ЖЭТФ, 2013, том 143, вып. 2, стр. 263–270

ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ КРИСТАЛЛОВ СЛОЖНЫХ ОКСИДОВ С УЧЕТОМ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ ДИСПЕРСИИ

З. П. Мастропас[*]*, Э. Н. Мясников*

Южный федеральный университет, педагогический институт
344082, Ростов-на-Дону, Россия

Поступила в редакцию 31 июня 2012 г.

Рассматривается временная и пространственная дисперсия диэлектрической проницаемости кристаллов сложных оксидов, имеющих множество ветвей дипольных активных колебаний. В резонансном приближении фотон-фононного взаимодействия методом квантовых функций Грина получены формулы для расчета спектров восприимчивости для сложных оксидов в терагерцевой области частот с учетом обоих видов дисперсии. На основе полученных результатов обсуждаются известные экспериментальные данные.

DOI: 10.7868/S0044451013020065

1. ВВЕДЕНИЕ

Совершенствование экспериментальных технологий исследования движений кристаллической решетки в области фононных частот и теоретических методов описания этих движений позволило решать ранее неразрешимые проблемы во многих разделах физики кристаллов. В частности, к ним относятся проблемы динамики структурной перестройки кристаллов (их фазовых структурных превращений), а также динамики мягкой моды в фазовых переходах второго рода (ФП2) типа смещения и механизмов стабилизации мягких мод в процессах переходов. Наиболее эффективными оказались методы исследований в оптике инфракрасных частот, хотя длины волн здесь значительно превышают размеры элементарных ячеек кристаллов. Рентгеноструктурные исследования в решении подобных задач не могут быть эффективными, так как фононные частоты значительно ниже частот рентгеновских излучений. Поэтому рентгеновские исследования дают как бы серию мгновенных фотографий структуры.

Самую подробную информацию о движениях решетки кристалла в настоящее время можно получить, изучая фононные спектры. Например, спектры отражения света, полученные в работе [1] и обработанные с помощью соотношения между спектрами и диэлектрической проницаемостью, позволили автору утверждать, что стабилизация мягкой моды в $SrTiO_3$ обусловлена ангармонизмом колебаний решетки. Но в работе [2] подобные исследования привели к выводу о том, что стабилизация мягкой моды в $SrTiO_3$ обусловлена высокой анизотропией деформируемости ионов кислорода в этом кристалле. В нашей работе [3], в которой вычислялся термодинамический потенциал в системе взаимодействующих фононов и электронов, показано, что механизм стабилизации построен на эффекте перераспределения электронной плотности в элементарной ячейке кристалла типа сложного оксида с сегнетоэлектрическим ФП2. Этот механизм фазового перехода в $SrTiO_3$ в определенной мере эквивалентен механизму анизотропии деформируемости ионов кислорода. Соотношение, подобное использованному в работе [3], применялось и в работе [4], но в факторизованной форме для невзаимодействующих мод. Отмеченные разногласия связаны с недостаточной точностью процедур обработки спектров отражения и поглощения электромагнитных волн кристаллом. Для этих вычислений, например [1], используются даже модели невзаимодействующих мод кристалла, хотя понятно, что для полярных мод в кристалле $SrTiO_3$ существенно сильное дипольное взаимодействие. В работе [5] использован такой же, как и в работе [4], подход для определения диэлектрической проницаемости пленки мультиферроика $Bi_{0.98}Nd_{0.02}FeO_3$ на подложке из MgO. В результате оказалось, что си-

[*]E-mail: mastrozin@mail.ru

стема демонстрирует значительный, но пока необъяснимый, рост потерь на низкочастотном участке диэлектрического спектра в районе 30 см$^{-1}$. Ниже нами найдено соотношение между характеристиками продольных и поперечных мод и диэлектрической проницаемостью с полным учетом электромагнитного взаимодействия.

2. КРИСТАЛЛ КАК СИСТЕМА ВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИХ КВАНТОВАННЫХ ПОЛЕЙ ФОТОНОВ И ФОНОНОВ

Рассмотрим оптические свойства ионного кристалла $SrTiO_3$ в области частот собственных поляризационных колебаний решетки, т. е. в интервале частот от $1 \cdot 10^{12}$ Гц до $20 \cdot 10^{12}$ Гц.

Известно, что отличительная черта спектров поглощения света в $SrTiO_3$ в этой области частот — наличие ярко выраженных резонансных минимумов. Эта черта отражает одночастичный характер процесса поглощения света в этой области частот: фотон в кристалле превращается в одну квазичастицу — фонон–квант собственных поляризационных колебаний решетки кристалла $SrTiO_3$. Основные свойства таких процессов хорошо описывает простейшая теоретическая модель, в которой взаимодействие света с кристаллом заменяется взаимодействием со свободными фононами. Эта модель характеризуется фундаментальным гамильтонианом

$$H_0 = H_l + H_p + H_{lp}, \tag{1}$$

в котором H_l — гамильтониан решетки кристалла (гамильтониан фононов), H_p — гамильтониан поперечных электромагнитных волн (фотонов), причем продольное кулоновское поле включено в слагаемое H_l, так как состояния фононов предполагаются построенными с учетом кулоновского взаимодействия ионов кристалла. Оператор взаимопревращений фононов и фотонов не должен по форме отличаться от одночастичного оператора взаимопревращений экситонов и фотонов, который, согласно [6], имеет вид

$$\begin{aligned} H_{lp} &= H_{lp}^{(1)} + H_{lp}^{(2)}, \\ H_{lp}^{(1)} &= \sum_{\mathbf{k},\mu,j} T_{j\mu}(\mathbf{k})(a^\dagger_{\mathbf{k}j} + a_{-\mathbf{k}j})(b_{\mathbf{k}j} + b^\dagger_{-\mathbf{k}j}), \\ H_{lp}^{(2)} &= \sum_{\mathbf{k},\mu,j} f^2_{\mu j}(4\mathbf{k}c)^{-1}(a^\dagger_{\mathbf{k}j} + a_{-\mathbf{k}j})(a_{\mathbf{k}j} + a^\dagger_{-\mathbf{k}j}), \end{aligned} \tag{2}$$

