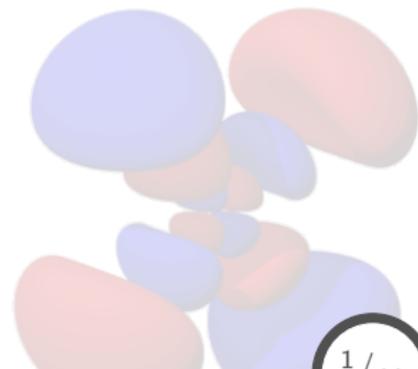


4. Propiedades dieléctricas



Contenido: Tema 04

4. Propiedades dieléctricas

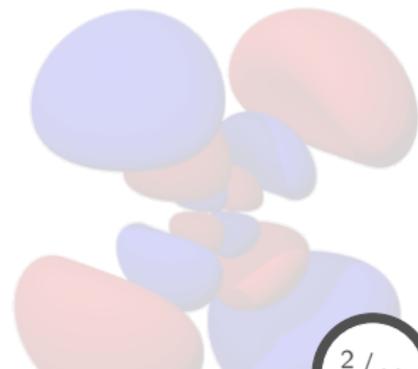
4.1 Función dieléctrica

4.2 Cristal iónico: momento dipolar

4.3 Propiedades de un cristal iónico: modos normales y reflectividad

4.4 Campo local y ferroeléctricos

4.5 Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores



Contenido: Tema 04

4. Propiedades dieléctricas

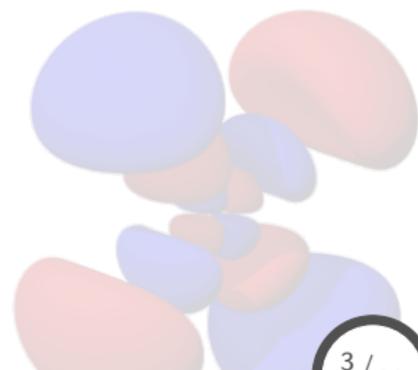
4.1 Función dieléctrica

4.2 Cristal iónico: momento dipolar

4.3 Propiedades de un cristal iónico: modos normales y reflectividad

4.4 Campo local y ferroeléctricos

4.5 Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores



Función dieléctrica

Fundamentos

El **campo eléctrico** aplicado a un sólido tienen dos tipos de efectos:

- Inducción de un flujo de portadores de carga *cuasi-libres*: fenómeno de **conductividad eléctrica** \Rightarrow conductividad σ .
- Desplazamientos espaciales de cargas locales: formación de **momentos dipolares** locales.

Ambos procesos se pueden describir analizando las ecuaciones de Maxwell macroscópicas,

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t},$$

en donde además se puede utilizar la **ley de Ohm**, para expresar la densidad de corriente de los portadores de carga en bandas parcialmente llenas:

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}.$$

Función dieléctrica

Fundamentos

En general, los campos \mathbf{E} , \mathbf{D} , \mathbf{B} y \mathbf{H} son **dependientes** del tiempo, por tanto podemos expresarlos en términos de sus transformadas de Fourier,

$$\mathbf{E}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad \mathbf{D}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{D}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega,$$

y como $\mathbf{E}(t)$ y $\mathbf{D}(t)$ son reales, por tanto se cumple:

$$\mathbf{E}(\omega) = \mathbf{E}^*(-\omega), \quad \mathbf{D}(\omega) = \mathbf{D}^*(-\omega).$$

Las transformadas de Fourier del campo eléctrico \mathbf{E} y el desplazamiento dieléctrico \mathbf{D} están relacionadas mediante la **función dieléctrica** $\varepsilon_0\varepsilon(\omega)$,

$$\mathbf{D}(\omega) = \varepsilon_0\varepsilon(\omega)\mathbf{E}(\omega),$$

por lo que las propiedades relacionadas con ε se les conoce como **propiedades dieléctricas**.

Función dieléctrica

Variación espectral de $\epsilon(\omega)$

En la ecuación de Ampère,

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t},$$

si consideramos la naturaleza oscilatoria de los campos armónicos, $\mathbf{E}(t) \rightarrow \mathbf{E}(\omega)$ y $\mathbf{D}(t) \rightarrow \mathbf{D}(\omega)$ entonces podemos expresarla como:

$$\nabla \times \mathbf{H}(\omega) = \sigma \mathbf{E}(\omega) - i\omega \epsilon_0 \epsilon(\omega) \mathbf{E}(\omega).$$

Definiendo ahora una **conductividad generalizada** dependiente de la frecuencia que tome en cuenta los efectos dieléctricos,

$$\tilde{\sigma} = \sigma - i\omega \epsilon_0 \epsilon \rightarrow \nabla \times \mathbf{H}(\omega) = \tilde{\sigma} \mathbf{E}(\omega).$$

De igual manera definimos la **función dieléctrica generalizada**,

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon(\omega) + \frac{i\sigma}{\omega} \rightarrow \nabla \times \mathbf{H}(\omega) = -i\omega \epsilon_0 \tilde{\epsilon}(\omega) \mathbf{E}(\omega) = -i\omega \tilde{\mathbf{D}}(\omega).$$

Función dieléctrica

Variación espectral de $\varepsilon(\omega)$

Consideraciones

- En general \mathbf{E} y \mathbf{D} poseen dependencia **espacial**, además de temporal $\Rightarrow \varepsilon(\omega, \mathbf{k})$. Sin embargo, nos centraremos en el **límite de longitud de onda larga**: $k \ll G$,

$$\Rightarrow \varepsilon(\omega, \mathbf{k}) \rightarrow \varepsilon(\omega).$$

- Se desestiman los **efectos no-locales**:

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) \not\propto \mathbf{E}(\mathbf{r}').$$

- La **constante dieléctrica** es una función compleja adimensional, tal que

$$\varepsilon^*(-\omega) = \varepsilon(\omega) \quad \forall \quad -\infty < \omega < \infty.$$

Función dieléctrica

Susceptibilidad dieléctrica

Para el caso en el cual se tiene **polarización** en el sistema,

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad \Rightarrow \quad \mathbf{P} = \mathbf{D} - \epsilon_0 \mathbf{E},$$

y utilizando la siguiente relación,

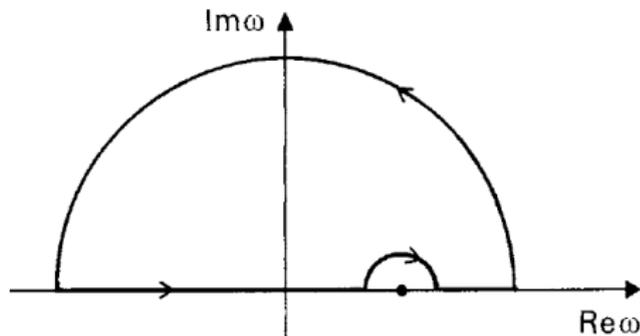
$$\mathbf{D}(\omega) = \epsilon_0 \epsilon(\omega) \mathbf{E}(\omega),$$

$$\text{se obtiene: } \mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \mathbf{E}(\omega),$$

en donde $\chi(\omega) = \epsilon(\omega) - 1$ es la **susceptibilidad dieléctrica**, la cual es una función analítica compleja.

