

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

Институт лазерных и плазменных технологий

С.В.Ивлиев

**ФЛУКТУАЦИОННО-
ДИССИПАТИВНАЯ ТЕОРЕМА И
ДИНАМИЧЕСКИЙ СТРУКТУРНЫЙ
ФАКТОР ДЛЯ АНИЗОТРОПНОЙ
СРЕДЫ**

ЗНЧ-2019, Снежинск

Формализм динамического структурного фактора

1. Inelastic X-Ray Scattering Spectroscopy (IXSS)
2. Electron Energy Loss Spectroscopy (EELS)
3. Inelastic Neutron Scattering
4. Релаксация энергии возбужденной электронной подсистемы в решетку твердых тел

$$\frac{d^2\sigma}{d\sigma' dE'} = \frac{p'}{p} \left(\frac{m}{2\pi\hbar} \right)^2 |U_a(\vec{q})|^2 S(\vec{q}, \omega)$$

$\vec{q}$ и $\hbar\omega$ - переданные среде импульс и энергия

Формализм динамического структурного фактора

- Неупругое рассеяние на сложных мишенях

$$S(q, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-i\omega t} \sum_{\alpha, \beta} \sum_n \frac{1}{Z} e^{-E_n/T} \langle n | e^{-iqR_\alpha(0)} e^{-iqR_\beta(t)} | n \rangle$$

крайне трудно вычислить из первых принципов
(Пример: невзаимодействующий газ при температуре T)

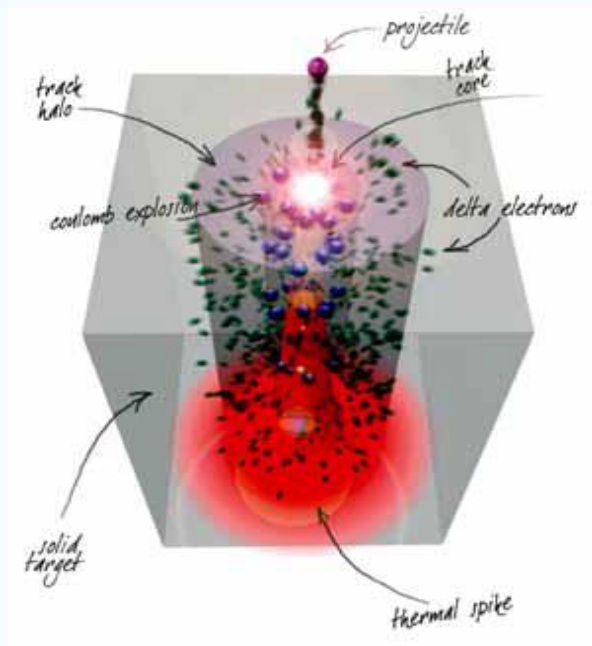
$$S_{\text{неупр}}(q, \omega) = \frac{N}{\hbar} \sqrt{\frac{M}{2\pi T q^2}} \exp \left(-\frac{M}{2q^2 T} \left(\omega - \frac{\hbar q^2}{2M} \right)^2 \right)$$

Максимум этой функции по частоте
соответствует классической энергии отдачи

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2 q^2}{2M}$$

Треки быстрых заряженных частиц

Фундаментальный интерес



1. Начальное возбуждение
электронной подсистемы. 10^{-17}с

2. Остывание электронной
подсистемы. 10^{-14}с

3. Остывание решетки. 10^{-9}с

Нанометрические пространственные
и

фемто-пикосекундные временные
масштабы, а также высокая степень
начального возбуждения материала



Нельзя описать обычными
макроскопическими моделями,
основанными на локальном
равновесии

Формализм динамического структурного фактора

Особенности описания – строго первое Борновское приближение.

$$U_0 \ll \hbar^2 / mR^2 \quad \text{или} \quad U_0 \ll \hbar v / R$$

Зависимость сечения и динамического структурного фактора только от переданного (вектор!!) импульса и переданной энергии - суть прямое следствие первого Борновского приближения.

Более того, введение структурного фактора не в первом Борновском приближении представляется в обычном виде просто невозможным.

