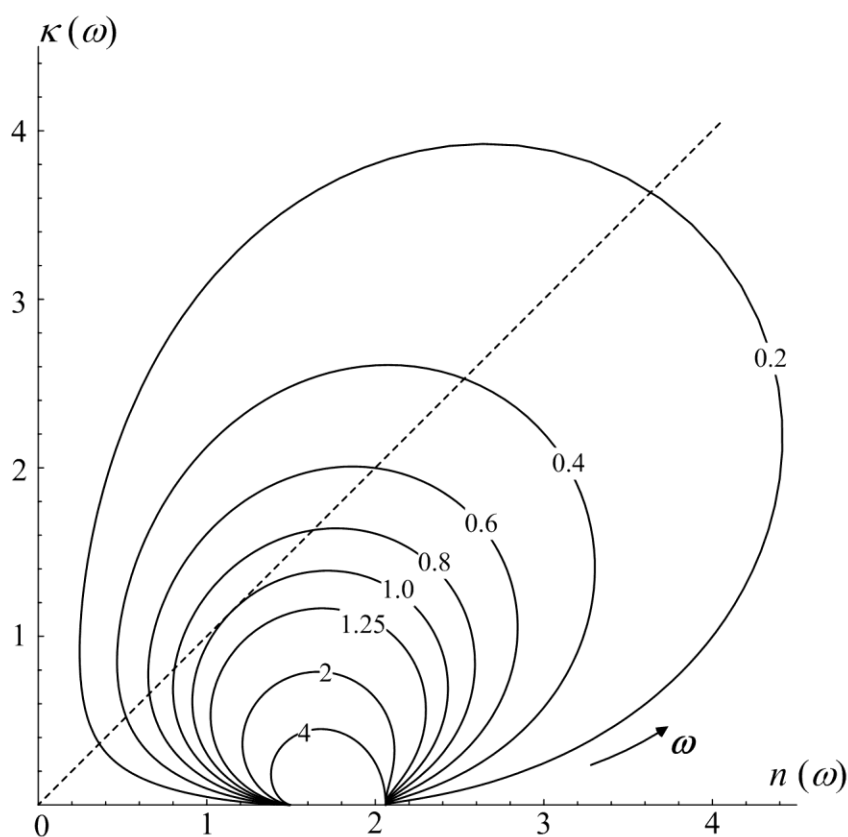
світла у вакуумі до фазової швидкості хвилі у середовищі, строго кажучи, тільки при  $n \gg \kappa$ , тобто в області прозорості кристала. Коефіцієнт екстинкції, згідно з (1.59) попереднього розділу, визначає спектр поглинання  $\alpha(\omega) = 4\pi\nu \operatorname{Im}[\sqrt{\varepsilon(\omega)}] = 4\pi\nu\kappa(\omega)$ , де  $\nu$  – хвильове число.

У п. 1.1.4 попереднього розділу при розгляді загальних властивостей комплексного тензора діелектричної проникності визначено, що  $\varepsilon(\omega)$  – це комплексно-значна функція від дійсної змінної  $\omega \in [0, \infty]$ . При цьому завжди  $\operatorname{Im}[\varepsilon(\omega)] = \varepsilon'(\omega) > 0$ , тобто всі комплексні значення  $\varepsilon(\omega)$  повинні лежати у верхній півплощині декартової системи координат, що задає поле комплексних чисел. З теорії функції комплексної змінної [111,112] відомо, що квадратний корінь над полем комплексних чисел робить конформне відображення верхньої півплощини на першу чверть всієї комплексної площини, на якій обидві частини будь-якої функції будуть мати тільки додатні значення. З урахуванням (2.17) ці міркування можна вважати строгим математичним доведенням того факту, що для всіх фізично можливих значень комплексної діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega)$  обидві частини показника заломлення повинні бути не від'ємними, тобто  $n(\omega) \geq 0$  і  $\kappa(\omega) \geq 0$ . Отже, для синтезу метаматеріалу з від'ємним показником заломлення не можна обійтися матеріалами тільки з від'ємною ДП, а й створити умови одночасного існування від'ємної магнітної проникності.

Разом з цим терагерцові аномалії в області від'ємної ДП, де значення показника заломлення  $0 < n(\omega) < 1$ , ставить не тільки питання про фазову та групову швидкості хвилі, а й потребує застосування більш загальних методів, які не обмежені наближенням  $n \gg \kappa$ . Загальний підхід із застосуванням фазової площини, який ми взяли із теорії нелінійних систем [113], саме і є таким методом для описання комплексних функцій діелектричної проникності та показника заломлення.



**Рис. 2.7.** Фазовий портрет комплексної діелектричної проникності кристала з одним полярним коливанням для різних значень нормованого фононного згасання.



**Рис. 2.8.** Фазовий портрет для комплексного показника заломлення для тих же значень нормованого фононного згасання, як і для ДП на рис.2.7.

Для аналізу ефектів аномальної дисперсії ДП та комплексного показника заломлення ми задаємо фазову площину прямокутною системою координат, на вертикальній осі якої відкладаються уявні частини кожної із комплексних функцій, а дійсні частини – на горизонтальній осі. Тоді для кожного набору спектроскопічних параметрів дисперсійної залежності  $\varepsilon(\omega)$  відповідає певна крива – фазова траєкторія  $\varepsilon(\omega)$ . Сімейство фазових траєкторій для різних значень нормованого фононного згасання і утворює фазовий портрет комплексної діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega)$  кристала, що представлений на рис.2.7.

Фазовий портрет для комплексного показника заломлення показаний на рис.2.8. Фазова траєкторія є параметричним зображенням дисперсійної залежності, де параметром є циклічна частота  $\omega$ , а її напрям зміни показаний стрілкою на рис.2.7 та рис.2.8. Не накладаючи жодних обмежень на явний вигляд функції комплексної діелектричної проникності  $\varepsilon(\omega)$ , для комплексного показника заломлення у співвідношенні (2.17) можна розділити дійсні та уявні частини. Тоді:

$$\begin{aligned} n(\omega) &= \frac{\sqrt{2}}{2} \sqrt{\varepsilon'(\omega) + \sqrt{\varepsilon'(\omega)^2 + \varepsilon''(\omega)^2}}, \\ \kappa(\omega) &= \frac{\sqrt{2}}{2} \sqrt{-\varepsilon'(\omega) + \sqrt{\varepsilon'(\omega)^2 + \varepsilon''(\omega)^2}}, \end{aligned} \quad (2.18)$$

причому при обчисленнях  $\varepsilon'(\omega)$  та  $\varepsilon''(\omega)$  допустимим є будь-яке аналітичне представлення  $\varepsilon(\omega)$ , зокрема загальний вигляд ДП у формі (1.35).

Для найпростішого випадку однієї коливної моди дійсну  $\varepsilon'_k(\omega) = \text{Re} \varepsilon(\omega)$  та уявну  $\varepsilon''_k(\omega) = \text{Im} \varepsilon(\omega)$  частини компонент тензора ДП в (2.18) можна виразити через фундаментальні частоти поперечного  $\omega_T$  та поздовжнього  $\omega_L$  фононів і стали згасання наступним чином:

$$\begin{cases} \operatorname{Re} \varepsilon(\omega) = \varepsilon^\infty \left[ 1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\Gamma^2 \omega^2 + \omega^2 - \omega_T^2} \right], \\ \operatorname{Im} \varepsilon(\omega) = \varepsilon^\infty \frac{\Gamma \omega}{\Gamma^2 \omega^2 + \omega^2 - \omega_T^2}. \end{cases} \quad (2.19)$$

На рис. 2.7 наведений фазовий портрет комплексних функцій діелектричної проникності для кристала з одним полярним коливанням. До переваг фазового портрету ми відносимо чітке розмежування співвідношення між дійсною та уявною частинам ДП для довільного значення параметра демпфування  $\Gamma$ . Бісектриса першого квадранту системи координат на рис. 2.7 – це пряма, на якій  $\operatorname{Re} \varepsilon(\omega) = \operatorname{Im} \varepsilon(\omega)$ . Отже, як видно на рис. 2.7, області від'ємної ДП повністю розташовуються над бісектрисою, де уявна частина ДП суттєво перевищує дійсну частину, тобто  $\operatorname{Im} \varepsilon(\omega) > \operatorname{Re} \varepsilon(\omega)$ .

Фазовий портрет на рис. 2.7 наочно демонструє тенденцію необмеженого зростання обох частин комплексної ДП із зменшенням фонованого згасання. При  $\Gamma \rightarrow 0$  фазова траєкторія ДП роздувається наче мильна бульбашка, яка лопне при  $\Gamma = 0$  із зникненням уявної частини ДП. Зауважимо, що процес зростання обох частин ДП із зменшенням  $\Gamma$  приводить до збільшення відбиття майже до 100%, що яскраво підтверджується експериментами (див. рис.2.5а або рис.2.6а). Як наслідок, всі області від'ємної ДП при надто малих величинах сталої фонованого згасання виявляються заблокованими від проникнення до неї зовнішнього випромінювання, повністю відбиваючись від поверхні кристалу.

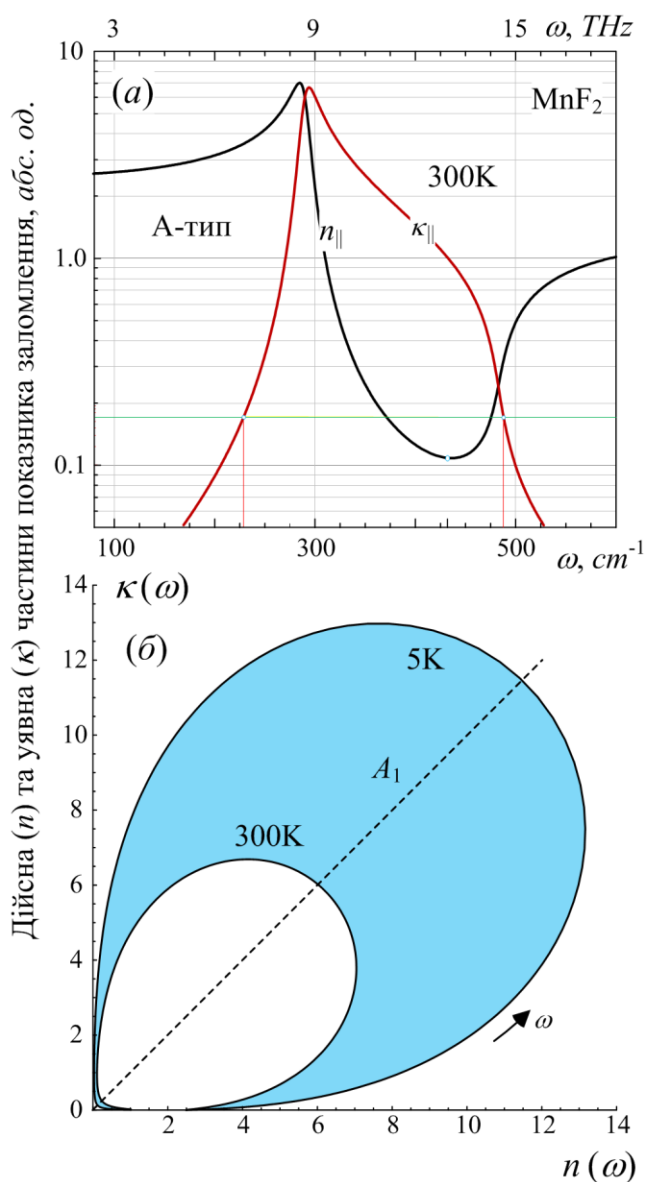
При збільшенні  $\Gamma$  область від'ємної ДП буде існувати лише в підкритичному режимі фонованого згасання при  $\Gamma < \Gamma_{cr}$ , однак нерівність  $\operatorname{Im} \varepsilon(\omega) > \operatorname{Re} \varepsilon(\omega)$  виконується і для передемпфованого режиму аж до досягнення гіпердемпованого стану, коли згасання буде перевищувати  $\Gamma_{cr}$  у кілька разів.

Фазовий портрет для комплексного показника заломлення, що показаний на рис.2.8, як і зазначалось, повністю міститься у першому квадранті

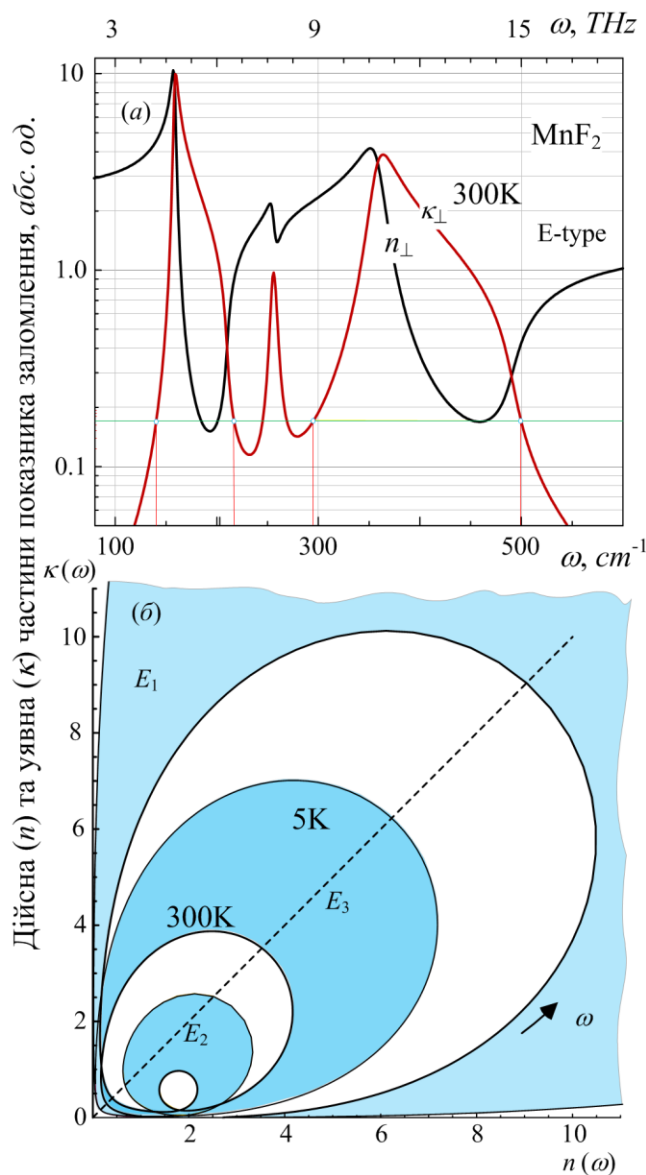
комплексної площини. Фазові траєкторії, очевидно, перетинають бісектрису першого квадранта тільки за наявності від'ємної ДП або в підкритичному режимі фононного згасання при  $\Gamma < \Gamma_{cr}$ . На дві головні особливості аномальної дисперсії комплексного показника заломлення ми звертаємо увагу при аналізі фазового портрету на рис.2.8. По-перше, фазові траєкторії, що проникають до інтервалу  $0 < n(\omega) \leq 1$  мають підкритичний режим фононного демпфування. По-друге, принциповою особливістю комплексного показника заломлення, як видно із рис.2.8, є області величезного поглинання хвиль з  $\kappa(\omega) > n(\omega)$ , які знов таки ж формуються тільки в підкритичному режимі фононного згасання при  $\Gamma < \Gamma_{cr}$ , тобто за умов існування від'ємної ДП. Обидві особливості радикально впливають на умови розповсюдження хвиль в області від'ємної ДП і заслуговують окремого обговорення (див. п.3.4).

Метод фазового портрету дозволяє зробити узагальнений аналіз впливу згасання на аномальну дисперсію діелектричних та оптичних властивостей кристалу і на завершення даного підрозділу ми наводимо результати його застосування у кристалі  $MnF_2$ . Для двох напрямів поляризації падаючого випромінювання відповідно на рис.2.9 та рис.2.10 представлені дисперсійні залежності (а) обох частин комплексного показника заломлення та (б) – фазові портрети для діапазону температур від 5К до 300К. Фазові портрети на цих рисунках зображені тонованими областями між граничними траєкторіями відповідно для 5К та 300К. Дисперсійні залежності наводяться для визначення частотного положення значень  $n$  і  $\kappa$  на фазовій траєкторії.

Фазовий портрет показника заломлення у  $MnF_2$  для паралельної поляризації падаючого випромінювання показаний на рис. 2.9б. Він дає можливість відслідкувати динаміку зміни  $n$  і  $\kappa$  (головних параметрів розповсюдження електромагнітної хвилі, особливо для області аномальної дисперсії) в діапазоні температур від 5К до 300К.



**Рис. 2.9.** Дисперсійні залежності (а) обох частин комплексного показника заломлення у паралельній поляризації (фонон А-типу) у  $\text{MnF}_2$  та (б) – відповідний фазовий портрет для температур 5К та 300К.



**Рис. 2.10.** Дисперсійні залежності (а) обох частин комплексного показника заломлення у перпендикулярній поляризації (фонон Е-типу) у  $\text{MnF}_2$  та (б) – відповідний фазовий портрет для температур 5К та 300К.

Джерелом аномальної дисперсії в паралельній поляризації падаючого випромінювання у  $\text{MnF}_2$  є єдиний фонон  $A_1$ -типу і головні його параметри мають своє відображення на фазовому портреті. Зокрема, всі фазові траєкторії портрету перетинають бісектрису квадранта. Це означає, що фонон залишається слабо задемпфованим у всьому температурному діапазоні, а навколо нього утворюється область від'ємної ДП, смуга якої практично співпадає із T-L розщепленням.

У перпендикулярній поляризації падаючого випромінювання на кристал  $\text{MnF}_2$  фазовий портрет показника заломлення для діапазону температур від 5К до 300К, як видно на рис. 2.10б, зазнає досить помітних змін. Всі три полярні коливання E-типу утворюють свою окрему петлю на фазовій траєкторії («мільну бульбашку») з характерним роздуттям при зниженні температури та зменшенні величини сталої фононного згасання. Положення цієї петлі відносно бісектриси квадранта на комплексній площині дозволяє, як і у випадку одного осцилятора, визначити основні параметри аномальної дисперсії навколо даного коливання. За перетином бісектриси фазовою траєкторією ми підтверджуємо вже проведену раніше в п.2.5. класифікацію за ступенем демпфування для всіх фононних мод –  $E_1$ ,  $E_2$  та  $E_3$ . Наприклад, топологія тонованої області навколо моди  $E_2$ , коли петля траєкторії для  $T=300\text{K}$  опускається нижче бісектриси, а для  $T=5\text{K}$  її перетинає, однозначно свідчить про перехід цієї моди через критичний режим від передемпфованого стану до задемпфованого стану в процесі зниження температури. Відповідно при  $T=5\text{K}$  навколо моди  $E_2$  повинна існувати область від'ємної ДП, яка зникає при  $T=300\text{K}$ . За результатами аналізу експериментальних фактів та розрахунків, що наведені в цьому розділі, встановлена принципова роль згасання, яка полягає в обмеженні не тільки області від'ємної ДП, але і самого процесу проникнення хвиль в цю область.

## Висновки до розділу 2

- Показано, що згасання полярних коливань має визначальний вплив на формування від'ємної ДП. Він проявляється у звуженні області від'ємної ДП відносно T-L розщеплення та зменшенні абсолютної величини  $\varepsilon'_{min} < 0$ , що стає помітним в експерименті для  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T)$  близьких до одиниці. При  $\Gamma/(\omega_L - \omega_T) > 1$  область від'ємної ДП повністю зникає.
- В межах одноосциляторної моделі вперше отримані аналітичні вирази, що базуються на спектроскопічних параметрах кристалічного середовища і описують критерій існування області від'ємної ДП в реальному кристалі. Базуючись на цьому критерії запропонована кількісна класифікація ступеня демпфування полярного коливання (слабо задемпфована мода, задемпфована мода, сильно задемпфована мода, критичне згасання, передемпфована мода та гіпердемпфована мода). Показана застосовність отриманих аналітичних виразів для аналізу терагерцових аномалій в кристалах зі складним фононним спектром.
- Розрахунковим шляхом продемонстровано, що в області аномальної дисперсії, особливо при від'ємних значеннях ДП, в більшості кристалів дійсна частина показника заломлення  $n$  може бути меншою за одиницю в 10 і більше разів. Проте, на тих же частотах електромагнітна хвиля фактично перестає бути біжучою, оскільки поглинання (уявна частина показника заломлення) досягає свого максимуму.

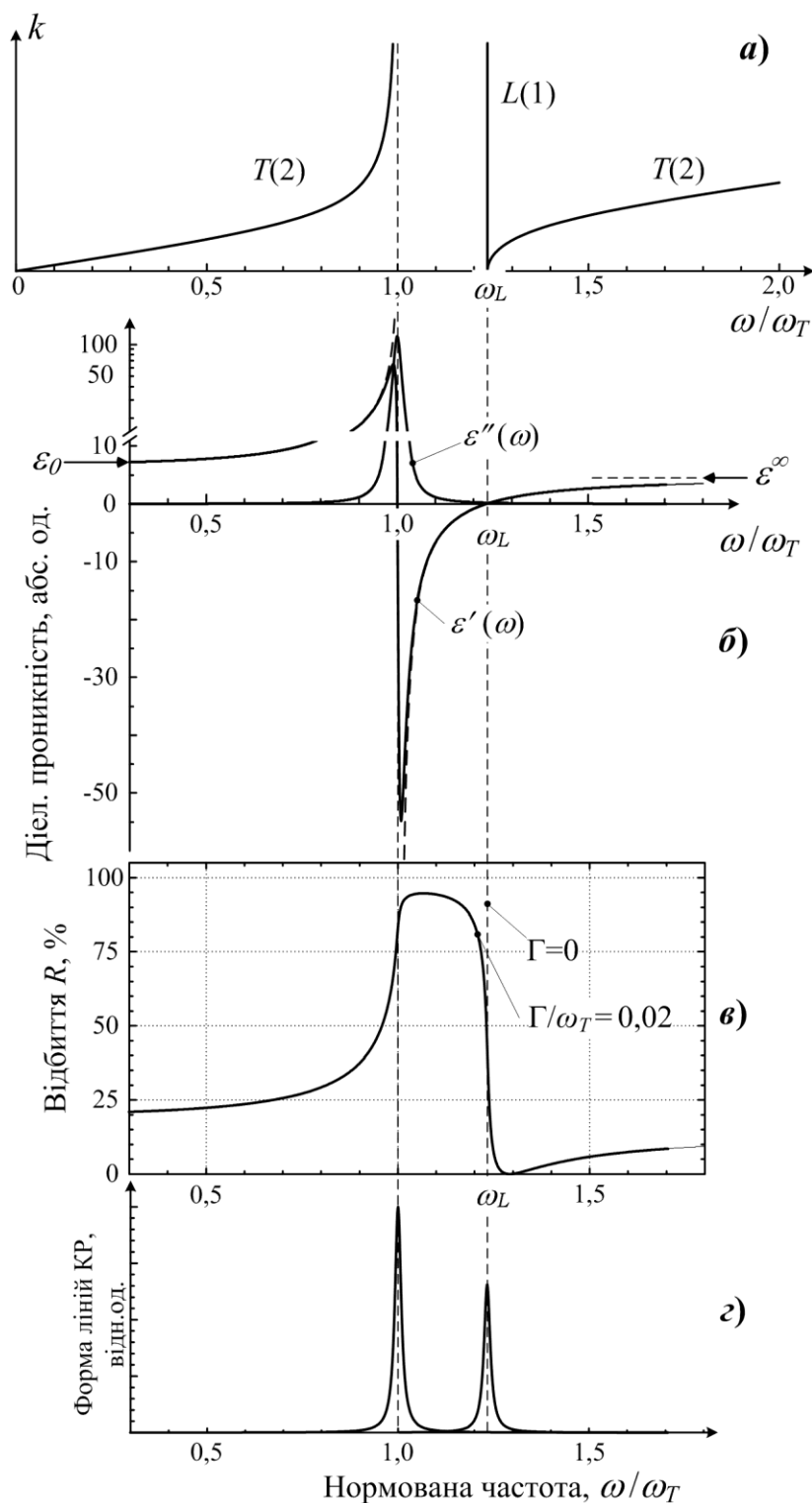
## РОЗДІЛ 3. ВІД'ЄМНА ДІЕЛЕКТРИЧНА ПРОНИКНІСТЬ ТА АНОМАЛІЇ ФОТОН-ФОНОННОЇ ВЗАЄМОДІЇ В НЕЦЕНТРОСИМЕТРИЧНИХ КРИСТАЛАХ

Нецентросиметричні кристали є матеріалами для багатьох застосувань в квантовій електроніці та нелінійній оптиці, однак їх терагерцові властивості, зокрема області від'ємної діелектричної проникності, до останнього часу залишалися майже не дослідженими. Важливою особливістю дисперсійного аналізу в нецентросиметричних кристалах (див. п.1.3) є можливість відновлення повного тензора діелектричної проникності за експериментальними даними, які отримують безпосередньо із спектрів КР [114].

