УДК 539

Натанзон Ю. Е., Брижик Л. С, Єремко О. О.

ДИНАМІКА ДАВИДОВСЬКОГО СОЛІТОНА В СТАЛОМУ ЕЛЕКТРИЧНОМУ ПОЛІ

У роботі досліджено вплив сталого електричного поля на динаміку автолокалізованих станів квазічастинки в одновимірному молекулярному ланцюжку. Показано, що слабке електричне поле спричинює прискорений рух квазічастинки вздовж: ланцюжка, що може пояснювати процеси транспорту зарядів у одновимірних молекулярних системах. Проаналізовано залелсність швидкості квазічастинки та часу її перебування в локалізованому стані від величини поля та інших параметрів системи. Показано, що у замкнутому ланцюжку квазічастинка, яка в початковий момент часу перебувала у стані спокою, завдяки накопиченню енергії через певний проміжок часу починає рухатись у скількимога слабкому, але ненульовому електричному полі.

Ключові слова: *давидовський солітон, автолокалізація, транспорт зарядів.*

Проблема ефективного транспорту заряду в низькорозмірних (LD) системах, зокрема в біологічних макромолекулах, активно вивчається впродовж останніх 30 років. Одним із можливих механізмів транспорту у м'яких LD системах є захоплення електрона (або дірки) ґраткою і його рух вздовж ланцюжка у вигляді локалізованого солітонподібного пакета, що не розпливається впродовж досить тривалого часу. Цей процес називається автолокалізацією квазічастинки. Механізм транспорту заряду та енергії у одновимірних молекулярних ланцюжках у вигляді автолокалізованих станів був запропонований О. С. Давидовим у 70-х роках минулого століття [1]. Давидовські солітони було досліджено як аналітично, так і чисельно в роботах багатьох його послідовників, механізм було розширено, зокрема враховано випадки взаємодії квазічастинки як з акустичними, так і з оптичними фононами (напр., [2]–[4]).

Вплив електричного та магнітного полів на динаміку давидовських солітонів є цікавим з точки зору і прикладної (напр., застосування для наноелектроніки), і фундаментальної науки (напр., пояснення впливу електромагнітного поля на процеси транспорту заряду в біосистемах). Зокрема, в роботах [5]–[6] досліджено вплив змінного електричного поля на динаміку солітона, а вплив сталого поля досі залишається малодослідженим.

У цій роботі розглядається слабке стале електричне поле, що діє на локалізовану квазічастинку в молекулярному ланцюжку з акустичними фононами, і досліджується вплив цього поля на її локалізацію та динаміку.

1. Основні рівняння

Рух квазічастинки в ланцюжку описується гамільтоніаном Фрьоліха, що є сумою гамільтоніану квазічастинки, гамільтоніану фононів та гамільтоніану взаємодії:

$$H = \sum_{n=1}^{N} \Big\{ -J(\psi_n^* \psi_{n+1} + \psi_n^* \psi_{n-1}) - \\ - iEt(\psi_n^* \psi_{n+1} - \psi_n^* \psi_{n-1}) + \frac{q_n^2}{2M} + \frac{w}{2}(v_n - v_{n-1})^2 + \\ + \chi_{ac} |\psi_n|^2 (v_{n+1} - v_{n-1})^2 \Big\}, \quad (1)$$

Тут ψ_n – амплітуда густини заряду квазічастинки, локалізованої на n-му вузлі (нормована на одиницю), v_n – відхилення n-ї молекули масою M від рівноважного положення, q_n – канонічно спряжений імпульс, J – обмінна енергія в наближенні найближчих сусідів, w – коефіцієнт пружності, χ_{ac} – стала електрон-фононної взаємодії, E – напруженість електричного поля. При цьому ми обираємо таке калібрування заряду, в якому скалярний потенціал дорівнює нулю, і тоді вектор-потенціал сталого електричного поля буде мати вигляд $A = Et$. З цих міркувань ми й записуємо взаємодію квазічастинки з полем, яка визначається другим доданком у (1).

