

Я-499

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

17 - 11492

ЯКУШЕВИЧ

Людмила Владимировна

ЭЛЕМЕНТАРНЫЕ ВОЗБУЖДЕНИЯ
В ОДНОМЕРНЫХ СИСТЕМАХ
С РЕЗОНАНСНЫМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕМ

Специальность 01.04.02 -
теоретическая и математическая физика

Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Дубна 1978

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики
Объединённого института ядерных исследований.

Научный руководитель -
доктор физико-математических наук

В.К. ФЕДЯНИН.

Официальные оппоненты:
Член-корреспондент АН УССР
доктор физико-математических наук
профессор

С.В. ПЕЛЕТМИНСКИЙ.

доктор физико-математических наук

Б.И. САДОВНИКОВ.

Ведущее научно-исследовательское учреждение:
Институт физики АН ЭССР (г. Тарту).

Автореферат разослан " " _____ 1978 года.
Защита диссертации состоится " " _____ 1978 года
на заседании специализированного Учёного совета К047.01.01
Лаборатории теоретической физики Объединённого института ядерных
исследований, г. Дубна, Московской области.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Учёный секретарь Совета

В.И. ЖУРАВЛЕВ.

Общая характеристика

Актуальность проблемы. Исследование коллективных возбужденных состояний в одномерных системах с резонансным взаимодействием, в том числе элементарных возбуждений большой плотности, позволяет получить важную информацию о разнообразных свойствах систем, включающих квазиодномерные кристаллы, полимеры и биополимеры. Эти исследования необходимы для решения ряда проблем физики и биофизики, касающихся структурных свойств полимеров и биополимеров, интерпретации их спектров, изучения возможных механизмов энергии возбуждения вдоль цепочечных структур.

Цель работы - использование методов квантово-статистических гриновских функций Боголюбова-Тябликова для исследования особенностей поведения коллективных возбужденных состояний в одномерных системах с резонансным взаимодействием.

Научная новизна и практическая ценность. В диссертации развит последовательный подход для решения задач, касающихся исследования особенностей поведения элементарных возбуждений в одномерных системах с резонансным взаимодействием. С помощью такого подхода получен ряд новых точных результатов для случая жесткой молекулярной цепочки с малой плотностью элементарных возбуждений, получены дополнительные данные о поведении элементарных возбуждений большой плотности, об эффектах взаимодействия экситонных возбуждений с фононами. Выведено качественно новое нелинейное уравнение, описывающее движение экситонного возбуждения в длинноволновом пределе.

Предложенные в работе подходы и результаты могут быть использованы при интерпретации оптических и нейтронных спектров квазиодномерных молекулярных кристаллов, полимеров и биополимеров, а также для решения проблем передачи энергии при исследовании различных биологических процессов (процессов фотосинтеза, процессов мышечного сокращения и др.).

Объединённый институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

Следующие результаты выдвигаются для защиты:

1) Ряд точных результатов (данные о спектре, плотности возбуждений, энергии системы и др.), полученных в рамках модели элементарных возбуждений малой плотности, отвечающих экситонной области спектра жесткой молекулярной цепочки.

2) Результаты по исследованию эффектов экситон-фононного взаимодействия.

3) Разработанный в диссертации метод получения качественно нового нелинейного уравнения движения элементарных возбуждений вдоль цепочки.

Полученные результаты применены к задачам рассеяния нейтронов и примесным задачам в одномерных структурах.

Апробация работ. Результаты диссертации докладывались на конференции по избранным вопросам статистической физики (Львов, май 1975 г.), на Всесоюзном симпозиуме по межмолекулярным взаимодействиям и конформациям молекул (Пушино, март 1976 г.), на семинарах ЛФФ ОИЯИ и ИБФ АН СССР.

Публикации. По результатам диссертации опубликовано семь статей.

Объем работ. Диссертация состоит из введения, трех глав и выводов, содержит 93 страницы машинописного текста. Библиографический список состоит из 76 названий.