### 3.1 Методика відновлення дисперсії тензора діелектричної проникності за спектрами КР

Джерелом терагерцової дисперсії ДП кристала, в загальному випадку, є поляритон, який у нецентросиметричному середовищі одночасно проявляється в спектрах КР та ІЧ відбиття. Фізичні особливості прояву поляритона в спектрах КР та ІЧ відбиття, які покладені в основу обчислень тензора ДП, ми ілюструємо за допомогою узагальненого рис.3.1.

Дисперсійну залежність  $\omega = \omega(k)$  в оптично ізотропному кубічному кристалі ( $\epsilon_0=7,02$ ;  $\epsilon_\infty=4,6$ ) з одним полярним коливанням показано на рис. 3.1a. Буквами L і T позначено поздовжню та поперечні фононні гілки, відповідно. Цифри у дужках дають виродження гілок. Далеко від дисперсійної частоти  $\omega_0 = \omega_T$  ( $\omega \ll \omega_0$  або  $\omega \gg \omega_0$ ), поперечна гілка на рис.3.1a є прямою лінією, яка відповідає закону дисперсії для чистого фотона у кристалі тому, що має сталу фазову швидкість  $v = \omega / k = c / n$ , де  $c$  – швидкість світла у вакуумі,  $n = \sqrt{\epsilon}$  – показник заломлення. Асимптота поблизу вертикальної лінії з  $\omega = \omega_0$  для поперечної гілки – це чисто механічні збудження ґратки (поперечний фонон), які не мають фотонної складової. Лінія з  $\omega = \omega_0$  є вертикальною, оскільки поперечний фонон має нульову фазову швидкість, принаймні у порівнянні із швидкістю електромагнітної хвилі.



**Рис. 3.1.** Фотон-фононна взаємодія в нецентросиметричному кубічному кристалі ( $\epsilon_0=7,02$ ;  $\epsilon^\infty=4,6$ ) з одним полярним коливанням, що формує: а) поляритон; б) область від'ємних значень ДП (область  $10 < \epsilon'(\omega) < 100$  зображена в логарифмічному масштабі); в) спектр ІЧ відбиття; г) стоксів зсув та форма ліній у спектрі КР на поперечному та поздовжньому фонах

Змішане фотон-фононне збудження є поляритоном. Частотна дисперсія є результатом наростаючого сповільнення фазової швидкості поляритонної хвилі по мірі наближення  $\omega$  до  $\omega_0$  на кілька порядків аж до швидкості поперечного фонона оптичної гілки коливань у кристалі.

Дисперсійна залежність діелектричної проникності показана на рис.3.1б для випадку слабо задемпфованої фононної моди. В такому разі на частоті  $\omega_0$  розташований максимум функції  $\varepsilon''(\omega)$ , а функція  $\varepsilon'(\omega)$  в результаті аномальної дисперсії переходить у від'ємну область. Дійсна частина  $\varepsilon'(\omega)$  набуває додатних значень на частоті поздовжнього фонона  $\omega_L$ . Тому для слабо задемпфованої фононної моди, як вже ми розглядали в попередньому розділі, смуга від'ємної ДП практично співпадає з T- L- розщепленням.

Фундаментальні частоти  $\omega_0 = \omega_T$  та  $\omega_L$  в спектрі ІЧ відбиття є точками перегину кривої  $R(\omega)$ , як показано на рис.3.1в. Зазначимо, що при зменшенні фононного згасання  $\Gamma \rightarrow 0$  відбиття  $R(\omega) \rightarrow 1$  у смузі T- L- розщеплення ( $\omega_T < \omega < \omega_L$ ), формуючи смугу залишкових променів, яка добре відома в експериментальній спектроскопії кристалів.

Обидва L и T фонони у кристалі без центру інверсії можуть бути активними у КР. Це призводить до існування двох стоксових (s) та двох антистоксових (as) ліній у КР, які мають зміщені частоти від частоти  $\omega_p$  лазерної лінії помпування на величини  $\omega_0$  та  $\omega_L$ . Положення та форма ліній на частотах  $\omega_0$  та  $\omega_L$  в спектрі КР в області стоксового зсуву представлена нами рис. 3.1г. Згідно з п.1.2.3 напівширина лінії КР на поперечному фоні дорівнює його сталій згасання  $\Gamma$ . Відомі значення частот  $\omega_T$  та  $\omega_L$  за допомогою (1.37) дозволяють визначити сили осцилятора.

Отже, в спектрі КР містяться всі дані для відновлення дисперсії тензора діелектричної проникності. Результати досліджень від'ємної діелектричної проникності за спектрами КР та аномальної рефракції в деяких кристалах ми наводимо нижче.

## 3.2 Від’ємна діелектрична проникність та аномальна рефракція в нелінійних кристалах $\text{LiTaO}_3$ , $\text{LiIO}_3$ та $\text{LiNbO}_3$

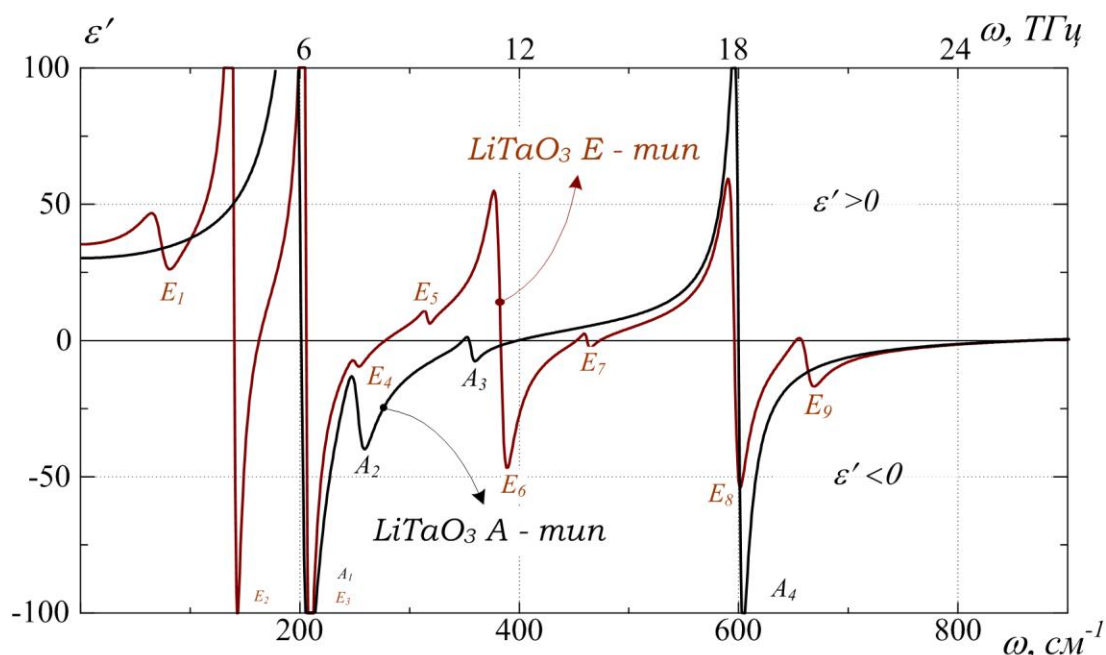
### 3.2.1 Формування від’ємної ДП в кристалі $\text{LiTaO}_3$ [114]

В сегнетоелектричній фазі кристал  $\text{LiTaO}_3$  має 30 коливальних ступенів вільності, які розподілені за типами симетрії:  $5A_1+5A_2+10E$ , причому коливання  $E$  - типу двічі вироджені. Акустичні фонони належать до представлень  $A_1$  і  $E$  - типу, а коливання  $A_2$  - типу не проявляються як в ІЧ спектрах, так і в спектрах КР.

Особливістю коливань типів  $A_1$  і  $E$  є те, що вони активні як в спектрах комбінаційного розсіяння, так і в спектрах ІЧ відбиття. Саме тому даний кристал був обраний нами для досліджень.

В таблиці 2.2 наведено параметри полярних коливань кристалу танталату літію для паралельної ( $A_1$  - тип) і перпендикулярної ( $E$  - тип) поляризацій, виміряні із спектрів комбінаційного розсіювання. В колонках 5-9 представлено розраховані нами параметри кожного коливання: Т-Л розщеплення, нормоване на Т-Л розщеплення згасання (2.8), частоти  $\omega_+$  і  $\omega_-$  (2.11), частотна ширина області від’ємної ДП (2.12). Мінімальне значення від’ємної ДП ( $\varepsilon'_{min}$ , колонка 10) обчислено на пряму з (2.3), оскільки в (2.5) параметр  $\varepsilon^\infty$  не є однозначним для випадку складного фононного спектру.

На рис. 3.2 зображено дисперсійну залежність ДП для обох поляризацій кристалу  $\text{LiTaO}_3$ . Номери коливань на рис. 3.2 відповідають номерам в таблиці 2.2. Всі коливання паралельної поляризації належать до задемпфованих мод (крім  $A_4$ , яке є слабо задемпфованим) і тому виявляють області від’ємної ДП, що також відповідає кількісним даним, обрахованими за нашим критерієм (2.8) і які видно на рис. 3.2.



**Рис. 3.2.** Дисперсійна залежність дійсної частини ДП для кристалу  $\text{LiTaO}_3$  для паралельної ( $A$  – тип, пунктирна лінія) і перпендикулярної ( $E$  – тип, суцільна лінія) поляризацій.

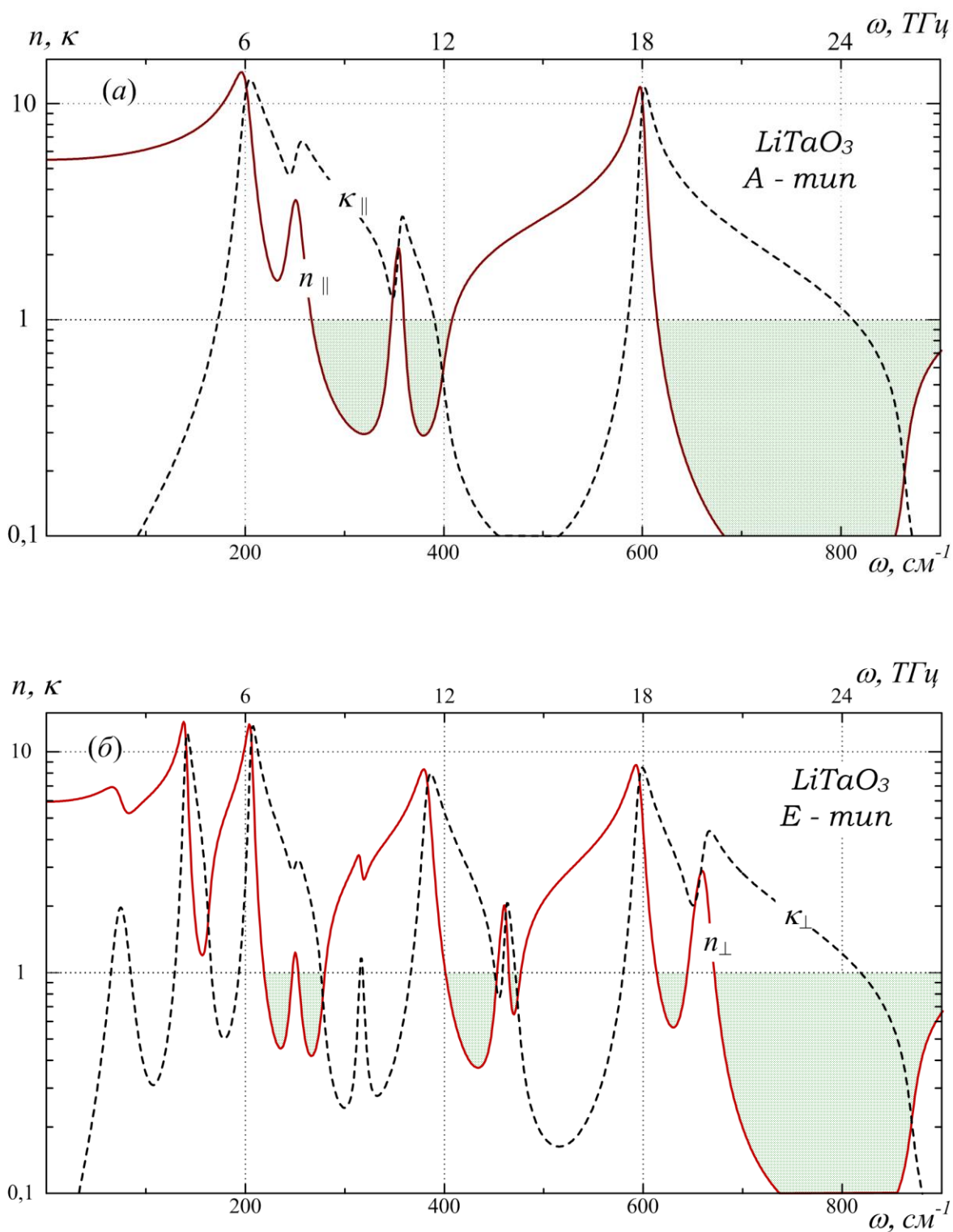
**Таблиця 3.1.** Параметри полярних коливань та області від'ємної ДП для кристалу  $\text{LiTaO}_3$ .

$N_{\omega}$	$\omega_L$ (ТГц)	$\omega_T$ (ТГц)	$\Gamma$ (ТГц)	$\omega_L - \omega_T$ (ТГц)	$\frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T}$	$\omega_+$ (ТГц)	$\omega_-$ (ТГц)	$\Delta\omega$ (ТГц)	$\varepsilon'_{min}$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
<i>A</i> – тип $\varepsilon^{\infty}=4,15$ , $\varepsilon_0=30,24$									
$A_1$	7,35	6,03	0,45	1,32	0,34	7,31	6,06	1,25	-119
$A_2$	10,41	7,59	0,45	2,82	0,16	10,39	7,61	2,78	-40
$A_3$	11,97	10,68	0,24	1,29	0,19	11,96	10,69	1,27	-7,6
$A_4$	25,92	18	0,24	7,92	0,03	25,92	18,00	7,92	-107
<i>E</i> – тип $\varepsilon^{\infty}=4,13$ , $\varepsilon_0=35,78$									
$E_1$	2,4	2,22	0,57	0,18	3,17	Область від'ємної ДП відсутня			
$E_2$	4,89	4,2	0,18	0,69	0,26	4,87	4,21	0,66	-101
$E_3$	7,44	6,18	0,18	1,26	0,14	7,43	6,19	1,24	-130
$E_4$	8,34	7,53	0,3	0,81	0,37	8,31	7,56	0,75	-9,5
$E_5$	9,54	9,48	0,18	0,06	3,00	Область від'ємної ДП відсутня			
$E_6$	13,56	11,49	0,36	2,07	0,17	13,54	11,51	2,03	-47
$E_7$	14,22	13,86	0,18	0,36	0,50	14,20	13,88	0,32	-2,7
$E_8$	19,44	17,88	0,33	1,56	0,21	19,42	17,90	1,52	-53
$E_9$	26,1	19,86	0,45	6,24	0,07	26,09	19,87	6,22	-17

Коливання  $A_1$  і  $A_2$  мають досить „глибокі” області від’ємної ДП:  $\varepsilon'_{min}=-119$  і  $\varepsilon'_{min}=-40$  відповідно, що за абсолютною величиною перевищує значення ДП на низьких ( $\varepsilon_0=30,24$ ) та високих частотах ( $\varepsilon^\infty=4,15$ ). Вони утворюють спільну область від’ємної ДП від 6,06 до 10,39 ТГц, що також видно з рис. 3.2. Реальні частотні області від’ємних значень ДП  $\Delta\omega$  (таблиця 2.2), які обраховані за (2.12), для всіх коливань кристалу  $\text{LiTaO}_3$  ( $A_1$  – тип), є дуже близькими до Т-Л розщеплення за рахунок набагато меншого за одиницю відносного згасання. Оскільки вираз (2.12) було виведено для одноосциляторної моделі кристалу, то для коливань із спільними областями від’ємної ДП співвідношення (2.12) може призводити до помітних похибок. Характерним прикладом такої ситуації є задемпфовані моди  $E_3$  та  $E_4$  кристалу  $\text{LiTaO}_3$  перпендикулярної поляризації. Відповідно до рис. 3.2 ці коливання мають спільну область від’ємної ДП, проте, кількісні дані (таблиця 2.2, стовпчики 7-9) вказують на розділення смуг від’ємної ДП для коливань  $E_3$  та  $E_4$  інтервалом додатної ДП з шириною 0.12 ТГц. Точне визначення смуги частот, в якій ДП набуває від’ємних значень для випадку злиття областей можна обрахувати, скориставшись виразами (2.11), відповідно визначивши  $\omega_-$  для першого коливання та  $\omega_+$  для останнього коливань.

Відсутність областей з від’ємною ДП для  $\omega_T = 2.22$  ТГц та  $\omega_T = 9.48$  ТГц перпендикулярної поляризації (рис. 3.2, коливання  $E_1$  і  $E_5$ ) також відповідає даним таблиці та критерію (2.8), оскільки ці моди є гіпердемпфованими. В цьому випадку співвідношення (2.12) повертає комплексні корені, що є цілком природнім, оскільки дисперсійна залежність дійсної частини ДП не перетинає нуль. Відповідно до (2.8) і кількісних даних таблиці 2.2, всі інші фононні коливання мають область від’ємної ДП, що видно з рис. 3.2.

В низькочастотній області 2.1-5.1 ТГц  $A_1$  – тип немає жодного фононного коливання, на відміну від  $E$  – типу, що має два коливання одне з яких ( $E_2$ ) досягає значних від’ємних значень ( $\varepsilon'_{min} = -101$ ).



**Рис. 3.3.** Дисперсійна залежність дійсної (суцільна лінія) та уявної (пунктирна лінія) частини показника заломлення кристалу  $\text{LiTaO}_3$  для паралельної ( $A_1$  – тип, а) і перпендикулярної ( $E$  – тип, б) поляризацій.

Слід зауважити, що обидві поляризації мають дві спільні частотні області з від'ємною ДП. В діапазоні 6.06-8.28 ТГц присутні два характерні коливання для  $A_1$  - типу ( $A_1$ ,  $A_2$ ) і два - для  $E$ -типу ( $E_3$ ,  $E_4$ ). У високочастотній області 17.88-26.07 ТГц одне коливання  $A_1$  - типу має яскраво виражену область від'ємної ДП ( $\epsilon'_{min} = -107$ ),  $E$ -тип розбивається на два близьких коливання з двома від'ємними смугами, мінімальні значення яких -53 і -17 відповідно.

Анізотропія кристалічного середовища має суттєвий вплив на формування від'ємної ДП, як і в попередньому випадку для кристалічних модифікацій BN. Наприклад розглянемо коливання  $A_1$  та  $E_1$  в низькочастотній області (див. рис. 3.2). На частоті порядку 4,5 ТГц абсолютні значення ДП для обох коливань радикально різні:  $A_1$  досягає значень більших за 50, а  $E_1$  - менших за -25. Подібні зміни знаку ДП для представлень  $A_1$  та  $E$  спостерігаються в діапазоні частот від 9 ТГц до 11 ТГц. Отже, в залежності від поляризації падаючого випромінювання в кристалі  $\text{LiTaO}_3$  можна керувати знаком та значенням діелектричної проникності.