где $a^\dagger_{\mathbf{k}j}$, $a_{\mathbf{k}j}$ — операторы рождения и уничтожения фотона с волновым вектором $\mathbf{k}$ и индексом его поляризации j, а $b^\dagger_{\mathbf{k}\mu}$, $b_{\mathbf{k}\mu}$ — бозевские операторы рождения и уничтожения фонона (или экситона) μ-ой ветви с волновым вектором $\mathbf{k}$, c — скорость света в вакууме. Гамильтониан (2) пригоден лишь для описания кристаллов с центром инверсии (рассмотрением которых мы в дальнейшем и ограничимся). Таким свойством обладают кристаллы кубической симметрии, которые приближенно можно рассматривать как изотропную среду. Обобщение большинства наших дальнейших выводов на случай кристаллов, не обладающих центром симметрии, не представляет большого труда.

Вершинная часть оператора взаимодействия $H_{lp}^{(1)}$ имеет вид [6]

$$T_{j\mu}(\mathbf{k}) = -i\sqrt{\frac{2\pi}{V\mathbf{k}c}}\,\Omega_\mu(\mathbf{k})(\mathbf{d}_\mu \cdot \mathbf{I}_{\mathbf{k}j}), \tag{3}$$

где $\mathbf{d}_\mu$ — дипольный момент перехода в состояние с одним фононом μ-ой ветви; $\mathbf{I}_{\mathbf{k}j}$ — вектор поляризации фотона; V — объем элементарной ячейки кристалла; $\Omega_\mu(\mathbf{k})$ — частота фонона μ-ой ветви. Постоянную Планка, деленную на 2π, и постоянную Больцмана здесь и в дальнейшем мы полагаем равными единице. По правилу сумм вклад $f^2_{\mu j}$ в квадрат плазменной частоты f_0^2 кристалла от одного ($\mu \leftrightarrow j$) перехода равен:

$$\begin{gathered} f^2_{\mu j} = 8\pi\pi^{-1}\Omega_\mu(\mathbf{k})(\mathbf{d}_\mu \cdot \mathbf{I}_{\mathbf{k}j}), \\ \sum_\mu f^2_{\mu j} = f_0^2, \quad \sum_j f^2_{\mu j} = f^2_\mu \sin^2\theta_\mu, \end{gathered} \tag{4}$$

где θ_μ — угол между векторами $\mathbf{k}$ и $\mathbf{d}_\mu$. Конечно, в фундаментальном гамильтониане (1) не учтено взаимодействие между квазичастицами кристалла, благодаря которому в реальном кристалле развиваются диссипативные процессы, оказывающие существенное влияние на оптические свойства при высоких температурах кристалла или при его возбуждении извне. Учет этого влияния можно произвести феноменологически введением так называемых постоянных затухания. В дальнейшем мы учтем эти процессы путем введения поправок к гамильтониану H_0. Но сначала мы еще более упростим его для исследования наиболее важных оптических характеристик одного ($\mu \leftrightarrow j$) фотоперехода из всех возможных в кристалле.

Прежде отметим, что оператор H_0 (1) является билинейной комбинацией бозевских амплитуд $a_{\mathbf{k}j}$ и $b_{\mathbf{k}\mu}$. Поэтому каноническим преобразованием этих операторов его можно привести к диагональному виду. Известно [6], что такое каноническое преобразование приводит к операторам рождения и уничтожения новых элементарных возбуждений, которые являются смесью фононов и фотонов в кристалле и называются поляритонами. Характерный вид дисперсионных кривых $\omega_\mu(\mathbf{k})$ поляритонов формируется дисперсией частот фотонов и фононов. Для теоретических и экспериментальных исследований оптических свойств кристалла особенно удобен фотопереход с возникновением поляритона с частотой ω_{μ_0}, в ближайшей окрестности которой лежит область прозрачности кристалла (в этой области ω_{μ_0} пропорционально $\mathbf{k}$). Подобный фотопереход в любом кристалле обычно называют изолированным.

Для теоретического исследования оптических свойств кристалла на частотах изолированного фотоперехода в гамильтониане (1) можно опустить все слагаемые, кроме содержащих операторы рождения и уничтожения фононов с частотами, близкими к частоте изолированного фотоперехода ($\mu = \mu_0$). Но при этом необходимо ввести поправки в оператор $H_p + H_{lp}$, так как благодаря существованию в кристалле фононов с $\mu \neq \mu_0$ фотоны в кристалле сами по себе и во взаимодействии с фононами μ_0 будут существенно отличаться по свойствам от фотонов в вакууме. Поэтому фактически в гамильтониане $H_p + H_{lp}$ должны вместо $a_{\mathbf{k}j}$ и $a^\dagger_{\mathbf{k}j}$ фигурировать операторы рождения и уничтожения поляритонов с частотами вблизи ω_{μ_0} в кристалле без учета влияния на фотоны фононов μ-ой ветви. Как следует из выражений, полученных в работе [6], если операторы рождения и уничтожения таких новых поляритонов обозначать теми же символами, что и операторы рождения $a^\dagger_{\mathbf{k}j}$ и уничтожения $a_{\mathbf{k}j}$ фотонов в вакууме, то указанное преобразование гамильтониана $H_p + H_{lp}$ сведется просто к добавлению к каждому из этих операторов множителя $n_j^{-1/2}(\mathbf{k}/k)$, в котором n_j — показатель преломления среды для фотона $\mathbf{k}_j$, а соответствующие этим квазичастицам возбуждения можно называть «фотонами в среде», понимая под средой кристалл, в котором не могут существовать фононы μ_0-ой ветви.