Содержание работы

Во введении дан краткий исторический обзор развития методов исследования элементарных возбуждений, отвечающих экситонной области спектра класса систем, включающего квазиодномерные молекулярные кристаллы, полимеры и биополимеры. Отмечены возможности развития нового подхода к решению этой проблемы в одномерном случае, основанного на строгом учёте статистики элементарных возбуждений и последовательном учёте всех квадратичных слагаемых в исходном модельном гамильтониане. Указано, какие аспекты этой общей проблемы исследуются в диссертации. Кратко изложено содержание диссертации.

В первой главе диссертации получен ряд точных результатов по исследованию равновесных свойств элементарных возбуждений, отвечающих экситонам в одномерных системах с жестко фиксированными молекулами.

В первой части главы с помощью точных соотношений между операторами Паули и операторами Ферми исходный модельный гамильтониан, описывающий элементарные возбуждения малой плотности в цепочке с одной молекулой в ячейке, переписывается в терминах ферми-операторов, диагонализуется и таким образом показывается, что элементарные возбуждения малой плотности в экситонной цепочке с взаимодействием ближайших соседей соответствуют модели ферми-газа с дисперсией

$$\epsilon_k = \sqrt{(\Delta + 2M \cos ka)^2 + (2M' \sin ka)^2}, \quad (1)$$

где k - волновой вектор; a - постоянная решетки; Δ , M , M' - определяются энергией возбуждения отдельной молекулы и матричными элементами оператора взаимодействия.

Выполнены вычисления функций Грина, парных корреляционных функций, таких, как средняя плотность элементарных возбуждений

$$\langle P_n^+ P_n^+ \rangle = \frac{1}{2N} \sum_k \left(1 - \frac{T_k}{\epsilon_k} \tanh \frac{\epsilon_k}{2\theta}\right), \quad T_k = \Delta + 2M \cos ka; \quad (2)$$

функций

$$\langle P_n^+ P_{n+1}^+ + P_{n+1}^+ P_n^+ \rangle = N^{-1} \sum_k \left(1 - \frac{T_k}{\epsilon_k} \tanh \frac{\epsilon_k}{2\theta}\right) \cos ka; \quad (3)$$

$$\langle P_n^+ P_{n+1}^+ + P_n^+ P_{n+1}^+ \rangle = N^{-1} \sum_k 2M' \frac{\sin^2 ka}{\epsilon_k} \tanh \frac{\epsilon_k}{2\theta}, \quad \theta = k_B T,$$

дающих вклад в среднее значение энергии экситонной цепочки, при водятся также выражения для групповой скорости распространения возбуждения вдоль цепочки и времени передачи возбуждения от одной молекулы к соседней.

Во второй части главы показана взаимосвязь между характером получаемых результатов, в частности, характером получаемого спектра, и структурой элементарной ячейки молекулярной цепочки. Сопоставляются результаты вычисления спектра элементарных возбуждений в двух случаях: в простом случае одной молекулы в элементарной ячейке цепочки и в случае двух одинаковых, но различным образом ориентированных молекул в ячейке. Показано, что в отличие от первого случая во втором элементарные возбуждения малой плотности отвечают модели ферми-газа квазичастиц двух сортов с дисперсией

$$\epsilon_k^{(1),(2)} = \sqrt{\Delta^2 + t_k + t_k' \pm \sqrt{4\Delta^2 t_k + (t_k + t_k')^2 - q_k} P_k}, \quad (4)$$

где

$$\begin{aligned} \rho_k &= (M+M')^2 + (m-m')^2 + 2(M+M')(m-m') \cos ka; \\ \rho_k &= (M-M')^2 + (m+m')^2 + 2(M-M')(m+m') \cos ka; \\ t_k &= M^2 + m^2 + 2Mm \cos ka, \quad t'_k = M'^2 + m'^2 - 2M'm' \cos ka; \quad M, M', \end{aligned}$$

m, m' - матричные элементы оператора взаимодействия между молекулами цепочки. Другими словами, первому случаю соответствует одна экситонная зона, второму - две (так называемое давидовское расщепление).

