

PACS numbers: 41.20.Jb, 42.70.Qs, 77.22.Ch, 78.20.Ci, 78.30.Hv, 78.67.Pt, 81.05.Xj

## Критерий существования отрицательной диэлектрической проницаемости в кристаллах

С. Г. Фелинский, П. А. Коротков, Г. С. Фелинский

*Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко,  
просп. Акад. Глушкова, 4<sup>з</sup>,  
03127 Киев, Украина*

Выполнен анализ физических условий возникновения отрицательных значений диэлектрической проницаемости (ДП) внутри  $T$ – $L$ -расщепления частот полярных колебаний в кристаллах. Установлен простой количественный критерий существования полосы отрицательной ДП в зависимости от степени демпфирования колебательных мод, представленный в трёх эквивалентных формах неравенств между фундаментальными параметрами кристалла и полярных колебаний. Продемонстрировано, что поляритонное поглощение существенно ограничивает возможности распространения волн в области отрицательной ДП и может приводить к коллапсу входящей волны.

Виконано аналіз фізичних умов виникнення від'ємних значень діелектричної проникності (ДП) всередині  $T$ – $L$ -розщеплення частот полярних коливань у кристалах. Встановлено простий кількісний критерій існування смуги від'ємної ДП залежно від ступеня демпфування коливних мод, представлений у трьох еквівалентних формах нерівностей між фундаментальними параметрами кристалу і полярних коливань. Продемонстровано, що поляритонне поглинання істотно обмежує можливості поширення хвиль в області від'ємної ДП і може призводити до колапсу вхідної хвилі.

The analysis of the physical conditions of negative dielectric permittivity (DP) values formation within the  $T$ – $L$  splitting of frequency vibrations for polar crystals is performed. A simple quantitative criterion for the existence of the negative DP band depending on the degree of damping of the vibrational modes is presented with three equivalent forms of inequalities between the fundamental parameters of the crystal and polar oscillations. As demonstrated, the polariton absorption significantly limits the ability of wave propagation for the negative DP range and may lead to the collapse of the incoming wave.

**Ключевые слова:** отрицательная диэлектрическая проницаемость, мета-

материалы, наногradientные диэлектрические покрытия, отражение волн.

(Получено 27 февраля 2014 г.)

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Внимание исследователей фундаментальных особенностей распространения электромагнитных волн в конденсированных средах сегодня концентрируется на областях аномальной дисперсии материалов, где диэлектрическая и/или магнитная проницаемости приобретают отрицательные значения. Повышенный интерес к отрицательным значениям материальных параметров вызван как удивительной электродинамикой таких «левосторонних» сред [1, 2], так и необыкновенными перспективами технических приложений, обещанных синтезом метаматериалов [3–5]. Следует отметить, что отрицательные значения диэлектрической проницаемости (ДП) за счёт аномальной дисперсии фиксировались многими специалистами в области колебательной спектроскопии кристаллов. Вместе с тем, анализу физических условий, в особенности влиянию затухания волн, приводящих к наличию или отсутствию отрицательной ДП внутри  $T$ – $L$ -расщепления частот полярных колебаний, ранее не уделялось должного внимания. В теории фотон-фононного взаимодействия [4], равно как и в оптике метаматериалов [3, 5], затухание волны считается вредным, но второстепенным фактором, который устраняется путём усиления световой волны. Такой подход, достаточно обоснованный в области прозрачности кристалла, оказывается неприменимым в условиях аномальной дисперсии, где мнимая часть ДП  $\epsilon''$  не только перестаёт быть пренебрежимо малой, а может значительно превышать действительную часть  $\epsilon'$ .