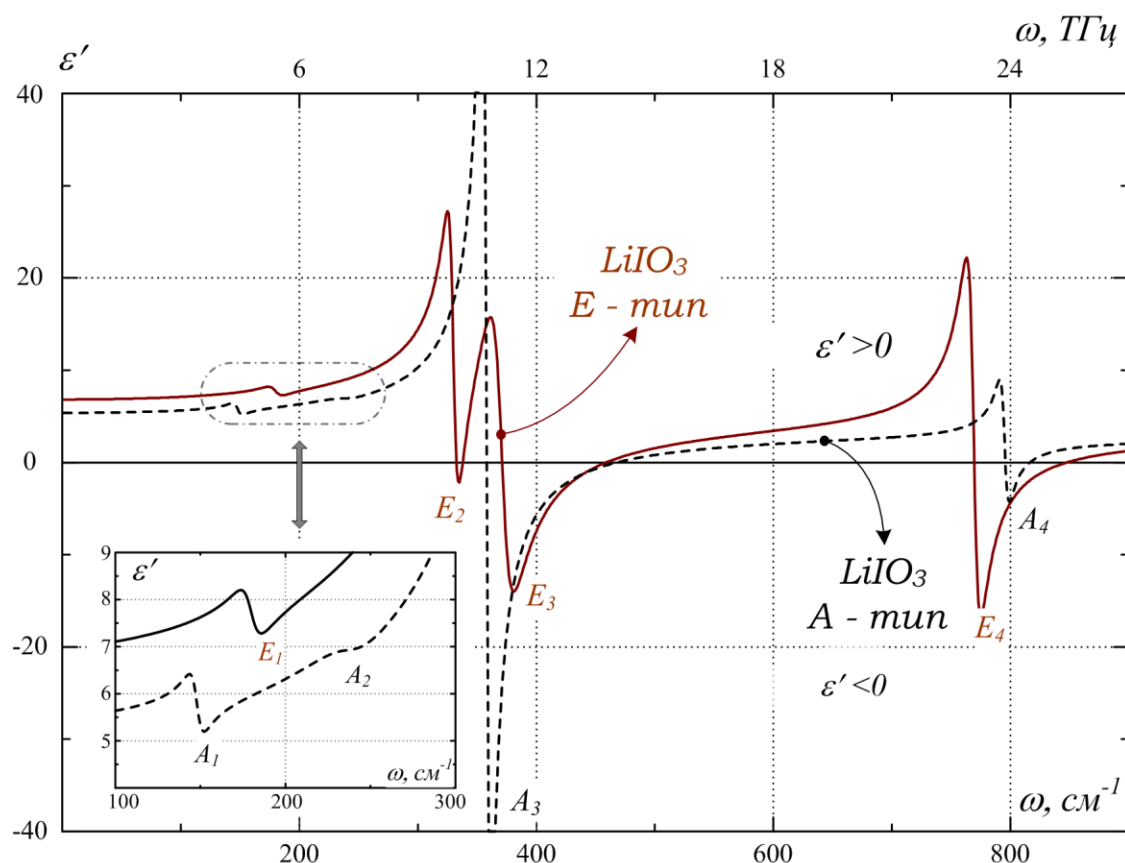
Дисперсійна залежність дійсної частини показника заломлення  $n$  та коефіцієнта екстинції  $k$  зображена на рис. 3.3. На відміну від BN в кристалі  $\text{LiTaO}_3$  не для всіх областей від'ємної ДП  $n$  досягає значень менших за одиницю. Для представлення  $A_1$  спостерігаються дві області де показник заломлення менший за одиницю в діапазоні частот від 6 до 12 ТГц, та одна широка область у високочастотному діапазоні (18 - 27 ТГц), що є спільною для обох представлень. В свою чергу  $E$  - тип має п'ять таких областей, які рівномірно розташовані по всьому спектру. Варто зауважити, що для всіх коливань обох представлень області з показником заломлення меншим за одиницю розділені між собою, не зважаючи на те, що області від'ємної ДП для багатьох коливань є спільними.

### 3.2.2 Формування від'ємної ДП в кристалі $\text{LiIO}_3$ [115]

Синтетичний монокристал йодату літію,  $\text{LiIO}_3$ , як правило, вирощують з розчину і це один з найбільш широко використовуваних матеріалів для квантової електроніки, акустики та нелінійної оптики. Цей кристал оптично одновісний, негативний ( $n_o = 1,860$ ,  $n_e = 1,982$  на  $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ ). Області прозорості кристалу знаходяться в діапазоні від  $0,3 \mu\text{m}$  до  $6 \mu\text{m}$ . Цей кристал має значні нелінійно-оптичні та електрооптичні властивості. Загальне число 30-ти коливальних ступенів вільності кристала йодату літію, в гексагональній модифікації розподілено за типами симетрії наступним чином:  $5A+5B+5E_1+5E_2$  незводимих представлень. Акустичні фонони належать до  $A$  і  $E_1$  представлень. Коливання із симетрією  $A$  та  $E_1$  є полярними, тобто активними в ІЧ- і КР спектрах, і вони становлять головний інтерес для наших досліджень. Коливання  $B$ -представлення заборонені, а саме ІЧ- і КР неактивні. Фонони двічі виродженого  $E_2$ -представлення активні в комбінаційному розсіянні, але не є дипольно активними і тому не впливають на ДП кристала. Таким чином, для дисперсійного аналізу ДП  $\text{LiIO}_3$  можна обмежитись лише  $4A$  і  $4E_1$ -фононами.

Область від'ємних значень діелектричної проникності в кристалі  $\text{LiIO}_3$  кількісно обчислена за даними спектрів комбінаційного розсіяння, що наведені в таблиці 3.2 [115].

На рис. 3.4 зображена дисперсія дійсної частини діелектричної проникності для  $A$  та  $E_1$  типів кристалу  $\text{LiIO}_3$ . Коливання  $A_1$  має нормоване згасання 9 і, відповідно до критерію (2.8) область від'ємних значень ДП має бути відсутня, як це видно з рис. 3.4. Для коливання  $A_2$  нормоване згасання порядку 36, і реальна стала згасання набагато більше ніж Т-Л розщеплення частот, тому (2.8) також забороняє існування від'ємної діелектричної проникності.



**Рис. 3.4.** Формування області від'ємних значень дійсної частини ДП в кристалі  $\text{LiIO}_3$ . Коливанням типу А (пунктирна лінія) відповідає  $\varepsilon_{\parallel}$  поляризація, а  $E_1$ -типу (суцільна лінія) відповідає  $\varepsilon_{\perp}$  поляризація.

**Таблиця 3.2.** Параметри полярних коливань та області від'ємної ДП для кристалу  $\text{LiIO}_3$ .

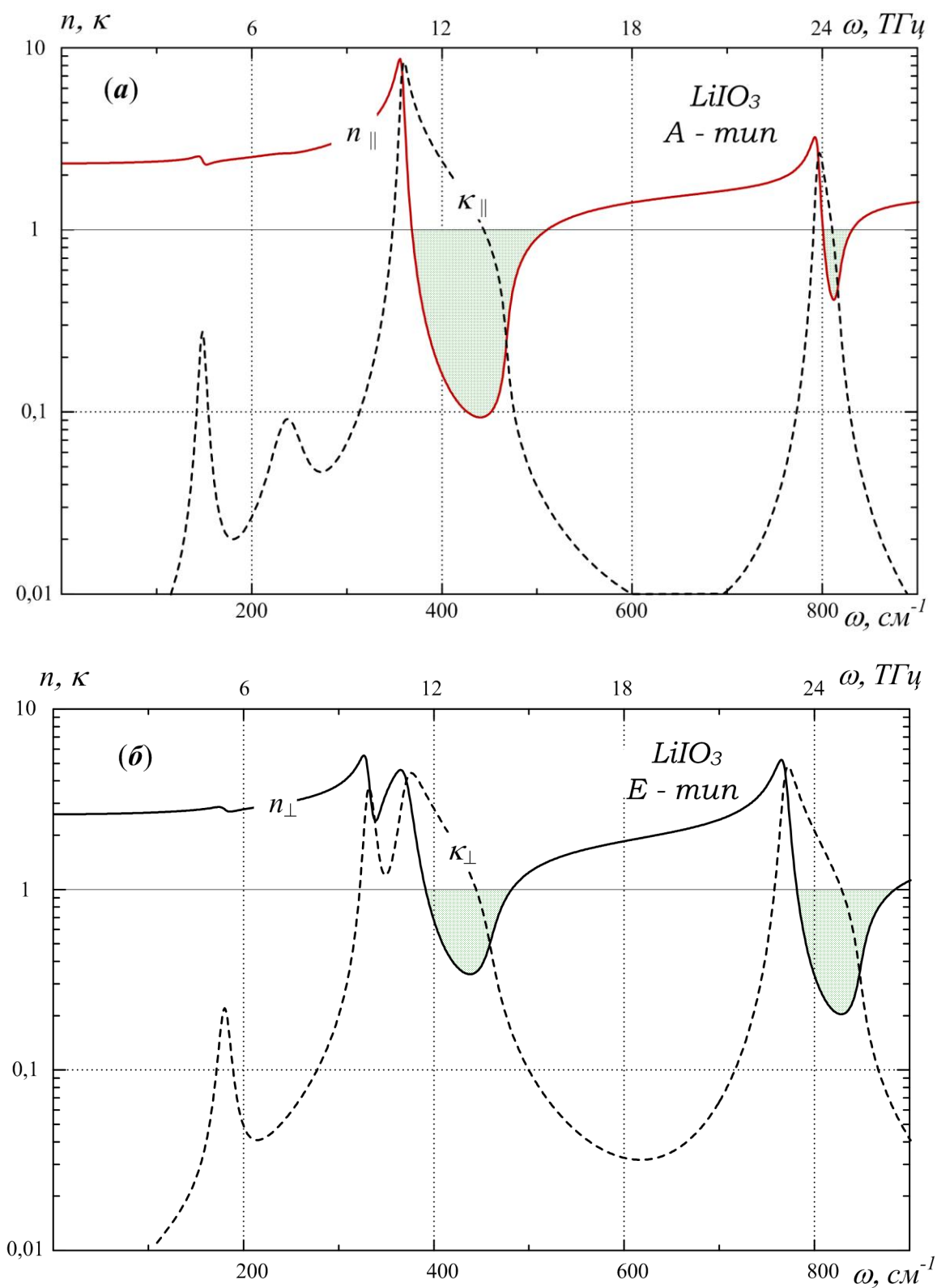
$N^{\circ}$	$\omega_L$ (ТГц)	$\omega_T$ (ТГц)	$\Gamma$ (ТГц)	$\omega_L - \omega_T$ (ТГц)	$\frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T}$	$\omega_+$ (ТГц)	$\omega_-$ (ТГц)	$\Delta\omega$ (ТГц)	$\varepsilon'_{min}$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
<i>A</i> – тип $\varepsilon^{\infty}=2,91, \varepsilon_0=5,37$									
$A_1$	4,47	4,44	0,27	0,03	9,00	Область від'ємної ДП відсутня			
$A_2$	7,17	7,14	1,08	0,03	36,00	Область від'ємної ДП відсутня			
$A_3$	14,04	10,74	0,21	3,30	0,06	14,04	10,74	3,29	-51
$A_4$	24,51	23,85	0,24	0,66	0,36	24,49	23,87	0,61	-4,3
<i>E<sub>1</sub></i> – тип $\varepsilon^{\infty}=3,40, \varepsilon_0=6,82$									
$E_1$	5,43	5,40	0,42	0,03	14,00	Область від'ємної ДП відсутня			
$E_2$	10,20	9,90	0,30	0,30	1,00	10,05	10,05	0,00	-2,2
$E_3$	13,80	11,13	0,63	2,67	0,24	13,76	11,16	2,59	-14
$E_4$	25,44	23,07	0,36	2,37	0,15	25,43	23,08	2,34	-16

Аналогічна ситуація спостерігається для коливання  $E_1$  (перпендикулярна поляризація), що має відносне згасання 14. У зв'язку з такими параметрами, ці коливання відносяться до гіпердемпфованих мод і є майже невидимими в спектрі комбінаційного розсіювання, за рахунок наявності сильного згасання.

Варто зупинитися на аналізі коливання  $E_2$ , що має згасання близьке до критичного. Дійсно, нормоване згасання  $E_2$  порядку одиниці і, відповідно до виразів (2.8) та (2.12), область від'ємних значень діелектричної проникності та її частотний діапазон повинні прямувати до нуля. Проте, числові дані таблиці 2.3 та суцільна крива на рис. 3.4 свідчать про існування невеликого „острівця” з від'ємною ДП мінімальне значення якого досягає  $-2,2$ .

Пояснити цю похибку нашого моделювання можна тим, що співвідношення (2.8), (2.11) і (2.12) були отримані в межах одноосциляторної моделі і в них не враховано вплив сусідніх коливань, що є суттєвим для випадку  $E_2$ . Саме за рахунок цього впливу і з'являється ця невелика область з від'ємною діелектричною проникністю. Варто зазначити, що ця невелика неточність суттєво не зменшує область застосовності виведених нами виразів, оскільки для всіх інших коливань вони працюють коректно. Наприклад для  $A_3$ ,  $A_4$ ,  $E_3$  та  $E_4$  нормовані згасання менші за одиницю, що дозволяє існування від'ємної діелектричної проникності, як це видно з рис. 3.4.

Частотні залежності дійсної частини показника заломлення та коефіцієнта екстинції зображені на рис. 3.5. Кожне з представлень ( $A$  та  $E$ ) кристалу  $LiIO_3$  має дві відокремлені області, де дійсна частина показника заломлення досягає значень, що є меншими за одиницю. Ці області супроводжуються наявністю від'ємної ДП. Варто зауважити, що для фонона  $E_2$  дисперсія залишає  $n$  більшим за одиницю, що також супроводжується значним згасанням, як видно з рис. 3.5 (б).



**Рис. 3.5.** Дисперсійна залежність дійсної (суцільна лінія) та уявної (пунктирна лінія) частини показника заломлення кристалу  $\text{LiIO}_3$  для паралельної ( $A$ –тип, а) і перпендикулярної ( $E_1$ –тип, б) поляризацій.

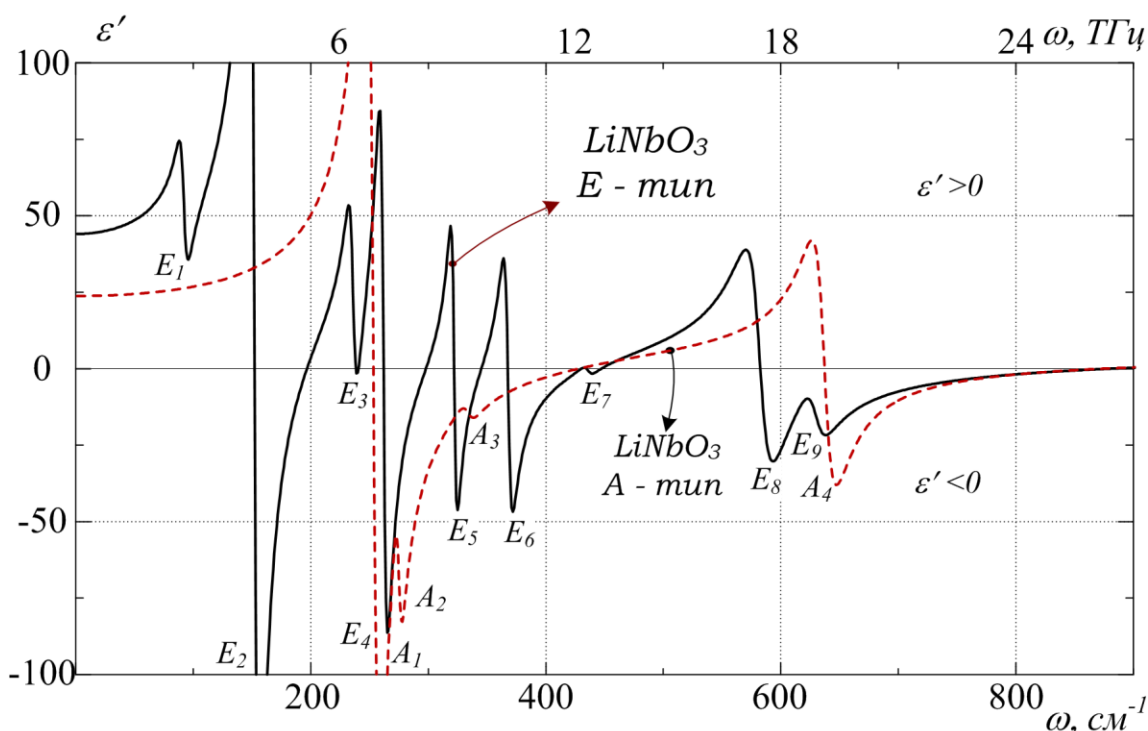
### 3.2.3 Формування від'ємної ДП в кристалі $\text{LiNbO}_3$

Кристал ніобату літію,  $\text{LiNbO}_3$  отримав широкого поширення в різних областях науки і техніки, таких як квантова електроніка, нелінійна оптика, акустооптика і опто-електроніка.

Монокристал синтетичний, безбарвний, вирощується з розплаву за методом Чохральського, Бріджмена-Стокбаргера, і флюсовим методом. Кристал оптично одноосьовий, негативний ( $n_o = 2,2967$ ,  $n_e = 2,2082$  для  $\lambda = 0,6328$  мкм) з областю прозорості 0,4-5 мкм.

Ніобат літію має тринадцять полярних коливань: чотири коливання для паралельної поляризації ( $A$  – тип) і дев'ять коливань для перпендикулярної поляризації ( $E$  – тип). За даними спектрів комбінаційного розсіювання побудовано дисперсійну залежність ДП [14] для відповідних напрямів поляризації (рис. 3.6) [116-118]. Аналогічно до попереднього випадку дисперсійні параметри для аналізу області від'ємної діелектричної проникності наведені в таблиці 2.4.

Коливання  $E_1$  ( $\omega_T = 2,76$  ТГц) і  $E_3$  ( $\omega_T = 7,08$  ТГц) перпендикулярної поляризації є гіпердемпфованою модою, тому область від'ємної ДП для нього відсутня, що і спостерігається з рис. 3.6. До сильно задемпфованих мод відносяться  $A_1$ ,  $E_7$  та  $E_8$ , проте, лише  $E_7$  має окрему область від'ємної діелектричної проникності, яка менша за T-L розщеплення на 0,16 ТГц (44%). Коливання  $E_3$  є передемпфованою модою, оскільки мінімальне значення ДП лежить від 0 до 1. За рахунок низько відносного згасання фонони  $A_4$  та  $E_9$  відносяться до слабо задемпфованих мод. Всі інші моди кристалу  $\text{LiNbO}_3$  є задемпфованими. Відповідно до (2.8) всі вони мають область від'ємної діелектричної проникності, яка для деяких коливань є спільною. Наприклад  $A_2$  і  $A_3$  коливання паралельної поляризації мають спільні області від'ємної ДП, як це видно на рис. 3.6, та згідно з даними таблиці 2.4, в якій використане співвідношення (2.8).



**Рис. 3.6.** Дисперсійна залежність дійсної частини ДП для кристалу  $\text{LiNbO}_3$  для паралельної ( $A_1$  – тип, пунктирна лінія) і перпендикулярної ( $E$  – тип, суцільна лінія) поляризацій.

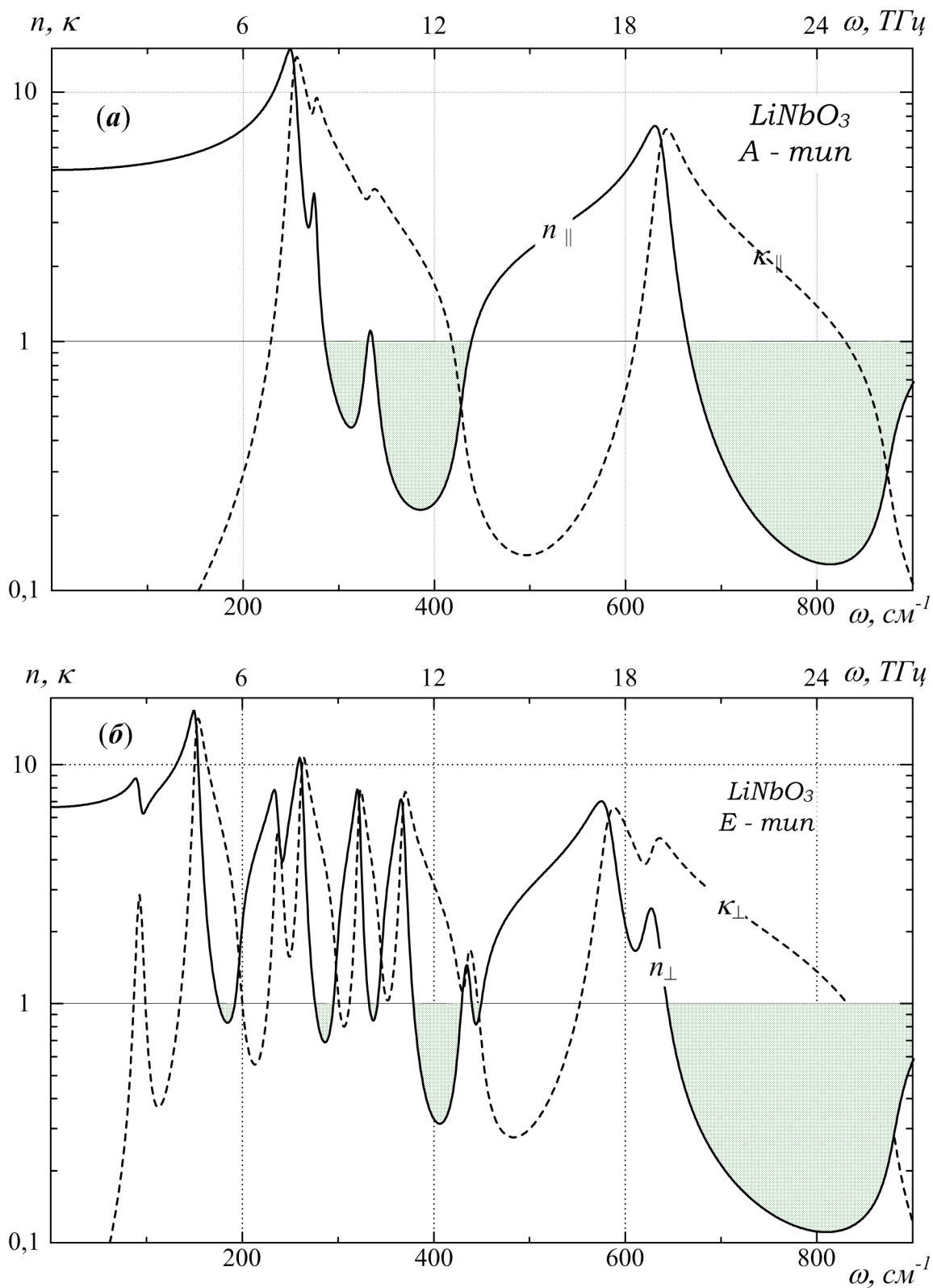
**Таблиця 3.3.** Параметри полярних коливань та області від'ємної ДП для кристалу  $\text{LiNbO}_3$ .

$N_0$	$\omega_L$ (ТГц)	$\omega_T$ (ТГц)	$\Gamma$ (ТГц)	$\omega_L - \omega_T$ (ТГц)	$\frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T}$	$\omega_+$ (ТГц)	$\omega_-$ (ТГц)	$\Delta\omega$ (ТГц)	$\varepsilon'_{min}$
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
<i>A</i> – тип $\varepsilon^\infty=4,56, \varepsilon_0=23,76$									
$A_1$	8,19	7,59	0,36	0,60	0,60	8,13	7,65	0,48	-136
$A_2$	9,93	8,25	0,21	1,68	0,13	9,92	8,26	1,67	-82
$A_3$	12,84	10,02	0,42	2,82	0,15	12,82	10,03	2,79	-16
$A_4$	26,22	19,11	0,63	7,11	0,09	26,20	19,12	7,08	-38
<i>E</i> – тип $\varepsilon^\infty=4,91, \varepsilon_0=44,05$									
$E_1$	2,85	2,76	0,24	0,09	2,67	Область від'ємної ДП відсутня			
$E_2$	5,91	4,56	0,24	1,35	0,18	5,90	4,57	1,33	-174
$E_3$	7,29	7,08	0,24	0,21	1,14	Область від'ємної ДП відсутня			
$E_4$	8,94	7,86	0,21	1,08	0,19	8,93	7,87	1,06	-86
$E_5$	10,35	9,66	0,18	0,69	0,26	10,34	9,67	0,67	-46
$E_6$	12,84	11,04	0,24	1,80	0,13	12,83	11,05	1,78	-47
$E_7$	13,44	13,08	0,30	0,36	0,83	13,36	13,16	0,20	-1,6
$E_8$	18,63	17,46	0,72	1,17	0,62	18,50	17,58	0,92	-30
$E_9$	26,43	18,90	0,63	7,53	0,08	26,41	18,91	7,50	-20

Слід зауважити, що обидві поляризації мають дві спільні частотні області з від'ємною ДП. В області 7,65-12,82 ТГц маємо по три характерні коливання: для *A*-типу це  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  і для *E*-типу це  $E_4$ ,  $E_5$ ,  $E_6$ . Коливання *A*-типу „зливаються” в одну спільну область за рахунок близьких за абсолютною величиною *T-L* розщеплень і суттєвих (у порівнянні з *T-L* розщепленням) сталих згасання. Коливання *E*-типу розділені між собою областями з додатною ДП. В області 17,58-26,20 ТГц одне коливання *A*-типу має яскраво виражену область від'ємної ДП, *E*-тип розбивається на два близьких коливання зі спільною від'ємною смугою.