Із цього гамільтоніану випливає система рівнянь Давидова, яка містить доданок, що визначає дію електричного поля та може бути узагальнена на випадок наявності тертя (тут Γ – коефіцієнт тертя):

$$i\hbar \frac{\partial \psi_n}{\partial t} = -J(\psi_{n+1} + \psi_{n-1}) + \chi_{ac} \psi_n (v_{n+1} - v_{n-1}) - \\ - iEt(\psi_{n+1} - \psi_{n-1}), \quad (2)$$

$$\frac{\partial q_n}{\partial t} = w(v_{n+1} + v_{n-1} - 2v_n) + \chi_{ac}(|\psi_{n+1}|^2 - \\ - |\psi_{n-1}|^2) - \Gamma q_n, \quad (3)$$

$$\frac{\partial v_n}{\partial t} = \frac{q_n}{M}. \quad (4)$$

Для чисельного інтеґрування системи (2) – (4) введемо безрозмірні функції, змінні та сталі:

$$v_n \to v_n \frac{\sqrt{MJ}}{\hbar}, \; q_n \to \frac{q_n}{\sqrt{MJ}}, \; t \to t\frac{J}{\hbar}, \; g_{ac} = \frac{\hbar \chi_{ac}}{\sqrt{MJ^3}},$$

$$Q = \frac{\hbar^2 w}{MJ^2}, \; E \to \frac{\hbar E}{J^2}, \; \gamma = \frac{\hbar^2 \Gamma}{MJ^2}.$$

Після розділення дійсної та уявної частини функції $\psi_n = f_n + i\varphi_n$, рівняння (2) – (4) будуть мати вигляд:

$$\frac{\partial f_n}{\partial t} = -(\varphi_{n-1} + \varphi_{n+1}) + g_{ac}\varphi_n (v_{n+1} - v_{n-1}) - \\ - Et(f_{n+1} - f_{n-1}), \quad (5)$$

$$\frac{\partial \varphi_n}{\partial t} = f_{n-1} + f_{n+1} - g_{ac} f_n (v_{n+1} - v_{n-1}) - \\ - Et(\varphi_{n+1} - \varphi_{n-1}), \quad (6)$$

$$\frac{dq_n}{dt} = Q(v_{n+1} + v_{n-1} - 2v_n) + \\ + g_{ac}(f_{n+1}^2 + \varphi_{n+1}^2 - f_{n-1}^2 - \varphi_{n-1}^2) - \gamma q_n, \quad (7)$$

$$\frac{dv_n}{dt} = q_n. \quad (8)$$

Для розв'язку системи використаємо солітонні початкові умови, що відповідають розв'язку при $E = 0$ в континуальному наближенні:

$$f_n(0) = \frac{\sqrt{g}}{2} \operatorname{sech} \frac{g(n - n_0)}{2}, \quad (9)$$

$$\varphi_n(0) = 0,$$

$$v_n(0) = 0,$$

$$q_n(0) = 0,$$

де $g = \dfrac{g_{ac}^2 \hbar}{2J}$, n_0 – номер вузла, на якому міститься максимум функції.

У цій задачі розглядаємо ланцюжок із $N = 50$ молекул та використовуємо періодичні граничні умови Борна–Кармана:

$$F_{n+N}(t) = F_n(t),$$

де $F_n(t) = y_n(t),\ v_n(t),\ q_n(t)$. Для отримання розв'язку системи (5)–(8) її було чисельно проінтегровано для $E = 0$ з використанням умов (9) та (10). Отриманий локалізований квазістаціонарний розв'язок використано як початкову умову для пошуку розв'язків системи при $E \neq 0$.

2. Результати чисельних обчислень

Чисельне інтегрування показало, що в слабкому електричному полі солітон (ми надалі будемо називати солітоном квазічастинку в локалізованому стані – *прим. авт.*) починає рухатись із прискоренням, причому, як побачимо з результатів аналітичних розрахунків у наступному розділі, прискорення є пропорційним до величини поля E.