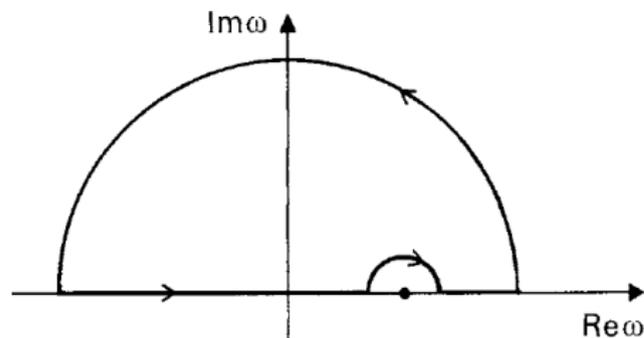
Si $\chi(\omega)$ se integra en el camino propuesto, se obtiene,

$$\oint \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' = 0.$$



Función dieléctrica

Relaciones de Kramers-Kronig



Si extendemos el semicírculo en el plano complejo, sólo dos contribuciones permanecerán:

- La parte del eje real,
- La integral alrededor del polo.

Traduciendo lo anterior a la integral compleja:

$$\oint_{R \rightarrow \infty} \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \rightarrow -i\pi\chi(\omega) + \int \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' = 0.$$

Si expresamos $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$, obtenemos:

$$\varepsilon_1(\omega) - 1 = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon_2(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega', \quad \varepsilon_2(\omega) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon_1(\omega') - 1}{\omega' - \omega} d\omega'.$$

las cuales se conocen como las relaciones de **Kramers-Kronig**, y que acoplan la parte real e imaginaria de la función **dieléctrica**.

Contenido: Tema 04

4. Propiedades dieléctricas

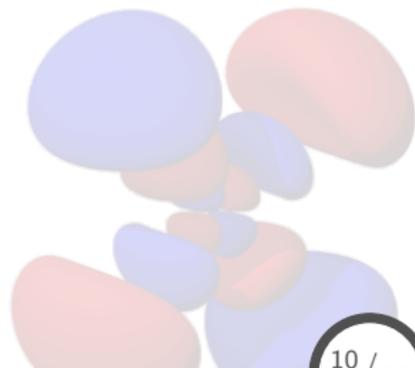
4.1 Función dieléctrica

4.2 **Cristal iónico: momento dipolar**

4.3 Propiedades de un cristal iónico: modos normales y reflectividad

4.4 Campo local y ferroeléctricos

4.5 Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores



Cristal iónico: momento dipolar

Función dieléctrica de un oscilador armónico

En un oscilador armónico, el desplazamiento u de la posición de equilibrio producirá un **momento dipolar**:

$$p = e^* u,$$

en donde e^* es la **carga iónica efectiva**, y el origen de tal momento dipolar dinámico es, por ejemplo, un corrimiento relativo de las subredes negativas y positivas en un cristal iónico.

Para obtener la **polarización**, producto del momento dipolar, analicemos la ecuación de movimiento bajo un campo aplicado E ,

$$\ddot{u} + \gamma \dot{u} = -\omega_0^2 u + \frac{e^*}{\mu} E,$$

donde:

- **Cte. de amortiguamiento** $\gamma > 0$, que representa la **vida media** del modo normal.
- **Frecuencia** del modo normal ω_0 , sin influencias externas.
- **Masa reducida** del sistema, μ .

Cristal iónico: momento dipolar

Función dieléctrica de un oscilador armónico

De igual manera, tenemos la expresión para la **polarización**,

$$P = \frac{N}{V} e^* u + \epsilon_0 \frac{N}{V} \alpha E,$$

- **Densidad** de partículas, N/V .
- **Polarizabilidad electrónica**, α .

Expresando la ecuación de movimiento y la polarización en el espacio de frecuencias,

$$\mathcal{X} \rightarrow \mathcal{X}(\omega) e^{-i\omega t} \quad \forall \mathcal{X} = u, E, P,$$

obtenemos,

$$u(\omega) \left(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega \right) = \frac{e^*}{\mu} E(\omega),$$

$$P(\omega) = \frac{N}{V} e^* u(\omega) + \epsilon_0 \frac{N}{V} \alpha E(\omega),$$

en donde se considera $\alpha \neq \alpha(\omega)$, cuando $\omega \sim \omega_0$.

Cristal iónico: momento dipolar

Función dieléctrica de un oscilador armónico

Relacionando ambas expresiones,

$$u(\omega) \left(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega \right) = \frac{e^*}{\mu} E(\omega),$$

$$P(\omega) = \frac{N}{V} e^* u(\omega) + \epsilon_0 \frac{N}{V} \alpha E(\omega),$$

$$\Rightarrow P(\omega) = \left(\frac{e^{*2}}{\mu} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} + \epsilon_0 \alpha \right) \frac{N}{V} E(\omega),$$

sin embargo, sabemos que:

$$P(\omega) = \epsilon_0 (\epsilon(\omega) - 1) E(\omega), \quad \forall \chi(\omega) = \epsilon(\omega) - 1,$$

$$\Rightarrow \epsilon_0 (\epsilon(\omega) - 1) = \left(\frac{e^{*2}}{\mu} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} + \epsilon_0 \alpha \right) \frac{N}{V},$$

$$\therefore \epsilon(\omega) = 1 + \frac{N}{V} \alpha + \frac{N}{V} \frac{e^{*2}}{\epsilon_0 \mu} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}.$$

Cristal iónico: momento dipolar

Función dieléctrica de un oscilador armónico

De la expresión anterior para la función dieléctrica, introducimos la **cte. dieléctrica estática**, $\epsilon_{st} = \epsilon(\omega = 0)$, así el límite de altas frecuencias, ϵ_{∞} :

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{N}{V}\alpha + \frac{N}{V} \frac{e^{*2}}{\epsilon_0 \mu} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega},$$
$$\Rightarrow \epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_{\infty})}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}.$$

Separando la ec. anterior en sus partes real e imaginaria:

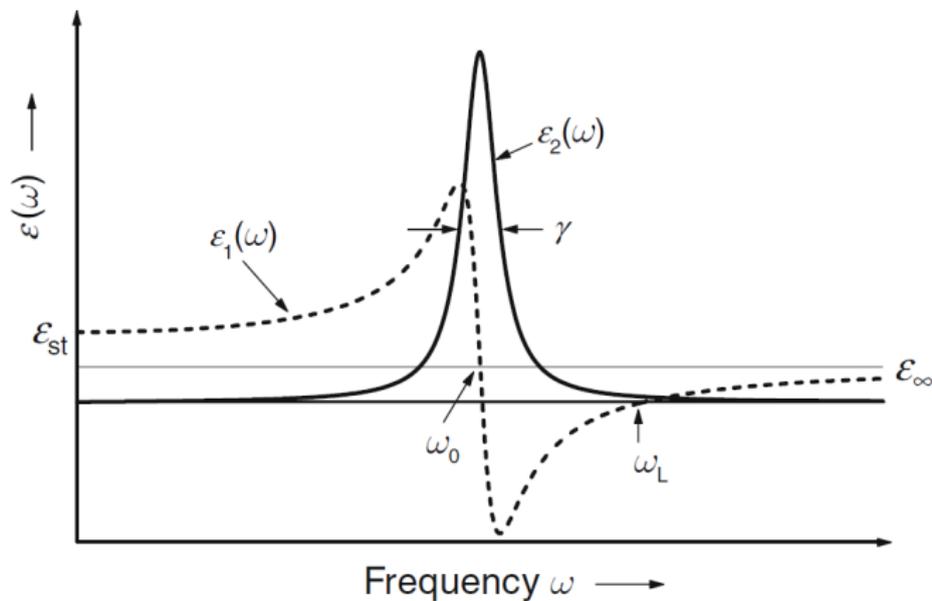
$$\epsilon_1(\omega) = \epsilon_{\infty} + \frac{\omega_0^2(\omega_0^2 - \omega)(\epsilon_{st} - \epsilon_{\infty})}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2},$$
$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\gamma\omega\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_{\infty})}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2}.$$

Cristal iónico: momento dipolar

Función dieléctrica de un oscilador armónico

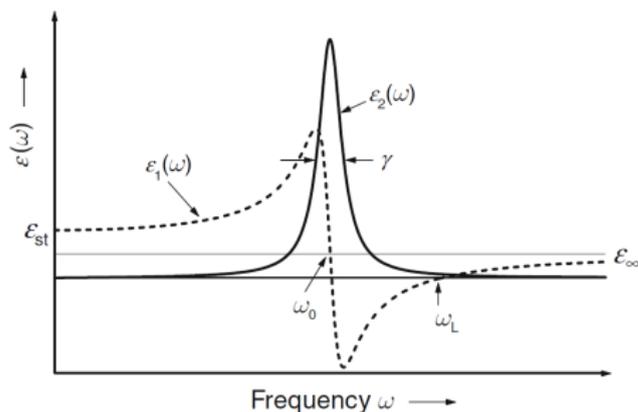
Graficando las ecs. anteriores,

$$\epsilon_1(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\omega_0^2(\omega_0^2 - \omega)(\epsilon_{st} - \epsilon_\infty)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2}, \quad \epsilon_2(\omega) = \frac{\gamma\omega\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_\infty)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (\gamma\omega)^2},$$



Cristal iónico: momento dipolar

Función dieléctrica de un oscilador armónico



Para γ **finito**, los valores de ω a los cuales $\epsilon_1(\omega)$ es cero son sólo aproximados a ω_0 y ω_L .

Por tanto, considerando $\gamma \ll \omega_0$, podemos aplicar:

$$\lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{1}{z - i\gamma} = \frac{1}{z} + i\pi\delta(z).$$

En este caso, tendríamos para $\epsilon(\omega)$,

$$\begin{aligned}\epsilon(\omega) &= \lim_{\gamma \rightarrow 0} \left[\epsilon_\infty + \frac{\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_\infty)}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \right] = \epsilon_\infty + \lim_{\gamma \rightarrow 0} \left[\frac{\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_\infty)/\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)/\omega - i\gamma} \right], \\ &= \epsilon_\infty + \frac{\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_\infty)}{\omega_0^2 - \omega^2} + \frac{i\pi\omega_0^2(\epsilon_{st} - \epsilon_\infty)}{2\omega} [\delta(\omega - \omega_0) - \delta(\omega + \omega_0)],\end{aligned}$$

en donde los **polos** de la función son $\omega = \omega_0$ y $\omega = -\omega_0$.

Cristal iónico: momento dipolar

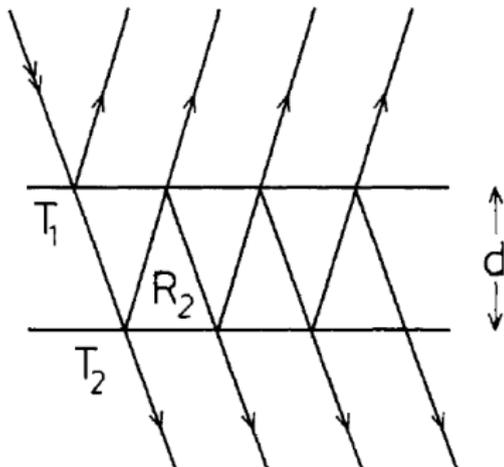
Absorción de radiación electromagnética

Consideremos la **absorción** de ondas electromagnéticas conforme atraviesan una capa de material dieléctrico, las cuales son descritas por el campo eléctrico,

$$E = E_0 e^{-i\omega(t - \tilde{n}x/c)},$$

en donde se tiene \tilde{n} como un **índice de refracción** complejo:

$$\tilde{n}(\omega) = n + ik = \sqrt{\varepsilon(\omega)}, \quad n^2 - k^2 = \varepsilon_1, \quad 2nk = \varepsilon_2.$$



Para el caso de incidencia normal, se tiene que los **coeficientes de transmisión y reflexión** para la amplitud de E son,

$$T_1 = \frac{2}{\tilde{n} + 1}, \quad \& \quad T_2 = \frac{2\tilde{n}}{\tilde{n} + 1},$$
$$R_2 = \left| \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \right|^2.$$

Cristal iónico: momento dipolar

Absorción de radiación electromagnética

Para este caso, la amplitud total de la onda **transmitida** está dada por,

$$E = E_0 T_1 T_2 e^{i(\tilde{n}\omega/c)d} \left[1 + \left(R_2^2 e^{2i(\tilde{n}\omega/c)d} \right) + \left(R_2^2 e^{2i(\tilde{n}\omega/c)d} \right)^2 + \dots \right],$$
$$= E_0 T_1 T_2 \frac{e^{i(\tilde{n}\omega/c)d}}{1 - R_2^2 e^{2i(\tilde{n}\omega/c)d}}.$$