На рис. 3.7 (а) зображено дисперсійну залежність дійсної та уявної частин показника заломлення для паралельної поляризації кристалу  $\text{LiNbO}_3$  (*A*-тип). Дійсна частина показника заломлення має лише три області зі значеннями меншими за одиницю. Але, як видно з рис. 3.6, всі коливання *A*-типу мають область від'ємної діелектричної проникності. Аналогічна дисперсія ДП спостерігається у високочастотній області 17,58-26,20 ТГц для перпендикулярної поляризації (рис. 3.7 (б)). Для коливання  $E_8$  область від'ємної ДП присутня, проте, дійсна частина показника заломлення більша за одиницю. Подібні особливості не виникали при дослідженні попередніх кристалічних середовищ ( $\text{BN}$ ,  $\text{LiTaO}_3$ ,  $\text{LiIO}_3$ ).

Вони вказують на те, що наявність області від'ємної діелектричної проникності є лише необхідною (не достатньою) умовою існування аномально низьких значень  $n$ . Реально поведінка показника заломлення залежить від спектроскопічних параметрів коливань. Варто зазначити, що при близьких значеннях  $\omega_L$  і  $\omega_T$ , а також значних згасаннях, вплив сусідніх фононів суттєво обмежує застосовність одноосциляторної моделі.



**Рис. 3.7.** Дисперсійна залежність дійсної (суцільна лінія) та уявної (пунктирна лінія) частини показника заломлення кристалу  $\text{LiNbO}_3$  для паралельної ( $A$ -тип, а) і перпендикулярної ( $E_1$ -тип, б) поляризацій.

### 3.3 Анізотропія областей від'ємної діелектричної проникності та аномалії показника заломлення в кристалах із складним фононним спектром

Головна особливість кристалів із складним фононним спектром, що розглядалися в попередніх розділах, полягає в різкому зростанню анізотропії всіх діелектричних параметрів в областях аномальної дисперсії. Анізотропія, як бачимо, не тільки впливає на абсолютні значення від'ємної ДП, а й на частотне положення та ширину смуг від'ємної ДП для різних напрямів поляризації електромагнітного випромінювання.

В нашій роботі [116] ми проаналізували вплив анізотропії на формування від'ємної ДП в області фононного резонансу на частоті коливань кристалічної ґратки.

У загальному випадку формування діелектричних властивостей зокрема, від'ємні значення діелектричної проникності  $\varepsilon_{ik}(\omega)$  ( $i, k = x, y, z$ ), значною мірою визначаються властивостями фононної системи кристала. Для кристалів з симетрією не нижче ромбічної сингонії тензорна функція  $\varepsilon_{ik}(\omega)$  зберігає свій діагональний вигляд  $\varepsilon_{ik}(\omega) = \varepsilon_k(\omega) \delta_{ik}$  для всіх частот, принаймні, від радіохвиль до ультрафіолетового діапазону.

Переважає більшість розглянутих кристалів має яскраво виражену анізотропію діелектричних властивостей, яка багатократно зростає в області аномальної дисперсії. В лінійному наближенні певний виняток складають кубічні кристали. Саме в оптично ізотропних кристалах, що належать до кубічної сингонії, діелектрична проникність є скалярною функцією частоти  $\omega$ , а  $\varepsilon_x(\omega) = \varepsilon_y(\omega) = \varepsilon_z(\omega) = \varepsilon(\omega)$ , в результаті чого автоматично гарантується наявність (або відсутність) від'ємної діелектричної проникності для довільної поляризації падаючого світла.

Для широко поширених оптично одновісних кристалів, в яких оптична вісь  $\mathbf{C}$  спрямована вздовж  $z$ :  $\varepsilon_x(\omega) = \varepsilon_y(\omega) = \varepsilon_{\perp}(\omega)$  та  $\varepsilon_z(\omega) = \varepsilon_{\parallel}(\omega)$ . В результаті в анізотропному середовищі від'ємна діелектрична проникність проявляється в залежності від напрямку поляризації падаючого випромінювання і формується відповідно зі спектром нормальних мод полярних коливань. Відмінності, як за

кількістю, так і в розташуванні фононних коливань уздовж головної осі кристала і перпендикулярно до неї, різко збільшує анізотропію діелектричної проникності через різні резонансні частоти для відповідних напрямів поляризації зовнішнього випромінювання. В роботах [116-118] ми проаналізували вплив анізотропії на формування від'ємної ДП в області фононного резонансу на частоті коливань кристалічної ґратки.

Слід відмітити, що в області аномальної дисперсії дійсна частина показника заломлення (1.29) може досягати значень менших за одиницю, що з точки зору класичної електродинаміки формально вказує на те, що фазова швидкість хвилі перевищує швидкість світла у вакуумі.

Із порівняння наведених вище дисперсійних залежностей ДП в кристалі  $\text{LiIO}_3$  (рис. 3.4) із відповідними кривими для структурно ізоморфних кристалів  $\text{LiNbO}_3$  (рис. 3.6) та  $\text{LiTaO}_3$  (рис. 3.2) безпосередньо видно, що анізотропія діелектричних властивостей кристала формується головним чином структурою елементарної комірки, а саме симетрією розташування атомів в середині цієї комірки. При цьому хімічний склад відіграє набагато меншу роль. На підтвердження цього положення яскравим прикладом є розглянутий в попередньому розділі кристал нітриду бора, що утворює три кристалічні модифікації.

Результати наших обчислень областей від'ємної ДП були показані на рис.2.2б і рис.2.3б та з, де представлені частотні резонансні залежності дійсної частини діелектричної проникності  $\text{Re}[\varepsilon(\omega)]$  для всіх трьох кристалічних модифікацій нітриду бора. Параметри дисперсійної формули (1.35), що покладені в основу наших розрахунків були наведені в таблиці 2.1.

Від'ємна область ДП в ізотропному випадку кубічної модифікації нітриду бора розташовується між частотами  $1057 \text{ см}^{-1}$  і  $1305,73 \text{ см}^{-1}$  (рис. 2.2б), яка відрізняється від T–L розщеплення не більш, ніж на  $0,5 \text{ см}^{-1}$ . Оскільки компоненти тензора проникності  $\varepsilon_{\parallel} = \varepsilon_{\perp}$ , то ця область не залежить від поляризації випромінювання, що проникає у кристал. На відміну від цього, поляризаційна залежність від'ємної ДП з'являється в обох анізотропних

модифікаціях нітриду бора: як в ромбічній, так і в гексагональній (рис. 2.3 б та в).

В ромбічній модифікації нормальна мода ізотропного кристала під впливом анізотропії майже симетрично розщеплюється на два нормальних коливання із взаємно перпендикулярними напрямками дипольного моменту. У порівнянні із кубічним випадком виникає частотний зсув, який складає приблизно  $300 \text{ см}^{-1} \approx 9 \text{ ТГц}$ . Обидві моди є слабо задемпфованими, і тому частотна область від'ємної ДП практично не відрізняється від T–L розщеплення, як і в ізотропному випадку. Головна відмінність ромбічної модифікації від ізотропної структури полягає у появі сильної поляризаційної залежності від'ємної ДП, а саме, в існуванні двох окремих областей, що не перекриваються між собою, причому ці області рознесені у спектрі на  $600 \text{ см}^{-1} \approx 18 \text{ ТГц}$ .

Особливістю гексагональної структури VN є виникнення додаткових нормальних мод для обох напрямів поляризації, яке супроводжується різким збільшенням згасання фононів. В результаті наявності додаткових мод в гексагональній модифікації на високих частотах (біля  $1600 \text{ см}^{-1}$ ) з'являється невелика область від'ємної ДП, загальна для обох напрямів поляризації.

Таким чином, проведений нами аналіз низки кристалів показує, що від'ємну діелектричну проникність незалежно від поляризації падаючого випромінювання одночасно можна спостерігати тільки в оптично ізотропних кубічних кристалах. Для кількісної оцінки від'ємних діелектричних властивостей поширених нелінійних матеріалів з більш низькою симетрією кристалічної структури потрібен детальний аналіз не тільки частоти нормальних коливань, але і сталих згасання фононів полярних мод кристалічної решітки.

При аналізі нормальної та аномальної дисперсії обох частин комплексного показника заломлення слід звернути увагу на дві особливості, що характерні для всіх досліджуваних кристалів в області аномальної дисперсії.

По-перше, для всіх кристалів поблизу власних частот поперечних фононів має місце гігантське зростання коефіцієнта екстинкції – на багато порядків у порівнянні з областями прозорості. В цих випадках коефіцієнт поглинання не тільки досягає значень, які зрівнюються за величиною з  $n$ , але  $\kappa > n$  в більшій частині області аномальної дисперсії та смуги частот від’ємної ДП.

По-друге, головна особливість аномальної дисперсії показника заломлення в області від’ємної ДП полягає в його пониженні до значень  $n < 1$ . Представлені вище дані показують, що аномальна дисперсія показника заломлення знижує його до значень  $0 < n < 1$  за наявності від’ємної ДП, однак завжди залишає його на рівні  $n > 1$  при відсутності від’ємної ДП. В результаті за наявності від’ємної ДП виникає певний парадокс, коли стандартний вираз для швидкості електромагнітної хвилі  $v$  дає значення  $v > c$  (вище за швидкість світла у вакуумі  $c$ ) як для фазової, так і для групової швидкості. Тому особливості фотон-фононної взаємодії в умовах аномальної рефракції, які впливають на розповсюдження електромагнітної хвилі в області від’ємної діелектричної проникності заслуговують окремого обговорення.

### **3.4 Фотон-фононна взаємодія за умови аномальної рефракції та колапс електромагнітної хвилі в області від’ємної діелектричної проникності**

Аналіз умов розповсюдження електромагнітної хвилі в області від’ємної діелектричної проникності ми проводили [110,119] на прикладі кристала  $\text{MnF}_2$ , для якого модель одного осцилятора вже була успішно апробована вище. Перед розглядом поширення хвиль в кристалічних середовищах з негативною ДП нагадаємо два вже встановлені факти [97].

По-перше, за повної відсутності фононного згасання хвиля в принципі не може проникнути в область від’ємної ДП, оскільки вся її інтенсивність повністю відбивається від поверхні кристала. Дійсно, коли в кристалі  $\text{MnF}_2$  сталу згасання  $\Gamma$  зменшували в кілька разів шляхом зміни температури від 300 К до 5К, то експериментально спостерігається зростання відбиття майже до 100% на всьому інтервалі T-L-розщеплення, як ми вже бачили на рис.2.5a і

рис.2.6а. Тому для проникнення хвиль через поверхню кристала згасання обов'язково повинно перевищувати нижню межу ( $\Gamma = 0$ ), тобто  $\Gamma > 0$ .

По-друге, існування критичного фононного згасання  $\Gamma_{cr} = \omega_L - \omega_T$  встановлює верхню межу демпфування для самої області від'ємної ДП. Обидва ці причини вказують на фундаментальну важливість згасання фононів та їх вплив на поширення хвиль в області від'ємної ДП.

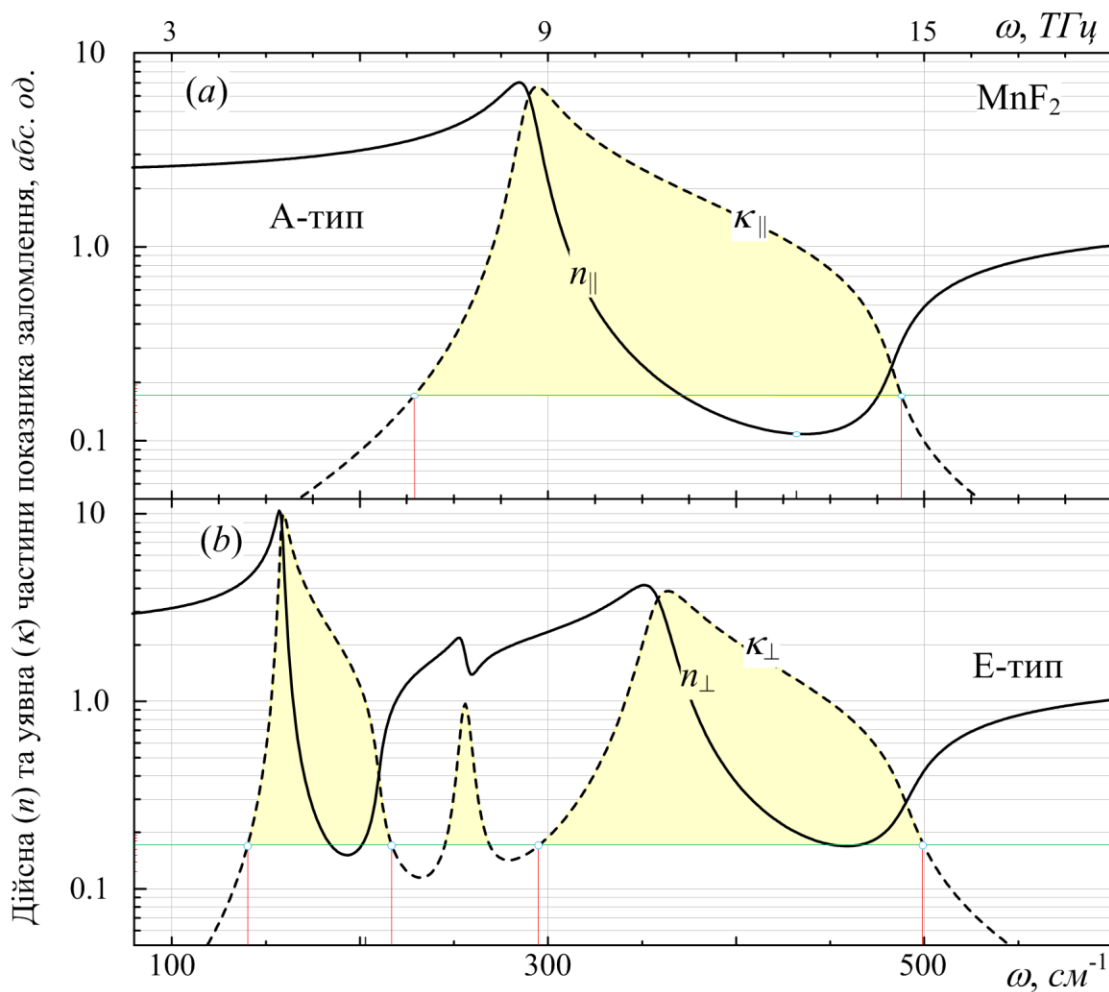
В усіх областях від'ємної ДП кристала  $\text{MnF}_2$  за рахунок дисперсії  $\kappa(\omega)$  і  $n(\omega)$  (рис. 3.8) майже всюди  $n < \kappa$ , причому дійсна частина  $n > 0$  – завжди додатна і прямує до нуля при  $\Gamma \rightarrow 0$ . Згідно з (1.59) поглинання вхідної інтенсивності хвилі  $I_0$  на відстані  $x$  від границі кристала відбувається за законом

$$I(x) = I_0 \exp[-(4\pi/\lambda_0)\kappa x],$$

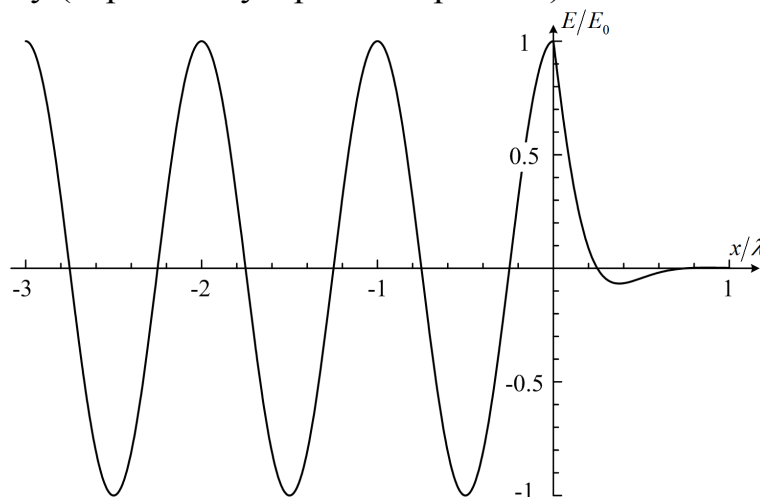
де  $\lambda_0$  – довжина хвилі у вільному просторі.

Підкреслимо, що тут втрати інтенсивності є дисипативними, а  $\alpha = 4\pi\kappa/\lambda_0$  – коефіцієнт поглинання, який, на відміну від еванесцентних хвиль, описує незворотний відтік енергії із хвилі до коливної системи кристала. В загальному випадку десятикратне зменшення інтенсивності відбувається на глибині  $x_m = (\ln 10/4\pi)(\lambda_0/\kappa) \approx 0.18\lambda_0/\kappa$ . Для кристала  $\text{MnF}_2$  на частотах, де  $\epsilon'(\omega) = -1$  (на них встановлені вертикальні пунктирні лінії на рис. 3.8),  $x_m < \lambda_0/5$ .

В результаті, розподіл поля стає аперіодичним, а не хвильовим процесом, який жорстко локалізований поблизу від поверхні розділу. Для кубічних кристалів тензор  $\epsilon_{ij}(\omega) = \epsilon(\omega)\delta_{ij}$ , тобто області від'ємної ДП є ізотропними, і тому всередині себе повинні руйнувати всі хвилі, що проникають, незалежно від поляризації та напрямку хвильового вектора. Тоді енергія падаючої хвилі практично не виходить за межі малого (для хвилі) об'єму  $V$ ;  $x_m^3$ .



**Рис. 3.8.** Дисперсійні залежності дійсної ( $n$ ) та уявної ( $\kappa$ ) частин комплексного показника заломлення в кристалі  $\text{MnF}_2$  за кімнатної температури:  $a$  – фоновий А-типу (паралельна поляризація),  $b$  – фониони Е-типу (перпендикулярна поляризація).



**Рис. 3.9.** Колапс електромагнітної хвилі в області від'ємної ДП кристала.

В цьому та інших випадках зникнення хвильового процесу при  $\kappa > 1/4\pi$  або  $n < \kappa$  можна говорити про колапс електромагнітної хвилі в області від'ємної ДП.

Фізика колапсу хвилі полягає в наступному [110]. В результаті фотон-фононої взаємодії поляритонну хвилю в кристалі можна розглядати як вимушений відгук на дію зовнішньої електромагнітної хвилі з довжиною хвилі  $\lambda_0$  у вакуумі  $\lambda_0 = 2\pi c / \omega$ . Цей відгук є хвилею, що розповсюджується в кристалі, лише при досить малих величинах згасання  $\alpha$ . Дійсно, амплітудний коефіцієнт згасання  $\alpha$  пов'язаний з коефіцієнтом екстинкції  $\kappa$  як  $\alpha = 2\pi\kappa/\lambda$ . Тому хвильовий процес зберігає свою періодичність, тільки якщо  $\kappa \ll 1/2\pi$ . І навпаки, якщо  $\kappa \geq 1/2\pi$ , то настає колапс хвилі (рис.3.9), який проявляється як повне поглинання кристалічною решіткою амплітуди та/або інтенсивності падаючої хвилі, що відбудеться на відстані дисипації  $x < \lambda$ .

Дисперсійні залежності дійсної ( $n$ ) та уявної ( $\kappa$ ) частин комплексного показника заломлення в кристалі  $\text{MnF}_2$  за кімнатної температури представлені на рис. 3.8. Надкритичні значення  $\kappa > 1/2\pi \approx 0.16$  заповнені сірим кольором на рис. 3.8. Зазначимо, що частотні діапазони всіх цих областей перевищують відповідні T–L розщеплення і отже, заздалегідь перекривають області від'ємної діелектричної проникності в  $\text{MnF}_2$ .

На завершення відмітимо, що колапс хвилі, по суті, в точці простору у порівнянні з лінійними розмірами хвильового процесу має важливі фізичні наслідки. Значення  $n < 1$ , що виникають в області аномальної дисперсії перестають бути зв'язаними з переміщенням фази, зважаючи на відсутність такої. З цієї ж причини всередині та поблизу від області від'ємної ДП функція  $n(\omega)$  з усіма її похідними вже не зв'язані із швидкістю переміщення енергії.

Таким чином, принципова роль фононного згасання полягає в обмеженні не тільки області від'ємної ДП, але і самого процесу проникнення хвиль в цю область. Зауважимо, що на частотах, де  $\epsilon'(\omega) = -1$ , відбиття не зникає, а навпаки  $R \gg 0$  і в  $\text{MnF}_2$  досягає 70%. Це характерно для всіх немагнітних

діелектриків ( $\mu = +1$ ). До того ж, зниження  $\Gamma$  значно збільшує  $R$  аж до повного відбиття ( $R=100\%$  при  $\Gamma = 0$ , рис. 2.5а та рис. 2.6а).

### Висновки до розділу 3

- З'ясовано, що від'ємну діелектричну проникність для всіх поляризацій падаючого випромінювання одночасно можна спостерігати тільки в оптично ізотропних кубічних кристалах, оскільки анізотропія кристалічного середовища має суттєвий вплив на формування від'ємної ДП;
- для всіх кристалів поблизу власних частот поперечних фононів має місце гігантське зростання коефіцієнта екстинкції – на багато порядків у порівнянні з областями прозорості;
- головна особливість аномальної дисперсії показника заломлення в області від'ємної ДП полягає в його пониженні до значень  $n < 1$ . Показано, що аномальна дисперсія показника заломлення знижує його до значень  $0 < n < 1$  за наявності від'ємної ДП, однак завжди залишає його на рівні  $n > 1$  при відсутності від'ємної ДП;
- в більшій частині області аномальної дисперсії та смуги частот від'ємної ДП розподіл поля становиться аперіодичним, а не хвильовим процесом, який жорстко локалізований поблизу від поверхні розділу. Показано, що в більшості кристалів колапс електромагнітної хвилі буде мати місце у смузі частот, що перевищує область від'ємних значень ДП.