Формирование современных представлений о связи между спектроскопическими и материальными параметрами кристалла происходило в приближении отсутствия затухания фононов. За точку отсчёта количественной теории фотон-фононного взаимодействия можно принять соотношения Лиддейна–Сакса–Теллера (ЛСТ) [6]:

$$\frac{\omega_L^2}{\omega_T^2} = \frac{\epsilon_0}{\epsilon^\infty}, \quad (1)$$

где  $\omega_T$ ,  $\omega_L$  — частоты поперечных и продольных колебаний,  $\epsilon_0$ ,  $\epsilon^\infty$  — диэлектрические постоянные, равные предельным значениям на дисперсионной зависимости ДП  $\epsilon(\omega)$  соответственно при  $\omega \rightarrow 0$  и  $\omega \rightarrow \infty$ . Оставаясь в рамках идеального случая отсутствия затухания в кристалле, обобщение ЛСТ для  $N_k$  колебательных мод даёт соотношение Куросавы [7]:

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

которое описывает дисперсию  $k$ -ой компоненты диэлектрического тензора  $\varepsilon_k(\omega)$ . Именно (2) гарантирует наличие отрицательной ДП для произвольного полярного колебания кристалла в интервале частот  $\omega_{ik}^T < \omega < \omega_{ik}^L$ , то есть в области  $T$ - $L$ -расщепления, известной также как полоса остаточных лучей [8].

Последний вывод остаётся справедливым на практике только для колебаний с большой силой осциллятора и соответственно с большим  $T$ - $L$ -расщеплением фононных частот. В противном случае, с увеличением затухания фононов (что наблюдается с повышением температуры) область отрицательной ДП заметно сужается и может исчезать вообще.

Фононное затухание делает компоненты диэлектрического тензора комплексными функциями частоты  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon'(\omega) + i\varepsilon''(\omega)$ , а в рамках полуклассического приближения [9] их линейная часть имеет следующее представление:

$$\varepsilon_k(\omega) = \varepsilon'_k(\omega) + i\varepsilon''(\omega)_k = \varepsilon_k^\infty + \sum_{j=1}^{N_k} \frac{S_{jk} \omega_{jk}^2}{\omega_{jk}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_j}, \quad (3)$$

где  $S_{jk}$  — сила осциллятора  $j$ -ого колебания решётки,  $\Gamma_j$  — постоянная затухания. Восстановление параметров  $S_{jk}$ ,  $\omega_{jk}$  и  $\Gamma_j$  из спектроскопических измерений (дисперсионный анализ) фактически определяет вид функций  $\varepsilon'(\omega)$  и  $\varepsilon''(\omega)$  исследуемого кристалла, включая области аномальной дисперсии. Последующие результаты количественного анализа условий формирования областей с  $\varepsilon'(\omega) < 0$  и составляет предмет настоящего сообщения.

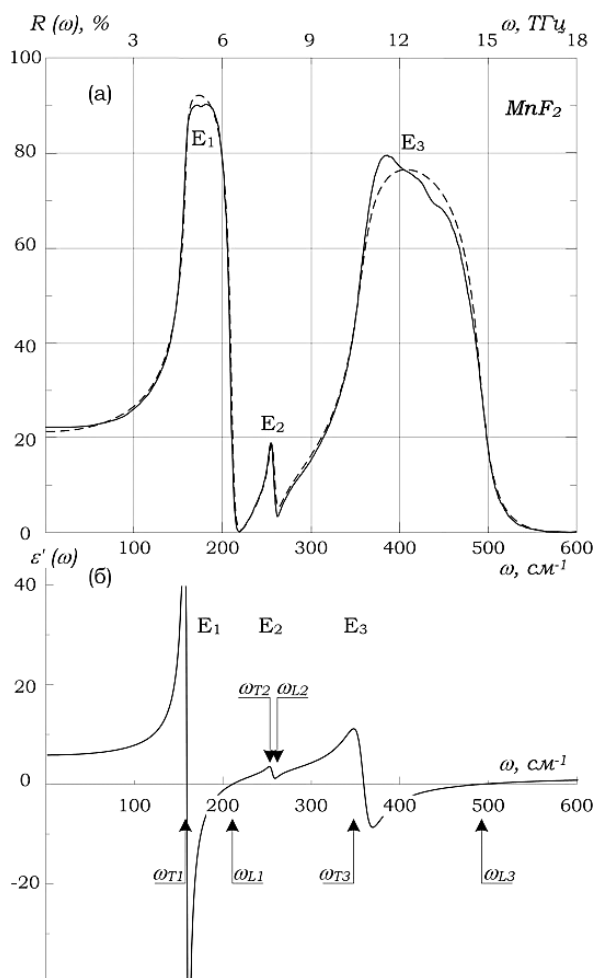
## 2. ДИСПЕРСИЯ ДП В КРИСТАЛЛЕ $\text{MnF}_2$

