УДК 535.33

О ПРИМЕНЕНИИ ПРЕОБРАЗОВАНИЯ КРАМЕРСА—КРОНИГА В ФИЗИКЕ ТВЕРДОГО ТЕЛА

А. Н. Васильев, А. В. Козлов, В. С. Степанюк, А. А. Кацнельсон

(кафедра физики твердого тела)

Анализируются трудности, возникающие при расчетах с использованием соотношений Крамерса—Кронига в задачах физики твердого тела. Показано, что применение быстрого преобразования Фурье позволяет сократить время преобразования. Разработаны критерии оценки точности результатов расчета и проанализированы основные источники ошибок при численных расчетах с применением этих соотношений.

Введение

Преобразование Крамерса—Кронига [1, 2] или преобразование Гильберта [3, 4] широко используется в физике твердого тела. Например, вследствие принципа причинности, приводящего к отсутствию особенностей обобщенной восприимчивости в верхней полуплоскости комплексного аргумента ω [5], действительная и мнимая части комплексной диэлектрической проницаемости $(\tilde{\varepsilon}(\mathbf{k}, \omega)=\varepsilon_1(\mathbf{k}, \omega)+i\varepsilon_2(\mathbf{k}, \omega))$ связаны следующими соотношениями:

$$\begin{aligned} \varepsilon_1(\omega)-1&=(1/\pi)\fint_{-\infty}^{\infty}\varepsilon_2(\omega')/(\omega'-\omega)\,d\omega',\\ \varepsilon_2(\omega)&=-(1/\pi)\fint_{-\infty}^{\infty}(\varepsilon_1(\omega')-1)/(\omega'-\omega)\,d\omega'. \end{aligned} \tag{1}$$

Соотношения Крамерса—Кронига типа (1) используются для восстановления одной из частей комплексной диэлектрической проницаемости по известной второй части, для получения оптических функций кристалла из измерений коэффициента отражения в широкой области спектра, для восстановления действительной части функции Грина из ее мнимой части, получаемой из зонных расчетов, а также в других задачах, непосредственно не связанных с физикой твердого тела. В настоящей работе вводятся критерии оценки точности преобразования Крамерса—Кронига с применением быстрого преобразования Фурье.

Ядро преобразования Крамерса—Кронига $(\omega'-\omega)^{-1}$ нерегулярно как в нуле, так и на бесконечности. Это приводит к противоречивым требованиям уменьшения шага и увеличения области интегрирования преобразуемой функции. В результате для достижения требуемой точности приходится проводить преобразование по довольно большому количеству точек. Ситуация осложнена еще и тем, что в реальных физических задачах информация о преобразуемой функции при больших значениях аргумента отсутствует. Возникают проблемы, связанные с необходимостью экстраполяции исходной функции вне области ее задания (проблемы «хвостов»). Эти проблемы традиционны для преобразования Крамерса—Кронига и здесь подробно рассматриваться не будут.

Как правило, для проведения этого преобразования используется либо метод Симпсона с выделением области интегрирования вокруг

особой точки, либо специально разработанные процедуры интегрирования. Широко применяется для обработки экспериментальных данных метод интегрирования с использованием линейной или квадратичной интерполяции между точками, что приводит к формуле, содержащей логарифм под знаком суммы. Тем самым преобразование Крамерса—Кронига на сетке из N точек требует $\sim N^2$ вычислений логарифма. Использование относительно простого метода Симпсона требует $\sim N^2$ умножений и $\sim N$ вычислений логарифма при интегрировании вокруг особенности.

Для ускорения процедуры интегрирования предлагается использовать преобразование Фурье. Такая возможность связана с тем, что преобразованием Гильберта от функции $\sin \omega t$ является функция $\cos \omega t$, а от функции $\cos \omega t$ — функция $-\sin \omega t$. Поэтому если произвольную действительную функцию $f(\omega)$ представить в виде интеграла Фурье

$$f(\omega)=\int_0^\infty [a(t)\cos \omega t+b(t)\sin \omega t]\,dt,$$

то преобразование Гильберта будет иметь вид [3]

$$g(\omega)=\int_0^\infty [b(t)\cos \omega t-a(t)\sin \omega t]\,dt.$$

Процедура вычисления преобразования Крамерса—Кронига сводится к прямому и обратному преобразованиям Фурье. Резко сократить объем вычислений позволяет быстрое преобразование Фурье, требующее лишь $N \ln N$ умножений.

