Pokročilé disperzní modely v optice tenkých vrstev
Lekce 1: Úvod – dielektrická odezva; časově reverzní symetrie; Kramers–Kronigovy relace; sumační pravidlo

Daniel Franta

Ústav fyzikální elektroniky, Přírodovědecká fakulta, Masarykova univerzita

12. 3. 2020

Obsah

Úvod – Disperzní modely

Disperzní modely popisují spektrální závislost **lineární** dielektrické odezvy kvazineutrálního hmotného prostředí. **Dielektrická odezva** je obecný pojem vyjadřující odezvu hmotného prostředí (nabitých částic) na vnější proměnné elektromagnetické pole. Dielektrická odezva závisí na chemických i strukturálních vlastnostech materiálu. Může být reprezentována různými veličinami:

- susceptibilita: $\hat{\chi}(\omega)$ nebo $\chi(t)$ (nejpřirozeněji popisuje reakci nabitých částic na vnější harmonické pole, pulz – $\chi(t)$ je Greenova funkce, vztah mezi polarizací $\boldsymbol{P}$ a elektrickým polem $\boldsymbol{E}$)
- dielektrická funkce: $\hat{\varepsilon}(\omega) = 1 + \hat{\chi}(\omega)$ (vystupuje v MR jako relativní permitivita)
- komplexní index lomu: $\hat{n}(\lambda) = n(\lambda) + \mathrm{i}k(\lambda) = \sqrt{\hat{\varepsilon}(\lambda)}$ (vystupuje v rovinné vlně, řešení VR)
- optická vodivost: $\hat{\sigma}(\omega) = -\mathrm{i}\epsilon_0\omega\hat{\chi}(\omega)$ (vhodná pro vodivé materiály)
- ztrátová funkce (loss function): $L(\omega) = -\Im\left(\hat{\varepsilon}^{-1}(\omega)\right)$ (popisuje brždění el. nabité částice)
- funkce síly přechodu (transition strength function): $F(E) = E\varepsilon_{\mathrm{i}}(E)$ (sumační pravidlo)
- funkce pravděpodobnosti přechodu (transition probability function, většinou označovaná jako joint density of states JDOS): $J(E) = E^2\varepsilon_{\mathrm{i}}(E)$

Kromě frekvence ω (energii fotonu E; vlnové délce λ) dielektrická odezva závisí i na jiných fyzikálních veličinách jako jsou teplota T, tlak p, intenzita vnějších polí $\boldsymbol{E}_{\mathrm{ext}}$ nebo $\boldsymbol{H}_{\mathrm{ext}}$, atd.

Úvod – Disperzní modely

Disperzní modely popisují spektrální závislost **lineární** dielektrické odezvy kvazineutrálního hmotného prostředí. **Dielektrická odezva** je obecný pojem vyjadřující odezvu hmotného prostředí (nabitých částic) na vnější proměnné elektromagnetické pole. Dielektrická odezva závisí na chemických i strukturálních vlastnostech materiálu. Může být reprezentována různými veličinami:

- susceptibilita: $\hat{\chi}(\omega)$ nebo $\chi(t)$ (nejpřirozeněji popisuje reakci nabitých částic na vnější harmonické pole, pulz – $\chi(t)$ je Greenova funkce, vztah mezi polarizací $\boldsymbol{P}$ a elektrickým polem $\boldsymbol{E}$)
- dielektrická funkce: $\hat{\varepsilon}(\omega) = 1 + \hat{\chi}(\omega)$ (vystupuje v MR jako relativní permitivita)
- komplexní index lomu: $\hat{n}(\lambda) = n(\lambda) + \mathrm{i}k(\lambda) = \sqrt{\hat{\varepsilon}(\lambda)}$ (vystupuje v rovinné vlně, řešení VR)
- optická vodivost: $\hat{\sigma}(\omega) = -\mathrm{i}\epsilon_0\omega\hat{\chi}(\omega)$ (vhodná pro vodivé materiály)
- ztrátová funkce (loss function): $L(\omega) = -\Im\left(\hat{\varepsilon}^{-1}(\omega)\right)$ (popisuje brždění el. nabité částice)
- funkce síly přechodu (transition strength function): $F(E) = E\varepsilon_\mathrm{i}(E)$ (sumační pravidlo)
- funkce pravděpodobnosti přechodu (transition probability function, většinou označovaná jako joint density of states JDOS): $J(E) = E^2\varepsilon_\mathrm{i}(E)$

Ve skutečnosti dielektrická odezva může záviset i na vlnovém vektoru $\boldsymbol{k}$ (prostorová disperze) a navíc v anizotropním prostředí je dielektrická odezva popsaná tenzorem a ne skalárem a proto část zmiňovaných funkcí jsou tenzory.

Úvod – Disperzní modely

Disperzní modely popisují spektrální závislost **lineární** dielektrické odezvy kvazineutrálního hmotného prostředí. **Dielektrická odezva** je obecný pojem vyjadřující odezvu hmotného prostředí (nabitých částic) na vnější proměnné elektromagnetické pole. Dielektrická odezva závisí na chemických i strukturálních vlastnostech materiálu. Může být reprezentována různými veličinami:

- susceptibilita: $\hat{\chi}(\omega)$ nebo $\chi(t)$ (nejpřirozeněji popisuje reakci nabitých částic na vnější harmonické pole, pulz – $\chi(t)$ je Greenova funkce, vztah mezi polarizací $\boldsymbol{P}$ a elektrickým polem $\boldsymbol{E}$)
- dielektrická funkce: $\hat{\varepsilon}(\omega) = 1 + \hat{\chi}(\omega)$ (vystupuje v MR jako relativní permitivita)
- komplexní index lomu: $\hat{n}(\lambda) = n(\lambda) + \mathrm{i}k(\lambda) = \sqrt{\hat{\varepsilon}(\lambda)}$ (vystupuje v rovinné vlně, řešení VR)
- optická vodivost: $\hat{\sigma}(\omega) = -\mathrm{i}\epsilon_0\omega\hat{\chi}(\omega)$ (vhodná pro vodivé materiály)
- ztrátová funkce (loss function): $L(\omega) = -\Im\left(\hat{\varepsilon}^{-1}(\omega)\right)$ (popisuje brždění el. nabité částice)
- funkce síly přechodu (transition strength function): $F(E) = E\varepsilon_{\mathrm{i}}(E)$ (sumační pravidlo)
- funkce pravděpodobnosti přechodu (transition probability function, většinou označovaná jako joint density of states JDOS): $J(E) = E^2\varepsilon_{\mathrm{i}}(E)$

Všechny zmíněné spektrální funkce (kromě $\chi(t)$) můžeme definovat jako komplexní funkce, např. $\hat{L}(\omega) = -\mathrm{i}\hat{\varepsilon}^{-1}(\omega)$, i když pro úplný popis stačí jen jedna komponenta.

Úvod – Disperzní modely

Dielektrická odezva popsaná disperzními modely musí splňovat tři základní podmínky.

Pro jednoduchost se zabývejme dielektrickou odezvou izotropního prostředí bez prostorové disperze (optické aktivity).

Úvod – Disperzní modely

Dielektrická odezva popsaná disperzními modely musí splňovat tři základní podmínky.

1. **Časově reverzní symetrie (time-reversal symmetry):**

$$\hat{\chi}(\omega) = \hat{\chi}^*(-\omega)$$

2. **Kramers–Kronigovy relace:**

$$\chi_\mathrm{r}(\omega) = \frac{1}{\pi} ⨍_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi_\mathrm{i}(\xi)}{\xi - \omega}\,\mathrm{d}\xi \qquad \text{nebo} \qquad \chi_\mathrm{r}(\omega) = \frac{2}{\pi} ⨍_{0}^{\infty} \frac{\xi\,\chi_\mathrm{i}(\xi)}{\xi^2 - \omega^2}\,\mathrm{d}\xi$$

$$\chi_\mathrm{i}(\omega) = -\frac{1}{\pi} ⨍_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi_\mathrm{r}(\xi)}{\xi - \omega}\,\mathrm{d}\xi + \frac{\sigma_\mathrm{r}(0)}{\epsilon_0\omega} \qquad \text{nebo} \qquad \chi_\mathrm{i}(\omega) = -\frac{2}{\pi} ⨍_{0}^{\infty} \frac{\xi\,\chi_\mathrm{r}(\xi)}{\xi^2 - \omega^2}\,\mathrm{d}\xi + \frac{\sigma_\mathrm{r}(0)}{\epsilon_0\omega}$$

3. **Sumační pravidla (f-sum rule):**

$$\int_0^\infty \omega\,\chi_\mathrm{i}(\omega)\,\mathrm{d}\omega = \frac{\pi}{2}\omega_\mathrm{p}^2 \qquad \int_0^\infty \chi_\mathrm{r}(\omega)\,\mathrm{d}\omega = -\frac{\pi}{2}\frac{\sigma_\mathrm{r}(0)}{\epsilon_0}$$

Konstanta ω_p se nazývaná plazmová frekvence.

$$\omega_\mathrm{p}^2 = \frac{e^2\mathcal{N}_\mathrm{e}}{\epsilon_0 m_\mathrm{e}}$$

Tato konstanta je úměrná hustotě elektronů $\mathcal{N}_\mathrm{e}$. Pouze v řídkém plazmatu tato frekvence má specifický význam hranice, kdy plazma je opticky průhledné.

Obsah

Dielektrická odezva

Tradičně se vyjde z Maxwellovy teorie a předpokládá se homogenní prostředí bez znalosti částicové podstaty hmoty. Prostředí je nutné definovat kvazineutrální s nabitými částicemi homogenně rozprostřenými v prostoru s vnitřní strukturou mnohem menší než se prostorově mění elektromagnetické pole $a \ll \lambda$. Často v učebnicích uvidíme něco podobného

Makroskopické Maxwellovy rovnice

$$\mathrm{rot}\,\boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \qquad \mathrm{rot}\,\boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} \qquad \mathrm{div}\,\boldsymbol{D} = 0 \qquad \mathrm{div}\,\boldsymbol{B} = 0$$

Materiálové (konstitutivní) rovnice

$$\boldsymbol{D} = \epsilon_0\,\boldsymbol{\varepsilon}\,\boldsymbol{E} \qquad \boldsymbol{B} = \mu_0\,\boldsymbol{\mu}\,\boldsymbol{H}$$

- $\boldsymbol{E}$, $\boldsymbol{D}$ elektrická intenzita a indukce
- $\boldsymbol{H}$, $\boldsymbol{B}$ magnetická intenzita a indukce
- $\boldsymbol{\varepsilon}$, $\boldsymbol{\mu}$ relativní permitivita a permeabilita

Jaké matematické objekty to jsou?