Конечно, поляризуемость кристалла, определяющаяся поляризационными колебаниями всех фононных ветвей, кроме μ_0-ой, обусловливает экранировку кулоновского взаимодействия, определяющего свойства фононов. Как показано в работе [7], это экранирование приводит к перенормировке дипольного момента перехода с возбуждением μ_0-го фонона, которая сводится к замене $\mathbf{d}_{\mu_0}$ на $\mathbf{d}_{\mu_0}\varepsilon_0^{-1/2}$ и соответствующему изменению энергии $\Omega(\mathbf{k})$ фонона и вершинной части взаимодействия $T_{j\mu}(\mathbf{k})$ (3). Величину ε_0 в перенормировке следует интерпретировать как вклад в диэлектрическую проницаемость кристалла на частотах в окрестности ω_{μ_0} от всех других колебательных ветвей с $\mu \neq \mu_0$ и связанную соотношением $\varepsilon_0^{1/2} = n(\mathbf{k}/k)$. В этом приближении фундаментальный гамильтониан модели, описывающей оптические свойства изолированного фотоперехода, будет иметь вид (индекс μ_0 всюду опущен)

$$\begin{gathered} H_l = \sum_{\mathbf{k}} \Omega(\mathbf{k}) b^\dagger_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}, \quad H_p = \sum_{\mathbf{k}j} kc\varepsilon_0^{-1/2} a^\dagger_{\mathbf{k}j} a_{\mathbf{k}j}, \\ H^{(1)}_{lp} = \sum_{\mathbf{k}j} T_j(\mathbf{k}) \varepsilon_0^{-1/4} \left(a^\dagger_{\mathbf{k}j} + a_{-\mathbf{k}j}\right)\left(b^\dagger_{\mathbf{k}} - b_{\mathbf{k}}\right), \\ H^{(2)}_{lp} = \sum_{\mathbf{k}j} f_j^2 (4kc)^{-1} \varepsilon_0^{-1/2} \left(a^\dagger_{\mathbf{k}j} + a_{-\mathbf{k}j}\right) \times \\ \times \left(a_{\mathbf{k}j} + a^\dagger_{-\mathbf{k}j}\right). \end{gathered} \tag{5}$$

3. КВАНТОВЫЕ ФУНКЦИИ ГРИНА ФОТОНОВ И ФОНОНОВ И ДИЭЛЕКТРИЧЕСКАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ КРИСТАЛЛА

Диэлектрическая проницаемость является характеристикой восприимчивости кристалла к воздействию электромагнитного поля. Идеологически она близка к квантовой функции Грина, которая по определению описывает переход микрочастицы (кванта некоторого поля) под влиянием взаимодействия из одной мировой точки в другую (или из одного состояния в другое). Поэтому при расчетах оптических характеристик кристалла в фононной области частот удобно пользоваться квантовыми функциями Грина фотонов и фононов. Для расчетов функций Грина существует мощный математический аппарат [8], а сами эти функции довольно просто связаны с диэлектрической проницаемостью кристалла. Известно [8], что можно построить запаздывающую функцию Грина $D_{ll'}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t')$ электромагнитного поля в среде на операторах напряженности электрического поля $\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t)$ по схеме

$$\begin{gathered} D_{ll'}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t'') = -i\theta(t - t') \times \\ \times \left\langle \left[\hat{E}_l(\mathbf{r}, t), \hat{E}_{l'}(\mathbf{r}', t)\right] \right\rangle + 4\pi\delta_{ll'}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\delta(t - t'), \end{gathered} \tag{6}$$

где квадратные скобки изображают коммутатор операторов $\hat{E}_l$ и $\hat{E}_{l'}$, являющийся основным признаком запаздывающей функции Грина; буквами δ изображены δ-функции Дирака; $\theta(t - t')$ — ступенчатая тэта-функция. В случае однородной среды фурье-образ $D_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$ функции Грина (6) просто связан [8] с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(\omega,\mathbf{k})$:

$$D_{ll'}(\omega,\mathbf{k}) = (-4\pi\pi_0)^{-1} \times \times \left[\varepsilon_{ll'}(\omega,\mathbf{k}) - \frac{k^2c^2}{\omega^2}\left(\delta_{ll'} - \frac{k_l k_{l'}}{k^2}\right)\right] \quad (7)$$

и может быть найден [8] по формуле

$$D_{ll'}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{\omega^2}{c^2} D^R_{ll'}(\omega,\mathbf{k}) - - \frac{\omega k_l}{c} D^R_{0l}(\omega,\mathbf{k}) - \frac{\omega k_{l'}}{c} D^R_{l0}(\omega,\mathbf{k}) + + k_l k_{l'} D^R_{00}(\omega,\mathbf{k}) + \frac{4\pi\pi_1 k_{l'}}{k^2}. \quad (8)$$