Несмотря на известную ограниченность линейного представления, соотношение (3) создаёт вполне надёжную основу для количественного описания дисперсии ДП и проявления поляритонных состояний в спектрах инфракрасного (ИК) отражения, а для нецентросимметричных сред — и в спектрах комбинационного рассеяния [9]. В случае ИК-отражения дисперсионный анализ состоит в подгонке под экспериментальный спектр параметров (3) при их подстановке в равенство для коэффициента отражения при нормальном падении  $R = \left| \frac{1 - \sqrt{\varepsilon}}{1 + \sqrt{\varepsilon}} \right|^2$ .

Пример спектра ИК-отражения перпендикулярной поляризации кристалла  $\text{MnF}_2$  совместно с расчётом (пунктир) на основе (3) из не-

давшей работы [10] приведён на рис. 1, *a*. Параметры фоновых мод, оптимизирующие расчётный спектр под экспериментальный, представлены в колонках 1–4 таблицы, а значения  $\omega_L$  — нули функции (3) при  $\Gamma = 0$ .

На рисунке 1, *б* мы приводим кривую дисперсии  $\varepsilon'_1(\omega)$ , которую в  $\text{MnF}_2$  образуют фононы  $E$ -типа симметрии. Слабозатухающие моды  $E_1$  и  $E_3$ , как видно из рис. 1, отражают ИК-излучение на уровне от



**Рис. 1.** *a* — пример спектра ИК-отражения (сплошные линии) и его расчёта (пунктир) методом дисперсионного анализа в кристалле  $\text{MnF}_2$  при  $T = 300$  К из работы [10]; *б* — дисперсия действительной части ДП. Области отрицательной ДП слабозатухающих мод  $E_1$  и  $E_3$  совпадают с их  $T$ - $L$ -расщеплением, а затухающая мода  $E_2$  не создаёт отрицательных значений ДП.

**ТАБЛИЦА.** Спектроскопические параметры фононных мод и их нормированные затухания для кристалла  $\text{MnF}_2$ .

Тип	$\omega_T, \text{см}^{-1}$	$S$	$\Gamma, \text{см}^{-1}$	$\omega_L, \text{см}^{-1}$	$\frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T}$
1	2	3	4	5	6
$A_1$	289,6	4,01	16,01	483,1	0,08
$E_1$	158,4	3,59	3,48	210,0	0,07
$E_2$	255,1	0,09	6,88	258,7	1,92
$E_3$	357,9	1,51	21,70	491,1	0,16

80% до  $\cong 100\%$ , а создаваемые ими области отрицательной ДП почти совпадают с интервалом частот от  $\omega_T$  до  $\omega_L$ . Напротив, задемпфированная мода  $E_2$  не создаёт отрицательных значений ДП, а максимум её коэффициента отражения снижается до  $< 20\%$ .