Analizando el caso límite cuando n es muy cercano a 1, lo que se conoce como un medio **ópticamente delgado**,

$$\tilde{n} = 1 + \Delta, \quad |\Delta| \ll 1 \quad \& \quad k \ll 1,$$

tenemos para los coeficientes de transmisión y reflexión,

$$T_1 = \frac{2}{\tilde{n} + 1} \approx \frac{2}{2 + \Delta} = \frac{1}{1 + \Delta/2} \approx 1 - \Delta/2,$$

$$T_2 = \frac{2\tilde{n}}{\tilde{n} + 1} \approx \frac{2(1 + \Delta)}{2 + \Delta} = \frac{1 + \Delta}{1 + \Delta/2} \approx (1 + \Delta)(1 - \Delta/2),$$

$$R_2 = \left| \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \right|^2 \approx \left(\frac{\Delta}{2 + \Delta} \right)^2 = \left(\frac{\Delta/2}{1 + \Delta/2} \right)^2 \approx \frac{\Delta^2}{4} (1 - \Delta).$$

Cristal iónico: momento dipolar

Absorción de radiación electromagnética

Aplicando lo anterior a la expresión de la onda **transmitida**,

$$E = E_0 T_1 T_2 \frac{e^{i(\tilde{n}\omega/c)d}}{1 - R_2^2 e^{2i(\tilde{n}\omega/c)d}},$$

hallamos los valores aprox. a primer orden en Δ para las siguientes expresiones:

$$T_1 T_2 \approx (1 - \Delta/2)(1 + \Delta)(1 - \Delta/2) = (1 + \Delta)(1 - \Delta/2)^2,$$

$$\approx (1 + \Delta)(1 - \Delta + \Delta^2/4) \approx 1,$$

$$R_2^2 \approx (1 - \Delta)^2 \Delta^4 / 16 \approx 0,$$

por tanto, tenemos,

$$E \approx E_0 e^{i(\tilde{n}\omega/c)d} = E_0 e^{-(k\omega/c)d} e^{i(n\omega/c)d}.$$

Calculando ahora la **intensidad transmitida**,

$$EE^* \propto I = I_0 e^{-(2k\omega/c)d} = I_0 e^{-(\varepsilon_2\omega/c)d},$$

en donde al tener $|\Delta| \ll 1$, arroja $2k \sim \varepsilon_2$.

Cristal iónico: momento dipolar

Absorción de radiación electromagnética

Por otro lado, para el caso de un material **ópticamente denso**, se tiene:

$$\left| \frac{\tilde{n}\omega}{c}d \right| \ll 1.$$

Aplicando esta consideración a la amplitud de la onda **transmitida**,

$$E = E_0 T_1 T_2 \frac{e^{i(\tilde{n}\omega/c)d}}{1 - R_2^2 e^{2i(\tilde{n}\omega/c)d}},$$

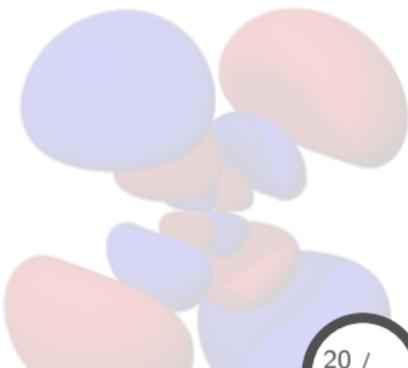
expandiendo a primer orden las exponenciales,

$$e^{i(\tilde{n}\omega/c)d} \approx 1 + i(\tilde{n}\omega/c)d,$$

$$e^{2i(\tilde{n}\omega/c)d} \approx 1 + 2i(\tilde{n}\omega/c)d,$$

arrojando,

$$E = E_0 T_1 T_2 \frac{1 + i(\tilde{n}\omega/c)d}{1 - 2R_2^2 i(\tilde{n}\omega/c)d}.$$



Cristal iónico: momento dipolar

Absorción de radiación electromagnética

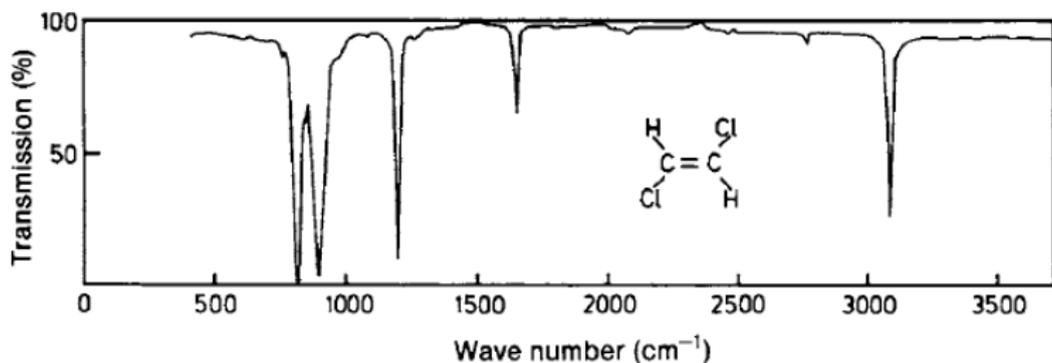
Calculando la **intensidad transmitida** en este caso, se obtiene en la aproximación lineal:

$$EE^* \propto I = I_0 \left(1 - 2 \frac{\omega k}{c} d + \dots \right) \quad \forall k = \mathbb{I}\{\tilde{n}\},$$

en donde la cantidad,

$$K(\omega) = \frac{\omega k(\omega)}{c},$$

se le conoce como **coeficiente de absorción**, y determina el espectro de intensidad absorbida.



4. Propiedades dieléctricas

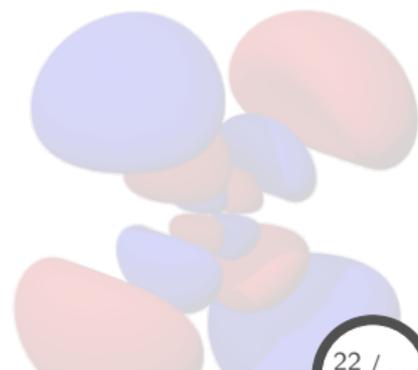
4.1 Función dieléctrica

4.2 Cristal iónico: momento dipolar

4.3 Propiedades de un cristal iónico: modos normales y reflectividad

4.4 Campo local y ferroeléctricos

4.5 Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores



Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos normales de polarización sin amortiguamiento

Considerando a un material dieléctrico con resonancias en ω_0 **sin amortiguamiento** ($\gamma = 0$) tenemos:

$$\ddot{u} + \omega_0 u = \frac{e^*}{\mu} E \quad \rightarrow \quad u(\omega) (\omega_0^2 - \omega^2) = \frac{e^*}{\mu} E(\omega),$$

$$P = \frac{N}{V} e^* u + \varepsilon_0 \frac{N}{V} \alpha E \quad \rightarrow \quad P(\omega) = \frac{N}{V} e^* u(\omega) + \varepsilon_0 \frac{N}{V} \alpha E(\omega).$$

