сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

Р17-84-567

В.А.Осипов, В.К.Федянин

РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА СОЛИТОНАХ В ПОЛИАЦЕТИЛЕНЕ

1984

1. В работе [1] получены динамические уравнения модели полиацетилена Шу, Шриффера, Хигера в континуальном приближении. Показано, что в пределе малых скоростей $v \ll v_F$, где скорость Ферми $v_F \simeq 9{,}3 \cdot 10^5$ м/с, имеются элементарные возбуждения, соответствующие движущимся кинкам. Аналитическое выражение для параметра щели

$$\Delta(z, t) = \Delta_0 \tanh \frac{z - v_c t}{\xi_c}, \qquad /1/$$

где Δ_0 - щель в одноэлектронном спектре при нулевой температуре; $v_c = \frac{\nu^2 - 1}{\nu^2 + 1} v_F$, $\xi_c = \frac{2 v_F}{\Delta_0(\nu + 1/\nu)}$ - соответственно скорость и ширина солитона, ν - свободный параметр порядка единицы, который можно фиксировать по экспериментальным данным, $z_0 = 0$.

В присутствии кинка в электронном спектре появляется выделенная мода с нулевой энергией /голдстоуновская мода/. Кроме того, меняется вид электронных волновых функций в валентной зоне. Предполагается, что солитонные возбуждения определяют магнитные, электрические, транспортные и оптические свойства трансполиацетилена. Важной экспериментальной задачей является исследование эффектов, обусловленных движущимися солитонами.

В настоящей работе рассматривается вклад солитонов в спектр рассеянного на цепочках полиацетилена света. Получено выражение для динамического структурного фактора /ДСФ/ солитона и интенсивности рассеянного на солитонах света. Показано, что учет рассеяния на солитонах приводит к перераспределению интенсивности центрального пика в квазиупругую компоненту, получена температурная зависимость интегральной интенсивности и ширины квазиупругой компоненты.

2. Используем "газовое" приближение для солитонов. Выражение для ДСФ солитона получим исходя из общей теории рассеяния света на газе частиц.

Пусть на систему N оснований падает плоская волна $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \exp(\vec{k}_0 \vec{r} - \omega_0 t)$ с волновым вектором $\vec{k}$, частотой ω_0. Индуцированная плотность дипольного момента

$$\vec{p}(\vec{r}, t) = \alpha \vec{E}(\vec{r}, t) \sum_{i=1}^{N} \delta(\vec{r} - \vec{R}_i(t)), \qquad /2/$$

где α - поляризуемость основания /полагаем $\alpha \neq \alpha(\omega_0)$ /, $\vec{R}_i(t)$ - положение i-го основания в момент времени t. При малом изменении частоты света при рассеянии $\Omega = \omega - \omega_0 \ll \omega_0$, где ω - частота рассеянного света, выражение для интенсивности рассеянного света имеет вид [2]:

$$I'(R,\omega) = \frac{\alpha^2\omega^4}{2\pi c^4 R^2} I_0 \sin^2\gamma \int_V d\vec{r} \int_{-\infty}^{\infty} dt\, e^{i(\Omega t - \vec{q}\vec{r})} < \sum_{i,j=1}^{N} \delta(\vec{r} - \vec{R}_i(t) + \vec{R}_j(0))>, \qquad /3/$$

где R - расстояние от рассеивателя до точки наблюдения, $I_0 = \frac{c}{4\pi}|\vec{E}_0|^2$ - интенсивность падающего света, $\cos\gamma = \frac{\vec{E}_0\vec{R}}{E_0 R}$, γ - угол рассеяния, $\vec{q} = \frac{\omega\vec{R}}{cR} - \vec{k}_0 = \vec{k} - \vec{k}_0$, c - скорость света, $<\dots>$ - статистическое усреднение.

Наибольший интерес представляет изучение неупругого рассеяния света. В однофононном приближении /см. Приложение/

$$I'(R,\omega) = A \int dt\, e^{i\Omega t} \sum_{\vec{R}^*} e^{-i\vec{q}\vec{R}^*} <(\vec{q}\vec{u}(0))(\vec{q}\vec{u}(\vec{R}^*,t))>. \qquad /4/$$

Таким образом, возникает коррелятор типа "смещение-смещение". В случае одномерной цепочки, ориентированной вдоль оси z, $\vec{u} = (0,0,u)$. Для полиацетилена из /1/ с учетом линейной связи $\Delta = 4\kappa u$, κ -электрон-фононная константа связи, получим $u(\rho) = u_0 \tanh\rho$, где $\rho = \frac{z - v_c t}{\xi_c}$, u_0 - однородная деформация решетки.

Полагая $q \equiv q_z$, из /4/

$$I'(R,\omega) = A \int dt \int dz\, e^{i(\Omega t - qz)} <(qu(0))(qu(z,t))>. \qquad /5/$$

Усреднение по ансамблю солитонов аппроксимируем $<\dots> = \bar{N}_c <\dots>_1$, где

$$<\dots>_1 \equiv S_1(z,t) = \frac{\int dz \int dp_z (\dots) e^{-E_c/\theta}}{\int dz \int dp_z\, e^{-E_c/\theta}}, \qquad /6/$$

$\bar{N}_c$ - среднее число солитонов в цепочке, θ - температура системы, E_c - энергия солитона.