Формула (8) связывает $D_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$ с запаздывающими функциями Грина $D^R_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$, построенными на операторах компонент 4-вектор-потенциала $(\hat{\mathbf{A}}, i\hat{A}_0)$ электромагнитного поля. При низких температурах $(T \ll \omega)$ $D^R_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$ можно вычислить, считая температуру, равной нулю. В этом случае задачу нахождения $D_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$ можно упростить, если вместо запаздывающих функций определить причинные функции Грина D^c по формулам

$$\begin{aligned} D^c_{ll'}(\mathbf{r}-\mathbf{r}', t-t') &= -i\left\langle T\left\{A_l(\mathbf{r},t), A_{l'}(\mathbf{r}',t')\right\}\right\rangle, \\ D^c_{0l'}(\mathbf{r}-\mathbf{r}', t-t') &= -i\left\langle T\left\{A_0(\mathbf{r},t), A_{l'}(\mathbf{r}',t')\right\}\right\rangle, \\ D^c_{l0}(\mathbf{r}-\mathbf{r}', t-t') &= -i\left\langle T\left\{A_l(\mathbf{r},t), A_0(\mathbf{r}',t')\right\}\right\rangle, \\ D^c_{00}(\mathbf{r}-\mathbf{r}', t-t') &= -i\left\langle T\left\{A_0(\mathbf{r},t), A_0(\mathbf{r}',t')\right\}\right\rangle, \end{aligned} \quad (9)$$

где символом $T\{\ldots\}$ изображается T-произведение операторов вектор-потенциала. Для нахождения причинных функций (9) существует удобный метод диаграмм Фейнмана, а сами эти функции отличаются от запаздывающих $D^R_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$ только мнимыми частями:

$$I_m D^c(\omega,\mathbf{k}) = \operatorname{sign}\omega I_m D^R(\omega,\mathbf{k}). \quad (10)$$

Таким образом, используя D^c (9), по соотношениям (10) можно найти запаздывающие функции Грина и затем по формуле (7) определить диэлектрическую проницаемость $\varepsilon_{ll'}(\omega,\mathbf{k})$.

В рассматриваемой фотон-фононной системе продольная и поперечная составляющие электромагнитного поля распределены по различным подсистемам. Продольная составляющая включена в фононную подсистему, а поперечная — в фотонную. В таком случае вектор-потенциал $\mathbf{A}(\mathbf{r},t)$ удобно использовать в кулоновской калибровке $\operatorname{div}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) = 0$. Тогда операторы составляющих 4-вектор-потенциала выражаются [6] через операторы рождения и уничтожения фотонов и фононов следующим образом:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r},t) = \sum_{\mathbf{k},j}\left(\frac{2\pi\pi^2\varepsilon_0^{1/2}}{NVkc}\right)^{1/2} \times \times \mathbf{I}_{\mathbf{k},j}\left[a_{\mathbf{k}j}(t) + a^\dagger_{-\mathbf{k}j}(t)\right] I^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (11)$$

$$\mathbf{A}_0(\mathbf{r},t) = \sum_{\mathbf{k}} \frac{4\pi i}{V(N\varepsilon_0)^{1/2}} \frac{\mathbf{k}\cdot\mathbf{d}}{\mathbf{k}^2} \times \times \left[b_{\mathbf{k}}(t) + b^\dagger_{-\mathbf{k}}(t)\right] I^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (12)$$

где N — число элементарных ячеек в кристалле, V — объем ячейки. На основе соотношений (5), (10)–(12) можно построить для вычисления причинных функций D^c технику диаграмм Фейнмана. Построение такой техники описано в Приложении.

После суммирования ряда (A.22) и использования правил соответствия (A.18) (см. Приложение), получим выражение

$$D^c_{l0}(\omega,\mathbf{k}) = D^c_{0l}(\omega,\mathbf{k}) = = D_{ll}(\omega,\mathbf{k}) \frac{\omega f_l^2 \cos^2\theta}{kc\varepsilon_0\left[\omega^2 - \Omega^2(\mathbf{k})\right]}. \quad (13)$$

И, наконец, подобные же выкладки приводят к формуле

$$D^c_{00}(\omega,\mathbf{k}) = D^c_{ll}(\omega,\mathbf{k}) \frac{(\omega^2 - \varepsilon_0^{-1}k^2c^2) f_l^2\cos^2\theta}{\varepsilon_0 k^2c^2\left[\omega^2 - \Omega^2(\mathbf{k})\right]}. \quad (14)$$

С помощью соотношений (8), (A.12)–(A.14), (A.19), (13), (14) можно найти остальные компоненты тензорной функции Грина фононов (компонента D^c_{yy} уже определена в (A.3)). Их зависимости от частоты ω, длины волнового вектора k и угла θ выражаются формулами (15)–(17):

$$D_{xx}(\omega,\mathbf{k}) = 4\pi\sin^2\theta + \frac{c^{-2}D^c_{ll}(\omega+i\eta,\mathbf{k})\cos^2\theta}{\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})} \times \times \left\{\omega^2\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k}) - \frac{f_l^2}{\varepsilon_0}\sin^2\theta\right] - \frac{k^2c^2}{\varepsilon_0^2} f_l^2\sin^2\theta\right\}, \quad (15)$$

$$D_{zz}(\omega,\mathbf{k}) = 4\pi\cos^2\theta + \frac{c^{-2}D^c_{ll}(\omega+i\eta,\mathbf{k})}{\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})} \times \times \left\{\omega^2\sin^2\theta\left[\omega^2 - \Omega^2(\mathbf{k}) - \frac{2f_l^2}{\varepsilon_0}\cos^2\theta\right] + + \left(\omega^2 - \frac{k^2c^2}{\varepsilon_0}\right)\varepsilon_0^{-1} f_l^2\cos^4\theta\right\}, \quad (16)$$

$$D_{zx}(\omega,\mathbf{k}) = 4\pi\sin\theta\cos\theta + \\ + \frac{c^{-2}D^c_{ll}(\omega+i\eta,\mathbf{k})\sin\theta\cos\theta}{\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})}\times \\ \times\left\{\omega^2\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})-\frac{f_l^2}{\varepsilon_0}\right]+\right. \\ \left.+\left(\omega^2-\frac{k^2c^2}{\varepsilon_0}\right)\varepsilon_0^{-1}f_l^2\cos^2\theta\right\}. \quad (17)$$