Dielektrická odezva

Tradičně se vyjde z Maxwellovy teorie a předpokládá se homogenní prostředí bez znalosti částicové podstaty hmoty. Prostředí je nutné definovat kvazineutrální s nabitými částicemi homogenně rozprostřenými v prostoru s vnitřní strukturou mnohem menší než se prostorově mění elektromagnetické pole $a \ll \lambda$. Často v učebnicích uvidíme něco podobného

Makroskopické Maxwellovy rovnice

$$\mathrm{rot}\,\boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \qquad \mathrm{rot}\,\boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} \qquad \mathrm{div}\,\boldsymbol{D} = 0 \qquad \mathrm{div}\,\boldsymbol{B} = 0$$

Materiálové (konstitutivní) rovnice

$$\boldsymbol{D} = \epsilon_0\,\boldsymbol{\varepsilon}\,\boldsymbol{E} \qquad \boldsymbol{B} = \mu_0\,\boldsymbol{\mu}\,\boldsymbol{H}$$

- $\boldsymbol{E}$, $\boldsymbol{D}$ elektrická intenzita a indukce
- $\boldsymbol{H}$, $\boldsymbol{B}$ magnetická intenzita a indukce
- $\boldsymbol{\varepsilon}$, $\boldsymbol{\mu}$ relativní permitivita a permeabilita

Jaké matematické objekty to jsou? Je nutné v tom udělat pořádek.
Pro statické pole:

$$\boldsymbol{D} = \epsilon_0\,\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{r}\,\boldsymbol{E} \qquad \boldsymbol{B} = \mu_0\,\boldsymbol{\mu}_\mathrm{r}\,\boldsymbol{H}$$

Dielektrická odezva

Abychom MatR mohli napsat v tomto tvaru, musíme předpokládat řešení MaxR v superpozici rovinných harmonických vln:

$$\boldsymbol{E}(t,\boldsymbol{r}) = \Re\left\{\iiint_{-\infty}^{\infty}\int_{0}^{\infty}\hat{\boldsymbol{E}}(\omega,\boldsymbol{k})\exp[\mathrm{i}(\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}-\omega t)]\,\mathrm{d}\omega\mathrm{d}^3\boldsymbol{k}\right\}$$

Potom MatR je možné psát pro komplexní komponenty pole následovně

$$\hat{\boldsymbol{D}}(\omega,\boldsymbol{k}) = \epsilon_0\,\hat{\boldsymbol{\varepsilon}}\,\hat{\boldsymbol{E}}(\omega,\boldsymbol{k}) \qquad \hat{\boldsymbol{B}}(\omega,\boldsymbol{k}) = \mu_0\,\hat{\boldsymbol{\mu}}\,\hat{\boldsymbol{H}}(\omega,\boldsymbol{k})$$

Což ale nejde v případě absorbujícího prostředí, protože v tomto případě řešení MaxR jsou tlumené rovinné harmonické vlny.

- Tlumené vlny jsou ale charakterizované frekvencí ω a komplexním vektorem $\hat{\boldsymbol{k}}$.
- Popis pomocí netlumených harmonických vln je možný pouze v případě prostředí nevykazující disipaci nebo pro vakuum.
- Potom je možné místo popisu MaxR v přímém časoprostoru $(t,\boldsymbol{r})$ přejít k popisu v reciprokém prostoru pomocí $(\omega,\boldsymbol{k})$.

Dielektrická odezva

Maxwellovy rovnice ve vakuu

$$\mathrm{rot}\, \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \qquad \mathrm{rot}\, \boldsymbol{B} = \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \boldsymbol{E}}{\partial t} \qquad \mathrm{div}\, \boldsymbol{E} = 0 \qquad \mathrm{div}\, \boldsymbol{B} = 0$$

Vlnová rovnice

$$\triangle \boldsymbol{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial t^2} = 0 \qquad \frac{1}{c^2} = \mu_0 \epsilon_0$$

Lze zavést **Fourierovu transformaci**

$$\hat{\boldsymbol{E}}(\omega, \boldsymbol{k}) = \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{E}(t, \boldsymbol{r}) \exp[-\mathrm{i}(\boldsymbol{k}\, \boldsymbol{r} - \omega t)]\, \mathrm{d}^3 r\, \mathrm{d}t$$

Dielektrická odezva

Maxwellovy rovnice ve vakuu

$$\operatorname{rot}\boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \qquad \operatorname{rot}\boldsymbol{B} = \mu_0\epsilon_0\frac{\partial \boldsymbol{E}}{\partial t} \qquad \operatorname{div}\boldsymbol{E} = 0 \qquad \operatorname{div}\boldsymbol{B} = 0$$

Vlnová rovnice

$$\triangle\boldsymbol{E} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\boldsymbol{E}}{\partial t^2} = 0 \qquad \frac{1}{c^2} = \mu_0\epsilon_0$$

Lze zavést **Fourierovu transformaci**

$$\hat{\boldsymbol{E}}(\omega,\boldsymbol{k}) = \iiiint_{-\infty}^{\infty}\boldsymbol{E}(t,\boldsymbol{r})\exp[-\mathrm{i}(\boldsymbol{k}\,\boldsymbol{r}-\omega t)]\;\mathrm{d}^3r\;\mathrm{d}t$$

a psát MaxR a Vlnovou rovnici v reciprokém prostoru následovně

$$\boldsymbol{k}\times\hat{\boldsymbol{E}} = \omega\hat{\boldsymbol{B}} \qquad \boldsymbol{k}\times\hat{\boldsymbol{B}} = -\frac{\omega}{c^2}\hat{\boldsymbol{E}} \qquad \boldsymbol{k}\,\hat{\boldsymbol{E}} = 0 \qquad \boldsymbol{k}\,\hat{\boldsymbol{B}} = 0$$

$$\boldsymbol{k}\times(\boldsymbol{k}\times\hat{\boldsymbol{E}}) + \frac{\omega^2}{c^2}\hat{\boldsymbol{E}} = 0 \qquad \boldsymbol{k} = \frac{\omega}{c}\boldsymbol{\nu}$$

$\boldsymbol{\nu}$ směrový vektor

Dielektrická odezva

Mikroskopické Maxwellovy rovnice

$$\operatorname{rot} \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \qquad \operatorname{rot} \boldsymbol{B} = \mu_0 \left(\epsilon_0 \frac{\partial \boldsymbol{E}}{\partial t} + \boldsymbol{j} \right) \qquad \operatorname{div} \boldsymbol{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \qquad \operatorname{div} \boldsymbol{B} = 0$$

- $\rho(t, \boldsymbol{r})$ hustota náboje
- $\boldsymbol{j}(t, \boldsymbol{r})$ hustota elektrického proudu

Rovnice kontinuity

$$\operatorname{div} \boldsymbol{j} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$$

Rigorózní řešení je velmi komplikované a zahrnuje všechny efekty interakce světla (elektromagnetického pole) s nabitými částicemi v hmotném prostředí.