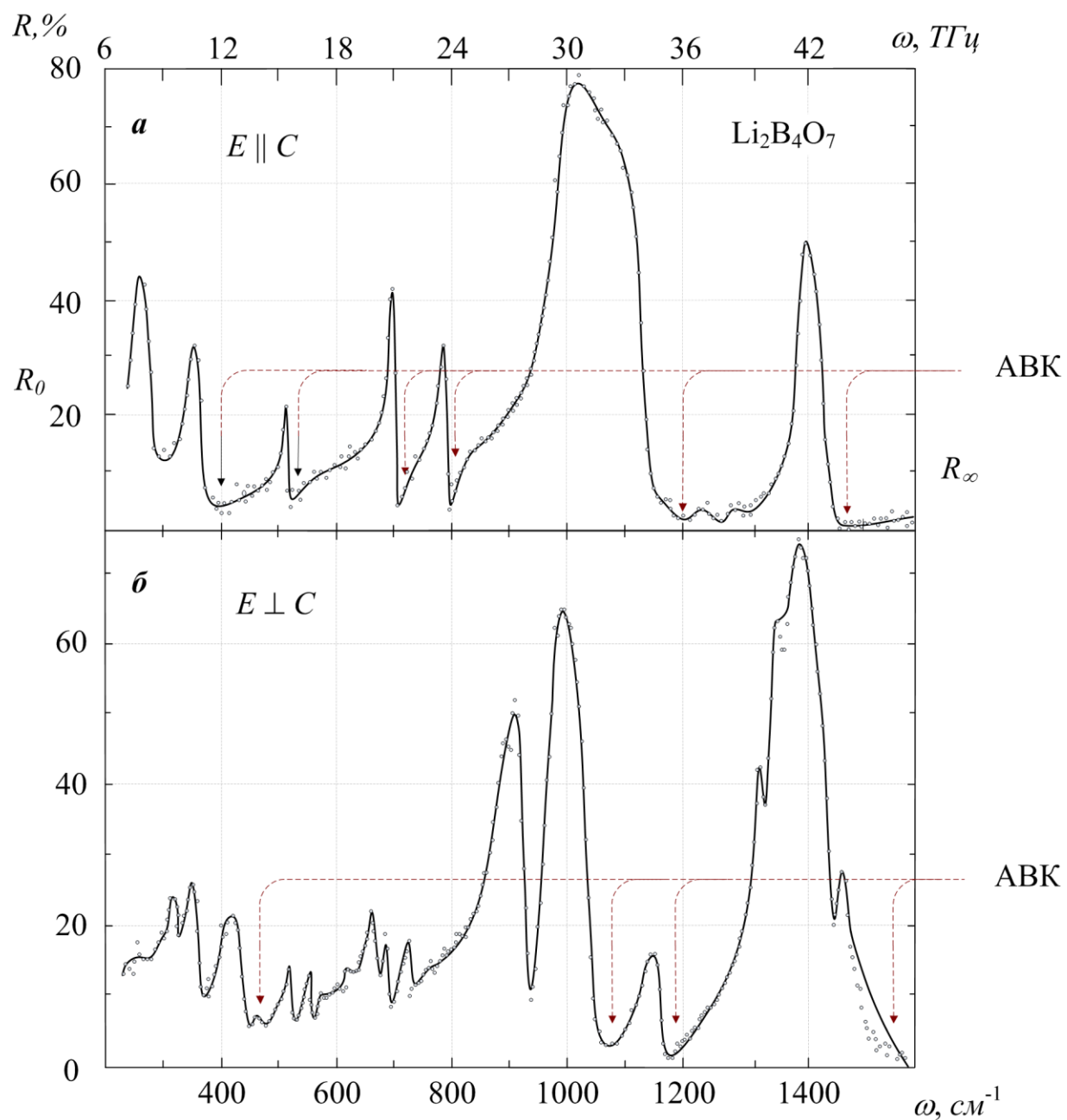
## РОЗДІЛ 4. ТЕРАГЕРЦОВІ АНОМАЛІЇ ЗА МЕЖАМИ ОБЛАСТІ ВІД'ЄМНОЇ ДІЕЛЕКТРИЧНОЇ ПРОНИКНОСТІ В КРИСТАЛАХ

Перспективи і саму можливість створення антивідбиваючих покриттів в усьому електромагнітному спектрі зараз пов'язують, головним чином, з синтезом метаматеріалів (див. п.1.4), які повинні мати від'ємний показник заломлення, в результаті наявності від'ємної діелектричної  $\epsilon$  і магнітної  $\mu$  проникностей. В терагерцовому діапазоні від'ємну діелектричну проникність можна виявити всередині інтервалу T-L розщеплення частот певних полярних фононів і ця область експериментально досліджується за допомогою стандартних методів ІЧ та КР-спектроскопії. В попередніх розділах викладені результати застосування стандартного методу ДА, що дозволив нам визначити реальні області від'ємної ДП за експериментальними даними спектрів КР та/або спектрів ІЧ відбиття. У цьому розділі наводяться результати наших досліджень мінімумів відбиття терагерцового (дальнього ІЧ) випромінювання, що спостерігаються експериментально поза межами T-L розщеплення частот в цілому ряді кристалічних середовищ, а також аналізуються фізичні умови для практично повного зникнення відбиття електромагнітної хвилі від поверхні розділу з кристалом.

### 4.1 Виявлення терагерцових каналів аномально низького відбиття в спектрах полярних кристалів

Традиційно, обробку спектрів відбиття кристалів у далекій інфрачервоній (зокрема в терагерцовій) області зазвичай обмежували аналізом параметрів полярних коливань, які утворюються поблизу піків відбиття і до наших досліджень [121 - 131] не звертали належної уваги на мінімуми відбиття. Тим більше, що ці провали у спектрі часто заховані шумами спектрального обладнання.

Однак, навіть поверхневий аналіз спектрів відбиття великого числа реальних кристалів в терагерцовому діапазоні дозволяє виявити специфічні вузькі смуги частот з аномально низьким коефіцієнтом відбиття  $R$ .



**Рис. 4.1.** Виявлення «провалів» майже до нульового відбиття (АВК) в експериментальних спектрах відбиття  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ . Точність дисперсійного аналізу (суцільні лінії) демонструє збіг з експериментальними даними (світлі кола).

Наприклад, на рис. 4.1 показані спектри відбиття кристала  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  [120] для обох напрямів поляризації падаючого випромінювання, яким відповідають типи симетрії  $A_1$  і  $E$  нормальних мод полярних коливань. У деяких областях, позначених на спектрах пунктирними стрілками на рис. 4.1, значення коефіцієнта відбиття падає до настільки малих значень, що межа розділу кристала стає практично нерозрізною для електромагнітного випромінювання цих частот. Вперше звернувши увагу на області аномально низького відбиття, ми можемо вказати, що зазначені смуги частот можуть досягати мінімуму з майже нульовим значенням  $R$ , що реально у багато разів менше, ніж відбиття по обидві сторони від резонансної області.

Дійсно, в експериментальному спектрі відбиття є області з  $R_{min} \sim 1 \div 2\%$  і менше, що на порядок нижче, ніж відбиття як на частотах радіодіапазону ( $R_0 > 20\%$ ), так і на більш високих частотах оптичного діапазону ( $R_\infty \geq 10\%$ ). Крім того, існування областей з аномально низьким відбиттям можна виявити і в багатьох інших кристалах (нітрид бору, ніобат, танталат, йодат літію і т.д.). Саме ці обставини послужили причиною введення нами терміна "антивідбиваючий канал" [121-125] для позначення областей аномально низького відбиття. У даному розділі будуть розглянуті фізичні умови виникнення антивідбиваючого каналу (АВК) та їх взаємозв'язок з спектроскопічними параметрами кристалічного середовища.

#### **4.2 Моделювання параметрів каналу аномально низького відбиття числовими методами**

Для розрахунку мінімумів відбиття ми застосовуємо стандартний метод дисперсійного аналізу (пункт 1.3), що заснований на використанні матеріальних параметрів кристалу. Спектроскопічні параметри всіх нормальних мод - фундаментальні частоти, сили осциляторів і константи згасання полярних коливань – визначаються за умови максимальної відповідності розрахункових кривих до експериментально спостережуваних спектрів відбиття. Цей метод цілком адекватно описує особливості досить складних спектрів відбиття, що ілюструє рис. 4.1, на якому розрахункові спектри відбиття тетраборату літію

зображені суцільними лініями, а експериментальні дані нанесені світлими колами [120]. Ці дані, так само як і результати інших досліджень [31, 34, 99] в кристалах з меншою кількістю полярних коливань, свідчать про надійність представленої вище методології дисперсійного аналізу спектрів ГЧ відбиття і тому саме цей метод закладений основу наших розрахунків.

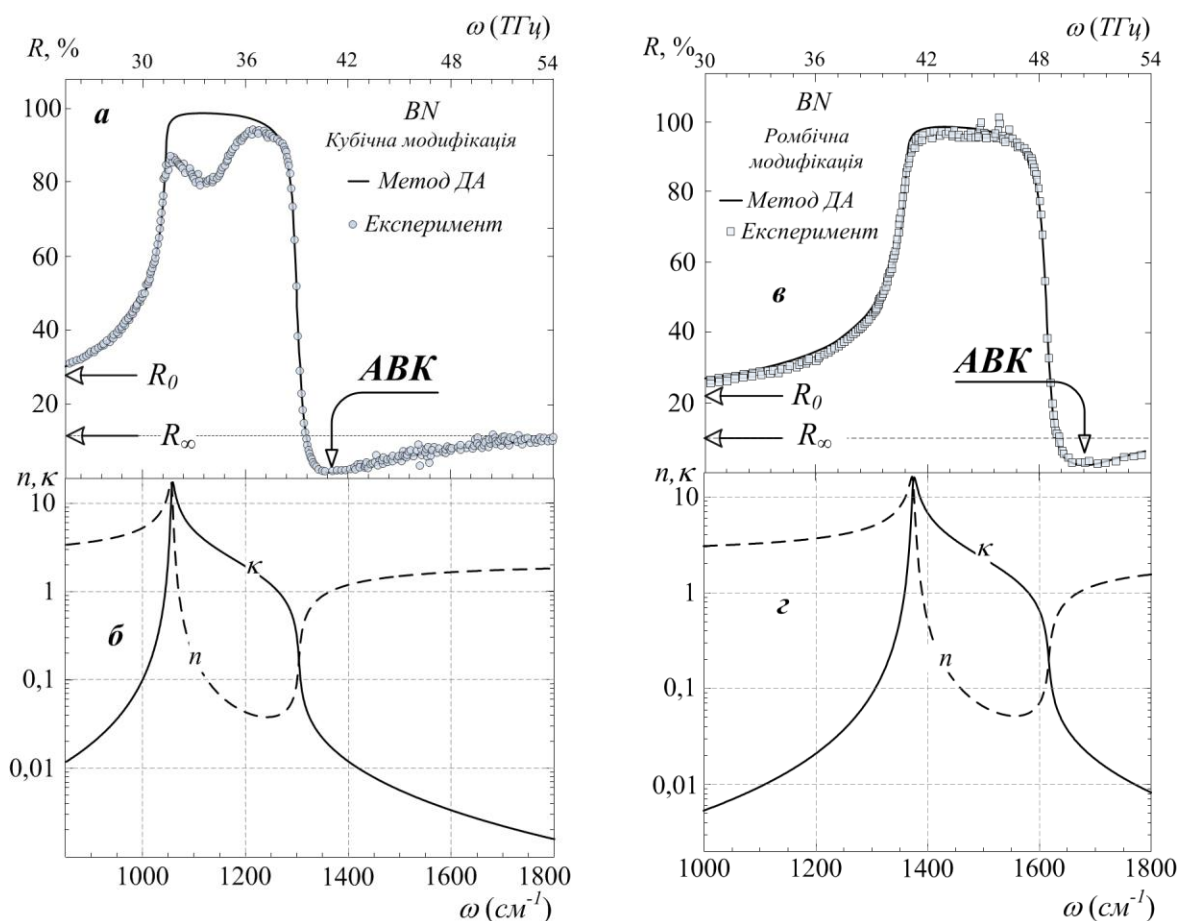
Разом з тим для моделювання фізичних умов виникнення АВК надалі ми використовуємо кристал нітриду бору, оскільки цей кристал має істотно більш простий спектр, ніж показаний на рис. 4.1. Крім того, нітрид бору, що вирощується в трьох кристалічних модифікаціях, був досить добре досліджений раніше в [31] методами ГЧ спектроскопії, і тому представляє додатковий інтерес для порівняльного аналізу при наших дослідженнях фізичних умов утворення АВК залежно від параметрів коливальних мод кристала.

На початку наших досліджень аналітичний аналіз мінімумів виразу для коефіцієнта відбиття (1.58) виявився надто складним навіть для методів комп'ютерної алгебри. Тому для дослідження зв'язку АВК з матеріальними параметрами середовища ми використовували методи числового моделювання.

За рахунок дисперсії  $\varepsilon'(\omega)$ , як показано у попередньому розділі та роботах [34, 99], утворюється область частот  $\omega_T < \omega < \omega_L$ , в середині якої діелектрична проникність може приймати від'ємні значення. Однак у цій області частот коефіцієнт відбиття зростає до  $\sim 100\%$ . Експериментальний спектр відбиття має характерну асиметричну форму з яскраво вираженим максимумом між  $\omega_T$  та  $\omega_L$  і з подальшим мінімумом вище резонансу, і це досить коректно описується стандартним методом дисперсійного аналізу. При зниженні згасання методом ДА отримуємо мінімум відбиття у вигляді характерного "провалу" в спектрі, який може досягати майже нульових значень, але він завжди розташовується на частоті  $\omega > \omega_L > \omega_T$ , тобто ця частота перебуває за межами інтервалу з від'ємною діелектричною проникністю.

**Таблиця 4.1.** Варіанти АВК для кубічної і ромбічної модифікацій кристалу нітриду бору.

Структура /параметр	Кубічна	Ромбічна
$R_0, \%$	20,5	21
$R_\infty, \%$	13,0	15
$S$	2,40	2,00
$\Gamma, \text{ТГц}$	0,16	0,21
$\omega_T, \text{ТГц}$	31,7	41,2
$\omega_L, \text{ТГц}$	39,2	48,5
$\omega_L - \omega_T, \text{ТГц}$	7,5	7,3
$\omega_{min}, \text{ТГц}$	40,9	50,1
$R_{min}, \%$	$8 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$



**Рис. 4.2.** Формування АВК в кубічній і ромбічній модифікаціях кристала нітриду бору: (а, в) спектри відбиття; (б, г) - залежності від частоти дійсної  $n(\omega)$  (пунктир) та уявної  $\kappa(\omega)$  (суцільна лінія) частин комплексного показника заломлення.

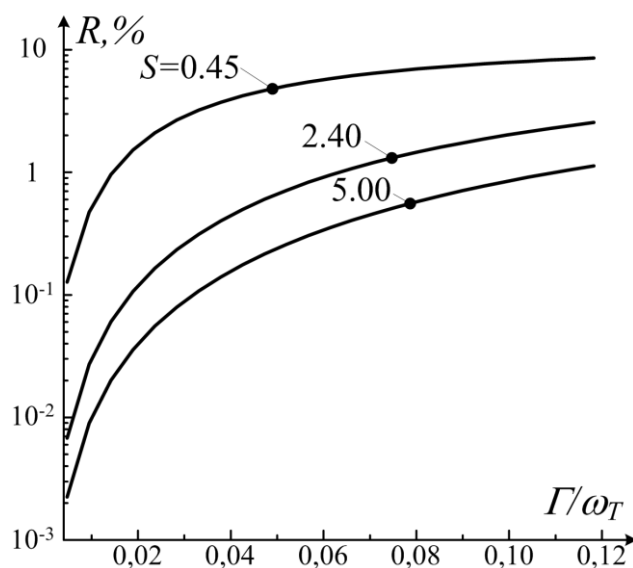
У спектрі відбиття кубічної модифікації нітриду бору [31] проявляється одне потужне коливання з  $\omega_T = 31,7$  ТГц, показане на рис. 4.2 (а). Відповідні йому дисперсійні криві дійсної та уявної частин комплексного показника заломлення представлені на рис. 4.2 (б). Кількісні дані щодо головних параметрів АВК для двох модифікацій VN наведені в таблиці 4.1. Канал зміщений на 1,7 ТГц, відносно частоти  $\omega_L$  і виходить за межі області від'ємної діелектричної проникності [34].

У мінімумі коефіцієнт відбиття падає до величини  $8 \cdot 10^{-3}\%$ , що на чотири порядки менше ніж відбиття в резонансній області (тобто в області T-L розщеплення), і на три порядки менше, ніж коефіцієнт відбиття на низьких і високих частотах ( $R_0$  і  $R_\infty$ , відповідно).

Дисперсійні залежності  $n(\omega)$  і  $\kappa(\omega)$  (рис. 4.2 (б)) показують, що зміна показника заломлення  $n$  в резонансній області (пунктирна лінія), досягає значень, менших за одиницю. Однак, поглинання (уявна частина показника заломлення або коефіцієнт поглинання) на цих же частотах досягає свого максимуму, і при  $\kappa > n$  перетворює біжучу електромагнітну хвилю в аперіодичний розподіл полів, що локалізовані поблизу поверхні розділу. Після області T–L розщеплення коефіцієнт відбиття і уявна частина  $\kappa$  починають різко падати, і на частотах АВК коефіцієнт поглинання досягає значень, при яких можливе поширення біжучих електромагнітних хвиль в кристалі. З цієї причини канал слід називати антивідбиваючим, а не поглинаючим, оскільки максимум поглинання не відповідає частоті каналу.

Спектр відбиття [31] і дисперсійні криві дійсної та уявної частини показника заломлення для ромбічної модифікації кристала VN показані на рис. 4.2 (в, г). АВК розташований в спектрі відбиття на частоті близько 50,1 ТГц (рис. 4.2 в). Згідно з нашими розрахунками, канал зміщений на 1,6 ТГц вище частоти поздовжніх коливань  $\omega_L = 48,5$  ТГц і знаходиться поза областю від'ємної діелектричної проникності. На рис. 4.2 (г) суцільною лінією показані дисперсійні залежності уявної частини показника заломлення, тобто

поглинання. Уявна частина досягає свого максимуму ( $\sim 10$ ) в середині Т–L розщеплення, а на частотах формування АВК зменшується на три порядки до 0,03.



**Рис. 4.3.** Мінімальне значення коефіцієнта відбиття як функція нормованого згасання до поперечних частот для різних значень сили осцилятора  $S$ , побудоване шляхом моделювання.

Формування АВК в ромбічній сингонії схоже на кубічну сингонію, проте сама резонансна область, і разом з нею АВК зміщується в бік високих частот. Головна відмінність полягає в тому, що мінімальне значення коефіцієнта відбиття  $R_{min}$  (табл. 4.1) для ромбічної сингонії в 2 рази більше, ніж в кубічній. Аналогічна ситуація із значеннями коефіцієнта відбиття поза резонансною областю  $R_0$  і  $R_\infty$ , вони відрізняються від таких же значень для кубічної сингонії на величину в межах 10% (табл. 4.1).

Причина цих відмінностей, як видно з таблиці 4.1, пов'язана з кількісними відмінностями таких параметрів фононних коливань, як: постійна згасання ( $\Gamma$ ), сила осцилятора ( $S$ ) і частоти Т–L розщеплення ( $\omega_L - \omega_T$ ) для цих двох модифікацій.

Один з основних параметрів АВК –  $R_{min}$  визначався шляхом чисельного пошуку мінімуму функції  $R(\omega)$  (1.58) при фіксованих значеннях сили осцилятора (тобто Т–L розщеплення) і змінних значеннях нормованого до поперечної частоти згасання полярних коливань.

Залежність мінімуму коефіцієнта відбиття від нормованого згасання при різних силах осцилятора, представлено сімейством кривих на рис. 4.3. Параметри розрахунку - частоти поперечних і поздовжніх коливань ( $\omega_T$ ,  $\omega_L$ ) та високочастотний тензор діелектричної проникності  $\varepsilon^\infty$  - відповідають кубічній сингонії кристалу BN (табл. 4.1).

Аномально низький коефіцієнт відбиття (рис. 4.3) повинен реалізовуватися в кристалах з найменшими значеннями згасання відповідного полярного коливання. Також істотний вплив на формування антивідбиваючого каналу має сила осцилятора і з її збільшенням, як бачимо, зменшується коефіцієнт відбиття. Для значень  $S = 5$ , можна отримати АВК при нормованому загасанні ( $\Gamma/\omega_T$ ) порядку 0,02, тобто істинна стала згасання  $\Gamma$  (для модельних параметрів кубічної сингонії) становитиме 0,63 ТГц (порядку  $20 \text{ см}^{-1}$ ).

### 4.3 Аналіз фізичних умов формування терагерцових каналів аномально низького відбиття

Загальновідоме та принципове обмеження чисельного моделювання полягає в неможливості отримання узагальнених фізичних залежностей, в даному випадку – параметрів АВК ( $R_{min}$ ,  $\omega_{min}$ ) у вигляді функції матеріальних або спектроскопічних параметрів довільного кристала. Процес чисельного моделювання зводиться до надмірно громіздких та відносно довготривалих (з точки зору витраченого часу) комп'ютерних обчислень, які треба проводити окремо для кожного конкретного набору параметрів кристалічного середовища. Спираючись на дисперсійний аналіз, в даному підрозділі описано запропонований нами метод [126 - 131] для отримання аналітичних залежностей основних характеристик АВК ( $R_{min}$  та  $\omega_{min}$ ) від матеріальних параметрів кристалу, що має одне коливання. Розглянуто дві моделі середовища:

- ідеальна, або випадок відсутності згасання ( $\Gamma = 0$ );
- реальна, або випадок не нульового згасання ( $\Gamma \neq 0$ ).

Також в підрозділі описана кореляція моделей між собою, межі їхнього застосування і відповідність розрахунків по моделям до попередніх результатів чисельного моделювання.