Si ahora expresamos la **polarización** en términos de ondas planas propagándose en la dirección x , tendríamos:

$$P_x = P_{x0} e^{-i(\omega t - qx)} \quad \Leftarrow \quad \text{onda longitudinal,}$$

$$P_y = P_{y0} e^{-i(\omega t - qx)} \quad \Leftarrow \quad \text{onda transversal,}$$

en donde las ondas longitudinales (L) y transversales (T) deben cumplir las siguientes condiciones,

$$\nabla \times \mathbf{P}_L = 0 \quad \& \quad \nabla \cdot \mathbf{P}_L \neq 0,$$

$$\nabla \times \mathbf{P}_T \neq 0 \quad \& \quad \nabla \cdot \mathbf{P}_T = 0.$$

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos longitudinales

En el caso de un dieléctrico sin portadores de carga libres u otra fuente de densidad de carga ρ , entonces, tenemos:

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho = 0 \quad \text{ley de Gauss,}$$

pero de análisis anteriores sabemos que:

$$\mathbf{D}(\omega) = \varepsilon_0 \varepsilon(\omega) \mathbf{E}(\omega),$$

$$\mathbf{P}(\omega) = \varepsilon_0 \chi(\omega) \mathbf{E}(\omega), \quad \forall \quad \chi(\omega) = \varepsilon(\omega) - 1,$$

relacionando las expresiones anteriores,

$$\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - 1} \nabla \cdot \mathbf{P} = 0.$$

Sin embargo, para modos **longitudinales** se tiene que $\nabla \cdot \mathbf{P}_L \neq 0$, por tanto:

$$\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - 1} = 0 \quad \Rightarrow \quad \varepsilon(\omega_L) = 0.$$

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos longitudinales

Recordemos la **función dieléctrica** para el cristal iónico, sin amortiguamiento:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\omega_0^2(\varepsilon_{st} - \varepsilon_\infty)}{\omega_0^2 - \omega^2},$$

por tanto, cuando se tiene que $\omega \rightarrow \omega_L \Rightarrow \varepsilon(\omega) \rightarrow 0$, entonces:

$$\omega_L^2 = \frac{\varepsilon_{st}}{\varepsilon_\infty} \omega_0^2 \quad \leftarrow \quad \text{relación Lyddane-Sachs-Teller.}$$

Finalmente, teniendo $\varepsilon(\omega) \rightarrow \varepsilon(\omega_L) = 0$ para el caso de modos **longitudinales**, obtenemos:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\omega) &= \varepsilon_0 (\varepsilon(\omega) - 1) \mathbf{E}(\omega), \\ \Rightarrow \mathbf{E}(\omega) &= -\frac{1}{\varepsilon_0} \mathbf{P}(\omega), \end{aligned}$$

es decir, el campo y la polarización se encuentran **fuera de fase** 180°

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos transversales

Para modos **transversales**, recordemos las ecuaciones macroscópicas:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad \leftarrow \text{ley de Faraday,}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J}_f + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad \leftarrow \text{ley de Ampère,}$$

considerando que no tenemos **magnetización** en el sistema ($\mathbf{M} = 0$),
y que tampoco existen portadores de **carga libres**,

$$\mathbf{H} = \mathbf{B}/\mu_0, \quad \& \quad \mathbf{J}_f = 0,$$

llegamos a las siguientes ecuaciones,

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad \& \quad \nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}.$$

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos transversales

Con las ecuaciones anteriores y las expresiones de \mathbf{E} y \mathbf{D} en términos de la polarización:

$$\mathbf{E}(\omega) = \frac{1}{\varepsilon_0 (\varepsilon(\omega) - 1)} \mathbf{P}(\omega) \quad \& \quad \mathbf{D}(\omega) = \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - 1} \mathbf{P}(\omega),$$

obtenemos el siguiente sistema de ecuaciones,

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{P}(\omega) + \varepsilon_0 \mu_0 (\varepsilon(\omega) - 1) \frac{\partial \mathbf{H}(\omega)}{\partial t} &= 0, \\ \nabla \times \mathbf{H}(\omega) - \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - 1} \frac{\partial \mathbf{P}(\omega)}{\partial t} &= 0. \end{aligned}$$

Ahora proponemos para los modos **transversales** en $\mathbf{P}(\omega)$ y el campo aplicado lo siguiente:

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= P_y \mathbf{j} \quad \forall \quad P_y = P_{y0} e^{-i(\omega t - qx)}, \\ \mathbf{H} &= H_z \mathbf{k}, \quad \forall \quad H_z = H_{z0} e^{-i(\omega t - qx)}. \end{aligned}$$

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos transversales

Aplicando el *ansatz* propuesto a las ecuaciones de Maxwell en términos de la polarización se obtiene:

$$\begin{aligned}qP_{y0} - \omega\varepsilon_0\mu_0 (\varepsilon(\omega) - 1) H_{z0} &= 0, \\ -\omega \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - 1} P_{y0} + qH_{z0} &= 0.\end{aligned}$$

Para que el sistema tenga solución, el determinante en ω se debe anular,

$$\begin{vmatrix} q & \varepsilon_0\mu_0\omega (\varepsilon(\omega) - 1) \\ -\omega \frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon(\omega) - 1} & q \end{vmatrix} = 0,$$

obteniendo,

$$\omega^2 = \frac{1}{\varepsilon(\omega)} c^2 q^2 \quad \forall \quad c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0\mu_0}},$$

lo cual representan ondas electromagnéticas y mecánicas **acopladas**, conocidas como **polaritones**.

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos transversales

El comportamiento de la relación de **dispersión polaritónica** depende de la forma de $\varepsilon(\omega)$, por lo que utilizamos la obtenida para un cristal **iónico**, en el límite cuando $\gamma = 0$:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\omega_0^2(\varepsilon_{st} - \varepsilon_\infty)}{\omega_0^2 - \omega^2} = \varepsilon_\infty \frac{\omega_L^2 - \omega^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad \forall \quad \omega_L^2 = \omega_0^2 \frac{\varepsilon_{st}}{\varepsilon_\infty}.$$

Sustituyendo se obtiene la ecuación siguiente:

$$\left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^4 - \left[\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^2 + \frac{q^2 c^2}{\varepsilon_\infty \omega_0^2} \right] \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2 + \frac{q^2 c^2}{\varepsilon_\infty \omega_0^2} = 0,$$

lo cual resolviendo nos arroja:

$$\left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2 = \frac{1}{2} \left[\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^2 + \frac{q^2 c^2}{\varepsilon_\infty \omega_0^2} \right] \pm \frac{1}{2} \left\{ \left[\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^2 + \frac{q^2 c^2}{\varepsilon_\infty \omega_0^2} \right]^2 - 4 \frac{q^2 c^2}{\varepsilon_\infty \omega_0^2} \right\}^{1/2}.$$