Для характеристики динамічних властивостей квазічастинки введемо такі параметри:

а) *Координата центру мас (КЦМ)* як функція часу:

$$n_R(t) = \sum_{n=1}^{N} |\psi_n(t)|^2\, n.$$

Якщо квазічастинка перебуває в солітонному стані, положення центру мас n_R у момент часу t буде мало відрізнятися від положення максимальної амплітуди густини заряду $n_{\max}(t)$, і, окрім того, обидві функції будуть монотонно зростати під час переміщення електрона вздовж ланцюжка;

б) *Ступінь локалізації квазічастинки (обернена ширина)*:

$$L(t) = \sum_{n} |\psi_n(t)|^4.$$

Більшим значенням L відповідає сильніша локалізація квазічастинки. У делокалізованому стані L є малим або дорівнює нулю (повна делокалізація, заряд рівномірно розподілений уздовж ланцюжка);

в) *Середня швидкість* квазічастинки має сенс лише для її локалізованих станів і визначається як відстань, пройдена квазічастинкою за одиницю часу. В одиницях сталої ґратки вона має вигляд: $V_{av} = n_{passed}/t$.

г) *Струм:* $I = f_n(\varphi_{n+1} - \varphi_{n-1}) - \varphi_n(f_{n+1} - f_{n-1})$ визначає миттєвий імпульс квазічастинки у момент часу t.

Обчислення здійснено для таких параметрів рівнянь (якщо інше не зазначено в тексті чи у підписах до графіків): $Q = 2$, $g_{ac} = 1{,}6$, $E = 0{,}01$, $\gamma = 0$.

Нами з'ясовано, що у слабкому електричному

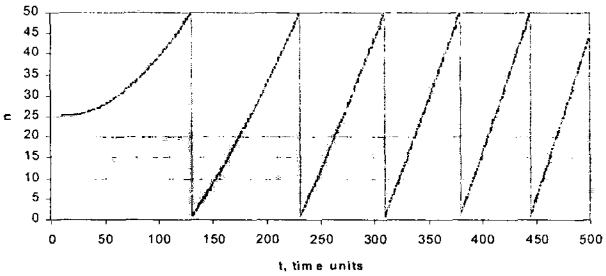

Рис. 1. Координата центру мас квазічастинки (гладенька лінія) та положення максимальної амплітуди (східчаста лінія) як функції часу при $E = 0{,}005$. Оскільки квазічастинка добре локалізована, то ці дві лінії накладаються. Вертикальними лініями позначено переходи квазічастинки з 50-ї молекули на 1-шу

полі ($E < 0{,}05$) квазічастинка прискорюється й досить тривалий час рухається вздовж ланцюжка, проходячи декілька разів по кільцю (див. рис. 1–2). Як видно з рис. 3, у сильних полях її швидкість суттєво зростає, але при цьому має місце делокалізація квазічастинки.

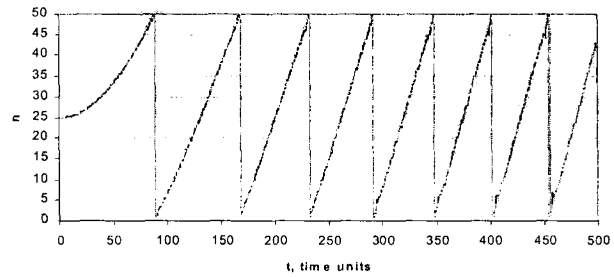

Рис. 2. Координата центру мас квазічастинки (гладенька лінія) та положення максимальної амплітуди (східчаста лінія) як функції часу при $E = 0{,}01$

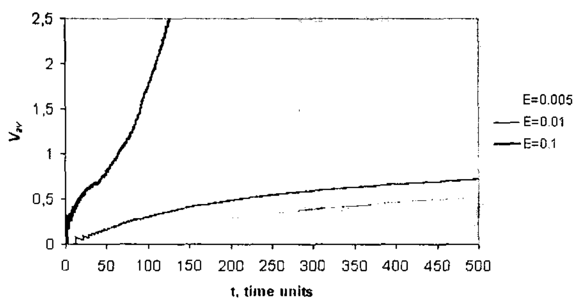

Рис. 3. Середня швидкість в залежності від часу за різних значень величини поля E