При расчете на ЭВМ соответствующих интегралов вводится дискретизация. Для фурье-анализа необходимо иметь N эквидистантных точек на интервале Ω, ширина которого должна быть много больше области задания преобразуемой функции. В результате такой процедуры функция становится периодичной с периодом Ω, а возникающие при этом проблемы по своему смыслу аналогичны проблеме «хвостов» и требуют аналогичных методов анализа. Разрыв функции на границах интервала Ω стремится к нулю при его увеличении, если преобразуемая функция стремится к нулю на бесконечности (например, ε_2/ω) быстрее, чем ω^{-3}, а $\varepsilon_1(\omega)-1$ — как ω^{-2}). Если это условие не выполняется, то могут возникнуть большие фурье-компоненты на больших частотах, что приводит к уменьшению точности. Для устранения этого явления из преобразуемой функции вычитается другая, аналитичная в верхней полуплоскости, функция. Подбор такой функции осуществляется с учетом правила сумм и предварительной информации об областях прозрачности (см. ниже).

Нахождение оптических функций кристалла из спектров отражения

Традиционно соотношения Крамерса—Кронига используются при оптических измерениях. Непосредственное измерение показателя преломления и коэффициента экстинкции в некоторых случаях (в области фундаментального поглощения) оказывается невозможным. Практически действенным методом получения информации об оптических функциях в этом случае является использование соотношений Крамерса—Кронига для логарифма комплексного коэффициента отражения $\hat{r}(\omega)=\sqrt{R(\omega)}\exp\{i\varphi(\omega)\}$, где $R(\omega)$ — коэффициент отражения электромаг-

нитной волны по интенсивности, а $\varphi(\omega)$ — сдвиг фаз между отраженной и падающей волнами:

$$\tilde{\varphi}(\omega)=(\omega/\pi)\int_0^\infty \ln(R(x)/R(\omega))/(x^2-\omega^2)\,\delta x, \qquad (2)$$

и формул Френеля. Преобразуемая функция при стремлении аргумента к бесконечности стремится к $2\ln|\omega|$. Проблема осложнена еще и тем, что $\ln\hat{r}(\omega)$ может иметь особенность в верхней полуплоскости (где