Для анизотропной среды зависимость именно от вектора переданного импульса является принципиальной.

Формализм динамического структурного фактора

Особенности описания – строго первое Борновское приближение.

$$U_0 \ll \hbar^2 / mR^2 \quad \text{или} \quad U_0 \ll \hbar v / R$$

Зависимость сечения и динамического структурного фактора только от переданного (вектор!!) импульса и переданной энергии - суть прямое следствие первого Борновского приближения.

Более того, введение структурного фактора не в первом Борновском приближении представляется в обычном виде просто невозможным.

Для анизотропной среды зависимость именно от вектора переданного импульса является принципиальной.

Флуктуационно-диссипативная теорема для анизотропной *однородной* среды

Флуктуационно-диссипативная теорема устанавливает связь между динамическим структурным фактором и мнимой частью функции отклика - $\chi(\vec{q}, \omega)$ - восприимчивостью системы, причинной функцией, связывающей реакцию системы на **внешний** потенциал.

$$\rho_{ind}(\vec{q}, \omega) = \chi(\vec{q}, \omega) V_{ext}(\vec{q}, \omega)$$

$$D = \varepsilon E \quad \rho_{ext} = \varepsilon \rho_{tot} \quad \rho_{ind} = \left(\frac{1}{\varepsilon} - 1\right) \rho_{ext}$$

$$\Delta V_{ext}(\vec{q}, \omega) = 4\pi \rho_{ext}(\vec{q}, \omega) \quad \rho_{ind}(\vec{q}, \omega) = \frac{q^2}{4\pi e^2} \left(\frac{1}{\varepsilon} - 1\right) V_{ext}(\vec{q}, \omega)$$

$$S(\vec{q}, \omega) \sim \text{Im}(\chi(\vec{q}, \omega)) \quad S(\vec{q}, \omega) \sim \text{Im}\left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{q}, \omega)}\right)$$

Комплексную диэлектрическую проницаемость (КДФ) можно либо вычислять независимо, либо извлекать из оптических экспериментов

В анизотропной среде диэлектрические свойства среды будут описываться тензором второго ранга, и выражение для ФДТ требует модернизации. Рассмотрим связь микротоков с имеющимся электрическим полем.

$$j_{\alpha}(\vec{q}, \omega) = \sigma_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) \vec{E}_{\beta}^{tot}(\vec{q}, \omega)$$

$\sigma_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$ - тензор проводимости нашей системы.

$$\vec{E}^{tot}(\vec{q}, \omega) = -\nabla V_{ext} + \vec{E}^{ind} = -i\vec{q}V_{ext}(\vec{q}, \omega) + \vec{E}^{ind}(\vec{q}, \omega)$$

Используя уравнения Максвелла, учитывая, что внешние токи и магнитные поля отсутствуют, получаем

$$\left(q^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \right) \vec{E}^{ind}(\vec{q}, \omega) - \vec{q}(\vec{q}\vec{E}^{ind}(\vec{q}, \omega)) = \frac{4\pi i\omega}{c^2} \hat{\sigma} \vec{E}^{tot}(\vec{q}, \omega)$$

Отделяя внешнее и индуцированное поля и переходя к тензорной записи

$$\left[\left(q^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \right) \delta_{\alpha\beta} - q_\alpha q_\beta - \frac{4\pi i \omega}{c^2} \sigma_{\alpha\beta} \right] E_\beta^{ind} = \frac{4\pi i \omega}{c^2} \sigma_{\alpha\beta} E_\beta^{ext}$$

Это уже похоже на отклик на внешнее поле.

$$\varepsilon_{\alpha\beta} = \delta_{\alpha\beta} + \frac{4\pi i}{\omega} \sigma_{\alpha\beta} \quad \left[q^2 \delta_{\alpha\beta} - q_\alpha q_\beta - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) \right] E_\beta^{ind} = \frac{4\pi i \omega}{c^2} \sigma_{\alpha\beta} E_\beta^{ext}$$

Обозначим матрицу, стоящую слева через $T_{\alpha\beta}$ и найдем (пока формально) соответствующую обратную матрицу $T_{\alpha\beta}^{-1}$.