Случай большой плотности элементарных возбуждений рассматривается в п. I. д. Отмечается особая важность правильного учёта статистики возбуждений в этом случае. Приводится преобразование соответствующего модельного гамильтониана к ферми-операторам и даётся решение задачи в хартри-фоковском приближении.

Вторая глава диссертации посвящена рассмотрению эффектов экситон-фононного взаимодействия.

В первой части главы исследуются стрикционные эффекты, обусловленные экситон-фононным взаимодействием. Показано, что в рамках простой модели, учитывающей колебания в гармоническом приближении, а экситон-фононное взаимодействие в линейном по смещениям молекул приближении, наличие экситонных возбуждений не влияет на частоту колебаний и сводится лишь к изменению расстояний между равновесными положениями молекул, причём это изменение пропорционально плотности экситонных возбуждений

$$\Delta x = 2D \langle P_n^+ P_n \rangle (m\omega^2 a)^{-1} < 0. \quad (5)$$

Количественно проанализировано влияние колебаний на экситонные характеристики системы. Проведено сравнение полученных результатов с более ранними вычислениями, выполненными Давыдовым.

Вторая часть главы посвящена исследованию динамики элементарных возбуждений, описываемых гамильтонианом вида

$$H = \sum_n \left[p a_n^+ a_n + \mu (a_n^+ a_{n+1} + a_{n+1}^+ a_n) + \mu' (a_n^+ a_{n+1}^+ - a_n a_{n+1}) + q N_n N_{n+1} \right] \quad (6)$$

Модельные гамильтонианы такого типа описывают экситонные возбуждения малой и большой плотности в жёсткой молекулярной цепочке ($p = \Delta; \mu = M; \mu' = M'; q = 0, L$), возбуждения в экситонной подсистеме гамильтониана экситон-фононной системы ($p = \tilde{\Delta}; \mu = \tilde{\mu}; \mu' = \tilde{M}'; q = \tilde{L};$) и др. Предложен метод получения

уравнения движения элементарного возбуждения, которой основывается на подборе прединтегральной функции $\langle \psi | \rho_n | \psi \rangle = \rho_n(t)$.

В длинноволновом пределе ($\rho_n(t) \rightarrow \rho(x, t)$) получено нелинейное уравнение движения вида

$$i\dot{\psi} = (p + 2\mu)\psi + \mu\psi_{xx} + 2\mu'\psi_x^* + 2q|\psi|^2\psi,$$

или в безразмерных переменных:

$$i\dot{\phi} - \phi + \alpha\phi_{\xi}^* + \phi_{\xi\xi} + |\phi|^2\phi = 0. \quad (7)$$

Обсуждается решение этого уравнения в рамках теории возмущений по α .

Третья глава диссертации посвящена приложениям полученных в первых главах результатов к эффектам рассеяния нейтронов на экситонах и исследованию особенностей спектра экситонной цепочки с точечной примесью.

Для решения первой задачи строится модельный оператор амплитуды рассеяния нейтронов на экситонах. Такой подход позволяет на единой основе рассмотреть как рассеяние на жёстких экситонных системах, так и на экситон-фононных системах. Вычислено дифференциальное сечение неупругого некогерентного рассеяния нейтронов на экситонах системы, ориентированных вдоль некоторой оси жестких молекулярных цепочек. Расчеты выполнены для случая одной и двух молекул в элементарной ячейке.

Решение второй задачи дано в рамках известного подхода Лифшица и Монтролла-Поттса и при использовании результатов расчетов гриновских функций идеальной экситонной цепочки. Получено частотное уравнение, определяющее спектр экситонной цепочки с точечной примесью; дан качественный анализ его решений для случая "изотопной" примеси.