3. Определим ДСФ солитона

$$S_1(q,\Omega) = \int dt \int dz\, e^{i(\Omega t - qz)} S_1(z,t). \qquad /7/$$

При этом, согласно /5/, $I'(R,\omega) = A\bar{N}_c S_1(q,\Omega)$. Для вычисления /7/ применим простой метод, развитый в [3]. В результате

$$S_1(q,\Omega) = \frac{p'(v_0)\xi_c^2(v_0)}{2\pi h q Z_1} f(q\xi_c(v_0)) f(-q\xi_c(v_0)) e^{-E_c(v_0)/\theta}, \qquad /8/$$

где $v_0 = \frac{\Omega}{q}$, $p'(v_0) = M_c$ - масса солитона, $Z_1 = \frac{2L}{h}\int dp\, e^{-E(p)/\theta}$ - статистическая сумма отдельного рассеивателя, $f(\lambda) = \int \Phi(\rho) e^{i\lambda\rho} d\rho$, 2L - длина цепочки.

Определяя из /5/ $\Phi(\rho) = qu(\rho)$, имеем

$$f(q\xi_c(v_0)) = iqu_0 \frac{\pi}{\mathrm{sh}\frac{\pi q\xi_c(v_0)}{2}}. \qquad /9/$$

Энергия солитона в нерелятивистском пределе $E_c = E_0 + \frac{M_c v_c^2}{2}$, E_0 - энергия покоящегося солитона. Теперь нетрудно получить $Z_1 = \frac{2L}{h}(2\pi M_c\theta)^{1/2} e^{-E_0/\theta}$ и, окончательно,

$$S_1(q,\Omega) = \frac{M_c u_0^2}{\pi q}\left(\frac{x}{\mathrm{sh}\,x}\right)^2 \frac{e^{-\frac{M_c}{2\theta}\left(\frac{\Omega}{q}\right)^2}}{L(2\pi M_c\theta)^{1/2}}, \qquad /10/$$

где $x = \frac{\pi q\xi_c(v_0)}{2}$.

С учетом $\bar{N}_c$ солитонов

$$S(q,\Omega) = \bar{N}_c S_1(q,\Omega) = \bar{n}_c \frac{u_0^2}{q}\left(\frac{2M_c}{\pi^3\theta}\right)^{1/2}\left(\frac{x}{\mathrm{sh}\,x}\right)^2 e^{-\frac{M_c}{2\theta}\left(\frac{\Omega}{q}\right)^2}, \qquad /11/$$

где $\bar{n}_c = \frac{\bar{N}_c}{2L}$ - плотность солитонов.

В связи с /11/ отметим следующее. Во-первых, выражение для ДСФ солитона в полиацетилене /11/ имеет вид, аналогичный ряду ДСФ, вычисленных в [3], что является следствием частицеподобного характера солитонных возбуждений.

Во-вторых, в [3] использовалась автокорреляционная функция "плотность-плотность", что адекватно использованию коррелятора "смещение-смещение" для нашей ситуации ввиду самосогласованности электрон-фононной системы, описывающей полиацетилен.

Интенсивность рассеянного на солитонах света

$$I'(R,\omega) = \frac{\alpha^2\omega^4}{2\pi c^4 R^2} I_0 \sin^2\gamma\, e^{-2W} \bar{n}_c \frac{u_0^2}{q}\left(\frac{2M_c}{\pi^3\theta}\right)^{1/2}\left(\frac{x}{\mathrm{sh}\,x}\right)^2 e^{-\frac{M_c}{2\theta}\left(\frac{\Omega}{q}\right)^2}. \qquad /12/$$

Интерес представляет анализ температурного поведения параметров центрального пика. Для интегральной интенсивности J имеем следующее выражение:

$$J = \int S(q,\Omega)\,d\Omega = \frac{2u_0^2}{\pi}\left(\frac{x}{\operatorname{sh} x}\right)^2 \bar{n}_c . \qquad /13/$$

В общем случае щель в одноэлектронном спектре Δ_0, и, следовательно, ширина солитона зависят от температуры. Если считать $\xi_c \neq \xi_c(\theta)$, что справедливо при низких температурах, то вся зависимость J от θ связана с $\bar{n}_c$. Будем использовать "нулевую" аппроксимацию для средней плотности солитонов /3/ $\bar{n}_c \sim \sqrt{E_0/\theta}\; e^{-E_0/\theta}$. Таким образом, интегральная интенсивность зависит от температуры экспоненциально. Другим важным параметром является ширина квазиупругой компоненты $\Delta\Omega$. Для полиацетилена $\Delta\Omega = q\sqrt{8\theta/M_c}$ при $q \leq 4/\pi\xi_c$, т.е. $\Delta\Omega$ пропорциональна $\sqrt{\theta}$.