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Modos transversales

Analizando los límites,

$c^2 q^2 / \omega_0^2 \epsilon_\infty$ **grande:**

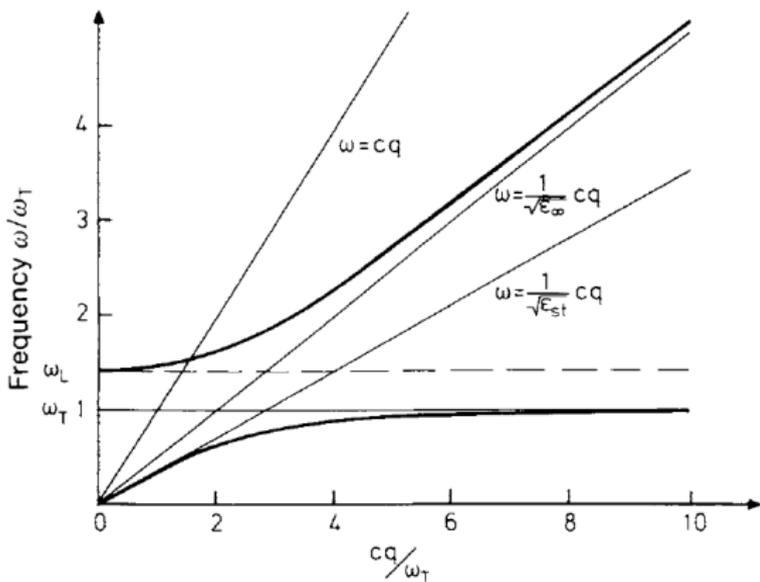
$$\omega_+ \rightarrow cq / \sqrt{\epsilon_\infty},$$

$$\omega_- \rightarrow \omega_0 = \omega_T.$$

$c^2 q^2 / \omega_0^2 \epsilon_\infty$ **pequeño:**

$$\omega_+ \rightarrow \omega_L,$$

$$\omega_- \rightarrow cq / \sqrt{\epsilon_{st}}.$$



Cuando $q^2 c^2 / \omega_0^2 \epsilon_\infty$ es grande, entonces se llega a $\omega \rightarrow \omega_0$, límite que se conoce como la **frecuencia del modo transversal**: $\omega_0 = \omega_T$.

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Reflectividad

Para el caso de incidencia normal en una superficie dieléctrica, se tiene que la fracción de la intensidad **reflejada** viene dada por,

$$R = \left| \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \right|^2 = \frac{(n - 1)^2 + k^2}{(n + 1)^2 + k^2},$$

donde R es la **reflectividad**, siendo:

$$\tilde{n}(\omega) = n + ik = \sqrt{\varepsilon(\omega)}, \quad n^2 - k^2 = \varepsilon_1, \quad 2nk = \varepsilon_2.$$

Para el caso de un amortiguamiento muy **pequeño** ($\gamma \approx 0$) se tiene:

$$\varepsilon_2 \ll 1 \quad \therefore \quad \varepsilon(\omega) \approx \varepsilon_1.$$

Por tanto, podemos aproximar la reflectividad como:

$$R = \left| \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega)} - 1}{\sqrt{\varepsilon(\omega)} + 1} \right|^2 = \frac{(\sqrt{\varepsilon_1} - 1)^2}{(\sqrt{\varepsilon_1} + 1)^2},$$

$$\text{donde: } \varepsilon_1 = \varepsilon_\infty \frac{\omega_L^2 - \omega^2}{\omega_T^2 - \omega^2}, \quad \forall \quad \omega_L > \omega_T.$$

Propiedades de un CI: modos normales y reflectividad

Reflectividad

$$0 < \omega < \omega_T$$

$$\omega_T < \omega < \omega_L$$

$$\omega > \omega_L$$

$$R(\omega = 0) < 1,$$

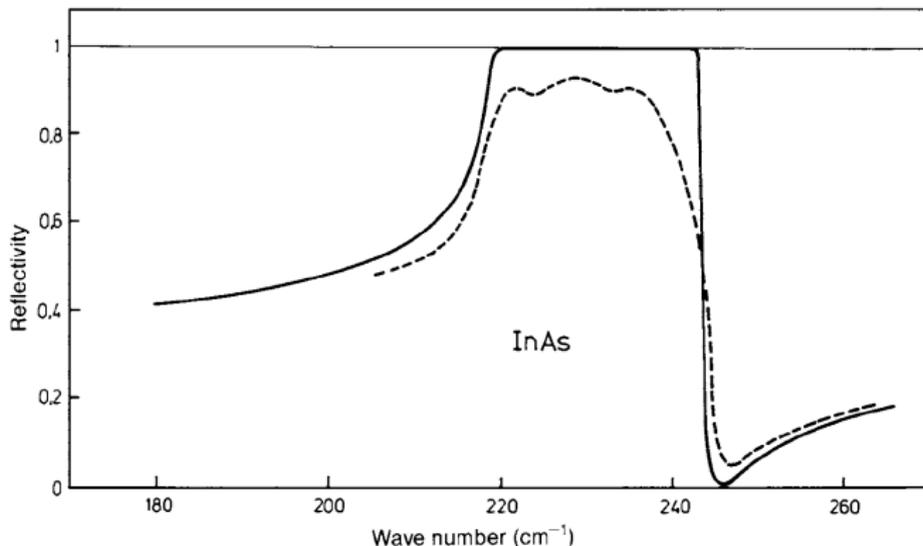
$$\varepsilon_1 < 0,$$

$$R(\omega = \omega_L) = 1,$$

$$R(\omega = \omega_T) = 1.$$

$$R(\omega) = 1.$$

$$R(\omega \rightarrow \infty) \approx \frac{(\varepsilon_\infty^{1/2} - 1)^2}{(\varepsilon_\infty^{1/2} + 1)^2}.$$



Contenido: Tema 04

4. Propiedades dieléctricas

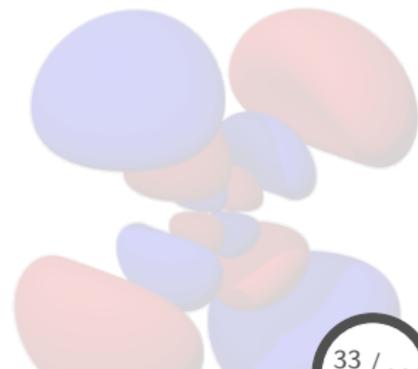
4.1 Función dieléctrica

4.2 Cristal iónico: momento dipolar

4.3 Propiedades de un cristal iónico: modos normales y reflectividad

4.4 Campo local y ferroeléctricos

4.5 Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores



Campo local y ferroeléctricos

Campo de una esfera uniformemente polarizada

Para el caso cuando tenemos un conjunto de muchos dipolos, el enfoque del cristal iónico armónico tiene que ser modificado,

$$\text{dipolo \u00fanico} \Rightarrow E_{loc} = E,$$

$$\text{conjunto de dipolos} \Rightarrow E_{loc} = E + E_{pol},$$

en donde:

E : Campo externo aplicado.

E_{pol} : Campo generado por una esfera que encierra al conjunto de dipolos (uniformemente polarizada).