Используя очевидные соотношения

$$\vec{E}^{ext}(\vec{q}, \omega) = -i\vec{q} V_{ext}(\vec{q}, \omega) \quad \text{div} \vec{E}^{ind} = 4\pi \rho^{ind} \quad \rho^{ind} = \frac{i\vec{q} \vec{E}^{ind}}{4\pi}$$

получаем

$$\rho^{ind}(\vec{q}, \omega) = \frac{i\omega}{c^2} q_\alpha T_{\alpha\beta}^{-1} \sigma_{\beta\gamma} q_\gamma V_{ext}(\vec{q}, \omega)$$

$\sigma_{\alpha\beta} = \frac{\omega}{4\pi} (\varepsilon_{\alpha\beta} - \delta_{\alpha\beta})$ Из определения $T_{\alpha\beta}$ можно выразить

$$\varepsilon_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = \frac{c^2}{\omega^2} (T_{\alpha\beta} - q^2 \delta_{\alpha\beta} + q_\alpha q_\beta)$$

Подставляем эти соотношения в выражение для $\chi(\vec{q}, \omega)$ и получаем

$$\chi(\vec{q}, \omega) = -\frac{1}{4\pi e^2} \frac{\omega^2}{c^2} \left(q_\alpha T_{\alpha\beta}^{-1} q_\beta - \frac{c^2}{\omega^2} q^2 \right)$$

$$S(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{4\pi^2 e^2} \frac{1}{(1 - e^{-\hbar\omega/T})} \frac{\omega^2}{c^2} \text{Im} (q_\alpha T_{\alpha\beta}^{-1} q_\beta)$$

$$T_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = q^2 \delta_{\alpha\beta} - q_\alpha q_\beta - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega)$$

Некоторые предельные случаи:

При $q \rightarrow 0$ ($\frac{c^2}{\omega^2} q^2 \ll 1$)

$$\text{Im}(q_\alpha \varepsilon_{\alpha\beta}^{-1} q_\beta)$$

ДСФ будет определяться сверткой

$$\text{Im}\left(\frac{q^4}{q_\alpha \varepsilon_{\alpha\beta} q_\beta}\right).$$

которая в общем случае отличается от

Если рассмотреть тензор диэлектрической проницаемости одноосной системы (графит) в главных осях, то получится

$$q_\alpha T_{\alpha\beta}^{-1} q_\beta = -\frac{c^2}{\omega^2} \frac{(q_{xy}^4 + 2q_z^2 q_{xy}^2 + q_z^2 - \frac{\omega^2}{c^2} (\varepsilon_{xx} q_z^2 + \varepsilon_{zz} q_{xy}^2))}{(q_{xy}^2 \varepsilon_{xx} + q_z^2 \varepsilon_{zz} - \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{xx} \varepsilon_{zz})}$$

Здесь q_{xy} - модуль компоненты вектора $\vec{q}$ в плоскости ОХУ, q_z - компонента по оси ОZ, .

Если положить $\varepsilon = \varepsilon_{xx} = \varepsilon_{zz}$ то есть рассматривать изотропную диэлектрическую проницаемость, то, очевидно, получается для ДСФ обычное выражение через $\frac{1}{\varepsilon}$.

Если же рассмотреть предел частот, $(\varepsilon \frac{c^2}{\omega^2} q^2 \gg 1)$, то есть малых ω , то получается выражение, встречающееся в статьях

$$\text{Im} \left(\frac{q^4}{q_\alpha \varepsilon_{\alpha\beta} q_\beta} \right) = \text{Im} \left(\frac{q^4}{q_{xy}^2 \varepsilon_{xx} + q_z^2 \varepsilon_{zz}} \right)$$

Вопрос о выполняемости пределов по частоте или волновому вектору для ДСФ требует дополнительного обсуждения. Подчеркнем еще раз, что и $\vec{q}$, и ω - суть не параметры налетающей или прошедшей волны, а **переданные среде** импульс и энергия.