Makroskopické Maxwellovy rovnice zapsané pomocí pomocných polí

$$\operatorname{rot} \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t} \qquad \operatorname{rot} \boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t} \qquad \operatorname{div} \boldsymbol{D} = 0 \qquad \operatorname{div} \boldsymbol{B} = 0$$

- Jelikož EM pole je aditivní, řešení můžeme rozdělit na jednotlivé efekty a zavést jisté omezující předpoklady.
- Omezíme se na tzv. **Lineární dielektrickou odezvu**.

Dielektrická odezva

Lineární dielektrická odezva se dá zavést tak, že předpokládáme řešení MaxR v superpozici **tlumených harmonických vln**.

Makroskopické Maxwellovy rovnice v analyticky rozšířeném reciprokém prostoru

$$\hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{E}} = \omega \hat{\boldsymbol{B}} \qquad \hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{H}} = -\omega \hat{\boldsymbol{D}} \qquad \hat{\boldsymbol{k}}\,\hat{\boldsymbol{D}} = 0 \qquad \hat{\boldsymbol{k}}\,\hat{\boldsymbol{B}} = 0$$

se zapsat do vlnové rovnice

$$\hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{\mu}}^{-1}(\hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{E}}) + \frac{\omega^2}{c^2}\,\hat{\boldsymbol{\varepsilon}}\,\hat{\boldsymbol{E}} = \boldsymbol{0}$$

když vztah mezi původními poli $\hat{\boldsymbol{E}}$, $\hat{\boldsymbol{B}}$ a pomocnými poli $\hat{\boldsymbol{D}}$, $\hat{\boldsymbol{H}}$ je lineární.

Dielektrická odezva

Lineární dielektrická odezva se dá zavést tak, že předpokládáme řešení MaxR v superpozici **tlumených harmonických vln**.

Makroskopické Maxwellovy rovnice v analyticky rozšířeném reciprokém prostoru

$$\hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{E}} = \omega \hat{\boldsymbol{B}} \qquad \hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{H}} = -\omega \hat{\boldsymbol{D}} \qquad \hat{\boldsymbol{k}}\, \hat{\boldsymbol{D}} = 0 \qquad \hat{\boldsymbol{k}}\, \hat{\boldsymbol{B}} = 0$$

se zapsat do vlnové rovnice

$$\hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{\mu}}^{-1} (\hat{\boldsymbol{k}} \times \hat{\boldsymbol{E}}) + \frac{\omega^2}{c^2}\, \hat{\boldsymbol{\varepsilon}}\, \hat{\boldsymbol{E}} = \boldsymbol{0}$$

když vztah mezi původními poli $\hat{\boldsymbol{E}}$, $\hat{\boldsymbol{B}}$ a pomocnými poli $\hat{\boldsymbol{D}}$, $\hat{\boldsymbol{H}}$ je lineární.

Tradičně se tyto lineární vztahy **MatR** definují následovně:

$$\hat{\boldsymbol{D}}(\omega, \hat{\boldsymbol{k}}) = \epsilon_0\, \hat{\boldsymbol{\varepsilon}}\, \hat{\boldsymbol{E}}(\omega, \hat{\boldsymbol{k}}) \qquad \hat{\boldsymbol{B}}(\omega, \hat{\boldsymbol{k}}) = \mu_0\, \hat{\boldsymbol{\mu}}\, \hat{\boldsymbol{H}}(\omega, \hat{\boldsymbol{k}})$$

- Pro optické frekvence je možné magnetizaci zanedbat $\hat{\boldsymbol{\mu}} = \boldsymbol{1}$.

Dielektrická odezva

MatR vyjadřují jednoduše lineární vztahy mezi poli pouze pro spektrální komponenty harmonických funkcí (analyticky rozšířené Fourierovské obrazy):

$$\hat{\boldsymbol{D}} = \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{E}} + \hat{\boldsymbol{P}} \approx \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{E}} + \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{\chi}} \hat{\boldsymbol{E}} = \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{\varepsilon}} \hat{\boldsymbol{E}} \qquad \mathbf{1} + \hat{\boldsymbol{\chi}} = \hat{\boldsymbol{\varepsilon}}$$

Lze ukázat, že v přímém prostoru tento vztah je vyjádřen pomocí integrální rovnice

$$\boldsymbol{P}(t, \boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\chi}(t - \tau, \boldsymbol{r} - \boldsymbol{\rho}) \, \boldsymbol{E}(\tau, \boldsymbol{\rho}) \, \mathrm{d}^3 \boldsymbol{\rho} \mathrm{d}\tau$$

a že vztah mezi reálnou susceptibilitou $\boldsymbol{\chi}$ a komplexní susceptibilitou $\hat{\boldsymbol{\chi}}$ je Fourierova transformace

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega, \boldsymbol{k}_\mathrm{r}) = \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\chi}(t, \boldsymbol{r}) \exp[-\mathrm{i}(\boldsymbol{k}_\mathrm{r}\boldsymbol{r} - \omega t)] \, \mathrm{d}^3 \boldsymbol{r} \, \mathrm{d}t$$

Dielektrická odezva

MatR vyjadřují jednoduše lineární vztahy mezi poli pouze pro spektrální komponenty harmonických funkcí (analyticky rozšířené Fourierovské obrazy):

$$\hat{\boldsymbol{D}} = \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{E}} + \hat{\boldsymbol{P}} \approx \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{E}} + \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{\chi}} \hat{\boldsymbol{E}} = \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{\varepsilon}} \hat{\boldsymbol{E}} \qquad \mathbf{1} + \hat{\boldsymbol{\chi}} = \hat{\boldsymbol{\varepsilon}}$$