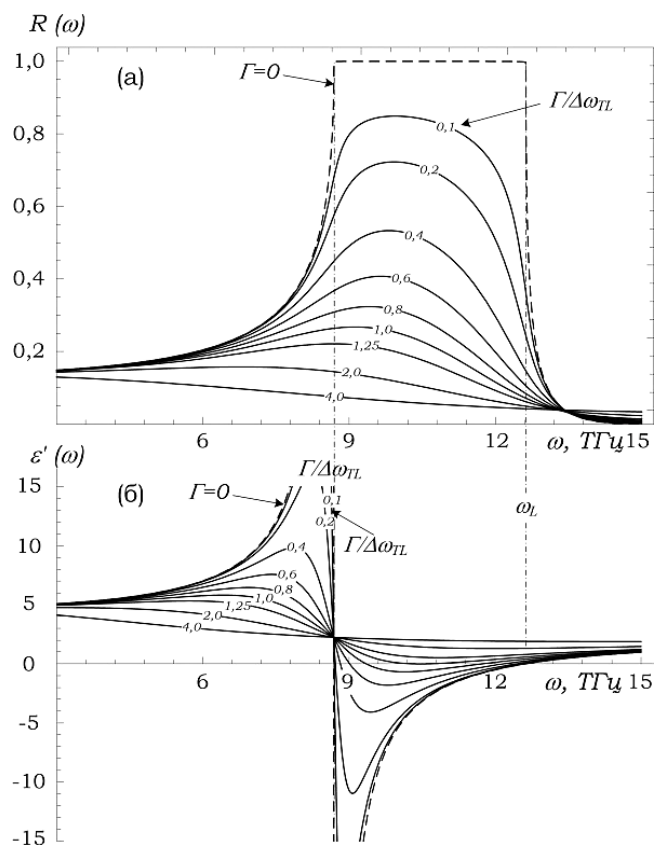
### 3. МОДЕЛЬ ОДНОГО КОЛЕБАНИЯ

Роль фононного затухания на формирование области отрицательной ДП мы проанализировали аналитически для модели одного колебания. В этом случае, разделив действительную и мнимую части (3), можно записать:

$$\begin{cases} \varepsilon' = \varepsilon^\infty + \frac{S \omega_T^2 (\omega_T^2 - \omega^2)}{(\omega_T^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2}, \\ \varepsilon'' = \frac{S \omega_T^2 \omega \Gamma}{(\omega_T^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2}. \end{cases} \quad (4)$$

Отрицательные значения, согласно (4), принимает лишь действительная часть ДП  $\varepsilon'(\omega)$ , причём только в ограниченном интервале значений  $\Gamma$  (рис. 2, б), тогда как мнимая часть  $\varepsilon''(\omega)$ , отвечающая за поглощение, всегда остаётся положительной. При отсутствии затухания (пунктир на рис. 2) полоса остаточных лучей между  $\omega_T$  и  $\omega_L$ , как видим, имеет  $R = 1$ , то есть, являясь идеальным зеркалом, полностью блокирует проникновение излучения в область отрицательной ДП. Заметим, что тенденция роста  $R$  вплоть до 100% с уменьшением  $\Gamma$  отчётливо проявляется в эксперименте у  $\text{MnF}_2$  при снижении температуры до 5 К [10].

С увеличением затухания (рис. 2)  $R$  монотонно спадает, область отрицательной ДП сужается, а минимальное значение  $\varepsilon'(\omega)$  увеличивается. Существует критическое значение затухания (как будет



**Рис. 2.** Эволюция спектров отражения (а) и дисперсии действительной части ДП (б) при изменении нормированного затухания фононов  $\Gamma / \Delta\omega_{TL} \in 0-4$ , где  $\Delta\omega_{TL} = \omega_L - \omega_T$ . Отрицательные значения ДП существуют при слабом демпфировании и исчезают, если нормированное затухание превышает единицу.

показано это  $\Gamma = \omega_L - \omega_T$ ), при котором минимум  $\epsilon'(\omega)$  достигает нуля и при дальнейшем увеличении затухания область отрицательной ДП исчезает.

Проанализировав первое уравнение системы (4), мы нашли аналитическую форму критерия существования отрицательной ДП в виде неравенства, накладывающего ограничение на величину фоновонного затухания  $\Gamma$ :

$$\Gamma < \omega_T \left( \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon^\infty}} - 1 \right), \quad (5)$$

через диэлектрические константы  $\epsilon_0$ ,  $\epsilon^\infty$  и частоту  $\omega_T$  единственного колебания в кристалле. Неравенство (5) определяет условие суще-

ствования отрицательной ДП для кристалла с одним колебанием. Поскольку  $S = \varepsilon_0 - \varepsilon^\infty$ , можно представить в эквивалентной форме через силу осциллятора  $S$ :

$$S > \varepsilon^\infty \frac{\Gamma}{\omega_T} \left( \frac{\Gamma}{\omega_T} + 2 \right). \quad (6)$$

