

19. Odozva na časovo premenlivé polia

V tejto prednáške budeme študovať všeobecné vlastnosti relatívnej permitivity a jej súvis so spontánnymi osciláciami v materiáloch. Preskúame tiež najjednoduchší spôsob merania relatívnej permitivity.

Polarizovateľnosť

V prítomnosti elektromagnetického poľa $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ vzniká v materiáloch nenulová polarizácia¹ $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$. Pre dostatočne slabé polia je vzťah medzi oboma veličinami lineárny, ale vo všeobecnosti tento vzťah nie je lokálny (t.j. $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ závisí od veľkosti poľa $\mathbf{E}$ v bodoch rôznych od $\mathbf{r}$), okamžitý (t.j. $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ závisí aj od veľkosti poľa $\mathbf{E}$ v minulosti), ani izotrópny (t.j. $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ nemusí byť rovnobežné s $\mathbf{E}$):

$$P_i(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \int d^3\mathbf{R} \int_0^\infty d\tau \alpha_{ij}(\mathbf{R}, \tau) E_j(\mathbf{r} - \mathbf{R}, t - \tau), \quad \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \int d^3\mathbf{R} \int_0^\infty d\tau \alpha(\mathbf{R}, \tau) \mathbf{E}(\mathbf{r} - \mathbf{R}, t - \tau)$$

Druhá rovnica popisuje odozvu izotrópných médií, na štúdium ktorých sa v tejto prednáške obmedzíme. Funkcia $\alpha(\mathbf{R}, \tau)$ popisuje vplyv elektrického poľa vo vzdialenosti $\mathbf{R}$ a v čase o τ skoršom ako je študovaný priestoročasový bod. V reálnych médiách existuje charakteristická vzdialenosť R_0 a charakteristický čas τ_0 , pri prekročení ktorých je funkcia $\alpha(\mathbf{R}, \tau)$ zanedbateľne malá. V tejto prednáške sa ďalej obmedzíme na štúdium elektromagnetických vln s vlnovou dĺžkou $\lambda \gg R_0$. V takom prípade bude vzťah medzi $\mathbf{P}$ a $\mathbf{E}$ lokálny:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \int_0^\infty d\tau \chi(\tau) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - \tau), \quad \chi(\tau) = \int d^3\mathbf{R} \alpha(\mathbf{R}, \tau)$$

Bezrozmernú funkciu $\chi(\tau)$ nazývame polarizovateľnosťou. Teraz ukážeme, že vzťah medzi elektrickým poľom a polarizáciou sa zjednoduší Fourierovou transformáciou. Časovú Fourierovu transformáciu a transformáciu k nej inverznú definujeme nasledovne:

$$x(t) = \int_{-\infty}^\infty \frac{d\omega}{2\pi} x_\omega e^{-i\omega t} \quad x_\omega = \int_{-\infty}^\infty dt x(t) e^{i\omega t}$$

Počítajme časovú Fourierovu transformáciu polarizácie:

$$\mathbf{P}_\omega(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^\infty dt e^{i\omega t} \int_0^\infty d\tau \chi(\tau) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - \tau) = \epsilon_0 \int_0^\infty d\tau e^{i\omega\tau} \chi(\tau) \int_{-\infty}^\infty dt e^{i\omega(t-\tau)} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t - \tau)$$

Preto môžeme písať

$$\mathbf{P}_\omega(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \chi_\omega \mathbf{E}_\omega(\mathbf{r}), \quad \chi_\omega = \int_0^\infty d\tau e^{i\omega\tau} \chi(\tau)$$

Teda pre fixnú frekvenciu ω je vzťah medzi polarizáciou a elektrickým poľom lokálny.^{2 3} Diskusiu v tomto odstavci možno zovšeobecniť na štúdium závislosti medzi ľubovoľným silovým poľom [v našom prípade $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$] a príslušnou odozvou [v našom prípade $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$]. Vo všeobecnom prípade nazývame veličinu, ktorá je analógom polarizovateľnosti, funkciou odozvy.

Kramersove-Kronigove vzťahy

Budeme študovať vlastnosti komplexnej funkcie $\chi_\omega = \chi'_\omega + i\chi''_\omega$. Najprv si všimnime, že platí $\chi'_{-\omega} = \chi'_\omega$ a $\chi''_{-\omega} = -\chi''_\omega$. Teraz rozšírime reálnu os ω na celú komplexnú rovinu $\omega = \omega_1 + i\omega_2$. Funkcia χ_ω je analytická v hornej polrovine $\omega_2 > 0$, pretože integrál

$$\chi_\omega = \int_0^\infty d\tau \chi(\tau) e^{i\omega_1\tau} e^{-\omega_2\tau}$$

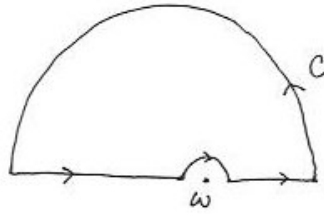
je konvergentný.⁴ Všimnime si, že analytičnosť funkcie χ_ω vyplýva z toho, že funkcia odozvy $\chi(\tau)$ je nenulová iba pre $\tau > 0$, t.j. z kauzality.