Зависимость мнимой части обратной диэлектрической проницаемости от направления . Модельная функция

$$ELF = \sum_n \frac{A_n \Gamma_n W}{(E_n^2(q) - W^2)^2 + (\Gamma_n W)^2}$$

Table 1: D-L parameters ($\vec{q} \parallel \vec{c}$ direction)

n	A_n (eV ²)	Γ_n (eV)	E_n (eV)
1	0.15	1.75	0.80
2	0.62	1.76	4.06
3	13.26	4.22	15.57
4	51.80	1.90	18.23
5	25.52	6.23	20.73
6	452.31	20.02	37.93
7	112.91	19.84	48.25

Table 2: D-L parameters ($\vec{q} \perp \vec{c}$ direction)

n	A_n (eV ²)	Γ_n (eV)	E_n (eV)
1	0.43	5.36	2.58
2	8.96	1.73	6.99
3	0.25	8.30	14.53
4	33.93	10.16	21.77
5	32.00	10.50	24.32
6	466.69	6.99	28.03
7	100.30	30.03	38.09

Зависимость мнимой части обратной диэлектрической проницаемости от направления . Модельная функция

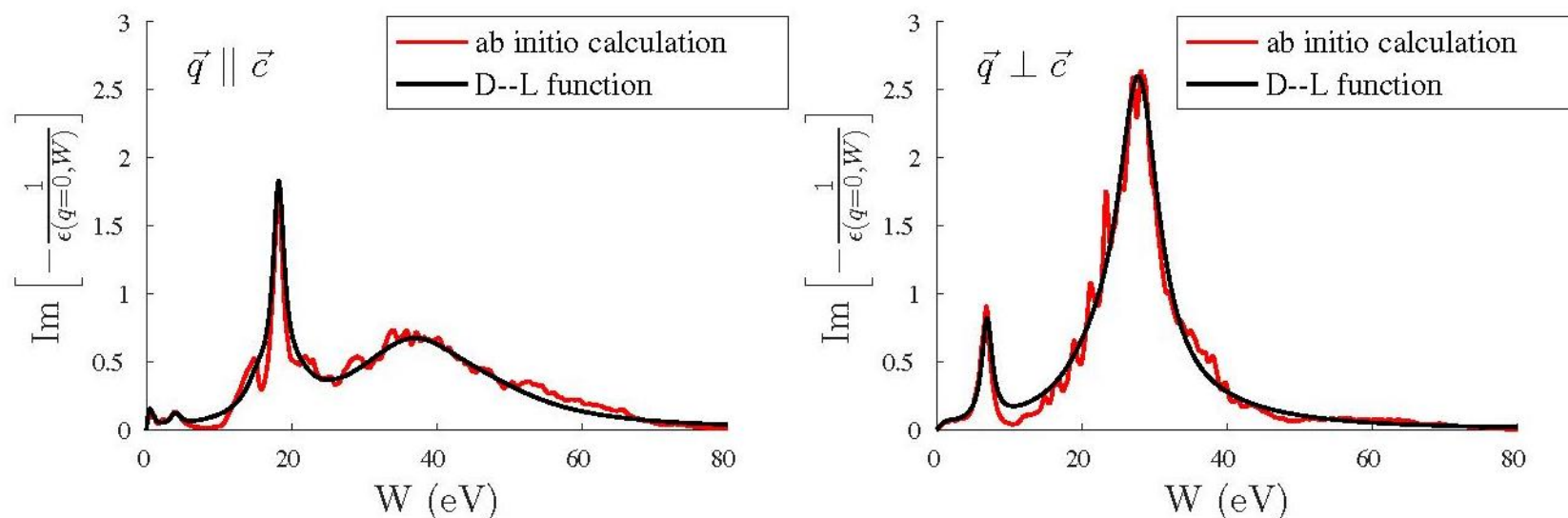


Figure 2: ELF functions along the two possible orthogonal directions of transferred momentum $\vec{q}$: *ab initio* calculations (red lines) are compared to the Drude–Lorentz best fits (black lines).



Национальный исследовательский ядерный университет
«МИФИ»

Спасибо за внимание

ЗНЧ-2019, Снежинск