E_{pol} viene dado al considerar que las cargas de polarizaci\u00f3n en la superficie de la esfera vienen dadas por la **densidad de carga superficial**,

$$\sigma_P = -P_n = -P \cos \theta$$

arrojando,

$$E_{pol} = \frac{1}{3\epsilon_0} P.$$

Campo local y ferroeléctricos

Expresión de campo local

Con lo anterior encontramos la expresión del **campo local** debido a un conjunto de dipolos,

$$E_{loc} = E + \frac{1}{3\epsilon_0}P,$$

el cual es utilizado en las ecs. de movimiento para un cristal iónico:

$$\ddot{u} + \gamma\dot{u} = -\omega_0^2 u + \frac{e^*}{\mu} E_{loc},$$
$$P = \frac{N}{V} e^* u + \epsilon_0 \frac{N}{V} \alpha E_{loc},$$

arrojando,

$$u(\omega) \left(\omega_0^2 - \frac{1}{\mu} \cdot \frac{N e^{*2} / (3\epsilon_0 V)}{1 - N\alpha / (3V)} - \omega^2 - i\gamma\omega \right) = \frac{e^*}{\mu} E(\omega) \frac{1}{1 - N\alpha / (3V)},$$

$$P(\omega) = \frac{N e^* / V}{1 - N\alpha / (3V)} u(\omega) + \frac{\epsilon_0 N \alpha / V}{1 - N\alpha / (3V)} E(\omega).$$

Campo local y ferroeléctricos

Función dieléctrica

De las dos ecuaciones anteriores, aunadas a la relación,

$$P(\omega) = \varepsilon_0 (\varepsilon(\omega) - 1) E(\omega),$$

obtenemos la misma forma de la **función dieléctrica** cuando $E_{loc} = E$ (sin considerar los efectos de polarización colectiva):

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\omega_T^2 (\varepsilon_{st} - \varepsilon_\infty)}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\gamma\omega},$$

donde,

$$\omega_T^2 = \omega_0^2 - \frac{Ne^{*2}/(3\varepsilon_0\mu V)}{1 - N\alpha/(3V)},$$

$$\varepsilon_{st} = \varepsilon(\omega = 0) = \frac{Ne^{*2}/(\varepsilon_0\mu V)}{\omega_T^2 [1 - N\alpha/(3V)]^2} + \frac{N\alpha/V}{1 - N\alpha/(3V)} + 1,$$

$$\varepsilon_\infty = \varepsilon(\omega \rightarrow \infty) = \frac{N\alpha/V}{1 - N\alpha/(3V)} + 1.$$

Campo local y ferroeléctricos

Función dieléctrica

Reescribiendo la expresión de ϵ_∞ ,

$$\begin{aligned}\epsilon_\infty &= \frac{N\alpha/V}{1 - N\alpha/(3V)} + 1, \\ (\epsilon_\infty - 1) \left(1 - \frac{N\alpha}{3V}\right) &= \frac{N\alpha}{V}, \\ \epsilon_\infty - 1 &= \frac{N\alpha}{V} \left(\frac{\epsilon_\infty}{3} - \frac{1}{3} + 1\right), \\ \epsilon_\infty - 1 &= \frac{N\alpha}{3V} (\epsilon_\infty + 2), \\ \frac{\epsilon_\infty - 1}{\epsilon_\infty + 2} &= \frac{N\alpha}{3V},\end{aligned}$$

lo cual se conoce como la **ecuación de Clausius-Mossotti**, que relaciona la **constante dieléctrica** ϵ_∞ con la **polarizabilidad** electrónica α .

Campo local y ferroeléctricos

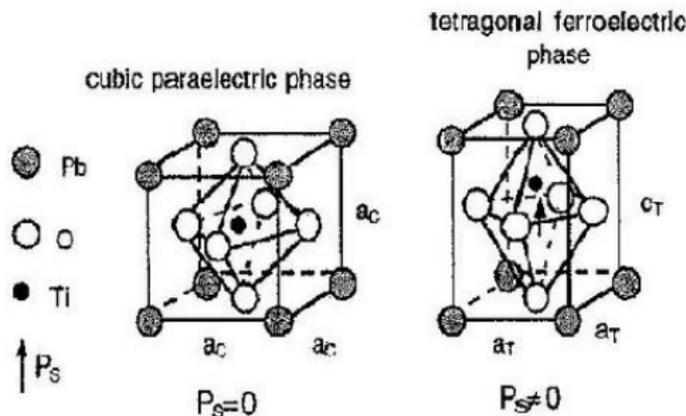
Catástrofe de polarización: ferroeléctricos

Uno de los efectos del **campo local**, es **reducir** la frecuencia transversal del modo normal:

$$\omega_T^2 = \omega_0^2 - \frac{Ne^{*2}/(3\epsilon_0\mu V)}{1 - N\alpha/(3V)}.$$

En las siguientes condiciones se puede llegar a tener $\omega_T = 0$:

- Carga efectiva e^* lo suficientemente **grande**.
- **Alta** polarizabilidad electrónica α .
- Acoplamiento a primeros vecinos relativamente **bajo**: ω_0 pequeño.



Campo local y ferroeléctricos

Catástrofe de polarización: ferroeléctricos

Este fenómeno da lugar a los **ferroeléctricos**, e involucra un **congelamiento** de los fonones transversales, siendo sus fluctuaciones térmicas pequeñas, las cuales crecen en función de la temperatura.

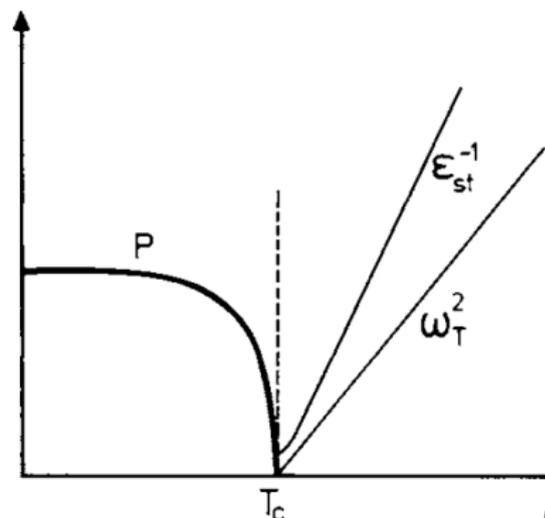
Cuando se llega a una **temperatura crítica** T_c , el campo efectivo desaparece, dando lugar a $\omega_T > 0$, siendo que para $T > T_c$ la frec. transversal se comporta como:

$$\omega_T^2 \propto T - T_c,$$

y de la relación de **Lyddane-Sachs-Teller**, se tiene:

$$\epsilon_{st}^{-1} \propto T - T_c.$$

indicando valores de hasta 10^5 en ϵ_{st} para $T \approx T_c$.