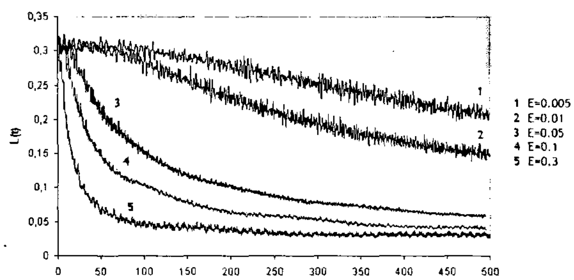

Рис. 4. Параметр локалізації L в залежності від часу за різних значень величини поля E

Делокалізація відбувається поступово: під дією випромінених фононів хвильовий пакет розпливається (його ширина збільшується), аж поки квазічастинка повністю не делокалізується, що відповідає малому значенню параметра локалізації (рис. 4) та сталому струму (рис. 5). Отже, за відсутності дисипації більшому полю відповідає менший час життя, але більша швидкість.

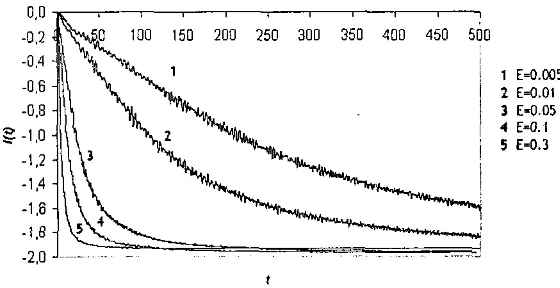

Рис. 5. Струм I в залежності від часу за різних значень величини поля E

Окрім того, нами встановлено, що навіть за дуже малих ненульових значень поля $E < 0{,}005$ квазічастинка починає рухатись через певний час перебування в стані спокою. Інтуїтивно це зрозуміло і так, адже доданок з електричним полем у рівнянні (2) зростає з часом. Оскільки маємо систему з періодичними граничними умовами, то й енергія системи зростає в часі, аж поки не досягає деякого критичного рівня, достатнього для подолання рельєфу Паєрлса–Набарро і початку руху.

За наявності слабкого тертя, що завжди існує в реальних умовах, квазічастинка гальмується і тому може довше перебувати в солітонному стані. Природно, що зі збільшенням коефіцієнта тертя γ швидкість квазічастинки зменшується. За умови сильного тертя ($\gamma > 0{,}1$) квазічастинка живе дуже довго, але при цьому дуже повільно рухається. Наприклад, при $\gamma = 1$ вона переміщується за 500 одиниць часу всього на 4 вузли (рис. 6), тоді як за відсутності дисипації вона проходить понад 350 вузлів за цей самий час (рис. 2). Натомість, слабке тертя лише неістотно зменшує швидкість солітона й виступає стабілізатором. Окрім того, було помічено, що у разі сильного тертя квазічастинка, яка повільно прискорюється (наприклад, як на рис. 6), через певний час може почати знижувати швидкість, тобто прискорення змінює знак. Очевидно, це пов'язано з тим, що випромінені фонони з часом накопичуються у системі і не встигають повністю гаситися тертям.

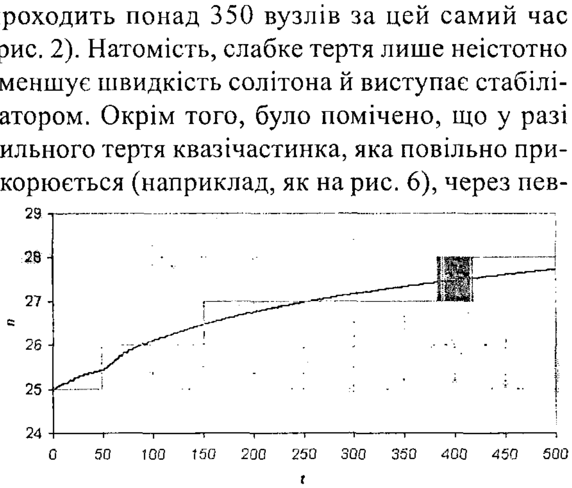

Рис. 6. Координата центру мас квазічастинки (гладенька лінія) та положення максимальної амплітуди (східчаста лінія) як функції часу при $\gamma = 1$