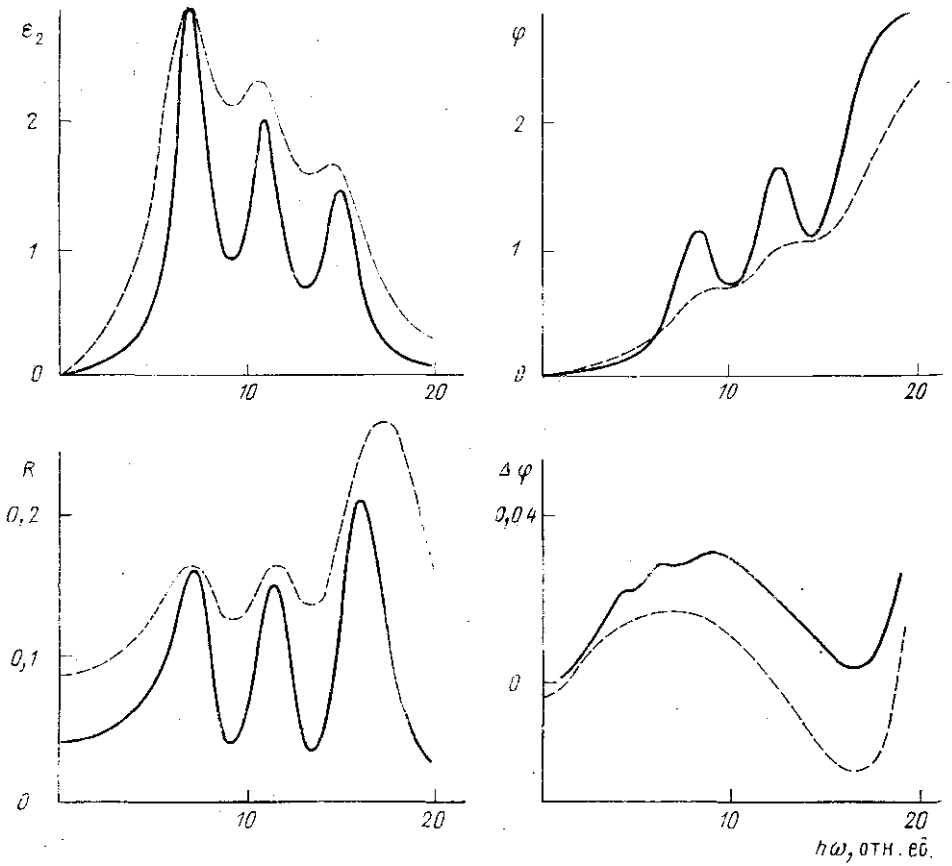

Рис. 1. Результат расчета по соотношениям Крамерса—Кронига для модельной задачи с тремя осцилляторами: ε_2 — спектр мнимой части комплексной диэлектрической проницаемости; R — коэффициент отражения по интенсивности; φ — фаза отраженной волны; $\Delta\varphi$ — ошибка, возникающая в фазе отраженной волны, при расчете по предложенной методике с ненулевыми коэффициентами A и B. Сплошная линия соответствует полуширине линий 1 отн. ед., штриховая линия — 2 отн. ед.

$\hat{r}(\omega)=0$) и $\tilde{\varphi}(\omega)$ отличается от точного значения $\varphi(\omega)$ на плавную функцию частоты ω. На практике поступают следующим образом: к $\tilde{\varphi}(\omega)$ прибавляется монотонно растущая функция, принимающая значения $\pm\pi$ при $\omega=\pm\Omega$, так, чтобы $\varphi(\omega)=0$ в области прозрачности кристалла.

На рис. 1 приводятся результаты подобного расчета по предложенной методике для модельной задачи. В качестве исходных спектров

использовались спектры отражения, рассчитанные по формулам Френеля для модели с тремя осцилляторами. Вычисленная функция $\tilde{\varphi}(\omega)$, несмотря на сложный вид спектра отражения, отличается от истинной на гладкую функцию, принимающую значения $\pm\pi$ при больших частотах. Для такой гладкой функции можно предположить:

$$\varphi(\omega)=\tilde{\varphi}(\omega)+A+B\sin\pi\omega/T+C\sin 2\pi\omega/T+\ldots,$$

причем коэффициенты в этом ряду Фурье быстро убывают. Для определения коэффициентов A, B, ... можно воспользоваться рядом свойств: $\varphi(\omega)\to\pi$ при $\omega\to T$, $\varphi(\omega)=0$ в области прозрачности, а также следующей процедурой. По известным значениям коэффициента отражения и фазы отраженной волны можно восстановить, используя формулы Френеля, мнимую и действительную части комплексной диэлектрической проницаемости, которые с физической точки зрения должны быть связаны соотношениями (1). Поэтому отличие мнимой части диэлектрической проницаемости, полученной из преобразования Крамерса—Кронига от $\varepsilon_1(\omega)$ и по формулам Френеля из комплексного коэффициента отражения, может служить критерием самосогласованности и точности такого преобразования. Особое внимание должно быть уделено поведению вблизи особенностей $\varepsilon_2(\omega)$, поскольку преобразование Крамерса—Кронига может давать аддитивный плавный вклад в мнимую часть за счет обрезания «хвостов». На практике достаточно ограничиться первыми двумя гармониками плавной функции (см. рис. 1). В случае, если преобразование проводится в достаточно широкой области спектра, можно воспользоваться также правилами сумм по $\varepsilon_2(\omega)$, коэффициенту поглощения и спектру характеристических потерь электронов. Однако необходимо учитывать, что правила сумм в ограниченной области не всегда применимы (например, пики в спектре характеристических потерь электронов существенно перераспределены в высокоэнергетическую область).