Это вторая форма нашего критерия — для силы осциллятора  $S$ , выраженной через относительное затухание фононов  $\Gamma/\omega_T$ . Неравенство (6) даёт нижний предел для силы осциллятора полярного колебания, создающего отрицательную ДП. Так, для  $\text{MnF}_2$  ( $\varepsilon_\perp^\infty = 2,16$ ,  $\varepsilon_\parallel^\infty = 2,25$ )  $\Gamma/\omega_T = 0,02-0,06$  (см. табл. 1), и прямой проверкой (6) подтверждается уже установленное отсутствие отрицательной ДП для моды  $E_2$  и её наличие для всех остальных фононных мод. Наконец, подстановка соотношения ЛСТ (1) в выражение (5) приводит к ещё одной альтернативной форме критерия:

$$\Gamma < (\omega_L - \omega_T) \text{ или } \frac{\Gamma}{\omega_L - \omega_T} < 1. \quad (7)$$

Неравенства (5)–(7) представляют собой три эквивалентные формы количественного критерия существования отрицательной ДП в кристаллах в зависимости от степени демпфирования колебательных мод. Для изолированных колебаний, очевидно, критерий в формах (6) и (7) оказывается применимым для кристаллов со сложным спектром за рамками первоначальной одноосцилляторной модели.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Принципиальная роль затухания состоит в ограничении не только области отрицательной ДП, но и самого процесса проникновения волн в эту область. Заметим, что на частотах, где  $\varepsilon'(\omega) = -1$ , отражение не исчезает, а наоборот  $R \gg 0$  и в  $\text{MnF}_2$  достигает 70%, что характерно для всех немагнитных диэлектриков ( $\mu = +1$ ). К тому же, снижение  $\Gamma$  ещё более увеличивает  $R$  вплоть до полного отражения ( $R = 100\%$  при  $\Gamma = 0$ , рис. 2, а). Детали проникновения волн в область  $\varepsilon' < 0$  рассмотрим при помощи комплексного показателя преломления  $\tilde{n} = n + ik$  и, поскольку  $\tilde{n}^2 = \varepsilon(\omega)$ , то

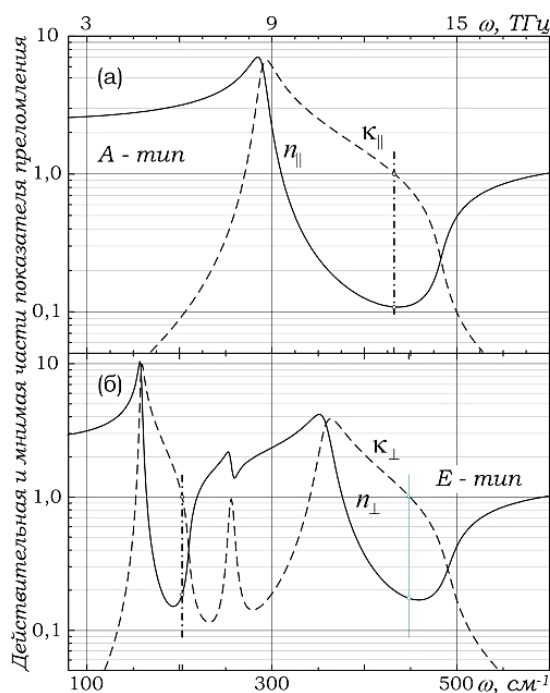
$$n(\omega) = \frac{\sqrt{\varepsilon'(\omega) + \sqrt{\varepsilon'(\omega)^2 + \varepsilon''(\omega)^2}}}{\sqrt{2}}, \quad k(\omega) = \frac{\sqrt{-\varepsilon'(\omega) + \sqrt{\varepsilon'(\omega)^2 + \varepsilon''(\omega)^2}}}{\sqrt{2}}, \quad (8)$$

где мнимая часть  $\tilde{n}$ ,  $k(\omega)$  — коэффициент экстинкции, а действительная часть  $n(\omega)$  — показатель преломления, равный отношению

скорости света в вакууме к фазовой скорости волны в среде, строго говоря, только при  $n \gg \kappa$ , то есть в области прозрачности кристалла.