Основные результаты, полученные в диссертации

I. В отличие от известных ранее методов исследования элементарных возбуждений, отвечающих экситонам в молекулярных цепочках, предложен подход, который основывается на использовании точного преобразования от паулевских операторов рождения и уничтожения к фермиевским, а также последовательно учитывает все квадратичные по паули-амплитудам слагаемые в исходном модельном гамильтониане.

2. Получено строгое решение соответствующей экситонной задачи для случая малой плотности возбуждений в жесткой молекулярной цепочке с одной молекулой в элементарной ячейке. В частности, получены выражения для спектра элементарных возбуждений, для парных корреляционных функций, функций Грина, скорости миграции возбуждения по цепочке, времени передачи возбуждения от одной молекулы к соседней.

3. Показано, что предложенный подход может быть использован для исследования элементарных возбуждений как в простых экситонных цепочках (с одной молекулой в ячейке), так и в цепочках с более сложной структурой. В качестве примера приведено решение экситонной задачи для случая малой плотности возбуждений в жесткой молекулярной цепочке с двумя одинаковыми, но различным образом ориентированными молекулами в ячейке. Выявлены качественные изменения в структуре спектра элементарных возбуждений (в данном случае - давидовское расщепление), связанные с усложнением структуры элементарной ячейки.

4. Обсуждены возможности использования предлагаемого метода для исследований больших плотностей экситонных возбуждений. Приведены, в частности, результаты решения соответствующей экситонной задачи в хартри-фоковском приближении.

5. С помощью предложенного подхода, а также с использованием преобразования Маттиса-Шульца исследованы стрикционные эффекты в экситонной цепочке, обусловленные взаимодействием экситонных возбуждений с продольными колебаниями молекул. Показано, что вследствие экситон-фоонного взаимодействия равновесные расстояния между молекулами цепочки уменьшаются и это уменьшение пропорционально плотности возбуждений.

6. Исследовано поведение элементарных возбуждений, отвечающих экситонам, в длинноволновом приближении. Предложен метод получения нелинейного дифференциального уравнения движения возбуждения вдоль цепочки. Показано, что использование предложенного выше подхода, последовательно учитывающего все квадратичные по паули-амплитудам слагаемые в исходном гамильтониане, приводит к новому типу нелинейного уравнения движения.

7. Полученные в работе результаты для спектра элементарных возбуждений, функций Грина, корреляционных функций применены к двум прикладным задачам экситонной теории: 1) к задаче рассеяния медленных нейтронов на экситонах, 2) к исследованию спектра элементарных возбуждений экситонной цепочки с точечной примесью.

8. Результаты выполненного исследования особенностей поведения элементарных возбуждений в модельных одномерных системах могут быть использованы при изучении различных свойств полимеров и биополимеров, в частности, при интерпретации их спектров, а также при изучении механизмов миграции энергии возбуждения вдоль цепочечных структур.

Результаты диссертации опубликованы в работах:

1. В.К. Федянин, Л.В. Якушевич, ОИЯИ, Дубна, Р 17-9627, 1976.
2. В.К. Федянин, Л.В. Якушевич, ОИЯИ, Дубна, Р 17-9628, 1976.
3. В.К. Федянин, Л.В. Якушевич, ОИЯИ, Дубна, Р 17-9896, 1976.
4. В.К. Федянин, Л.В. Якушевич, Тезисы доклада на III Всесоюзном симпозиуме по межмолекулярному взаимодействию и конформациям молекул, г. Пущино, 1976.
5. В.К. Федянин, Л.В. Якушевич, ТМФ, 30, № 1, 133, 1977.
6. В.Г. Маханьков, В.К. Федянин, Л.В. Якушевич, ОИЯИ, Дубна, Р 17-10448, 1977.
7. V.K. Fedyanin, V.G. Makhankov, L.V. Yakushevich. Phys. Letters, 61-A, 256, 1977.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 мая 1978 года.