Lze ukázat, že v přímém prostoru tento vztah je vyjádřen pomocí integrální rovnice

$$\boldsymbol{P}(t, \boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\chi}(t - \tau, \boldsymbol{r} - \boldsymbol{\rho}) \, \boldsymbol{E}(\tau, \boldsymbol{\rho}) \, \mathrm{d}^3\boldsymbol{\rho} \mathrm{d}\tau$$

a že vztah mezi reálnou susceptibilitou $\boldsymbol{\chi}$ a komplexní susceptibilitou $\hat{\boldsymbol{\chi}}$ je Fourierova transformace

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega, \boldsymbol{k}_\mathrm{r}) = \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\chi}(t, \boldsymbol{r}) \exp[-\mathrm{i}(\boldsymbol{k}_\mathrm{r}\boldsymbol{r} - \omega t)] \, \mathrm{d}^3\boldsymbol{r} \, \mathrm{d}t$$

Na čem tedy závisí komplexní susceptibilita $\hat{\boldsymbol{\chi}}$?
Zde je vidět rozpor.

- Fourierova transformace nám dává předpis jak transformovat reálnou susceptibilitu $\boldsymbol{\chi}$ do reciprokých souřadnic, kde vystupuje pouze reálný vlnový vektor $\boldsymbol{k}_\mathrm{r}$.
- Řešení MaxR závisí na komplexním vlnovém vektoru $\hat{\boldsymbol{k}}$.

Dielektrická odezva

Je nutné si uvědomit, že obecný lineární vztah dielektrické odezvy se dá napsat následovně

$$\boldsymbol{P}(t,\boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint \boldsymbol{\chi}(t,\tau,\boldsymbol{r},\boldsymbol{\rho})\,\boldsymbol{E}(\tau,\boldsymbol{\rho})\,\mathrm{d}\tau\mathrm{d}^3\boldsymbol{\rho}$$

a ne jak je definovaná **lineární dielektrická odezva**

$$\boldsymbol{P}(t,\boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\chi}(t-\tau,\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\rho})\;\boldsymbol{E}(\tau,\boldsymbol{\rho})\;\mathrm{d}^3\boldsymbol{\rho}\mathrm{d}\tau$$

Lineární dielektrická odezva (LDR) je do značné míry naše volba a jak se ukazuje, jsou v zásadě dvě možné definice jak z praktického hlediska ji definovat.

Dielektrická odezva

Je nutné si uvědomit, že obecný lineární vztah dielektrické odezvy se dá napsat následovně

$$\boldsymbol{P}(t,\boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint \boldsymbol{\chi}(t,\tau,\boldsymbol{r},\boldsymbol{\rho})\,\boldsymbol{E}(\tau,\boldsymbol{\rho})\,\mathrm{d}\tau\mathrm{d}^3\boldsymbol{\rho}$$

a ne jak je definovaná **lineární dielektrická odezva**

$$\boldsymbol{P}(t,\boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint_{-\infty}^{\infty} \boldsymbol{\chi}(t-\tau,\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\rho})\;\boldsymbol{E}(\tau,\boldsymbol{\rho})\;\mathrm{d}^3\boldsymbol{\rho}\mathrm{d}\tau$$

Lineární dielektrická odezva (LDR) je do značné míry naše volba a jak se ukazuje, jsou v zásadě dvě možné definice jak z praktického hlediska ji definovat.

- LDR bez prostorové disperze

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega,\boldsymbol{k}_\mathrm{r}) \equiv \hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega)$$

- LDR s prostorovou disperzí

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega,\boldsymbol{k}_\mathrm{r}) \equiv \hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega,\nu)$$

  kde ν je **směrový vektor**

$$\nu = \frac{\boldsymbol{k}_\mathrm{r}}{|\boldsymbol{k}_\mathrm{r}|}$$

Obsah

Lokální dielektrická odezva

První případ odpovídá **lokální dielektrické odezvě**.

$$\boldsymbol{P}(t,\boldsymbol{r}) = \epsilon_0 \iiiint \boldsymbol{\chi}(t,\tau,\boldsymbol{r},\boldsymbol{\rho})\,\boldsymbol{E}(\tau,\boldsymbol{\rho})\,\mathrm{d}\tau\mathrm{d}^3\boldsymbol{\rho}$$

Tři předpoklady:

1. Lokálnost – zrušíme integraci přes okolní body $\boldsymbol{\rho}$: $\boldsymbol{\chi}(t,\tau,\boldsymbol{r},\boldsymbol{\rho}) = \boldsymbol{\chi}(t,\tau)\delta(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{\rho})$
2. Kauzalita – $\boldsymbol{\chi}(t,\tau) = 0$ pro $t < \tau$
3. Uniformní plynutí času – $(t,\tau) \to (t-\tau)$

tj. tedy polarizace $\boldsymbol{P}$ závisí pouze na historii pole $\boldsymbol{E}$ v bodě $\boldsymbol{r}$. V jistém bodě $\boldsymbol{r}$ můžeme psát pro časový rozvoj a Fourierovské obrazy:

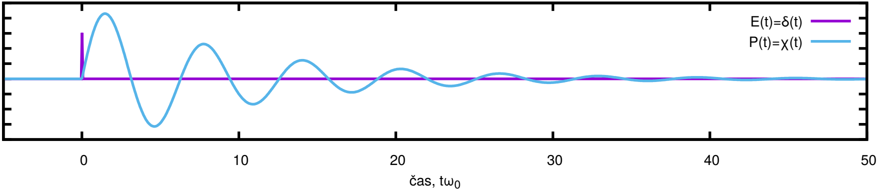
$$\boldsymbol{P}(t) = \epsilon_0 \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau)\,\boldsymbol{E}(\tau)\,\mathrm{d}\tau \qquad \overset{\mathrm{FT}}{\Longleftrightarrow} \qquad \hat{\boldsymbol{P}}(\omega) = \epsilon_0 \hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega)\,\hat{\boldsymbol{E}}(\omega)$$