Детерминант $\det D'$, составленный согласно формуле (А.9) из элементов (15)–(17), равен

$$\det D' = \frac{4\pi\omega^2 D^c_{ll}(\omega+i\eta,\mathbf{k})}{c^2\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})\right]}\times \\ \times\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})-\frac{f_l^2}{\varepsilon_0}\cos^2\theta\right]\cos^2 2\theta. \quad (18)$$

Выражение (18) обращается в нуль только при $\theta = \pi/2$, во всех остальных случаях компоненты тензора диэлектрической проницаемости можно вычислить по формулам (А.6)–(А.8), (15)–(17), используя компоненты обратного тензора $(D')^{-1}$. Наиболее важными для оптики являются случаи, когда $\theta = \pi/2$ и $\theta = 0$. При $\theta = \pi/2$ вектор $\mathbf{k}\perp\mathbf{d}$ и, следовательно, энергия $\Omega(\mathbf{k})$ является энергией поперечного фонона $\Omega_\perp(\mathbf{k})$. Если $\mathbf{k}\parallel\mathbf{d}$ ($\theta=0$), то энергия $\Omega(\mathbf{k})$ оказывается энергией продольного фонона $\Omega_\parallel(\mathbf{k})$. Продольно-поперечное расщепление энергии кванта при $k\to 0$ определяется формулой

$$\Omega^2_\parallel(k=0) = \Omega^2_\perp(k=0) + f_l^2/\varepsilon_0. \quad (19)$$

В случае $\mathbf{k}\perp\mathbf{d}$ тензор (А.4) оказывается диагональным, причем $D_{xx}=4\pi$. Это свидетельствует о невозможности распространения продольных волн вдоль оси x (они могут в нашей модели распространяться только вдоль оси z), а $\varepsilon_{xx}=\varepsilon_0$ согласно (А.6). С учетом (А.11) имеем

$$\varepsilon_{zz}(\omega,k) = \varepsilon_0\frac{\omega^2-\Omega^2_\parallel(0)}{\omega^2-\Omega^2_\perp(0)}. \quad (20)$$

В случае $\mathbf{k}\parallel\mathbf{d}$ ($\theta=0$) и тензор D, и тензор ε оказываются диагональными и компоненты $\varepsilon_{yy}=\varepsilon_{xx}=\varepsilon_0$. А согласно (А.8),

$$\varepsilon_{zz}(\omega,\mathbf{k}) = \varepsilon_0\frac{\omega^2-\Omega^2_\parallel(\mathbf{k})}{\omega^2-\Omega^2_\parallel(\mathbf{k})+\varepsilon_0^{-1}f_l^2} = \\ = \varepsilon_0\frac{\omega^2-\Omega^2_\parallel(\mathbf{k})}{\omega^2-\Omega^2_\perp(\mathbf{k})}, \quad (21)$$

так как $\Omega^2_\parallel(\mathbf{k})-\varepsilon_0^{-1}f_l^2=\Omega^2_\perp(\mathbf{k})$.

Таким образом, при любом направлении $\mathbf{k}$ диэлектрическая проницаемость имеет один и тот же вид:

$$\varepsilon(\omega,\mathbf{k}) = \varepsilon_0\frac{\omega^2-\Omega^2_\parallel(\mathbf{k})}{\omega^2-\Omega^2_\perp(\mathbf{k})}. \quad (22)$$

В формуле (22) в числителе — разность квадратов тестовой частоты и частоты собственных дипольных продольных колебаний среды, в знаменателе — разность квадратов тестовой частоты и частоты собственных дипольных поперечных колебаний среды. Легко заметить, что постоянный множитель ε_0 представляет собой более высокочастотные дипольные колебания, чем рассмотренные выше. При $\omega\to\infty$ $\varepsilon(\omega,\mathbf{k})\to\varepsilon_0$, поэтому удобнее представляющую высокочастотные колебания константу ε_0 обозначать ε_∞. На низких тестовых частотах ($\omega\to 0$) $\varepsilon(0)=\varepsilon(\infty)\Omega^2_\parallel/\Omega^2_\perp$. Очевидно, что

$$\frac{\varepsilon(0)}{\varepsilon(\infty)} = \frac{\Omega^2_\parallel}{\Omega^2_\perp} > 1. \quad (23)$$

Соотношение (23) — это соотношение Лиддена–Сакса–Теллера [9]. Если в области высоких частот ω есть еще одна ветвь собственных дипольных колебаний с продольной $\Omega'_\parallel$ и поперечной $\Omega'_\perp$ частотами, то будет справедливым обобщенное соотношение Лиддена–Сакса–Теллера:

$$\varepsilon(0) = \varepsilon(\infty)\frac{\Omega'^2_\parallel}{\Omega'^2_\perp}\frac{\Omega^2_\parallel}{\Omega^2_\perp}. \quad (24)$$

Возможно, что таких ветвей будет больше (например, N). Тогда соотношение (24) примет вид

$$\varepsilon(0) = \varepsilon(\infty)\prod_{n=1}^{N}\frac{(\Omega^n_\parallel)^2}{(\Omega^n_\perp)^2}, \quad (25)$$

а вместо (22) получим

$$\varepsilon(\omega,\mathbf{k}) = \varepsilon(\infty)\prod_{n=1}^{N}\frac{\omega^2-\left[\Omega^n_\parallel(\mathbf{k})\right]^2}{\omega^2-\left[\Omega^n_\perp(\mathbf{k})\right]^2}. \quad (26)$$

Соотношение (23) также имеет очевидное происхождение. На высокочастотный тестовый сигнал откликаются процессы поляризации, соответствующие и низкочастотным, и высокочастотным дипольным колебаниям среды.