#### 4.3.1 Випадок відсутності згасання ( $\Gamma = 0$ )

В ідеальних випадках, коли ми нехтуємо згасанням полярних коливань, то коефіцієнт відбиття для нормального падіння (1.58) приймає наступний вигляд:

$$R = \left( \frac{n-1}{n+1} \right)^2. \quad (4.1)$$

В цьому випадку уявна частина показника заломлення дорівнює нулю ( $\kappa = 0$ ), а дійсну частину  $n$  легко виразити через матеріальні параметри кристалічного середовища:

$$n = \sqrt{\varepsilon^\infty + \frac{S \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2}}. \quad (4.2)$$

$\kappa = 0$

Підставивши (4.2) до (4.1), отримаємо досить простий вираз, придатний для аналітичного аналізу і дослідженням його на екстремуми знаходимо частоту мінімуму відбиття:

$$\omega_{\min} = \omega_T \sqrt{1 + \frac{S}{\varepsilon_\infty - 1}}. \quad (4.3)$$

Якщо до виразу (4.3) застосувати співвідношення Ліддейна-Сакса-Теллера (1.27), то легко отримати інші представлення частоти мінімуму:

$$\omega_{\min} = \omega_T \sqrt{1 + \frac{S}{\varepsilon_\infty - 1}} = \omega_T \sqrt{\frac{\varepsilon_0 - 1}{\varepsilon_\infty - 1}} = \omega_L \sqrt{\frac{1 - 1/\varepsilon_0}{1 - 1/\varepsilon_\infty}}. \quad (4.4)$$

Нагадаємо, що  $\omega_T$  і  $\omega_L$  - відповідно частоти поперечних та поздовжніх фононних коливань;  $S$  - сила осцилятора;  $\varepsilon_0$ ,  $\varepsilon_\infty$  - значення діелектричного тензора на низьких та високих частотах відповідно.

Наслідком рівняння (4.4) є нерівність  $\omega_{\min} > \omega_T > \omega_L$ . Це означає, що нульове відбиття буде спостерігатися на частотах за межами  $\Gamma$ -L розщеплення частот кристала, тобто за межами області від'ємних значень діелектричної

проникності [99-103]. Ці висновки підтверджуюся числовими даними для кубічної та ромбічної кристалічних модифікацій нітриду бора, а також змодельованим значенням частоти мінімуму, які були наведені вище у таблиці 4.1.

Звісно, цікавим було б визначити мінімальний коефіцієнт відбиття ( $R_{min}$ ) на частоті мінімуму ( $\omega_{min}$ ). Це легко зробити за допомогою підстановки (4.3) до (4.1), використовуючи перехідний вираз (4.2). В результаті отримаємо:

$$R_{min} = R(\omega_{min}) = 0. \quad (4.5)$$

Отже, в околі окремого полярного коливання довільного кристалічного середовища при відсутності фонованого згасання існує частота, на якій кристал зовсім не відбиває падаючого випромінювання. Однак це не означає, що середовище стає абсолютно невидимим, оскільки кристал залишається непрозорим. Тому ми не можемо нічого спрогнозувати про те, що знаходиться за кристалом. Навпаки, на частоті мінімуму, образно кажучи, середовище поводить себе як „чорна дірка”, тобто все електромагнітне випромінювання, що падає на кристал незворотно пропадає у ньому.

Оскільки наведені висновки суттєво базуються на використанні ідеалізованої моделі ( $\Gamma = 0$ ), то постає питання про параметри АВК у випадку не нульового згасання.

### 4.3.2 Випадок не нульового згасання ( $\Gamma \neq 0$ )

В реальному випадку ( $\Gamma \neq 0$ ) коефіцієнт відбиття описується класичним виразом (1.58).

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2}, \quad (4.6)$$

Аналіз (4.6) на екстремуми ми проводили методами комп'ютерної алгебри і представляли коефіцієнт відбиття  $R$  як функцію векторного аргументу, а саме двох змінних –  $n$ ,  $\kappa$  ( $R = f(n, \kappa)$ ). Розглянемо пошук екстремуму більш детально. Спочатку знайдемо стаціонарні точки функції (4.6) з наступної умови:

$$\frac{\partial R}{\partial n} = 0, \quad \frac{\partial R}{\partial \kappa} = 0. \quad (4.7)$$

Підставивши (4.6) до (4.7) та провівши певні спрощення, легко отримати наступну систему алгебраїчних рівнянь відносно змінних  $n, \kappa$ :

$$\begin{cases} n^2 - \kappa^2 = 1; \\ n\kappa = 0. \end{cases} \quad (4.8)$$

З другого рівняння системи (4.8) можна отримати два розв'язки:  $n = 0$  або  $\kappa = 0$ . Випадок  $\kappa = 0$  відповідає ідеалізованому випадку відсутності згасання, який було розглянуто вище у підпункті 4.2.1. Випадок  $n = 0$  відкидаємо як не фізичний, оскільки  $n$  - це дійсна частина показника заломлення, а вона не може досягати нульових значень. Тому для аналізу нам залишається перше рівняння системи (4.7).

Зв'язок дійсної  $n$  та уявної  $\kappa$  частин показника заломлення з дійсною  $\varepsilon'$  та уявною  $\varepsilon''$  частинами діелектричної проникності описується виразом:

$$n = \varepsilon'' \left[ 2 \sqrt{\varepsilon''^2 + \varepsilon'^2} - \varepsilon' \right]^{-1/2}, \quad \kappa = \frac{1}{2} \left[ 2 \sqrt{\varepsilon''^2 + \varepsilon'^2} - \varepsilon' \right]^{1/2}. \quad (4.9)$$

Шляхом прямої підстановки (4.9) до першого рівняння системи (4.8) легко отримати:

$$\varepsilon' = 1. \quad (4.10)$$

Співвідношення (4.10) має глибокий фізичний зміст, а саме – воно виражає рівність хвильових опорів ( $\rho = \sqrt{\varepsilon/\mu}$ , де  $\varepsilon, \mu$  - це діелектрична і магнітна проникності, відповідно) вакууму (повітря) і кристалічного середовища. В радіотехніці за допомогою такого узгодження досягають відсутності відбитої хвилі, що є досить логічним і для нашого випадку. Добре відомо, що хвильовий опір повітря (в системі СГС) дорівнює одиниці ( $\rho_{\text{нов}} = 1$ ), а для кристалічного середовища -  $\rho = \sqrt{\varepsilon/\mu}$ . Оскільки ми розглядаємо випадок не магнітного середовища, тобто  $\mu = 1$ , то скориставшись виразом (4.10) ми отримаємо умову узгодження хвильових опорів.

Повернемося до головної задачі цього пункту: отримання основних характеристик АВК ( $R_{\min}$  та  $\omega_{\min}$ ) для реального випадку не нульового згасання. Якщо підставити перший вираз співвідношення (2.3), що описує дійсну частину

діелектричної проникності для одноосциляторної моделі, до (4.10), то отримаємо наступне рівняння:

$$\varepsilon^\infty + \frac{S \omega_T^2 (\omega_T^2 - \omega^2)}{\omega_T^2 - \omega^2 + \omega^2 \Gamma^2} = 1. \quad (4.11)$$

Розв'язавши (4.11) відносно  $\omega$ , отримаємо вираз для частоти мінімуму:

$$\omega_{min} = \sqrt{\frac{\Gamma^2(1 - \varepsilon^\infty) + (S + 2\varepsilon^\infty - 2)\omega_T^2 + \sqrt{\Gamma^4(\varepsilon^\infty - 1)^2 - 2\Gamma^2(\varepsilon^\infty - 1)(S + 2\varepsilon^\infty - 2)\omega_T^2 + S^2\omega_T^4}}{2(\varepsilon^\infty - 1)}}. \quad (4.12)$$

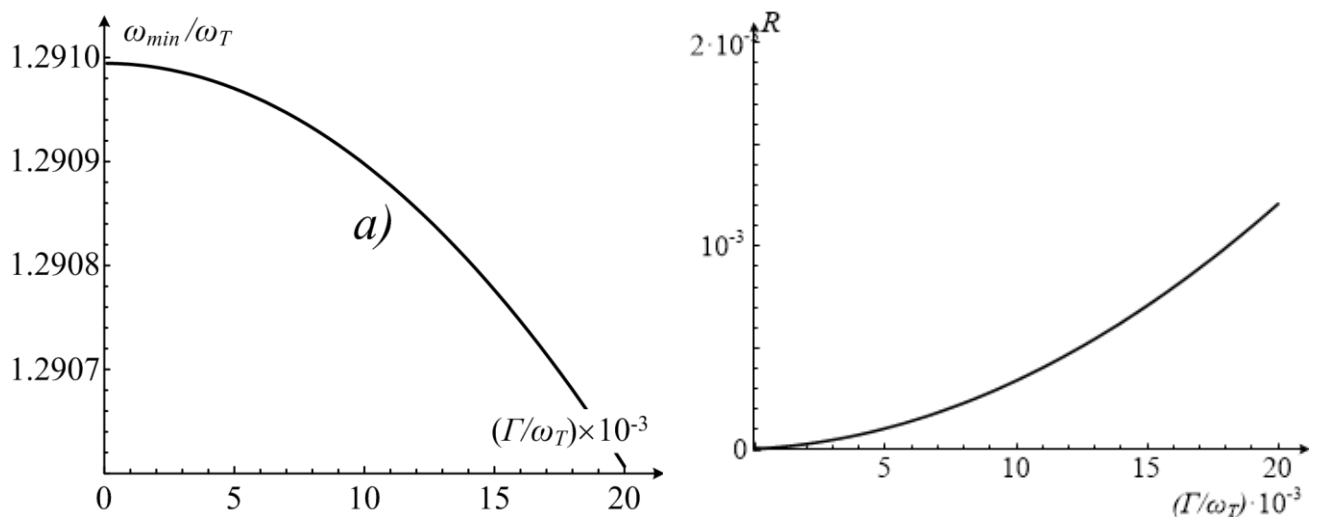
Шляхом прямої підстановки (4.12) до (1.58), аналогічно до попереднього пункту, знаходимо мінімальне значення для коефіцієнту відбиття:

$$R_{min} = \frac{\Gamma(\varepsilon^\infty - 1)\omega_{min} - D}{\Gamma(\varepsilon^\infty - 1)\omega_{min} + D}, \quad (4.13)$$

де

$$D = \sqrt{2}(\omega_{min}^2 - \omega_T^2) \sqrt{\frac{\Gamma^2(2 - \varepsilon^\infty)\varepsilon^\infty + S^2\omega_T^2 - S(\varepsilon^\infty - 1)(\Gamma^2 + \omega_{min}^2 - \omega_T^2)}{\Gamma^2}} - 1.$$

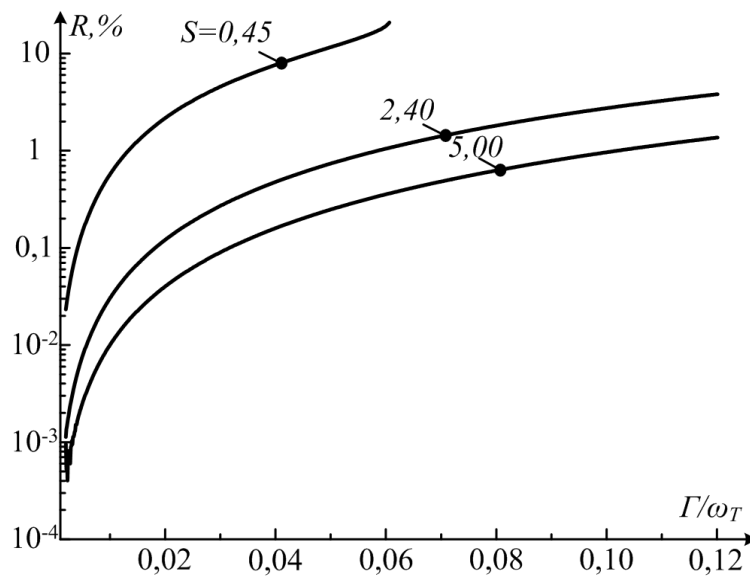
В цьому випадку мінімальне значення коефіцієнту відбиття не є нульовим, а має скінченне значення, хоча і дуже мале.



**Рис. 4.4.** Залежність частоти мінімуму (а) та мінімального значення коефіцієнту відбиття (б) від нормованого на частоту поперечних коливань  $\omega_T$  згасання  $(\Gamma/\omega_T)$ .

На рис. 4.4 (а) зображено залежність частоти мінімуму від фонованого згасання, обидві величини нормовані на частоту поперечних коливань  $\omega_T$ . При

збільшенні згасання частота каналу зсувається в бік низьких частот, проте, вона завжди є більшою за частоту поздовжніх коливань  $\omega_L$  і сам канал знаходиться поза областю від'ємної діелектричної проникності, яка, в свою чергу, супроводжується суттєвим поглинанням. Рис. 4.4 (б) описує поведінку мінімального значення коефіцієнту відбиття від нормованого згасання. За допомогою простих математичних перетворень легко переконатися, що якщо в (4.12) спрямувати сталу згасання до нуля ( $\Gamma \rightarrow 0$ ), то отримаємо вираз (4.4).



**Рис. 4.5.** Мінімальне значення коефіцієнту відбиття як функція нормованого до поперечних частот згасання для різних значень сили осцилятора  $S$ , побудоване за формулою (4.13).

Рис. 4.5, на основі виразу (4.13), ілюструє залежність мінімального значення коефіцієнту відбиття як функції нормованого до поперечних частот згасання для різних значень сили осцилятора  $S$ . Поведінка кривих на рис. 4.5 є схожою до наших попередніх результатів, що отримані шляхом моделювання (рис. 4.3). Ці аналогії підтверджують вірність припущень щодо впливу сили осцилятора і сталої згасання на мінімальне значення коефіцієнту відбиття ( $R_{min}$ ), проте, варто зауважити, що криві на рис. 4.5 є більш точними, оскільки вони побудовані за допомогою аналітичного виразу (4.13).

### 4.3.3 Порівняння моделей та межі їх застосування

В таблиці 4.2 наведено характеристики АВК двох кристалічних модифікацій нітриду бору (кубічної та ромбічної), які були розраховані за допомогою трьох різних методів: метод моделювання, ідеальний випадок відсутності згасання (4.3), (4.4) та реальний випадок не нульового згасання (4.12), (4.13). З розрахунків добре видно, що для невеликих значень сталої згасання  $\Gamma$  (таблиця 4.1 або [31]) співвідношення (4.4) та (4.12), які описують частоту мінімуму, дають кількісно однакові результати. Отже, при малих згасаннях на практиці можна користуватися виразом (4.4), що є математично простішим. З таблиці 4.2 також видно, що метод моделювання добре підтверджує, виведену нами аналітику.

Таким чином, формування антивідбиваючого каналу, тобто виникнення областей з надзвичайно низьким відбиттям електромагнітних хвиль у терагерцовому діапазоні є характерною особливістю будь-якого кристалічного середовища, що має хоча б одне яскраво виражене полярне коливання з низьким згасанням фонона. Різке падіння потужності відбитої електромагнітної хвилі від границі розділу з кристалом спостерігається на цілком певній частоті  $\omega_{min} > \omega_L > \omega_T$  і пов'язане з резонансною взаємодією випромінювання з полярними коливаннями кристала.

**Таблиця 4.2.** Характеристики АВК кубічної та ромбічної модифікації нітриду бора для ідеального, реального і випадку моделювання.

Структура	Кубічна		Ромбічна	
	$R_{min}$ %	$\omega_{min}$	$R_{min}$ %	$\omega_{min}$
Характеристики АВК				
Метод моделювання	$8,00 \cdot 10^{-3}$	1364,55 ( $см^{-1}$ ) 40,94 (ТГц)	$1,80 \cdot 10^{-2}$	1669,34 ( $см^{-1}$ ) 50,08 (ТГц)
Ідеальний вип. ( $\Gamma = 0$ )	0	1364,58 ( $см^{-1}$ ) 40,94 (ТГц)	0	1669,39 ( $см^{-1}$ ) 50,08 (ТГц)
Реальний вип. ( $\Gamma \neq 0$ )	$7,89 \cdot 10^{-3}$	1364,55 ( $см^{-1}$ ) 40,94 (ТГц)	$1,79 \cdot 10^{-2}$	1669,35 ( $см^{-1}$ ) 50,08 (ТГц)

Мінімальне відбиття може зменшуватися на кілька порядків у порівнянні з нерезонансними областями, практично до повного зникнення відображень ( $R$

$<0,01\%$ ). Головною особливістю нульового відбиття є зсув частоти АВК вгору відносно Т-Л частот за межі області існування від'ємної діелектричної проникності. Також показано, що в області АВК коефіцієнт екстинції різко падає, що дозволяє поширення біжучих електромагнітних хвиль, здатних переносити енергію вглиб кристала.

#### 4.4 Частотна ширина АВК

Для спрощення розглянемо випадок відсутності згасання ( $\Gamma=0$ ). Коефіцієнт відбиття для нормального падіння, а також дійсна та уявна частини показника заломлення в цьому випадку описуються співвідношеннями (4.14) та (4.15):

$$R = \left( \frac{n-1}{n+1} \right)^2. \quad (4.14)$$

$$n = \sqrt{\varepsilon^\infty + \frac{S \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2}}. \quad (4.15)$$

$$\kappa = 0$$

Шириною АВК ми назвали діапазон частот в якому коефіцієнт відбиття менший певного граничного значення  $R_{lim}$ . Ці твердження призводять до нерівності:

$$\frac{(n-1)^2}{(n+1)^2} < R_{lim}, \quad (4.16)$$

Шляхом не складних математичних перетворень легко показати, що нерівність (4.16) задовольняється для частот  $\omega \in [\omega_l; \omega_r]$ , які мають вигляд:

$$\omega_{r,l} = \omega_T \sqrt{\frac{\sqrt{R_{lim} \pm 1}^4 - \varepsilon^\infty + S \cdot 1 - R_{lim}^2}{\sqrt{R_{lim} \pm 1}^4 - \varepsilon^\infty \cdot 1 - R_{lim}^2}}, \quad (4.17)$$

або

$$\omega_{r,l} = \omega_T \sqrt{\frac{\sqrt{R_{lim} \pm 1}^4 - \varepsilon_0 \cdot 1 - R_{lim}^2}{\sqrt{R_{lim} \pm 1}^4 - \varepsilon^\infty \cdot 1 - R_{lim}^2}} \quad (4.18)$$

Вираз  $\Delta\omega = \omega_r - \omega_l$  визначає значення частотної ширини АВК.

#### 4.5 Перспективи застосування АВК[131]

Сьогодні існує багато альтернативних, на перший погляд, джерел енергії: атомні, гідро, вітрові електростанції тощо. Проте, всі вони працюють за одним принципом – крутять турбіну, яка обертає рамку зі струмом і, за рахунок ефекту Фарадея, ми отримуємо електричну енергію. Принципово новим підходом для отримання електричної енергії є сонячна енергетика. Принцип її роботи полягає в генеруванні електронно-діркових пар при падінні сонячного випромінювання на поверхню напівпровідника (внутрішній фотоефект). Перевагами сонячної енергетики є загальнодоступність і невичерпність джерела та теоретична безпека для навколишнього середовища, хоча останнє є спірним питанням. Велика кількість сонячних елементів на планеті може змінити її альбедо (відбиваючу поверхню Землі), що потягне за собою зміну клімату на планеті; також при виготовленні сонячного модулю в атмосферу потрапляють не бажані залишки виробництва. До недоліків можна віднести наступне:

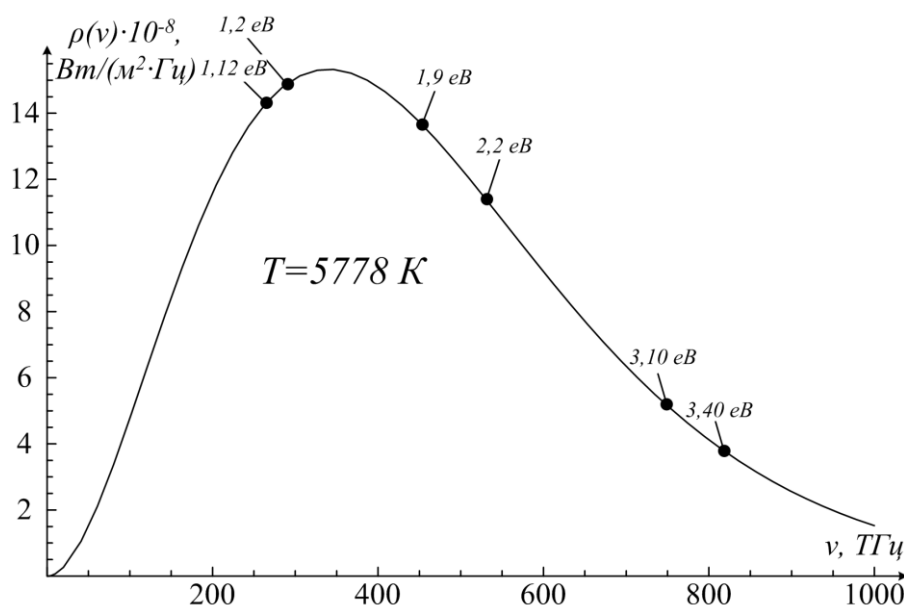
- залежність від погоди і часу доби, як наслідок необхідність акумуляції енергії;
- висока вартість конструкції;
- необхідність періодичної очистки поверхні, що відбиває, від пилу;
- невисокий ККД (9 – 24 %);
- нагрівання атмосфери над електростанцією.

Відносно невелике значення коефіцієнта корисної дії пов'язане з наступним:

- відбиттям сонячного випромінювання від поверхні перетворювача;
- проходженням частини випромінювання через ФЕП без поглинання в ньому;
- розсіюванням на теплових коливаннях ґратки надлишкової енергії фотонів;
- внутрішнім опором перетворювача;

На рис. 4.6 зображено спектральну густину потужності абсолютно чорного тіла для ефективної температури Сонця, а також позначені частоти, які

відповідають енергії заборонених зон кремнію. Видно, що максимум сонячного випромінювання припадає на частоти 250 – 400 ТГц. В цей діапазон потрапляють ширини заборонених зон 1,12 eV, 1,2 eV, і 1,9eV.