3. Аналітичні розрахунки в континуальному наближенні

Для того щоб переконатися в коректності отриманих результатів та краще пояснити поведінку чисельних розв'язків, розв'яжемо систему рівнянь (2) – (4) у континуальному наближенні, користуючись апаратом адіабатичної теорії збурень [7] – [8]. У цьому наближенні ми замінюємо $x = na$ (a – стала ґратки), із функціями дискретного аргументу n зіставляємо відповідні функції неперервного аргументу [4]. Тоді у знерозміреному вигляді рівняння (2) – (4) набудуть вигляду (при $\Gamma = 0$):

$$i\frac{\partial\psi(z,t)}{\partial t}+\frac{\partial^2\psi(z,t)}{\partial z^2}+gr\psi+iEt\frac{\partial\psi}{\partial z}=0,$$
$$\frac{\partial^2 r}{\partial t^2}-v_0^2\frac{\partial^2 r}{\partial z^2}=-g_0\frac{\partial^2|\psi|^2}{\partial z^2}. \tag{11}$$

Тут введемо безрозмірну координату $z = x/a$, t – безрозмірний час аналогічно до попереднього розділу, $r = \partial u/\partial z$ – деформація ґратки, g і g_0 – сталі деформаційного потенціалу ґратки та електрон-фононної взаємодії відповідно; v_0 – швидкість звуку в ланцюжку. Електричне поле виступатиме збуренням у цій системі, а тому отримані результати будуть чинні лише для малих значень сталої поля E та на малих проміжках часу. При $E = 0$ система рівнянь має точний солітонний розв'язок у класі функцій $f(z - vt)$ [1] [4] [8]:

$$r_0=-\frac{g_0}{v_0^2-v^2}|\psi|^2,$$
$$\psi_0=\frac{\sqrt{\mu}}{2}\operatorname{sech}\mu(z-\xi)\exp\{ik(z-\xi)+i\theta\}, \tag{12}$$

де $\xi = 2kt$, μ – ширина солітона, θ – його фаза. Очевидно, що загальний розв'язок системи матиме вигляд [8]:

$$\psi=\psi_0+\delta\psi_1,$$
$$r=r_0+\delta r_1=r_0-\frac{g_0}{v_0^2-v^2}\left[\psi_0^2+\delta\psi_1^*\psi_0+\delta\psi_0^*\psi_1\right]+$$
$$+\delta\psi_1.$$

У цій роботі ми обмежились нульовим порядком теорії збурень (т. зв. адіабатичне наближення, $\delta = 0$), вважаючи, що всі константи у виразі ψ_0 залежать від часу. Було з'ясовано, що у цьому наближенні ширина μ, хвильовий вектор k залишаються незалежними від часу, тоді як параметри

ξ і θ матимуть вигляд:

$$\xi = 2kt + \frac{Et^2}{\sqrt{2\mu}},$$
$$\theta = -(k^2 + \mu^2)t. \qquad (13)$$

Цей результат є найістотнішим у цьому розділі, бо тепер ми бачимо, що:

1) у фазі солітона міститься пропорційний полю і квадратичний за часом доданок; прискорення квазічастинки визначається величиною поля;

2) фаза поліноміальним чином зростає в часі, що й пояснює можливість накопичувати енергію та рухатися за будь-якого значення поля.

Втім, оскільки теорія збурень незастосовна для великих часів і полів, до того ж не враховано дискретність ланцюжка, до цього результату слід поставитись обережно.

Висновки

У роботі було досліджено динамічні властивості автолокалізованих станів квазічастинки в одновимірному молекулярному ланцюжку за наявності слабкого електричного поля. Показано, що під дією поля можливий когерентний транспорт заряду вздовж ланцюжка. Ефективність такого транспорту залежить від розмірів конкретного ланцюжка, а також від інших параметрів системи, що регулюють швидкість руху та час життя таких солітонів: величини поля, сталої електрон-фононної взаємодії, тертя тощо. Під дією електричного поля характерною є також висока ефективність такого транспорту в слабкому полі порівняно зі звичайним давидовським солітоном, що рухається зі сталою швидкістю за відсутності поля. Це проявляється у згладжуванні профілю густини заряду квазічастинки й практично повної її локалізації (майже відсутні «хвости»).