¹T.j. hustota dipólov.

²Toto je všeobecný výsledok. Vzťah medzi $\mathbf{P}$ a $\mathbf{E}$ je daný konvolúciou. Fourierova transformácia konvolúcie je súčin Fourierových transformácií.

³Všimnime si, že ak funkciu $\chi(\tau)$ pre $\tau > 0$ predĺžime o funkciu identicky rovnú nule pre $\tau < 0$, potom všetky integrály $\int_0^\infty d\tau$ možno nahradiť integrálmi $\int_{-\infty}^\infty d\tau$ a definícia χ_ω je totožná so všeobecnou definíciou x_ω .

⁴Fyzikálne akceptovateľná funkcia odozvy totiž klesá do nuly, $\chi(\tau) \rightarrow 0$, pre $\tau \rightarrow \infty$.



Uvažujme uzavretú krivku C v komplexnej rovine, pozostávajúcu z poloblúka v nekonečne v hornej polrovine a z reálnej osi, pričom bod ω reálnej osi sa obchádza infinitezimálnym poloblúčikom v hornej polrovine. Študujme integrál $\oint_C \frac{ds\chi_s}{s-\omega}$ pozdĺž uzavretej krivky C . Podľa Cauchyho vety je tento integrál nulový, pretože funkcia $\chi_s/(s-\omega)$ je na oblasti vnútri krivky C analytická. Budeme predpokladať, že polarizovateľnosť je nulová pre rýchle procesy, t.j. $\chi_s \rightarrow 0$ pre $|s| \rightarrow \infty$. Potom príspevok poloblúka v nekonečne ku krivkovému integrálu cez C bude nulový. Integrál cez reálnu os mínus nekonečne malý interval $\langle \omega - \delta, \omega + \delta \rangle$ (kde $\delta \rightarrow 0$) sa nazýva integrálom v zmysle vlastnej hodnoty $P \int_{-\infty}^{\infty} ds\chi_s/(s-\omega)$ a integrál cez malý oblúčik okolo ω dáva

$$\int \frac{ds\chi_s}{s-\omega} = \int \frac{dz\chi_{\omega+z}}{z} = \chi_{\omega} \int_{\pi}^0 \frac{i\delta e^{i\phi} d\phi}{\delta e^{i\phi}} = -i\pi\chi_{\omega}$$

kde v 1.kroku sme použili substitúciu $s = \omega + z$ a v 2.kroku sme premennú z nahradili premennou ϕ , $z = \delta e^{i\phi}$ kde δ je infinitezimálny polomer oblúčika, a predpokladali sme, že funkcia χ_s sa pomaly mení v blízkosti $s = \omega$. Preto Cauchyho vetu možno písať v tvare

$$\chi_{\omega} = \frac{1}{\pi i} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{ds\chi_s}{s-\omega}, \quad \chi'_{\omega} = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{ds\chi'_s}{s-\omega}, \quad \chi''_{\omega} = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{ds\chi''_s}{s-\omega}$$

Druhú a tretiu rovnicu sme dostali prepísaním reálnej a imaginárnej časti prvej rovnice. Tieto rovnice sa nazývajú Kramersove-Kronigove (alebo disperzné) vzťahy a podstatným predpokladom pri ich odvodení bola analytičnosť funkcie χ_s v hornej polrovine, t.j. kauzalita odozvy. Disperzné vzťahy umožňujú určiť reálnu časť polarizovateľnosti (alebo akejkolvek inej funkcie odozvy) zo znalosti imaginárnej časti na celej reálnej osi, alebo naopak. Na konci tejto prednášky ukážeme jeden príklad ich netriviálneho použitia.

Relatívna permitivita

Skúmame teraz elektromagnetické pole vybudené vo vzorke vonkajšou nábojovou hustotou ρ a vonkajšou prúdovou hustotou $\mathbf{j}$. Polarizačné pole vybudené celkovým poľom $\mathbf{E}$ vo vzorke indukuje dodatočné nábojové a prúdové hustoty:

$$\rho_{\text{ind}} = -\nabla \cdot \mathbf{P}, \quad \mathbf{j}_{\text{ind}} = \partial \mathbf{P} / \partial t$$

Preto celkové nábojové a prúdové hustoty vo vzorke sú $\rho_{\text{tot}} = \rho - \nabla \cdot \mathbf{P}$ a $\mathbf{j}_{\text{tot}} = \mathbf{j} + \partial \mathbf{P} / \partial t$ a elektromagnetické polia vo vzorke spĺňajú Maxwellove rovnice