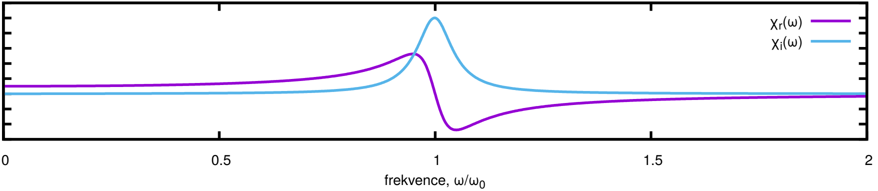
$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau)\exp\left[\mathrm{i}\omega(t-\tau)\right]\,\mathrm{d}t$$

Funkce $\boldsymbol{\chi}(t)$ je **Greenova funkce**.

Lokální dielektrická odezva

- $\boldsymbol{P}(t)$, $\boldsymbol{E}(t)$, $\boldsymbol{\chi}(t-\tau)$ – reálné funkce (tenzory)
- $\hat{\boldsymbol{P}}(\omega)$, $\hat{\boldsymbol{E}}(\omega)$, $\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega)$ – komplexní funkce (tenzory)





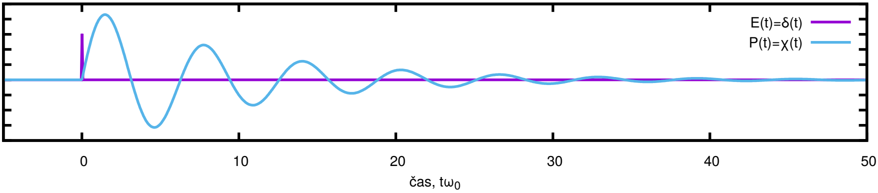
$$E(t) \sim \delta(t) \qquad P(t) \sim \sin(\omega_0 t)\exp(-t/\tau_0)\,\Theta(t) \qquad \hat{\chi}(\omega) \sim \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - \mathrm{i}\omega/\tau_0} \qquad \tau_0\omega_0 = 10$$

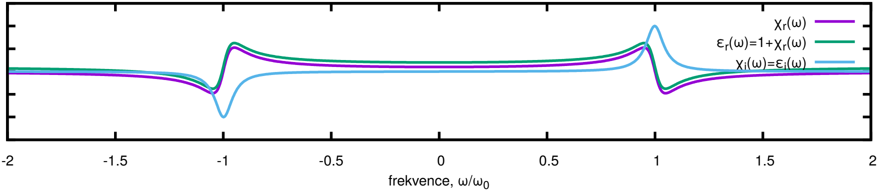
Obsah

Časově reverzní symetrie

Protože $\chi(t)$ je reálná funkce, pro Fourierovský obraz platí:

$$\hat{\chi}(\omega) = \int \chi(t-\tau) \exp\left[\mathrm{i}\omega(t-\tau)\right] \,\mathrm{d}t \quad \Longrightarrow \quad \hat{\chi}(\omega) = \hat{\chi}^*(-\omega) \quad \text{resp.} \quad \hat{\varepsilon}(\omega) = \hat{\varepsilon}^*(-\omega)$$





Proč se tomu ale tak říká?

Obsah

Kramers–Kronigovy relace

Analytické rozšíření:

$$\omega \to \hat{\omega} = \xi + \mathrm{i}\zeta \qquad \Longrightarrow \qquad \hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega}) = \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau) \exp\left[\mathrm{i}\xi(t-\tau)\right] \exp\left[-\zeta(t-\tau)\right] \mathrm{d}t$$

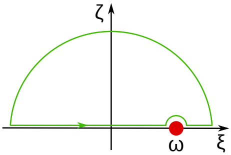
- V případě nevodivých materiálů platí, že $\boldsymbol{\chi}(t)$ je analytická funkce, omezená pro $\zeta \geq 0$.
- V případě vodivých materiálů toto neplatí a je nutno postupovat trochu odlišně. Výsledné KK relace jsou poněkud odlišné.
- Tedy výsledky zde prezentované budou platit pouze pro materiály s vázanými náboji (dielektrika).

Kramers–Kronigovy relace

Analytické rozšíření:

$$\omega \to \hat{\omega} = \xi + \mathrm{i}\zeta \qquad \Longrightarrow \qquad \hat{\chi}(\hat{\omega}) = \int \chi(t-\tau) \exp\left[\mathrm{i}\xi(t-\tau)\right] \exp\left[-\zeta(t-\tau)\right] \mathrm{d}t$$

Použijeme Cauchyho teorém, kdy z kauzality nám vyplyne jak máme integrovat:



$$\oint \frac{\hat{\chi}(\hat{\omega})}{\hat{\omega}-\omega} \mathrm{d}\hat{\omega} = \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\chi}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi - \mathrm{i}\pi\hat{\chi}(\omega) = 0$$

$$\hat{\chi}(\omega) = \frac{1}{\mathrm{i}\pi} \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\chi}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi$$

$$\chi_{\mathrm{r}}(\omega) = \frac{1}{\pi} \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi$$

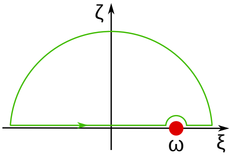
$$\chi_{\mathrm{i}}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi_{\mathrm{r}}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi$$