Таким образом, можно заключить, что полученные выше выражения для диэлектрической проницаемости среды с многомодовой дипольной поляризацией являются следствием взаимодействия между модами (осцилляторами) и полностью учитывают это взаимодействие.

4. ВЫВОДЫ

При выводе формулы для диэлектрической проницаемости кристаллов с собственными колебаниями дипольного типа (26) удалось полностью просуммировать бесконечный ряд теории возмущений для функций Грина фононов. Ранее этот ряд даже не выписывали, по-видимому, считая его *a priori* сложным, запутанным и несуммируемым точно. В используемой нами модели система упростилась за счет точного учета только наиболее сильного диполь-дипольного взаимодействия между фотонами и поляризационными фононами. Элементарными актами такого взаимодействия являются превращения фотонов в фононы и обратно. Формула (26) (без зависимости ε от $\mathbf{k}$) впервые получена в модели невзаимодействующих фононов с проведением чисто математической процедуры факторизации [10] и позволяет устанавливать соответствия экспериментальных спектров поглощения и отражения света кристаллами в фононной области частот с частотной и пространственной дисперсией диэлектрической проницаемости кристалла. Частотная зависимость ε была названа временной ее дисперсией [6], поскольку она связана с запаздыванием поляризации.

Полученное нами соотношение (26), кроме временной дисперсии, демонстрирует и источники пространственной дисперсии (зависимости частоты фононов от волнового вектора). Пространственная дисперсия, как показано в работах [6, 11, 12], приводит не только к существованию эффекта вращения плоскости поляризации света, но и к появлению в кристалле добавочных поляритонных волн. Мы показали, что источником пространственной дисперсии диэлектрической проницаемости является зависимость от волновых векторов частот продольных и поперечных дипольных волн в кристалле. Это позволяет более точно определять ε по измерениям $\Omega_{\parallel}(\mathbf{k})$ и $\Omega_{\perp}(\mathbf{k})$, а также исследовать обратную связь. Так, наблюдаемое экспериментально повышенное значение ε [5, 13, 14] может являться следствием не только роста мнимой части у энергии $\Omega_{\perp}$ (например, в результате структурной перестройки), но и следствием роста продольной частоты $\Omega_{\parallel}$. Понятно, что рост мнимой части у $\Omega_{\perp}$ размывает резонансную частоту. Подобный эффект может быть следствием и пространственной дисперсии, так как зависимость $\Omega_{\perp}$ от волнового вектора ведет к разбросу резонансных частот $\Omega_{\perp}(\mathbf{k})$.

ПРИЛОЖЕНИЕ

В качестве первой операции по вычислению причинных функций Грина подставим (11) и (12) в формулу (10). Тогда вычисление может быть сведено к построению диаграмм Фейнмана и правил соответствия для них. При этом необходимо учитывать, что слагаемые $H_{lp}^{(1)}$ и $H_{lp}^{(2)}$ оператора взаимодействия должны по разному изображаться на диаграммах. Поэтому в n-ой поправке к каждой функции Грина D^c выражение $(1/n!)H_{lp}(t_1)\ldots H_{lp}(t_n)$ необходимо представить в виде

$$\frac{1}{n!}\sum_{m=0}^{n} C_n^m H_{lp}^{(1)}(t_1)\ldots H_{lp}^{(1)}(t_m)H_{lp}^{(2)}(t_{m+1})\times\ldots \ldots\times H_{lp}^{(2)}(t_n). \quad (\text{A.1})$$

Исключим вклады от топологически эквивалентных диаграмм, которые получаются из каждого слагаемого в (A.1) при раскрытии T-произведения по теореме Вика только перестановкой операторов взаимодействия одного типа между собой и таким образом заменим выражение (A.1) на следующее:

$$\sum_{m=0}^{n} H_{lp}^{(1)}(t_1)\ldots H_{lp}^{(1)}(t_m)H_{lp}^{(2)}(t_{m+1})\times\ldots \ldots\times H_{lp}^{(2)}(t_n). \quad (\text{A.2})$$

В таком случае диаграммы, соответствующие различным слагаемым в (A.2) и, следовательно, различающиеся количеством вершин каждого типа взаимодействия при фиксированном их общем числе, будут входить в ряд теории возмущений для функций Грина с одинаковыми множителями.