Приведенные выше соображения по поводу корректировки фазы связаны не с применением преобразования Фурье, а с неточностью соотношения (2). При выполнении преобразования можно воспользоваться четностью функции $R(\omega)$ и нечетностью $\varphi(\omega)$, в фурье-преобразовании $\ln R(\omega)$ отличными от нуля будут только коэффициенты $a(t)$. Применение быстрого преобразования Фурье позволяет за счет сокращения времени счета проводить обработку экспериментальных данных в диалоговом режиме.

Определение функции Грина кристалла из результатов зонных расчетов

Функция Грина кристалла в физике твердого тела обычно представляется в виде разложения по решениям уравнения Шрёдингера в сферически-симметричном MT-потенциале [6, 7]. Энергозависимые коэффициенты разложения $G_{LL'}(E)$, где L, L' — неприводимые представления точечной группы кристалла, характеризуют электронную структуру и могут быть получены из зонных расчетов [8]. Мнимая часть этих коэффициентов находится интегрированием по зоне Бриллюэна, а действительную часть можно получить, используя соотношения Крамерса—Кронига. Мнимая часть коэффициентов для данного L при $E\to\infty$ стремится к нулю как $E^{-1/2}$ и граничные условия для преобразования Фурье выполняются.

Для определения действительной части функции Грина желательно знать энергетический спектр до сколь угодно больших энергий. Од-

нако при больших значениях энергии в расчетах могут возникать ошибки в определении электронной структуры, связанные с 1) использованием в линейных методах линейного разложения по энергии радиальных волновых функций; 2) разложением волновых функций кристалла по неполному набору базисных волновых функций; 3) применением теории функционала плотности и, следовательно, ошибкой в определении энергий квазичастиц. Разумно ограничиться энергиями 2—3 Ry, поскольку показано [9], что расчеты оптических характеристик металлов дают удовлетворительное согласие с экспериментальными данными в этой области.

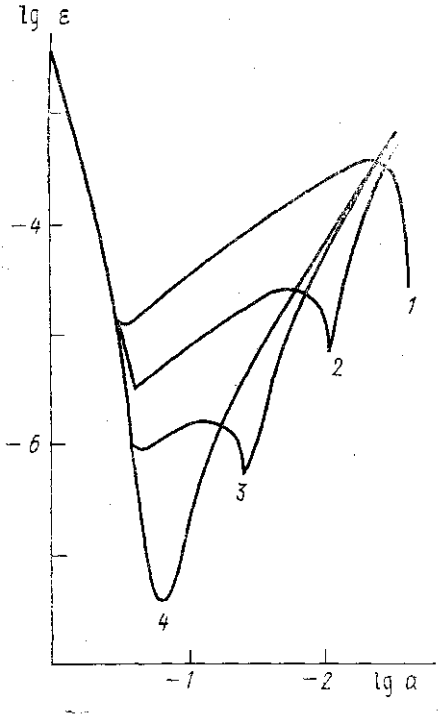

Рис. 2. Среднеквадратичная ошибка преобразования Крамерса—Кронига для модельной задачи (см. текст) в зависимости от параметра a и интервала Ω: $N=16384$ (*1*), 32768 (*2*), 65536 (*3*) и 131072 (*4*)

Влияние обрезания «хвоста» мнимой части функции Грина можно определить с помощью модельного эксперимента. На рис. 2 представлена ошибка, вызванная отсеканием точек $|i-j|>2000$ для функции типа лоренцевой:

$$f_i=1/(1+[(i-j)\,a]^2)$$

в зависимости от интервала Ω и параметра a. В расчетах с использованием функции Грина особенно важными являются коэффициенты при энергиях ниже уровня Ферми. Ошибка по отношению к известной функции

$$g_i=[(i-j)\,a]/\{1+[(i-j)\,a]^2\}$$

определялась по совокупности точек $|i-j|<500$. При уменьшении a ошибка сначала частично компенсируется за счет правого (левого) периода, а затем начиная примерно с 10^{-2} растет.