Kramers–Kronigovy relace

Analytické rozšíření:

$$\omega \to \hat{\omega} = \xi + \mathrm{i}\zeta \qquad \Longrightarrow \qquad \hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega}) = \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau) \exp\left[\mathrm{i}\xi(t-\tau)\right] \exp\left[-\zeta(t-\tau)\right] \,\mathrm{d}t$$

Použijeme Cauchyho teorém, kdy z kauzality nám vyplyne jak máme integrovat:



$$\oint \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega})}{\hat{\omega}-\omega}\mathrm{d}\hat{\omega} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi - \mathrm{i}\pi\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = 0$$

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \frac{1}{\mathrm{i}\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{r}}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

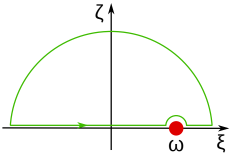
$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\omega) = -\frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{r}}(\xi)-\mathbf{1}}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

Kramers–Kronigovy relace

Analytické rozšíření:

$$\omega \to \hat{\omega} = \xi + \mathrm{i}\zeta \qquad \Longrightarrow \qquad \hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega}) = \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau) \exp\left[\mathrm{i}\xi(t-\tau)\right] \exp\left[-\zeta(t-\tau)\right] \,\mathrm{d}t$$

Použijeme Cauchyho teorém, kdy z kauzality nám vyplyne jak máme integrovat:



$$\oint \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega})}{\hat{\omega}-\omega}\mathrm{d}\hat{\omega} = \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi - \mathrm{i}\pi\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = 0$$

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \frac{1}{\mathrm{i}\pi}\fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{r}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{1}{\pi}\fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{i}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

Protože zároveň platí, že $\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{i}$ je tenzor z lichých funkcí můžeme KK integrály převést pouze na integraci přes kladné hodnoty:

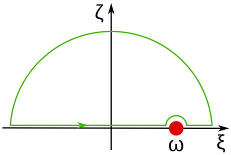
$$\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{r}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{1}{\pi}\fint_{0}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{i}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi + \frac{1}{\pi}\fint_{-\infty}^{0} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{i}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

Kramers–Kronigovy relace

Analytické rozšíření:

$$\omega \to \hat{\omega} = \xi + \mathrm{i}\zeta \qquad \Longrightarrow \qquad \hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega}) = \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau)\exp\left[\mathrm{i}\xi(t-\tau)\right]\,\exp\left[-\zeta(t-\tau)\right]\,\mathrm{d}t$$

Použijeme Cauchyho teorém, kdy z kauzality nám vyplyne jak máme integrovat:



$$\oint \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega})}{\hat{\omega}-\omega}\mathrm{d}\hat{\omega} = \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi - \mathrm{i}\pi\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = 0$$

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \frac{1}{\mathrm{i}\pi}\fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{r}}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{1}{\pi}\fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$

Protože zároveň platí, že $\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}$ je tenzor z lichých funkcí můžeme KK integrály převést pouze na integraci přes kladné hodnoty:

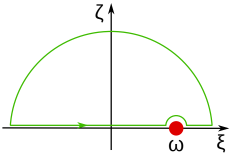
$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{r}}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{1}{\pi}\fint_{0}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi + \frac{1}{\pi}\fint_{0}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi+\omega}\mathrm{d}\xi$$

Kramers–Kronigovy relace

Analytické rozšíření:

$$\omega \to \hat{\omega} = \xi + \mathrm{i}\zeta \qquad \Longrightarrow \qquad \hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega}) = \int \boldsymbol{\chi}(t-\tau) \exp\left[\mathrm{i}\xi(t-\tau)\right] \exp\left[-\zeta(t-\tau)\right] \, \mathrm{d}t$$

Použijeme Cauchyho teorém, kdy z kauzality nám vyplyne jak máme integrovat:



$$\oint \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\hat{\omega})}{\hat{\omega}-\omega} \mathrm{d}\hat{\omega} = \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi - \mathrm{i}\pi \hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = 0$$

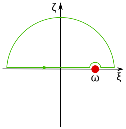
$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \frac{1}{\mathrm{i}\pi} \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{r}}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{1}{\pi} \fint_{-\infty}^{\infty} \frac{\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi-\omega} \mathrm{d}\xi$$

Protože zároveň platí, že $\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}$ je tenzor z lichých funkcí můžeme KK integrály převést pouze na integraci přes kladné hodnoty:

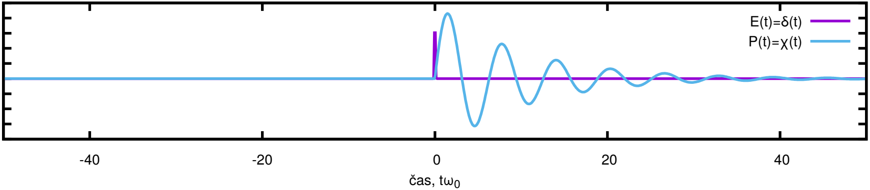
$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{r}}(\omega) = \mathbf{1} + \frac{2}{\pi} \fint_{0}^{\infty} \frac{\xi \, \boldsymbol{\varepsilon}_{\mathrm{i}}(\xi)}{\xi^2-\omega^2} \mathrm{d}\xi$$

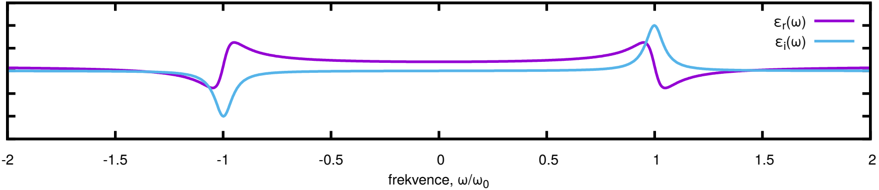
Kramers–Kronigovy relace



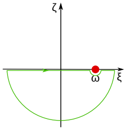
$$\chi(t) \sim \sin(\omega_0 t)\exp(-t/\tau_0)\,\Theta(t)$$ retardovaná Greenova funkce

$$\hat{\chi}(\omega) = \frac{1}{\mathrm{i}\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\hat{\chi}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$ KK reprezentují normální běh času