4. Propiedades dieléctricas

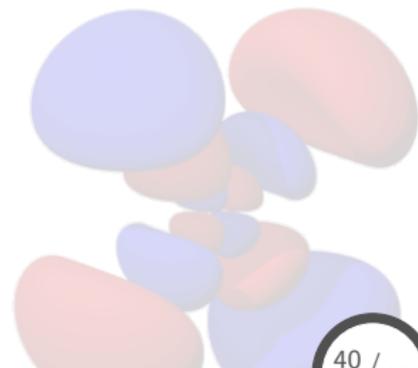
4.1 Función dieléctrica

4.2 Cristal iónico: momento dipolar

4.3 Propiedades de un cristal iónico: modos normales y reflectividad

4.4 Campo local y ferroeléctricos

4.5 Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores



Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores

Gas de electrones libres

En el caso de **metales** y **semiconductores**¹ el comportamiento **dieléctrico** es determinado casi en su totalidad por las excitaciones colectivas de los **portadores libres**,

$$nm\ddot{u} + \gamma\dot{u} = -neE,$$

ecuación que no contiene términos **restitutivos** y donde:

u : Desplazamiento homogéneo del gas de electrones relativo a los iones.

n, m : Concentración y masa de los e^- , respectivamente.

γ : Cte. de amortiguamiento, relacionada con la conductividad,

$$j = -en\dot{u} = (n^2e^2/\gamma)E \Rightarrow \sigma = j/E = n^2e^2/\gamma.$$

Por tanto, llegamos a lo siguiente:

$$nm\ddot{u} + \frac{n^2e^2}{\sigma}\dot{u} = -neE.$$

Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores

Función dieléctrica para una gas de electrones libres

Expresando la ecuación anterior en el espacio de Fourier,

$$\left[nm\omega^2 + i\omega \frac{n^2 e^2}{\sigma(\omega)} \right] u(\omega) = neE(\omega),$$

y retomando la expresión para la polarización,

$$P = -neu \quad \Rightarrow \quad P(\omega) = -neu(\omega),$$

tenemos, relacionando:

$$P(\omega) = -\frac{ne^2}{m\omega^2 + i\omega ne^2/\sigma(\omega)} E(\omega).$$

Retomando la ecuación constitutiva,

$$P(\omega) = \varepsilon_0 (\varepsilon(\omega) - 1) E(\omega),$$

obtenemos la siguiente expresión para la **función dieléctrica**:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{ne^2/(m\varepsilon_0)}{\omega^2 + i\omega ne^2/(m\sigma(\omega))}.$$

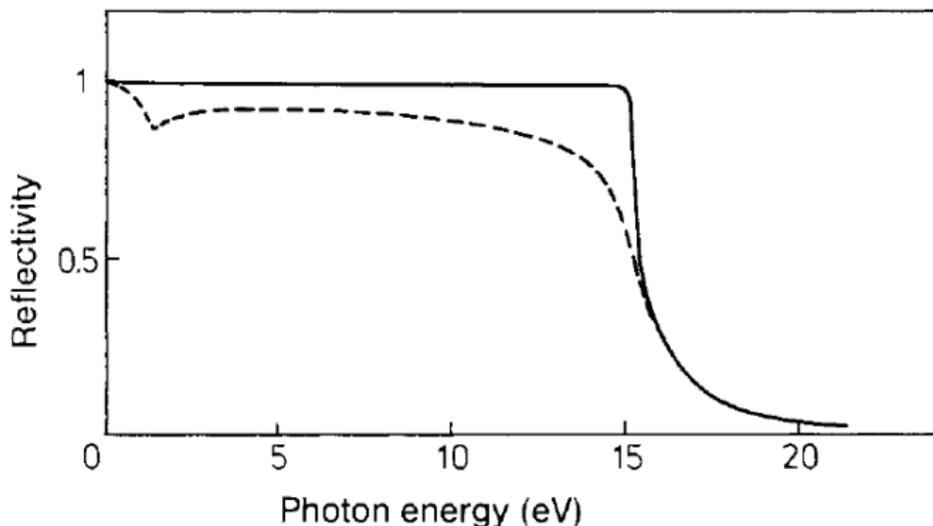
Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores

Frecuencia plasmónica

Reescribiendo,

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega \frac{\omega_p^2 \varepsilon_0}{\sigma(\omega)}} \quad \forall \quad \omega_p^2 = \frac{ne^2}{m\varepsilon_0}.$$

En donde ω_p se le conoce como **frecuencia plasmónica**, y cuando $\gamma \rightarrow 0$ ω_p tiende a ω_L , haciendo $\varepsilon(\omega) = 0$.



Comportamiento dieléctrico en metales y semiconductores

Frecuencia plasmónica: semiconductores

Para el caso de semiconductores, se puede variar la concentración de portadores de carga, y por tanto el umbral de **frecuencia plasmónica** en un amplio rango via el dopaje.

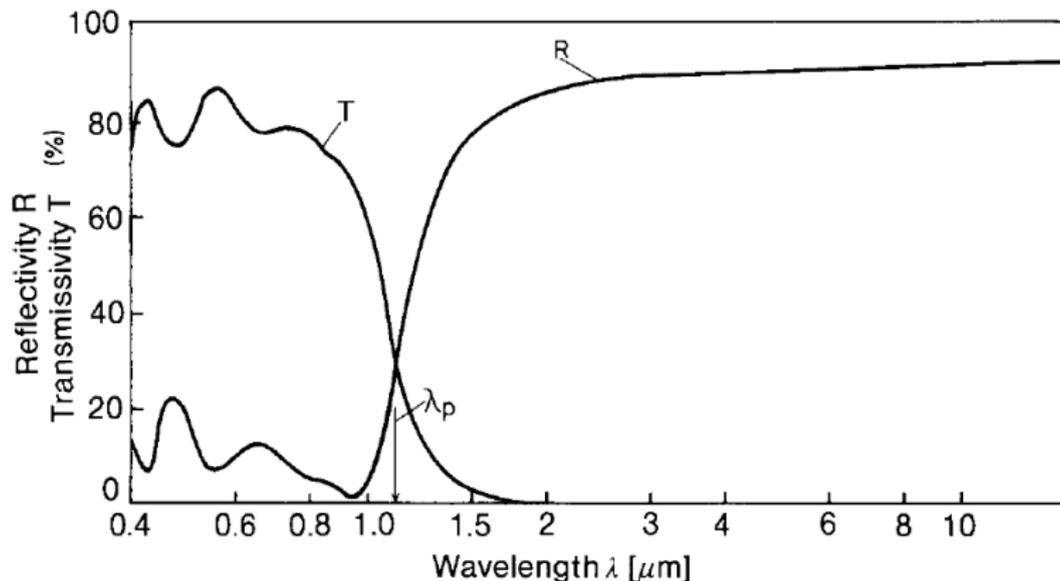


Figure: In_2O_3 layer dopado con Sn.