**Рис. 4.6.** Спектральна густина випромінювання абсолютно чорного тіла для температури Сонця.

Ефективна температура Сонця становить  $T=5778$  К, а його радіус становить  $R_c=6,95 \cdot 10^8$  м, відповідно до загальновідомого закону Стефана – Больцмана [30], повна потужність, що випромінюється поверхнею Сонця обчислюється за допомогою виразу:  $W = 4\pi R_c^2 \sigma T^4$ . Вважаючи, що Сонце випромінює в усіх напрямках ізотропно, знаходимо сонячну постійну  $C = 1375 \frac{\text{Вт}}{\text{м}^2}$ , яка рівна потоку енергії випромінювання через одиницю поверхні сфери, радіус якої дорівнює середній відстані від Сонця до Землі  $R_{c3}=1,49 \cdot 10^{11}$  м. В свою чергу  $C$  - це та сонячна потужність, яка падає на 1 квадратний метр земної поверхні, якщо не враховувати втрати в атмосфері. Проте, саме втрати в атмосфері є однією з основних причин зменшення сонячної потужності як мінімум на  $375 \text{ Вт/м}^2$ , а в залежності в погодних умов та географічного розташування – і більше. Наприклад, питома потужність сонячного випромінювання в Європі в дуже хмарну погоду, навіть вдень, може

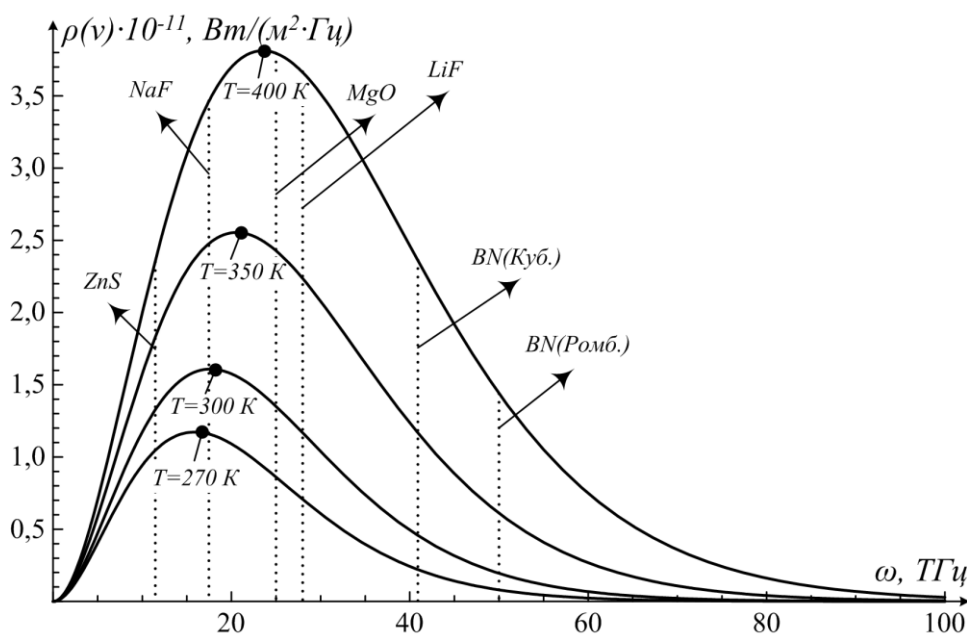
бути менше  $100 \text{ Вт/м}^2$ . За допомогою найбільш поширених промислово вироблених сонячних батарей можна перетворити цю енергію в електрику з ефективністю 9 - 24%. З вище сказаного випливає, що сонячна енергетика має ряд проблем.

Для порівняння з сонячною потужністю, аналогічним чином розрахуємо питому потужність теплового випромінювання в наступному діапазоні температур:  $T_1=270 \text{ К}$ ,  $T_2=300 \text{ К}$ ,  $T_3=350 \text{ К}$ ,  $T_4=400 \text{ К}$  (таблиця 4.3).

**Таблиця 4.3.** Питома потужність теплового випромінювання для різних температур [130].

$T \text{ (K)}$	270	300	350	400
$R_e \text{ (Вт/м}^2\text{)}$	301	459	850	1451

З таблиці 4.3 видно, що питома потужність теплового випромінювання, яке оточує нас кожного дня є досить суттєвою і, в певних випадках ( $T=400 \text{ К}$  – температура трохи більша за температуру кипіння води), більшою за питому потужність сонячного випромінювання, яке потрапляє на поверхню Землі.



**Рис. 4.7.** Спектральна густина випромінювання абсолютно чорного тіла для типових змін температури повітря на Землі.

Залишається основне питання: як перетворити цю потужність в електричну? Напівпровідникові матеріали типа Si в цьому випадку не підходять, оскільки ширини їхніх заборонених зон лежать у більш високочастотному (відносно теплового) діапазоні.

Нами було розраховано спектральну густину випромінювання абсолютно чорного тіла для типових температур ( $T_1=270$  К,  $T_2=300$  К,  $T_3=350$  К,  $T_4=400$  К) зміни погоди на Землі (рис. 4.7). На рис. 4.7 пунктирними лініями позначено частоти, на яких знаходиться АВК для деяких одноосциляторних кристалів, а в таблиці 4.4 наведено їхні кількісні характеристики.

**Таблиця 4.4.** Частоти АВК для деяких кристалічних середовищ, що мають одне коливання.

<i>Кристал</i>	LiF	NaF	MgO	ZnS	BN(Куб.)	BN(Ромб.)
$\omega_{min}(ТГц)$	27,28	17,35	25,49	11,10	40,90	50,10

Частоти мінімуму були пораховані відповідно до співвідношення (4.3), а матеріальні параметри кристалів взяті з роботи [132]. Отже, на максимумах теплового випромінювання утворюється АВК деяких кристалічних середовищ, що робить їх перспективними для використання у якості матеріалу, який зможе зробити пряме перетворення теплової енергії в електричну. Проте, частотна ширина каналу є вузькою, тому доцільно визначити її точні значення, та розрахувати питому потужність, що падає на кристалічне середовище в цьому діапазоні частот.

Аналогічно до виведення закону Стефана – Больцмана [30, §63], можна розрахувати питому потужність теплового випромінювання, що потрапляє в АВК. Тільки в цьому випадку інтегрування слід проводити не в усьому інтервалі частот від 0 до  $\infty$ , а в діапазоні, що відповідає ширині АВК, тобто від  $\omega_l$  до  $\omega_r$ .

$$R_e = \int_{\omega_l}^{\omega_r} \rho_{\nu, T} d\nu = \frac{2\pi h}{c^2} \int_{\omega_l}^{\omega_r} \frac{\nu^3 d\nu}{e^{h\nu/kT} - 1}, \quad (4.19)$$

Якщо в (4.25) зробити заміну змінних  $x=h\nu/kT$ , то обрахунок питомої потужності зводиться до наступного:

$$R_e = \frac{2\pi k^4 T^4}{c^2 h^3} \int_{x_l}^{x_r} \frac{x^3 dx}{e^x + 1}, \text{ де } x_{l,r} = \frac{h\omega_{l,r}}{kT} \quad (4.20)$$

Слід зауважити, що інтеграл (4.26) обраховується за допомогою числових методів для конкретного середовища.

Для лужно-галоїдних одноосциляторних кристалів, параметри яких взяті з [132], а також кубічної та ромбічної сингоній BN в таблиці 4.5 розраховано частоту АВК ( $\omega_{min}$ ), частоти при яких значення коефіцієнту відбиття менше 1% ( $\omega_l$  і  $\omega_r$ ), ширину АВК ( $\Delta\omega$ ), а також питому потужність теплового випромінювання ( $R_e$ ) абсолютно чорного тіла, яка виділяється в частотному діапазоні  $\Delta\omega$  при різних значеннях температури  $T$ .

Геометричний зміст питомої потужності – це площа під кривою спектральної густини теплового випромінювання (рис. 4.6 і 4.7). Отже, для того щоб в кристал проходило максимальна кількість теплової енергії частота мінімуму АВК ( $\omega_{min}$ ) повинна лежати в діапазоні від 15 ТГц до 30 ТГц, а ширина каналу ( $\Delta\omega$ ) має бути якомога більшою. До кристалічних середовищ, що задовольняють ці умови можна віднести LiF та NaF, які мають ширину каналу порядку 15 ТГц та частоти мінімуму 27,27 ТГц і 17,35 ТГц відповідно (таблиця 4.5). За рахунок таких параметрів питома потужність, що падає на кристал в області АВК, коливається в діапазоні від 85 Вт/м<sup>2</sup> до 485 Вт/м<sup>2</sup>. Частота мінімуму АВК кристалу MgO становить 25,49 ТГц, що також припадає на максимум теплового випромінювання. Проте, за рахунок вузького каналу (4,65 ТГц) питома потужність зменшується, майже, в три рази. Варто нагадати, що втрати на відбиття в області АВК відсутні, саме тому подібні кристалічні середовища можуть бути перспективними в якості матеріалів, для перетворення теплової енергії в електричну.

**Таблиця 4.5.** Питома потужність, що падає на кристал в області АВК для різних значень температури.

$T$ (К)	$R_e$ (Вт/м <sup>2</sup> )	Параметри кристалу	$T$ (К)	$R_e$ (Вт/м <sup>2</sup> )	Параметри кристалу
<b>LiF</b>			<b>RbCl</b>		
270	84,95	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 27,27	270	6,08	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 6,27
300	144,76	$\omega_l$ (ПГЦ) = 23,82	300	6,66	$\omega_l$ (ПГЦ) = 5,78
350	288,84	$\omega_r$ (ПГЦ) = 39,32	350	7,47	$\omega_r$ (ПГЦ) = 7,64
400	486,17	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 15,51	400	8,11	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,86
<b>NaF</b>			<b>RbBr</b>		
270	136,93	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 17,35	270	1,84	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 4,57
300	200,12	$\omega_l$ (ПГЦ) = 14,87	300	1,96	$\omega_l$ (ПГЦ) = 4,25
350	326,99	$\omega_r$ (ПГЦ) = 29,99	350	2,11	$\omega_r$ (ПГЦ) = 5,42
400	472,77	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 15,12	400	2,23	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,17
<b>MgO</b>			<b>RbI</b>		
270	36,10	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 25,49	270	0,67	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 3,77
300	57,24	$\omega_l$ (ПГЦ) = 24,01	300	0,71	$\omega_l$ (ПГЦ) = 3,55
350	103,09	$\omega_r$ (ПГЦ) = 28,66	350	0,74	$\omega_r$ (ПГЦ) = 4,28
400	159,44	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 4,65	400	0,78	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 0,73
<b>NaCl</b>			<b>CsCl</b>		
270	20,68	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 9,74	270	3,42	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 5,85
300	24,27	$\omega_l$ (ПГЦ) = 8,95	300	3,71	$\omega_l$ (ПГЦ) = 5,46
350	29,62	$\omega_r$ (ПГЦ) = 11,87	350	4,10	$\omega_r$ (ПГЦ) = 6,74
400	34,20	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 2,92	400	4,41	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,28
<b>NaBr</b>			<b>CsBr</b>		
270	6,60	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 7,38	270	0,63	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 3,83
300	7,36	$\omega_l$ (ПГЦ) = 6,92	300	0,66	$\omega_l$ (ПГЦ) = 3,62
350	8,42	$\omega_r$ (ПГЦ) = 8,46	350	0,70	$\omega_r$ (ПГЦ) = 4,28
400	9,28	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,54	400	0,73	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 0,66
<b>KCl</b>			<b>ZnS</b>		
270	14,53	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 7,97	270	4,22	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 11,10
300	16,50	$\omega_l$ (ПГЦ) = 7,28	300	5,02	$\omega_l$ (ПГЦ) = 10,91
350	19,33	$\omega_r$ (ПГЦ) = 10,02	350	6,22	$\omega_r$ (ПГЦ) = 11,45
400	21,68	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 2,74	400	7,27	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 0,54
<b>KBr</b>			<b>BN (Кубічна)</b>		
270	4,19	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 5,87	270	4,22	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 40,94
300	4,55	$\omega_l$ (ПГЦ) = 5,46	300	8,76	$\omega_l$ (ПГЦ) = 40,24
350	5,04	$\omega_r$ (ПГЦ) = 6,96	350	22,42	$\omega_r$ (ПГЦ) = 42,21
400	5,43	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,50	400	45,27	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,97
<b>KI</b>			<b>BN (Ромбічна)</b>		
270	1,21	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 4,71	270	1,29	$\omega_{min}$ (ПГЦ) = 50,08
300	1,28	$\omega_l$ (ПГЦ) = 4,47	300	3,13	$\omega_l$ (ПГЦ) = 49,49
350	1,38	$\omega_r$ (ПГЦ) = 5,23	350	9,86	$\omega_r$ (ПГЦ) = 51,15
400	1,46	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 0,76	400	23,32	$\Delta\omega$ (ПГЦ) = 1,66

#### **Висновки до розділу 4**

1. Вперше вказано на області аномально низького відбиття в терагерцових спектрах кристалів поза межами частот від'ємної діелектричної проникності, з'ясована фізична природа їх утворення та визначені основні кількісні параметри для низки модельних кристалів.

2. Показано, що АВК є основним каналом для променевого теплообміну кристала із зовнішнім середовищем. Головною особливістю є те, що основна частина інтенсивності падаючого випромінювання поглинається кристалом на частотах вищих за обидві частоти власних коливань, як поперечних, так поздовжніх.

3. Відсутність втрат на відбиття в області АВК дозволяє в перспективі використовувати певні кристали як середовища для перетворення теплової енергії низькотемпературних джерел випромінювання в електричну.

## Висновки

В результаті виконання роботи шляхом теоретичного моделювання з аналізом існуючих експериментальних даних досліджені фундаментальні особливості аномальної дисперсії та відбиття при резонансній взаємодії терагерцового випромінювання з полярними коливаннями кристалу, а також динаміка впливу фононного згасання на формування областей з від'ємною діелектричною проникністю (ДП) та виникнення частотних каналів з аномально низьким відбиттям електромагнітних хвиль. Зокрема:

1. Наведено три еквівалентні форми критерію існування областей з від'ємною ДП. Апробація критерію проведена шляхом аналізу експериментальних спектрів далекого інфрачервоного (терагерцового) відбиття, а у випадках нецентросиметричних кристалів - спектрів комбінаційного розсіяння світла, в тому числі для смуги частот  $1 \div 10$  ТГц ( $30 \div 300$   $\text{cm}^{-1}$ ). Вперше встановлено, що область від'ємної ДП в межах смуги «залишкових променів» можлива лише за умови, якщо стала фононного згасання  $\Gamma$  менша ніж  $T-L$  розщеплення відповідних фундаментальних частот.

2. Встановлено визначальний вплив згасання полярних коливань на формування від'ємної ДП на основі узагальнених методів дослідження терагерцових аномалій, зокрема з використанням фазових портретів комплексних функцій ДП та показника заломлення. Вперше отримано аналітичні вирази, що враховують фононне згасання, для кількісного визначення смуги частот з від'ємною ДП. Кореляція теоретичних співвідношень з експериментом доведена шляхом аналізу спектроскопічних даних відбиття терагерцового випромінювання для 7 дипольно-активних коливань в трьох кристалічних модифікаціях кристала нітриду бора, а також для 4 коливань кристала  $\text{MnF}_2$  при зміні температури від 5К до 300К.

3. Запропоновано методику класифікації полярних коливних мод за ступенем демпфування в кристалах, яку використано для аналізу загалом 34 відомих фундаментальних мод, що вже встановлені раніше методами спектроскопії комбінаційного розсіяння світла в кристалах  $\text{LiNbO}_3$ ,  $\text{LiTaO}_3$  та

$\text{LiIO}_3$ . Показано, що розповсюдження терагерцових хвиль в цих кристалах може супроводжуватися не тільки різким зростанням анізотропії діелектричних властивостей, а й знакозмінним характером для окремих компонент поляризації хвилі при аномальній дисперсії.

4. Встановлено, що в області аномальної дисперсії досліджених кристалів, особливо при від'ємних значеннях ДП, електромагнітна хвиля втрачає можливість для розповсюдження, аперіодично згасає за рахунок великого коефіцієнта екстинкції і виявляється локалізованою в приповерхневій області кристала, що менша за довжину хвилі зовнішнього випромінювання. В більшості кристалів колапс електромагнітної хвилі має місце у смузі частот, що перевищує область від'ємних значень ДП.

5. Визначено частотні області з аномально низькими коефіцієнтами відбиття терагерцового випромінювання. На основі двох запропонованих моделей, які доповнюють одна іншу, для резонансної взаємодії терагерцових хвиль з полярними коливаннями в кристалічних середовищах показано, що коефіцієнти відбиття  $R \leq 0,01\%$  у цілковитій відповідності до експериментальних спектрів відбиття в кількох кристалах.

### Перелік посилань

1. Lorentz H.A. The theory of electrons and the propagation of light. / H.A. Lorentz // Nobel Lecture. - December 11, 1902. - (from Nobel Lectures, Physics 1901-1921, Elsevier Publishing Company, Amsterdam, 1967)
2. Lorentz H.A. The theory of electrons and its applications to the phenomena of light and radiant heat / H.A. Lorentz, B.G. Teubner // New York : G.E. Stechert. - 1916. – P. 364 (є переклад рос. Лорентц Г.А. Теория электронов и ее применение к явлениям света и теплового излучения / Г.А. Лорентц // пер. с англ. Под ред. Т.П.Кравца, изд. 2-е, из-во тех.-теор. Литературы. - 1953. – С.471).
3. Lorentz H.A. Ueber die Beziehung zwischen der Fortpflanzung des Lichtes und der Körperdichte / H.A. Lorentz // Ann. Phys. – 1880. – Vol. 9. - P. 641-665.
4. Борн М. Основы оптики / М. Борн, Э. Вольф. – М.: Наука, 1973. – 719с.
5. Peiponen K.E. Dispersion, complex analysis and optical spectroscopy: classical theory / K.E. Peiponen, E.M. Vartiainen, T. Asakura. - Springer Sci. & Bus. Media, 1999. – 130p.
6. Агранович В. М. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов / В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург - М.: Наука, 1979 - 432с.
7. Борн М. Динамическая теория кристаллических решеток / М. Борн, Х. Кунь - М.: Изд-во иностранной лит., 1958. - 485 с.
8. Barker A.S. Response function in the theory of Raman scattering by vibrational and polariton modes in dielectric crystals / A.S. Barker, R. Loudon // Rev. Mod. Phys. – 1972. – Vol. 44. – No. 1. - P. 18-47.
9. Кондиленко И.И. Абсолютный энергетический выход КР света / И.И.Кондиленко, П.А.Коротков. // Опт. и спектр. – 1964. – Том. 17. - № 3.
10. Loudon R. Raman effect in crystals / R. Loudon // - Adv. Phys. – 1964 – Vol. 13 - P. 423-471.
11. Korotkov P.A. Dependence of band intensity in pre-resonance Raman scattering from molecules / P.A. Korotkov. // J. Raman Spectr. – 2001. – Vol. 32. – P. 607-611.
12. Фелинский Г.С. Исследование природы диэлектрических и электрооптических свойств кристаллов и Ti -диффузного микроволнового света / Г.С. Фелинский. // Канд. диссерт. – Киев, КНУ имени Тараса Шевченко – 1984. – 195 с.
13. Пуле А. Колебательные спектры и симметрия кристаллов / А. Пуле, Ж.-П. Матье - М.: Мир, 1973. – 437 с.

14. Obukhovskii V. V. Spontaneous Raman scattering by polaritons. I. General theory; II. The case of CdS and LiNbO<sub>3</sub> crystals / V. V. Obukhovskii, H. Ponath, V. L. Strizhevskii // *Phys. Stat. Sol.(b)*. – 1970. - Vol. 41. - No. 2. - P. 837-853.
15. Поливанов Ю.Н. Комбинационное рассеяние света на поляритонах / Ю.Н. Поливанов // *УФН*. – 1978. – Том. 126. - №2. - С. 185-232.
16. Strizhevskii V. L. Peculiarities of Raman scattering by polaritons and polar optical phonons in anisotropic crystals / V. L. Strizhevskii, Yu. N. Yashkir. // *Phys. Stat. Sol.(b)*. – 1974. - Vol. 61. - No. 1. - P. 353-364.
17. Hartwig C.M. Phonon coupling and angular dispersion in biaxial NaNO<sub>2</sub> / C.M. Hartwig and others // *Phys. Rev.* – 1970. – Vol. B3. - No. 6. – P. 2078-2082.
18. Otaguro W.S. Phonons, polaritons, and oblique phonons in LiJO<sub>3</sub> by Raman scattering and infrared reflection / W.S. Otaguroa and others // *Appl. Phys. Lett.* – 1971. – Vol. 18. - No. 4. - P. 499-501.
19. Клименко В.А. Угловая дисперсия оптических фононов кристаллах LiNbO<sub>3</sub> / В.А. Клименко и другие // *УФЖ*. – 1981. – Том. 26 - № 9. - С. 1557-1559.
20. Клименко В.А. Исследование угловой дисперсии частот оптических фононов в спектре КР ниобата лития. / В.А. Клименко, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // *Оптика и спектроскопия* – 1983. - Том. 54. - № 3. - С. 476-481.
21. Кондиленко И.И. Диэлектрические свойства нецентросимметричных кристаллов и их связь с комбинационным рассеянием света / И.И. Кондиленко, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // *Квантовая электроника*. – 1981. - №21. - С. 49-64.
22. Кондиленко И.И. Дисперсионный анализ диэлектрической проницаемости нецентросимметричных кристаллов по спектрам КР / И.И. Кондиленко, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // *Оптика и спектроскопия*. – 1982. - Том. 52. - № 3. - С. 564-567.
23. Белоусов М.В. Восстановление инфракрасного спектра диэлектрической проницаемости из спектров комбинационного рассеяния / М.В. Белоусов // *ФТТ*. – 1973. – Том. 15. - № 4. – С. 1206-1211.
24. Абдуллоев Н.С. Исследование дисперсии диэлектрической проницаемости кристалла ниобата лития методом комбинационного рассеяния света / Н.С. Абдуллоев, В.С. Горелик, Б.С. Умаров // *Препринт ФИАН*. – 1982. - № 15. - С. 25.
25. Коротков П.А. Исследование диэлектрических в нелинейных свойств нецентросимметричных кристаллов методами КР света. / П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // *В сб.: Спектроскопия молекул и кристаллов, Киев, "Наукова думка"*. – 1983. - С. 56-65.
26. Пантелл Р. Основы квантовой электроники / Р. Пантелл, Г. Путхоф - М.: Мир, 1972. - 384 с.

27. Эренфест П. Относительность. Кванты. Статистика. (сб. статей) / П. Эренфест. - М.: Наука, 1972. – 360 с.
28. Kurosawa T. Polarization waves in solids / T. Kurosawa // J. Phys. Soc. Jap. – 1961. – Vol. 16 - № 9. – P. 1288-1308.
29. Lyddane R. On the polar vibrations of alkali halides / R. Lyddane, R.G. Sachs, E. Teller. // Phys. Rev. – 1941. – Vol. 59 – P. 673-676.
30. Ландау Л.Д. Теоретическая физика: Учеб. пособ.: Для вузов. В 10 т. Т.V. Статистическая физика / Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц – 5-е. изд., стереот. – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2002. – 616 с.
31. Ордин С.В. Нормальные решеточные колебания и кристаллическая структура анизотропных модификаций нитрида бора / С.В. Ордин, Б.Н. Шарупин, М.И. Федоров // Физика и техника полупроводников. – 1998. – Том. 32. - №9. – С. 1033-1042.
32. Schleck R. Elastic and magnetic effects on the infrared phonon spectra of  $MnF_2$  / R. Schleck and others // Phys. Rev. – 2010. – Vol. B 82.
33. Коротков П.А. Аналіз спектрів комбінаційного розсіяння кристала ніобату літію та аморфних кварцових волокон / П.А. Коротков, Г.С. Фелінський // Вісник Київського університету. Сер.: фіз.-мат. науки. – 2007. – № 2. – С. 237-244.
34. Коротков П.А. Дослідження області від'ємної діелектричної проникності середовищ без центру інверсії / П.А. Коротков, Г.С. Фелінський // Вісник Київського університету. Сер.: фіз.-мат. науки. – 2008. – № 2. – С. 162-171.
35. Barker A.S. Dielectric properties and optical phonons in  $LiNbO_3$  / A.S. Barker, R. Loudon. // Phys. Rev. – 1967. - Vol. 158. - No. 2. - P. 433-445.
36. Pendry J.B. Negative refraction makes a perfect lens / J.B. Pendry // Phys. Rev. Lett. – 2000. – Vol. 85. - No. 18. - P. 3966-3969.
37. Веселаго В.Г. Электродинамика веществ с одновременно отрицательными значениями  $\epsilon$  и  $\mu$  / В.Г. Веселаго // УФН. – 1967. – Том. 92. - №3. – С. 517-523. [Veselago V.G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of  $\epsilon$  and  $\mu$  / V.G. Veselago // Sov. Phys. Usp. – 1968. – No. 10 - 509-514.]
38. Веселаго В.Г. Перенос энергии, импульса и массы при распространении электромагнитной волны в среде с отрицательным преломлением / В.Г. Веселаго // УФН. – 2009. – Том. 179. - № 6. – С. 689-694. [Veselago V.G. Energy momentum and mass transfer by an electromagnetic wave in a negative refraction medium / V.G. Veselago // Physics – Uspekhi. – 2009. – Vol. 52. – No. 6.]
39. Агранович В.М. Пространственная дисперсия и отрицательное преломление света / В.М. Агранович, Ю.Н. Гартштейн // УФН. – 2006. – Том. 176. - № 10. – С. 1051-1068.