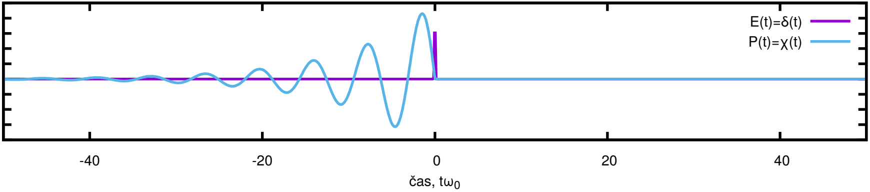


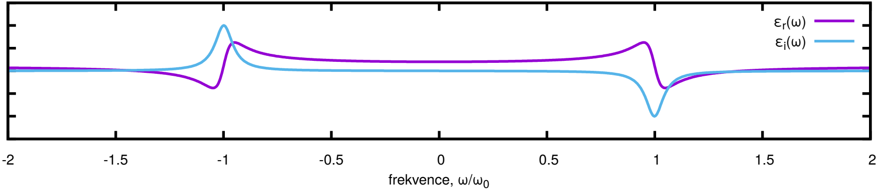
Kramers–Kronigovy relace



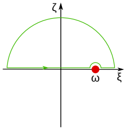
$$\chi(t) \sim -\sin(\omega_0 t)\exp(t/\tau_0)\,\Theta(-t)$$ advancovaná Greenova funkce

$$\hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \frac{-1}{\mathrm{i}\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\hat{\boldsymbol{\chi}}(\xi)}{\xi-\omega}\mathrm{d}\xi$$ otočení času $\Longrightarrow \hat{\boldsymbol{\chi}}(\omega) = \hat{\boldsymbol{\chi}}^*(-\omega)$

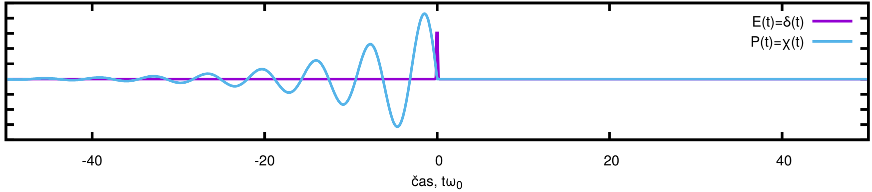


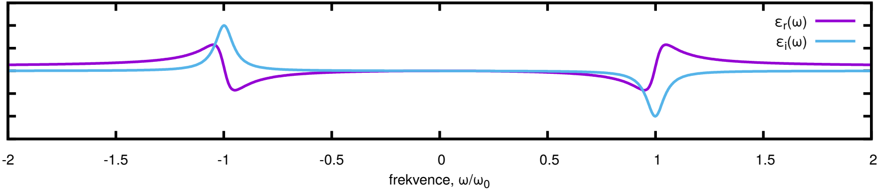


Kramers–Kronigovy relace



Kdyby odezva byla popsána advanceovanou Greenovou funkcí, ale běh času byl přirozený (integrujeme v horní polorovině) dostaneme též fyzikálně přípustné řešení (emise), které je stejně pravděpodobné jako absorpční procesy. Kdyby ale absorpční procesy byly stejně pravděpodobné jako emisní procesy $\Longrightarrow$ **neexistovala by dielektrická odezva!**





Obsah

Sumační pravidlo

Teorém superkonvergence:

$$g(y) = \fint_0^\infty \frac{f(x)}{y^2 - x^2}\mathrm{d}x \qquad \text{když } f(x) \text{ klesá rychleji než } 1/x$$

tak pro velké y platí, že $g(y) \to 1/y^2$:

$$g(y) = \frac{1}{y^2}\int_0^\infty f(x)\mathrm{d}x + O\left(\frac{1}{y^2}\right)$$

Když $f(x) \to \xi\varepsilon_\mathrm{i}(\xi)$ a $g(y) \to \varepsilon_\mathrm{r}(\omega) - 1$ tak Kramers–Kronigovy relace a teorém superkonvergence vedou:

$$\int_0^\infty \omega\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{i}(\omega)\mathrm{d}\omega = \text{konst. tenzor}$$

Abychom zjistili velikost této konstanty, tak musíme použít pohybové rovnice pro náboje způsobující polarizaci prostředí. Z klasické fyziky nebo pomocí dipólové aproximace z kvantové mechaniky můžeme dostat:

$$\int_0^\infty \omega\boldsymbol{\varepsilon}_\mathrm{i}(\omega)\mathrm{d}\omega = \frac{\pi}{2}\omega_\mathrm{p}^2\mathbf{1}$$

Shrnutí tří základních podmínek

- Časově reverzní symetrie – tato základní podmínka je univerzální.
- Tady prezentované Kramers–Kronigovy relace a sumační pravidlo nezahrnují vodivé materiály a zanedbávají prostorovou disperzi. Kramers–Kronigovy relace a sumační pravidlo zahrnující vodivost a prostorovou disperzi (optickou aktivitu) jsou podobné, ale trochu složitější.
- Kramers–Kronigovy relace ve spektrální oblasti, která nás zajímá platí s dostatečnou přesností. Pro vlnové délky světla $\lambda \approx a$ je otázka jestli má smysl definovat dielektrickou funkci.
- Mnohem větší problémy nastanou při ověřování platnosti sumačních pravidel, protože platí pouze jako celek, tedy je nutné integrovat i do rentgenové oblasti spektra.
- Přes všechny problémy s platností podmínek v rentgenové oblasti, v našich disperzních modelech předpokládáme platnost všech třech základních podmínek pro dielektrickou odezvu.