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{B} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} &= \mu_0 \mathbf{j}_{\text{tot}} & \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{1}{\epsilon_0} \rho_{\text{tot}} \\ \nabla \times \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} &= 0 & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \end{aligned}$$

Zavedením vektora elektrickej indukcie $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ možno rovnice z prvého riadku písať v tvare

$$\nabla \times \mathbf{B} - \mu_0 \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \mu_0 \mathbf{j} \quad \nabla \cdot \mathbf{D} = \rho$$

Predpokladajme teraz, že všetky polia majú tú istú časovú závislosť $e^{-i\omega t}$.⁵ V takom prípade vzťah medzi $\mathbf{D}$ a $\mathbf{E}$ nebude daný všeobecným výrazom s retardáciou, ale redukuje sa na lokálny vzťah $\mathbf{D}_{\omega}(\mathbf{r}) = \epsilon_0(1 + \chi_{\omega})\mathbf{E}_{\omega}(\mathbf{r})$. Obvykle tento vzťah píšeme v tvare $\mathbf{D}_{\omega}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \epsilon_R(\omega)\mathbf{E}_{\omega}(\mathbf{r})$, kde $\epsilon_R(\omega) = 1 + \chi_{\omega}$ je bezrozmerná tzv. relatívna permitivita. Indukovaná prúdová hustota je $\mathbf{j}_{\omega} = -i\omega \mathbf{P}_{\omega} = -i\omega \epsilon_0 \chi_{\omega} \mathbf{E}_{\omega}$.

⁵Pôsobenie operátora $\partial/\partial t$ potom možno nahradiť násobením faktorom $-i\omega$.

Keď tento výraz porovnáme s definíciou vodivosti $\mathbf{j}_\omega = \sigma(\omega)\mathbf{E}_\omega$, dostaneme vzťah medzi relatívnou permitivitou a vodivosťou:

$$\epsilon_R(\omega) = 1 + \chi_\omega = 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\omega\epsilon_0}$$

Teda imaginárna časť permitivity ϵ_R'' je daná reálnou časťou vodivosti σ' a naopak. Hustota tepelných strát v médiu v poli $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E} \cos \omega t$ je

$$\mathbf{j}(t) \cdot \mathbf{E}(t) = \sigma'(\omega)\mathbf{E}^2 \cos^2 \omega t + \sigma''(\omega)\mathbf{E}^2 \cos \omega t \sin \omega t \rightarrow \frac{1}{2}\sigma'(\omega)\mathbf{E}^2$$

kde posledné priradenie je dôsledkom stredovania cez čas. Keďže entropia systému musí narastať, musí byť

$$\sigma'(\omega) > 0, \quad \epsilon_R''(\omega) > 0 \quad \text{pre } \omega > 0$$

Reálna časť permitivity $\epsilon_R'(\omega)$ môže byť kladná aj záporná. Zo vzťahu $\epsilon_R = 1 + \chi_\omega$ a z vlastností funkcie χ_ω ďalej vyplýva $\epsilon_R'(-\omega) = \epsilon_R'(\omega)$ a $\epsilon_R''(-\omega) = -\epsilon_R''(\omega)$.

Kolektívne módy

Skúmame teraz spontánne harmonické kmity v objeme homogénneho kusa materiálu. V absencii vonkajších budiacich nábojov a prúdov možno Maxwellove rovnice redukovať na dve rovnice, jednu pre pozdĺžne polia a jednu pre priečne polia:

$$\epsilon_R(\omega)\nabla \cdot \mathbf{E}_\omega = 0, \quad \left[\nabla^2 + \frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_R(\omega) \right] \mathbf{B}_\omega = 0$$

Transverzálnu časť elektrického poľa možno zo známeho $\mathbf{B}_\omega$ určiť pomocou $\nabla \times \mathbf{B}_\omega + ic^{-2}\omega\epsilon_R(\omega)\mathbf{E}_\omega = 0$.

Z rovnice pre longitudinálne pole vidno, že nenulové riešenia sú možné len pre frekvencie, ktoré spĺňajú rovnicu

$$\epsilon_R(\omega) = 0$$

Všetky dlhovlnné spontánne kmity mriežky, pri ktorých je modulovaná hustota náboja, sú riešeniami tejto rovnice. V prípade kolektívnych kmitov elektrónovej kvapaliny príslušné módy nazývame plazmónmi.