Во всех областях отрицательной ДП кристалла  $\text{MnF}_2$  за счёт дисперсии  $\kappa(\omega)$  и  $n(\omega)$  (рис. 3) почти везде  $n < \kappa$ , причём  $n > 0$  всегда и стремится к нулю при  $\Gamma \rightarrow 0$ . Поглощение входной интенсивности волны  $I_0$  на расстоянии  $x$  от границы кристалла происходит по закону  $I(x) = I_0 \exp(-4\pi\kappa x/\lambda_0)$ , где  $\lambda_0$  — длина волны в свободном пространстве. Подчёркнём, что здесь потери интенсивности диссипативны, а  $\alpha = 4\pi\kappa/\lambda_0$  — коэффициент поглощения, который, в отличие от нераспространяющихся волн, описывает необратимый отток энергии из волны в колебательную систему кристалла. В общем случае десятикратное уменьшение интенсивности происходит на глубине  $x_m = (\ln 10/4\pi)(\lambda_0/\kappa) \approx 0,18\lambda_0/\kappa$ . Для кристалла  $\text{MnF}_2$  на частотах, где  $\varepsilon'(\omega) = -1$  (на них установлены вертикальные пунктирные линии на рис. 3),  $x_m < \lambda_0/5$ .

В результате распределение поля становится аperiodическим, а



**Рис. 3.** Дисперсия мнимой ( $\kappa$ ) и действительной ( $n$ ) частей комплексного показателя преломления кристалла  $\text{MnF}_2$  для комнатных температур: *a* — *A*-тип фонона (параллельная поляризация); *b* — *E*-тип фонона (перпендикулярная поляризация). Вертикальные пунктиры установлены на частотах, где  $\varepsilon' = -1$ .



не волновым процессом, жёстко локализованным вблизи поверхности раздела. Для кубических кристаллов тензор  $\varepsilon_{ij}(\omega) = \varepsilon(\omega)\delta_{ij}$ , то есть области отрицательной ДП изотропны, и поэтому внутри себя должны разрушать все проникающие волны, независимо от поляризации и направления волнового вектора. Тогда энергия падающей волны практически не выходит за пределы малого (для волны) объёма  $V \propto x_m^3$ . В этом и других случаях исчезновения волнового процесса при  $k > 1/4\pi$  или  $n < k$  можно говорить о коллапсе электромагнитной волны в области отрицательной ДП.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключение отметим, что коллапс волны, по сути, в точке пространства по сравнению с линейными размерами волнового процесса имеет важные физические последствия. Возникающие в области аномальной дисперсии значения  $n < 1$  перестают быть связанными с перемещением фазы, ввиду отсутствия таковой. По этой же причине внутри и вблизи области отрицательной ДП функция  $n(\omega)$  со всеми её производными уже не связаны со скоростью перемещения энергии.

## ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА—REFERENCES

1. V. G. Veselago, *Physics-Uspekhi*, **92**, No. 3: 517 (1967).
2. V. G. Veselago, *Physics-Uspekhi*, **179**, No. 6: 689 (2009).
3. J. B. Pendry, *Phys. Rev. Lett.*, **85**: 3966 (2000).
4. V. M. Agranovich and Y. N. Gartstein, *Physics-Uspekhi*, **176**: 1051 (2006).
5. A. V. Kildishev and V. M. Shalaev, *Physics-Uspekhi*, **181**: 59 (2011).
6. R. Lyddane, R. G. Sachs, and E. Teller, *Phys. Rev.*, **59**: 673 (1941).
7. T. Kurosawa, *J. Phys. Soc. Jap.*, **16**: 1288 (1961).
8. M. Born and Kun Huang, *Dynamical Theory of Crystal Lattices* (Oxford: Oxford University Press: 1954).
9. A. S. Barker and R. Loudon, *Rev. Mod. Phys.*, **41**: 18 (1972).
10. R. Schleck and Y. Nahas, R. P. S. M. Lobo, J. Varignon, M. B. Lepetit, C. S. Nelson, and R. L. Moreira, *Phys. Rev. B*, **82**: 054412 (2010).