Для вычисления по соотношениям (9)–(11) причинных функций Грина D^c введем декартову систему координат с осью $z \parallel \mathbf{d}$, такую чтобы вектор $\mathbf{k}$ лежал в плоскости xz. Будем считать, что индексу поляризации фотона $j = 2$ соответствует направление вектора поляризации фотона $\mathbf{l}_{\mathbf{k}z}$ вдоль оси y. Тогда, очевидно, $T_2(\mathbf{k}) = f_2^2 = 0$, т.е. фотоны, поляризованные вдоль оси y, не взаимодействуют с фононами и, следовательно, все функции (8), имеющие хотя бы один индекс «l» или «l'», соответствующий оси y, будут равны нулю, кроме

$$D_{yy}^c(\omega,\mathbf{k}) = D^{(0)}(\omega,\mathbf{k})\frac{2\pi c^2\varepsilon_0^{1/2}}{kc} \equiv \equiv \frac{4\pi c^2}{\omega^2 - k^2c^2\varepsilon_0^{-1} + i\eta}, \quad \eta\to +0, \quad (\text{A.3})$$

где $D^{(0)}(\omega,\mathbf{k})$ — общий множитель у всех причинных функций Грина фотонов (9). Тензор причинных функций Грина фотонов в выбранной системе координат имеет вид

$$D = \begin{vmatrix} D_{xx}^c & 0 & D_{xz}^c \\ 0 & D_{yy}^c & 0 \\ D_{zx}^c & 0 & D_{zz}^c \end{vmatrix}, \quad (\text{A.4})$$

а компоненты тензора диэлектрической проницаемости, согласно (7), связаны с функциями Грина соотношениями

$$\varepsilon_{yy}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{k^2c^2}{\omega^2} + 4\pi\varepsilon_\infty D_{yy}^{-1}(\omega,\mathbf{k}), \qquad \text{(A.5)}$$

$$\varepsilon_{xx}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{k^2c^2}{\omega^2}\cos^2\theta + 4\pi\varepsilon_\infty D_{zz}(\omega,\mathbf{k})(\det D')^{-1}, \qquad \text{(A.6)}$$

$$\varepsilon_{zz}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{k^2c^2}{\omega^2}\sin^2\theta + 4\pi\varepsilon_\infty D_{xx}(\omega,\mathbf{k})(\det D')^{-1}, \qquad \text{(A.7)}$$

$$\varepsilon_{xz}(\omega,\mathbf{k}) = \varepsilon_{zx}(\omega,\mathbf{k}) = -\frac{k^2c^2}{\omega^2}\sin\theta\cos\theta - 4\pi\varepsilon_\infty D_{xz}(\omega,\mathbf{k})(\det D')^{-1}, \qquad \text{(A.8)}$$

если существует тензор, обратный тензору (A.4), т. е. если

$$\det D' = D_{xx}(\omega,\mathbf{k})D_{zz}(\omega,\mathbf{k}) - D_{xz}(\omega,\mathbf{k})D_{zx}(\omega,\mathbf{k}) \neq 0, \quad D_{xz} = D_{zx}. \qquad \text{(A.9)}$$

Таким образом, для нахождения тензора диэлектрической проницаемости по соотношениям (A.5)–(A.8) удобнее всего с помощью диаграмм Фейнмана вычислить причинные функции Грина, построенные из операторов вектор-потенциала электромагнитного поля (11) и (12). Эти функции при низких температурах отличаются от запаздывающих функций Грина $D^R(\omega)$, построенных из операторов вектор-потенциала электромагнитного поля, добавкой к частоте малой мнимой величины $i\eta$, учитывающей затухание фононов, так что $D^R(\omega) = D^c(\omega + i\eta)$. На основе соотношений (8), (A.3) легко доказать, что

$$D_{yy}(\omega,\mathbf{k}) = \frac{\omega^2}{c^2}D^R yy(\omega,\mathbf{k}) = 4\pi\omega^2\left[(\omega+i\eta)^2 - \frac{k^2c^2}{\varepsilon_0}\right]^{-1}. \qquad \text{(A.10)}$$

Подставляя (A.10) в (A.5), получим

$$\varepsilon_{yy} = \varepsilon_0. \qquad \text{(A.11)}$$

В нашей системе координат фурье-образ вектор-потенциала фотонов с поляризацией $j = 1$, т. е. величина $A_l(\mathbf{k})$, имеет компоненты $A_{lx}(\mathbf{k}) = A_l(\mathbf{k})\cos\theta$, $A_{lz}(\mathbf{k}) = A_l(\mathbf{k})\sin\theta$, амплитуду которых $A_l(\mathbf{k})$ несложно найти из соотношения (11). Поэтому

$$\frac{D^c_{xx}}{\cos^2\theta} = \frac{D^c_{zz}}{\sin^2\theta} = \frac{D^c_{xz}(\mathbf{k},t-t')}{\sin\theta\cos\theta} = D^c_{ll}(\mathbf{k}). \qquad \text{(A.12)}$$

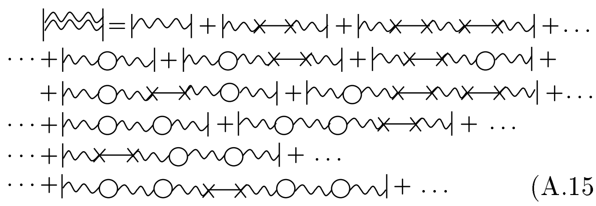
Аналогично:

$$\frac{D^c_{0x}}{\cos\theta} = \frac{D^c_{0z}}{\sin\theta} = D^c_{0l}(\mathbf{k},t-t'), \qquad \text{(A.13)}$$

$$\frac{D^c_{x0}}{\cos\theta} = \frac{D^c_{0z}}{\sin\theta} = D^c_{l0}(\mathbf{k},t-t') = -i\langle T\{A_l(\mathbf{k},t)A_0(\mathbf{k},t')\}\rangle, \qquad \text{(A.14)}$$

где $A_0(\mathbf{k},t')$ — k-я фурье-компонента потенциала (12).