Для кільцевих ланцюжків, які розглядалися в цій задачі, характерною є відсутність критичного (мінімального) значення величини поля E, за якого квазічастинка починає прискорено рухатись, оскільки у фазі густини заряду присутній квадратичний за часом доданок, який і дозволяє накопичити потрібну для подолання рельєфу Паєрлса енергію через певну кількість «ітерацій». У некільцевих молекулах відбувається розсіяння енергії, тому там для початку руху треба задати якесь певне початкове поле.

Отримані залежності динамічних властивостей а) – г) (див. розділ 3) від часу мають сенс лише для реальних значень параметрів системи. Саме тому в перспективі планується порівняти отримані теоретичні результати з експериментами з дослідження рухливості носіїв заряду для реальних LD-систем, до яких, зокрема, належать альфа-спіральні білки (напр., з експериментами для полідіацетилену [9], а також [10] – [11]).

1. *Давыдов А. С.* Солитоны в молекулярных системах.– К.: Наук. думка, 1988.
2. *A. C. Scott* // Phys. Rev. A.– 1982.– Vol. 26.– P. 578–595.
3. *L. Brizhik, L. Cruzeiro-Hansson, A. Eremko, Yu. Olkhovska* Soliton dynamics and Peierls-Nabarro barrier in a discrete molecular chain // Phys.Rev. B.– 2000.– Vol. 61.– Issue 2.– P. 1129–1141.
4. *Натанзон Ю. Е., Брижик Л. С., Єремко О. О.* Автолокалізація квазічастинки та її динаміка в одновимірному молекулярному ланцюжку з урахуванням взаємодії з оптичними фононами // УФЖ.– 2006.– Т. 51.– № 4.
5. *L. Brizhik, L. Cruzeiro-Hansson and A. Eremko.* Influence of electromagnetic radiation on molecular solitons // J. Biophys.– 1998. Vol. 24.– P. 19–39.
6. *L. S. Brizhik, A. A. Eremko.* Nonlinear model of the origin of endogenous alternating electromagnetic fields and self-regulation of metabolic processes in biosystems // Electromagnetic Biology and Medicine.– 2003.– Vol. 22.– № 1.– P. 31–39.
7. *В. И. Карпман, Е. М. Маслов* Теория возмущений для солитонов // ЖЭТФ.– 1977.– Т. 73.– Вып. 2.– С. 537–559.
8. *Брижик Л. С.* Торможение давыдовских солитонов в одномерных молекулярних системах.– К.: Препринт ИТФ НАНУ, 1980.
9. *Гоголин А. А.* Дрейфовая скорость для акустических поляронов в одномерных проводниках // Письма в ЖЭТФ.– 1986.– Т. 43.– С. 395–398.
10. *K. J. Donovan, E. G. Wilson* // Phil. Mag. B.– 1981.– Vol. 44.– P. 9.
11. *E. G. Wilson* A new theory of acoustic solitary-wave polaron motion // J. Phys. C.– 1983.– Vol. 16.– P. 6739–2755.

Yu. Natanzon, L. Brizhik, A. Eremko

DYNAMICS OF DAVYDOV'S SOLITONS IN ELECTROSTATIC FIELD

Here we study the influence of electrostatic field on the dynamics of self-tapped states of quasiparticles in one-dimensional molecular chain. It was shown, that weak electrostatic field causes the accelerated propagation of the quasiparticle along the chain, which can explain charge transport processes in molecular systems. The dependence of quasiparticle velocity and its lifetime on field magnitude and on the other system parameters were analyzed. It was shown, that in the ring chains even at very weak fields the quasiparticle starts moving after some period of rest.

Key words: Davydov soliton, self-trapping, charge transport.