4. В заключение отметим, что наиболее интенсивное рассеяние происходит при малых передачах импульса. Интенсивность рассеянного на солитонах света подавляется экспоненциально малым множителем, что чрезвычайно затрудняет выделение вклада солитонов в центральном пике при экспериментальном анализе. Тем не менее, температурная зависимость параметров центрального пика, характерная для солитонов, может дать указание о солитонном механизме рассеяния света в полиацетилене.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Получим выражение для интенсивности рассеянного света /3/. Интегрируя /2/ по объему системы и вводя $\vec{R}_i(t) = \vec{R}_i^\circ(0) + \vec{u}_i(t)$: $\vec{R}_j(0) = \vec{R}_j^\circ(0) + \vec{u}_j(0)$, где $\vec{R}_i^\circ(0)$, $\vec{R}_j^\circ(0)$ - начальное положение основания i, j, $\vec{u}_i(t)$, $\vec{u}_j(t)$ - смещение основания из положения равновесия в момент времени t, имеем:

$$I'(R,\omega) = \frac{a^2\omega^4}{2\pi c^4 R^2} I_0 \sin^2\gamma \sum_{i,j} e^{-i\vec{q}(\vec{R}_i^\circ(0)-\vec{R}_j^\circ(0))} \int dt\, e^{i\Omega t} \langle e^{i\vec{q}\vec{u}_j(0)}\, e^{-i\vec{q}\vec{u}_i(t)} \rangle .$$

В континуальном пределе

$$I'(R,\omega) = \frac{a^2\omega^4}{2\pi c^4 R^2} I_0 \sin^2\gamma \sum_{\vec{R},\vec{R}'} e^{-i\vec{q}(\vec{R}^\circ-\vec{R}^{\circ\prime})} \int dt\, e^{i\Omega t} \langle e^{i\vec{q}\vec{u}(\vec{R}')}\, e^{-i\vec{q}\vec{u}(\vec{R},t)} \rangle .$$

Используем равенство

$$\langle \exp(i\vec{q}\vec{u}(\vec{R}')) \exp(-i\vec{q}\vec{u}(\vec{R},t)) \rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}\langle[\vec{q}\vec{u}(\vec{R}')]^2\rangle - \frac{1}{2}\langle[\vec{q}\vec{u}(\vec{R},t)]^2\rangle + \langle[\vec{q}\vec{u}(\vec{R}')][\vec{q}\vec{u}(\vec{R},t)]\rangle\right).$$

Определим

$$\langle[\vec{q}\vec{u}(\vec{R}')]^2\rangle = \langle[\vec{q}\vec{u}(\vec{R},t)]^2\rangle = \langle[\vec{q}\vec{u}(0)]^2\rangle \equiv 2W ,$$

где W - фактор Дебая-Уолллера, и

$$\langle[\vec{q}\vec{u}(\vec{R}')][\vec{q}\vec{u}(\vec{R},t)]\rangle = \langle[\vec{q}\vec{u}(0)][\vec{q}\vec{u}(\vec{R}-\vec{R}',t)]\rangle .$$

Осуществляя замену $\vec{R}^\circ - \vec{R}^{\circ\prime} = \vec{R}^*$, окончательно получаем

$$I'(R,\omega) = A\int dt\, e^{i\Omega t} \sum_{\vec{R}^*} e^{-i\vec{q}\vec{R}^*} \exp\langle[\vec{q}\vec{u}(0)][\vec{q}\vec{u}(\vec{R}^*,t)]\rangle ,$$

где $A = \frac{a^2\omega^4}{2\pi c^4 R^2} I_0 \sin^2\gamma\, e^{-2W}$.

Используя разложение для экспоненты

$$\exp\langle[\vec{q}\vec{u}(0)][\vec{q}\vec{u}(\vec{R}^*,t)]\rangle = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!}\left(\langle[\vec{q}\vec{u}(0)][\vec{q}\vec{u}(\vec{R}^*,t)]\rangle\right)^m ,$$

имеем при $m=0$ - бесфононный процесс /упругое рассеяние/, при $m=1$ - однофононный процесс и т.д.

ЛИТЕРАТУРА

1. Осипов В.А., Федянин В.К. ОИЯИ, Р17-84-138, Дубна, 1984.
2. Комаров Л.И., Фишер И.З. ЖЭТФ, 1962, 43, с.1927.
3. Федянин В.К. ОИЯИ, Р17-82-268, Дубна, 1982.

Рукопись поступила в издательский отдел
7 августа 1984 года.

Осипов В.А., Федянин В.К. Р17-84-567
Рассеяние света на солитонах в полиацетилене

Получено выражение для динамического структурного фактора и интенсивности неупругого рассеяния света на "газе" солитонов в полиацетилене. Показано, что параметры центрального пика имеют характерное температурное поведение, обусловленное солитонным вкладом.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1984

Перевод Г.Г.Сандуковской

Osipov V.V., Fedyanin V.K. P17-84-567
Light Scattering on Solitons in Polyacetylene

The expression for both the dynamic form factor and the intensity of the inelastic light scattering on the "gas" of solitons in polyacetylene is obtained. It is shown that the parameters of the central peak have the specific temperature dependence due to solitons.

The investigation has been performed at the Laboratory of Theoretical Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1984