Ak v rovnici pre transverzálne polia predpokladáme riešenie pre časový priebeh $e^{-i\omega t}$ v tvare rovinnéj vlny $e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}$, potom nenulové riešenia sú možné len pre

$$c^2\mathbf{q}^2 = \omega^2\epsilon_R(\omega)$$

čo možno písať tiež v tvare $q = \omega\tilde{n}(\omega)/c$, kde sme zaviedli komplexný index lomu

$$\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega) = \sqrt{\epsilon_R(\omega)} = \sqrt{\epsilon_R'(\omega) + i\epsilon_R''(\omega)}$$

Vlna šíriaca sa v smere x v médiu s indexom lomu $n + i\kappa$ má priestoročasový priebeh $e^{i(qx - \omega t)}e^{-x/\delta}$ kde $q = \omega n/c$ a $\delta = c/(\omega\kappa)$ je hĺbka vniku. Teda reálna časť indexu lomu určuje grupovú rýchlosť vln a imaginárna časť popisuje ich tlmenie. Obvykle sa indexom lomu nazýva iba reálna časť n . Znamienko n zodpovedá smeru šírenia vlny. Preto volíme $n(-\omega) = n(\omega)$. Z inverzných vzťahov $\epsilon_R'(\omega) = n^2(\omega) - \kappa^2(\omega)$ a $\epsilon_R''(\omega) = 2n(\omega)\kappa(\omega)$ potom vyplýva $\kappa(-\omega) = -\kappa(\omega)$.

Meranie indexu lomu

Medzi základné optické merania patria merania koeficientu odrazu a prechodu svetla danej frekvencie ω . V najjednoduchšej geometrii študujeme svetlo dopadajúce kolmo na tenkú platničku zo skúmaného materiálu. Často je jedinou merateľnou veličinou iba koeficient odrazu, pretože pohlcovanie vo vzorke je veľké a nie je možné vyrobiť dostatočne tenkú platničku, cez ktorú prejde merateľná intenzita žiarenia. Obmedzíme sa preto na štúdium kolmého odrazu od polroviny s permitivitou $\epsilon_R(\omega)$. V tomto prípade je amplitúda odrazu $r(\omega)$ daná Fresnelovým vzťahom⁶

$$r(\omega) = \frac{1 - \tilde{n}(\omega)}{1 + \tilde{n}(\omega)} = \frac{1 - n - i\kappa}{1 + n + i\kappa}$$

⁶Predpokladali sme rozhranie medzi vákuom a študovaným materiálom. Vzorec možno ľahko odvodiť zošíváním dopadajúcej vlny $\mathbf{E}_0 e^{i\omega(x/c - t)}$ a odrazenej vlny $r\mathbf{E}_0 e^{i\omega(-x/c - t)}$ na jednej strane rozhrania a prejdenej vlny $t\mathbf{E}_0 e^{i\omega(\tilde{n}x/c - t)}$ na druhej strane rozhrania, ak žiadame spojitosť elektrického a magnetického poľa.

Meranou veličinou je však obvykle iba pravdepodobnosť odrazu, ktorá je štvorcom amplitúdy odrazu:

$$R(\omega) = r^*(\omega)r(\omega) = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2}$$

Zdalo by sa teda, že z merania odrazivosti R (1 údaj) nemožno určiť komplexný index lomu $\tilde{n}$ (2 údaje). Ukážeme však, že ak zmeriame $R(\omega)$ pre všetky frekvencie ω , potom dostaneme úplnú informáciu o $\tilde{n}(\omega)$. Za tým účelom napíšme komplexnú amplitúdu odrazu v tvare $r(\omega) = \sqrt{R(\omega)}e^{i\theta(\omega)}$. Logaritmovaním tejto rovnice dostaneme

$$\ln r(\omega) = \frac{1}{2} \ln R(\omega) + i\theta(\omega)$$

Aplikovaním Kramersových-Kronigových vzťahov na funkciu odozvy $\ln r(\omega)$ dostaneme

$$\theta(\omega) = -\frac{1}{2\pi}P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{ds \ln R(s)}{s - \omega} = -\frac{\omega}{\pi}P \int_0^{\infty} \frac{ds \ln R(s)}{s^2 - \omega^2} = -\frac{1}{2\pi}P \int_0^{\infty} ds \ln \left| \frac{s + \omega}{s - \omega} \right| \frac{dR(s)/ds}{R(s)}$$

V druhej rovnici sme využili, že $R(s) = R(-s)$ a v tretej rovnici sme integrovali per partes. V reálnom experimente sa meria odrazivosť na konečnom intervale frekvencií $\langle \omega_{\min}, \omega_{\max} \rangle$. Aby sme mohli použiť Kramersovu-Kronigovu analýzu, sadu experimentálnych dát je potrebné predĺžiť do oblasti nízkych frekvencií $\langle 0, \omega_{\min} \rangle$ a vysokých frekvencií $\langle \omega_{\max}, \infty \rangle$ vhodnými interpolačnými vzorcami. Zo známych $R(\omega)$ a $\theta(\omega)$ nakoniec ľahko určíme $\tilde{n}(\omega)$ alebo $\epsilon_R(\omega) = \tilde{n}^2(\omega)$.