- [Agranovich V.M. Spatial dispersion and negative refraction of light / V.M. Agranovich, Yu.N. Gartstein // *Physics – Uspekhi*. – 2006. – Vol. 49. – No. 10. – P. 1051-1068.]
40. Pendry J.B. Negative refraction / J.B. Pendry // *Contemp. Phys.* – 2004. - Vol. 45 - No. 3 - P.191-202.
  41. Fang N. Sub-diffraction-limited optical imaging with a silver superlens / N. Fang and others // *Science*. – 2005. - Vol. 308. - No. 5721. - P. 534-537.
  42. Jacob Z. Optical hyperlens: Far-field imaging beyond the diffraction limit / Z. Jacob, L.V. Alekseyev, E. Narimanov // *Opt. Express*. – 2006. - Vol. 14 - No. 18. - P. 8247-8256.
  43. Liu Z. Far-field optical hyperlens magnifying sub-diffraction-limited objects / Z. Liu and others // *Science*. – 2007. - Vol. 315. - No. 5819. - P. 1686.
  44. Luo C.Y. Subwavelength imaging in photonic crystals / C.Y. Luo and others // *Phys. Rev.* – 2003. – Vol. B 68. - P. 045115.
  45. Shalaev V.M. Optical negative-index metamaterials / V.M. Shalaev // *Nature Photon.* – 2007. – Vol. 1 – P. 41-48.
  46. Zhang X. Superlenses to overcome the diffraction limit / X. Zhang, Z. Liu // *Nat. Mater.* – 2008. - Vol. 7. - P. 435-441.
  47. Choi M. A flexible metamaterial with negative refractive index at visible wavelength / M. Choi and others // *Curr. Appl. Phys.* – 2013. - Vol. 13. – No. 8. - P. 1723–1727.
  48. Lee S. Immersed transparent microsphere magnifying sub-diffraction-limited objects / S. Lee and others // *Appl. Opt.* – 2013. - Vol. 52. – No. 30. - P. 7265-7270.
  49. Xu F. Superlens imaging with a surface plasmon polariton cavity in imaging space / F. Xu and others // *Opt. Lett.* – 2013. - Vol. 38. – No. 19. - P. 3819-3822.
  50. Zhang S. Near-field Moiré effect with dielectric–metal–dielectric sandwich structure / S.Zhang and others // *J. Nanophotonics* – 2013. - Vol. 7. - No. 1 – P. 073080.
  51. Huang L. Three-dimensional optical holography using a plasmonic metasurface / L. Huang and others // *Nat. Commun.* – 2013. – Vol. 4. – P. 2808.
  52. Ornes S. Metamaterials / S. Ornes // *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*. – 2013. - Vol. 110. - No. 21. - P. 8319.
  53. Pendry J.B. Controlling electromagnetic fields / J.B. Pendry, D. Schurig, D.R. Smith // *Science*. – 2006. – Vol. 312. – P. 1780–1782.
  54. Leonhardt U. Optical conformal mapping / U. Leonhardt // *Science*. – 2006. – Vol. 312. – P. 1777–1780.
  55. Schurig D. Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies / D. Schurig and others // *Science*. – 2006. - Vol. 314. - No. 5801. - P. 977-980.

56. Hawkes A.M. A microwave metamaterial with integrated power harvesting functionality / A.M. Hawkes, A.R. Katko, S.A. Cummer // *Appl. Phys. Lett.* – 2013. – Vol. 103. – P. 163901.
57. Liu N. Three-dimensional photonic metamaterials at optical frequencies / N. Liu and others // *Nat. Mater.* – 2008. – Vol. 7. – No. 31.
58. Soukoulis C.M. Past achievements and future challenges in the development of three-dimensional photonic metamaterials / C.M. Soukoulis, M. Wegener // *Nature Photon.* – 2011. – Vol. 5 - P. 523-530.
59. Falco A.D. Flexible metamaterials at visible wavelengths / A.D. Falco, M. Ploschner, T.F. Krauss. // *New J. Phys.* – 2010 - Vol. 12. No. 113006. – P. 7.
60. Liu R. Broadband Ground-Plane Cloak / R. Liu and others // *Science.* – 2009. – Vol. 323. - P. 366-369.
61. Bergmair I. Single and multilayer metamaterials fabricated by nanoimprint lithography / I. Bergmair and others // *Nanotechnology.* – 2011. – Vol. 22. – No. 325301.
62. Moser H.O. 3D THz metamaterials from micro/nanomanufacturing / H.O. Moser, C. Rockstuhl // *Laser Photon. Rev.* – 2012. – Vol. 6 - No. 2. - P. 219-244.
63. Кильдишев А.В. Трансформационная оптика и метаматериалы / А.В. Кильдишев, В.М. Шалаев // *УФН.* – 2011. – Том. 181. - № 1. - С. 59-70.
64. Wan X. A broadband transformation-optics metasurface lens / X. Wan and others // *Appl. Phys. Lett.* – 2014. – Vol. 104. – No. 151601. - doi: 10.1063/1.4870809
65. Walia S. Flexible metasurfaces and metamaterials: A review of materials and fabrication processes at micro- and nano-scales / S. Walia and others // *Appl. Phys. Rev.* – 2015. – Vol. 2 – No. 011303. - doi: 10.1063/1.4913751
66. Smith D., Pendry J., Wiltshire M.. Metamaterials and negative refractive index / D. Smith, J. Pendry, M. Wiltshire // *Science* – 2004. - Vol. 305. - No. 5685 - P. 788-792.
67. Pendry J. B. Manipulating the near field with metamaterials / J. B. Pendry // *Optics & Photonics News.* – September, 2004. - P. 1-6.
68. Pendry J. B. Mimicking Surface Plasmons with Structured Surfaces / J.B. Pendry, L. Martin-Moreno, F.J. Garcia-Vidal // *Science.* - 2004 - Vol. 305. - P. 847-848.
69. Chen H.T. Experimental demonstration of frequency-agile terahertz metamaterials / H.T. Chen and others // *Nature Photon.* – 2008. – Vol. 2. - P. 295-298.
70. Chen W. C. Single-layer terahertz metamaterials with bulk optical constants / W. C. Chen and others // *Phys. Rev.* – 2012. – Vol. B 85. – No. 035112.
71. Choi M. A terahertz metamaterial with unnaturally high refractive index / M. Choi and others // *Nature.* – 2011. – Vol. 470. - P. 369-373.

72. Dicken M. J. Frequency tunable near-infrared metamaterials based on VO<sub>2</sub> phase transition / M.J. Dicken and others // *Opt. Express.* - 2009. - Vol. 17 – No. 20. - P. 18330-18339.
73. Ekmekci E. Frequency tunable terahertz metamaterials using broadside coupled split-ring resonators / E. Ekmekci and others // *Phys. Rev.* – 2011. – Vol. B 83. – No. 193103.
74. Fan K.B. Stand-up magnetic metamaterials at terahertz frequencies / K.B. Fan and others // *Opt. Express.* – 2011. – Vol. 19. – No. 12619.
75. Iyer S. Effective tunability and realistic estimates of group index in plasmonic metamaterials exhibiting electromagnetically induced transparency / S. Iyer, S. Popov, A.T. Friberg // *Appl. Opt.* – 2011. – Vol. 50 – No. 3958.
76. McPhedran R.C. Metamaterials and metaoptics / R.C. McPhedran and others // *NPG Asia Mater.* – 2011. – Vol. 3. – No. 100.
77. O'Hara J.F. Thin-film sensing with planar terahertz metamaterials: sensitivity and limitations / J.F. O'Hara and others // *Opt. Exp.* – 2008. - Vol. 16. – No. 3. - P. 1786-1795.
78. Chen T. Metamaterials application in sensing / T. Chen, S. Li, H. Sun // *Sensors (Basel)* – 2012. – Vol. 12. - No. 3. - P. 2742-2765.
79. Kim J. Electrical control of optical plasmon resonance with graphene / J. Kim and others // *Nano Lett.* – 2012. - Vol. 12. - No. 11. – P. 5598-5602.
80. Li J. Flexible terahertz metamaterials for dual-axis strain sensing / J. Li and others // *Opt. Lett.* – 2013. - Vol. 38. – No. 12. - P. 2104-2106.
81. Melik R. Flexible metamaterials for wireless strain sensing / R. Melik and others // *Appl. Phys. Lett.* – 2009. – Vol. 95 – No. 181105.
82. Ng B. Lattice resonances in antenna arrays for liquid sensing in the terahertz regime / B. Ng and others // *Opt. Express.* – 2011. - Vol. 19. – No. 15. - P. 14653-14661.
83. Tao H. Metamaterials on paper as a sensing platform / H. Tao and others // *Adv. Mater.* – 2011. – Vol. 23. - No. 28. - P. 3197–3201.
84. Xu X. Flexible visible–infrared metamaterials and their applications in highly sensitive chemical and biological sensing / X. Xu and others // *Nano Lett.* – 2011. - Vol. 11. - No. 8. – P. 3232–3238.
85. Chang Y.C. Electrically and mechanically tunable photonic metamaterials / Y.C. Chang and others // *Proc. SPIE.* – 2011. – Vol. 8120. – No. - 81201M.
86. Ou J.Y. Reconfigurable photonic metamaterials / J.Y. Ou and others // *Nano Lett.* – 2011. - Vol. 11. - No. 5. – P. 2142-2144.
87. Ou J.Y. An electromechanically reconfigurable plasmonic metamaterial operating in the near-infrared / J.Y. Ou and others // *Nat. Nanotechnol.* – 2013. - Vol. 8. - P. 252–255.

88. Yen T.J. Tunable plasmonic wires at terahertz frequencies / T.J. Yen and others // Proc. SPIE. – 2004. – Vol. 5512 - P. 100-106.
89. Yu C.L. Stretchable photonic crystal cavity with wide frequency tunability / C.L. Yu and others // Nano Lett. – 2013. - Vol. 13. - No. 1. – P. 248-252.
90. Jiang Z.H. Conformal dual-band near-perfectly absorbing mid-infrared metamaterial coating / Z. H. Jiang and others // ACS Nano. – 2011. - Vol. 5. - No. 6. – P, 4641-4647.
91. Shchegolkov D.Y. Perfect subwavelength fishnetlike metamaterial-based film terahertz absorbers / D.Y. Shchegolkov and others // Phys. Rev. – 2010. – Vol. B 82. – No. 205117.
92. Watts C. M. Metamaterial electromagnetic wave absorbers / C.M. Watts, X.Liu, W.J. Padilla // Adv. Mater. – 2012. - Vol. 24. - No. 23. – P. OP98-OP120.
93. Wen Q.-Y. Perfect metamaterial absorbers in microwave and terahertz bands / Q.-Y. Wen and others // in Metamaterial – 2012. - edited by D. X.-Y. Jiang (InTech).
94. Ramahi O.M. Metamaterial particles for electromagnetic energy harvesting / O.M. Ramahi and others // Appl. Phys. Lett. – 2012. – Vol. 101. – No. 173903.
95. Hawkes A. M. A microwave metamaterial with integrated power harvesting functionality / A.M. Hawkes, A.R. Katko, S.A. Cummer // Appl. Phys. Lett. – 2013. – Vol. 103. – No. 163901.
96. Felinskyi S.G. Criterion for existence of the negative dielectric reality in crystals / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // American Journal of Modern Physics. – 2014. - Vol. 3. - No. 5. - P. 195-201. - doi: 10.11648/j.ajmp.20140305.11.
97. Фелинский С.Г. Критерий существования отрицательной диэлектрической проницаемости в кристаллах / С.Г. Фелинский, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // Наносистемы, наноматериалы, нанотехнологии (Nanosystems, Nanomaterials, Nanotechnologies). – 2014. – Том. 12. - № 3. - С. 587-595.
98. Фелінський С. Г. Критерій існування області від'ємної діелектричної проникності в оптичних монокристалах / С.Г. Фелинский, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // IV міжн. наук.-практ. конф. «Матеріали електронної техніки та сучасні інформаційні технології» (МЕТІТ-4) Кременчук, 19-21 травня, 2010. - Україна, Кременчук, 2010. - С. 82-84. - ISBN 978-96-8931-70-3.
99. Фелінський С. Г. Критерій існування області від'ємної діелектричної проникності на частотах полярних коливань в кристалах / С.Г. Фелинский, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // Вісник Київського університету. Сер.: фіз.-мат. науки. – 2010. – № 1. – С. 191-196.
100. Felinskyi S.G. Criterion for the appearance of negative dielectric areas in crystals / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // Proc. 10<sup>th</sup> Int. Conf. Laser & Fiber-Optical Modeling (LFNM 2010) Sevastopol, 12-14 September, 2010. – Ukraine, Sevastopol, 2010. - P. 58-59.

101. Felinskyi S.G. Spectroscopic criterion for existence the negative permittivity / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // XX Int. School-Seminar of Galyna Puchkovska "Spectroscopy Molecules & Crystals" Beregove, 20-27 September, 2011. - Ukraine, Crimea, Beregove, 2011. - P. 95.
102. Фелінський С.Г. Від'ємна діелектрична проникність в анізотропних модифікаціях нітриду бора / С.Г. Фелинский, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // Нові технології. – 2010. – № 2. – С. 51-57.
103. Фелінський С.Г. Формування від'ємної діелектричної проникності та загасання полярних фононів в оптичних кристалах / С.Г. Фелинский, П.А. Коротков, Г.С. Фелинский // І міжн. наук.-практ. конф. „Напівпровідн. матеріали, інформ. технології та фотовольтаїка” (НМІТФ-1) Кременчук, 5-7 травня, 2011. - Україна, Кременчук, 2011. - С. 115-116. - ISSN 2222-4386.
104. Felinskyi S.G. Dumping effect on the forming of negative dielectric properties in crystal / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // 12th Int. Conf. on Laser and Fiber-Optical Networks Modeling (LFNM'2013) Sudak, 11-13 September, 2013. - Ukraine, Sudak, 2013. - P. 20-22.
105. Felinskyi S.G. Classification of crystal polar vibrations by the damping degree / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // XII Int. Young Scientists' Conf. on Appl. Phys. (ICAP 2012) Kyiv, 23-25 May, 2012. – Ukraine, Kyiv, 2012. - P. 38-39.
106. Felinskyi S.G. Polar vibration classification as sources of negative dielectric properties in crystals / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // XXI Int. School-Seminar of Galyna Puchkovska "Spectroscopy Molecules & Crystals" Beregove, 22-29 September, 2013. – Ukraine, Crimea, Beregove, 2013. – P. 114.
107. Felinskyi S.G. Analysis of Negative Dielectric Permittivity in Boron Nitride / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // X Int. Young Scientists' Conference on Applied Physics (ICAP 2010) Kyiv, 16-19 June, 2010. – Ukraine, Kyiv, 2010. - P. 28-29.
108. Felinskyi S.G. Terahertz properties and the negative dielectric regions in boron nitride / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // Proc. 2<sup>nd</sup> IEEE Int. Workshop on THz Radiation: Basic Research & Applications (TERA 2010) Sevastopol, 12-14 September, 2010. – Ukraine, Sevastopol, 2010. – P. 265-266.
109. Felinskyi S.G. Negative dielectric properties of MnF<sub>2</sub> crystal / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // Proc. IX Int. Conf. "Electronics and Applied Physics" Kyiv, 23-26 October, 2013. - Ukraine, Kyiv, 2013. - P. 200-201.

110. Felinskyi S.G. Wave propagation collapse in the polariton negative dielectric band of crystal / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // IEEE 35th Int. Conf. on Electronics and Nanotechnology (ELNANO) Kyiv, 21-24 April, 2015. - Ukraine, Kyiv, 2015. - P. 211-213.
111. Свешников А.Г. Теория функций комплексной переменной. / А.Г. Свешников, А.Н. Тихонов // М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1970. – 304с.
112. Лаврентьев М.А. Методы теории функций комплексного переменного. / М.А. Лаврентьев, Б.В. Шабат // 5-е изд., испр. – М.: Наука. Гл. ред. физ.-мат. лит., 1987. – 688с.
113. Андронов А.А. Теория колебаний. / А.А. Андронов, А.А. Витт, С.Э. Хайкин // – М.: Наука, 1981.
114. Felinskyi S.G. Negative dielectric permittivity of nonmagnetic crystals in the terahertz waveband / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // Semiconductor Physics, Quantum Electronics & Optoelectronics. – 2012. - Vol. 15. – No. 1. - P. 83-88.
115. Felinskyi S.G. Negative dielectric properties of  $\text{LiIO}_3$  near Raman-active phonon vibrations / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // Proc. VI Int. Conf. “Electronics and Applied Physics” Kyiv, 20-23 October, 2010. - Ukraine, Kyiv, 2010. - P. 7-8.
116. Felinskyi S.G. Anisotropic effect and negative dielectric permittivity in crystals / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // 11-th Int. Conf. Laser & Fiber-Optical Networks Modeling (LFNM 2011) Kharkov, 5-8 September, 2011. – Ukraine, Kharkov, 2011. - P. 1-3.
117. Фелінський С.Г. Вплив анізотропії на формування від’ємної діелектричної проникності в кристалах / С.Г. Фелінський, П.А. Коротков, Г.С. Фелінський // Зб. тез V Української наукової конференції з фізики напівпровідників (УНКФН-5) Ужгород, 9-15 Жовтня, 2011. – Україна, Ужгород, 2011. - С. 274.
118. Felinskyi S.G. Formation features of negative dielectric properties in anisotropic crystals / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // Proc. VII Int. Conf. “Electronics and Applied Physics” Kyiv, 19-22 October, 2011. - Ukraine, Kyiv, 2011. - P. 19-20.
119. Felinskyi S.G. Electromagnetic wave vanishing in the negative dielectric permittivity area / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // XIII Int. Young Scientists’ Conf. on Appl. Phys. (ICAP 2013) Kyiv, 12-15 June, 2013. – Ukraine, Kyiv, 2013. - P. 76.
120. Вдовин А. В. Колебательный спектр кристаллов  $\text{Li}_2\text{V}_4\text{O}_7$  / А. В. Вдовин и другие // Физика твердого тела. – 2001. – том 43, №9– с.1584-1589.
121. Фелінський С.Г. Терагерцові антивідбиваючі канали в кристалічних середовищах / С.Г. Фелінський, П.А. Коротков, Г.С. Фелінський // Конф. молодих вчених з фізики напівпровідників „Лашкарьовські читання - 2011” з міжн. участю Київ, 12-14 Квітня, 2011. – Україна, Київ, 2011. - С. 38-39.

122. Felinskyi S.G. Extremely low reflection of Terahertz radiation in the crystal BN / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // XI Int. Young Scientists' Conf on Appl. Phys. (ICAP 2011) Kyiv, 15-18, June, 2011. - Ukraine, Kyiv, 2011. - P. 17-18.
123. Felinskyi S.G. Terahertz Antireflection Channels in Crystals / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // 3d Int. Workshop on THz Radiation: Basic Research & Applications (TERA 2011) Kharkov, 4-5 September, 2011. - Ukraine, Kharkov, 2011. - P. 1-3.
124. Felinskyi S.G. Extremely low IR reflection bands in crystals / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // XX Int. School-Seminar of Galyna Puchkovska "Spectroscopy Molecules & Crystals" Beregove, 20-27 September, 2011. - Ukraine, Crimea, Beregove, 2011. - P. 96.
125. Фелінський С.Г. Антивідбиваючі канали у терагерцових спектрах кристалів / С.Г. Фелінський, Г.С. Фелінський // Зб. тез V Української наукової конференції з фізики напівпровідників (УНКФН-5) Ужгород, 9-15 Вересня, 2011. – Україна, Ужгород, 2011. - С. 345-346.
126. Felinskyi S.G. Antireflection frequencies in terahertz crystal spectra / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // Proc. VII Int. Conf. "Electronics and Applied Physics" Kyiv, 19-22 October, 2011. - Ukraine, Kyiv, 2011. - P. 17-18.
127. Фелінський С.Г. Аномальне зниження відбиття терагерцового випромінювання в кристалах / С.Г. Фелінський, Г.С. Фелінський // II Всеукраїнська конференція молодих вчених "Сучасне матеріалознавство: матеріали та технології" Київ, 16-18 Листопада, 2011. – Україна, Київ, Л2011. - С. 141.
128. Фелинский С.Г. Нулевое отражение электромагнитных волн терагерцового диапазона в кристаллах / С.Г. Фелинский, Г.С. Фелинский // Вестник Харьковского национального университета имени В.Н. Каразина. Серия "Радиофизика и электроника. – 2011. - выпуск 19. - № 983. - С. 102-106.
129. Фелінський С.Г. Кількісний аналіз ефекту нульового відбиття в кристалах / С.Г. Фелінський, П.А. Коротков, Г.С. Фелінський // Конф. молодих вчених з фізики напівпровідників „Лашкарьовські читання - 2012” з міжн. участю Київ, 3-5 Квітня, 2012. – Україна, Київ, 2012. - С. 50-52.
130. Felinskyi S.G. Zero reflection phenomenon in terahertz crystalline spectra / S.G. Felinskyi, G.S. Felinskyi // 6th Int. Conf. on Advanced Optoelectronics and Lasers (CAOL 2013) Sudak, 9-13 September, 2013. - Ukraine, Sudak, 2013. - P. 189-191.
131. Felinskyi S.G. Power density within anomalously low reflection channels in crystals for temperature range of 270-400K / S.G. Felinskyi, P.A. Korotkov, G.S. Felinskyi // Proc. VIII Int. Conf. "Electronics and Applied Physics" Kyiv, 24-27 October, 2012. - Ukraine, Kyiv, 2012. - P. 12-13.

132. Рейсленд Д. Физика фононов. / Д. Рейсленд // Москва. Мир. 1975. – 365 с.