Условимся на диаграммах Фейнмана изображать функцию Грина фотона волнистой линией, а фонона — прямой; вершинную часть взаимодействия $H^{(1)}_{lp}$ — крестиком, $H^{(2)}_{lp}$ — кружком, множители у операторов рождения-уничтожения в формулах (11) и (12) — штрихами на концах соответственно волнистой и прямой линий. Тогда на основе изложенного выше ряд диаграмм для функции D^c_{ll}, которую мы будем изображать двойной волнистой линией, представится суммой нитевидных диаграмм:



(A.15)

Если обозначить жирной волнистой линией следующую сумму бесконечного ряда диаграмм

(A.16)

то ряд (A.15) для двойной волнистой можно заметно упростить:

(A.17)

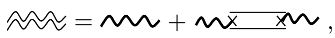
Сопоставляя элементам диаграмм аналитические выражения по следующим правилам:

$$
\begin{aligned}
&\bigcirc \leftrightarrow f_1^2(4kc\sqrt{\varepsilon_\infty})^{-1},\ \times \leftarrow - \rightarrow T_1(\mathbf{k}),\\
&\sim\!\sim\!\sim \leftrightarrow 2\frac{kc}{\sqrt{\varepsilon_\infty}}\left(\omega^2-\frac{k^2c^2}{\varepsilon_\infty}\right)^{-1} \equiv\\
&\quad \equiv D_{yy}^k\left(\mathbf{k},\omega)(\frac{2\pi c^2\sqrt{\varepsilon_\infty}}{kc}\right)^{-1}, \qquad (A.18)\\
&-\!\!- \leftrightarrow 2E(\mathbf{k})[\omega^2-E^2(\mathbf{k})]^{-1} \equiv G^{(0)}(\mathbf{k},\omega),\\
&\vdash\!\!\dashv \leftrightarrow 32\pi^2E(\mathbf{k})d^2k^{-2}\varepsilon_\infty^{-1}V^{-1}[\omega^2-E^2(\mathbf{k})]^{-1}\cos^2\theta,\\
&-\!\!\dashv = \vdash\!\!- = 18\pi\omega dk^{-1}\varepsilon_\infty^{-1/2}V^{-1/2}[\omega^2-E^2(\mathbf{k})]^{-1}\cos\theta,
\end{aligned}
$$

можно вычислить функцию Грина D_{ll}^c, которая оказывается равной

$$
\begin{aligned}
D_{ll}^c(\omega,\mathbf{k}) &= 4\pi c^2\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})\right]\times\\
&\times\left\{\left(\omega^2-\frac{k^2c^2}{\varepsilon_0}\right)\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})\right]-\right.\\
&\left.-\frac{\omega^2}{\varepsilon_0}f_l^2\sin^2\theta\right\}^{-1}. \qquad (A.19)
\end{aligned}
$$

Заметим, что существует соотношение

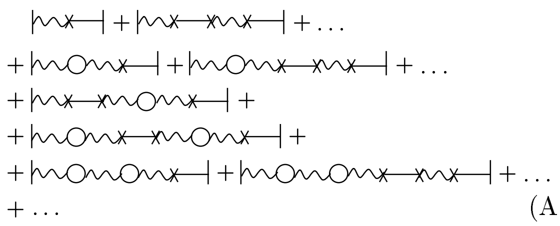


(A.20)

которое связывает функцию (A.19) с функцией Грина фононов G, изображенной в (A.20) двойной прямой линией. Отсюда следует, что

$$
G(\omega,\mathbf{k}) = \frac{2\Omega(\mathbf{k})\left[\omega^2-\varepsilon_0^{-1}(k^2c^2+f_l^2\sin^2\theta)\right]}{(\omega^2-k^2c^2\varepsilon_0^{-1})\left[\omega^2-\Omega^2(\mathbf{k})\right]-\omega^2\varepsilon_0^{-1}f_l^2\sin^2\theta}. \qquad (A.21)
$$

Ряд диаграмм Фейнмана для функций $D_{l0}^c = D_{0l}^c$ имеет вид



(A.22)

ЛИТЕРАТУРА

1. R. A. Cowley, Philos. Mag. **11**, 673 (1965).
2. R. Migoni, H. Bilz, and B. Bawerle, Phys. Rev. Lett. **37**, 1155 (1976).
3. A. E. Myasnikova, E. N. Myasnikov, and Z. P. Mastropas, Theor. Math. Phys. **2**, 157 (2008).
4. J. Servoin, Y. Luspin, and V. Gervais. Phys. Rev. B **22**, 11 (1980).
5. Г. А. Командин, В. И. Торгашев, А. А. Волков, О. Е. Породинков, И. Е. Спектор, В. М. Мухортов, ФТТ **52**, 1717 (2010).
6. В. М. Агранович, В. Л. Гинзбург, *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов*, Наука, Москва (1965).
7. А. С. Давыдов, Э. Н. Мясников, ДАН СССР **173**, 1040 (1967).
8. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, Наука, Москва (1962).
9. А. С. Давыдов, *Теория твердого тела*, Наука, Москва (1976).
10. D. W. Berreman and F. C. Unterwald, Phys. Rev. B **22**, 11 (1980).
11. С. И. Пекар, ЖЭТФ **33**, 1022 (1957).
12. С. И. Пекар, ЖЭТФ **36**, 451 (1959).
13. В. М. Мухортов, Ю. И. Головко, Ю. И. Юзюк, УФН **179**, 909 (2009).
14. Г. А. Командин, О. Е. Породинков, И. Е. Спектор, А. А. Волков, ФТТ **51**, 1928 (2009).