В реальных расчетах поведение мнимой части на бесконечности зависит от конкретного вида MT-потенциала и может быть получено только численно. В данных расчетах преобразование Крамерса—Кронига использовалось для получения функции Грина никеля из результатов ЛППВ-расчета (линейным методом присоединенных плоских волн). Полюсы функции Грина для эрмитово-сопряженного гамильтониана находятся на действительной оси, что определяет, особенно в d- и f-металлах, сильную зависимость коэффициентов функции Грина от энергии и выбор достаточно малого шага — 0,001 Ry. Последнее приводит к необходимости использования около 3000 точек по энергии. Применение быстрого преобразования Фурье сокращает время одного преобразования с нескольких минут (интегрирование по Симпсону) до 10 с на ЭВМ ЕС-1066.

Мнимую часть функции Грина, непосредственно связанную с плотностью состояний, можно приближенно представить в виде совокупности осцилляторов с некоторым временем жизни τ. Соответствующая плотность состояний имеет вид кривой Лоренца с $a \sim 0{,}04$ для d-состояний и $a \sim 0{,}004$ для s- и p-состояний. Отсюда ошибка в определении коэффициентов функции Грина оказывается незначительной для T_{2g}- и E_g-компонент (d-состояния) и не превышает 1% для A_{1g}- и T_{1u}-компонент (s- и p-состояния). Вариация энергии обрезания подтверждает, что точность определения действительной части коэффициентов функции Грина не хуже $5 \cdot 10^{-3}$ Ry^{-1}, что вполне приемлемо для дальнейших расчетов с использованием этих коэффициентов.

Итак, в настоящей работе показано, что ограничение точности преобразования Крамерса—Кронига во многом обусловлено недоступностью физической информации о преобразуемой функции при больших значениях аргумента. Показана эффективность преобразования Крамерса—Кронига методом быстрого преобразования Фурье, а также даны критерии оценки точности результатов.

ЛИТЕРАТУРА

[1] Kramers H. A.//Atti Congr. Inten. Fis. Como. 1927. V. 2. P. 545. [2] Kronig R.//J. Opt. Soc. Am. 1926. **12**, N 6. P. 547. [3] Диткин В. А., Прудников А. П. Интегральные преобразования и операционное исчисление. М., 1974. [4] Брычков Ю. А., Прудников А. П. Интегральные преобразования обобщенных функций. М., 1977. [5] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред. М., 1959. [6] Korringa J.//Physica. 1947. **13**. P. 392. [7] Kohn W., Rostoker N.//Phys. Rev. 1954. **94**, N 5. P. 1111. [8] Podloucky R., Zeller R., Dederichs P. H.//Phys. Rev. 1980. **B22**, N 12. P. 5777. [9] Maksimov E. G., Mazin I. I., Rashkeev S. N., Uspenski Yu. A.//J. Phys. F. 1988. **18**, N 4. P. 833.

Поступила в редакцию
13.03.89

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3, ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ. 1990. Т. 31, № 2

УДК 527.226.33

ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КВАСЦАХ

С. В. Павлов

(кафедра физики кристаллов)

Предложена феноменологическая модель описания фазовых переходов в сегнетоэлектрических квасцах. Показано, что аномалия диэлектрической проницаемости в МАСД при 145 К обусловлена фазовым переходом в поле спонтанной поляризации, происходящим в результате взаимодействия коллинеарных дипольных подсистем. Объяснены некоторые особенности диэлектрической проницаемости квасцов при наложении внешних воздействий.

Из семейства сегнетоэлектрических квасцов наиболее полно, по-видимому, исследованы алюмометиламмониевые квасцы (МАСД) [1—7]. Кристаллы МАСД испытывают при 177 К фазовый переход (ФП) первого рода и проявляют при этом необычные свойства. А именно, температурный ход диэлектрической проницаемости ε сильно зависит