

# АВТОЛОКАЛИЗАЦИЯ ЭКСИТОНОВ В ПЕРИОДИЧЕСКОЙ МОЛЕКУЛЯРНОЙ СРЕДЕ

А. А. Заболотский\*

*Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук  
630090, Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 13 апреля 2005 г.

Изучается динамика светового поля в композитной среде, состоящей из одномерной брэгговской решетки с периодически размещенной резонансной средой, состоящей из протяженных молекул. В качестве примеров молекулярной среды рассматриваются  $J$ -агрегаты красителей и сопряженные полимеры. Изучаются адиабатический и неадиабатический режимы динамики акустических волн, формирующихся в системе под действием электромагнитного поля. Изучено влияние экситон-фононного и экситон-фонон-фотонного взаимодействий на зонную структуру и условия формирования самолокализованных возбуждений для разных временных масштабов. Описан новый механизм управления параметрами запрещенной зоны в бистабильном режиме. Изучены некоторые аспекты влияния неоднородности электромагнитного поля в среде на формирование акустических волн в молекулах и самолокализацию экситонов.

PACS: 41.20.Jb, 42.65.Tg, 42.50.Gy, 78.20.Jq

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Исследование взаимодействия света с нелинейными средами, имеющими периодически модулированный показатель преломления, в последнее время привлекает значительный интерес из-за потенциальной возможности динамического изменения светом фотонной запрещенной зоны [1, 2]. Импульсные нелинейные моды, распространяющиеся в нелинейных периодических структурах, обладают разнообразными свойствами, имеющими фундаментальное и потенциально прикладное значение, такими как нелинейная фильтрация, переключение режимов, усиление с обратной связью [3, 4]. К этим модам относятся щелевые или зонные солитоны, распространяющиеся вблизи верхней границы фотонной запрещенной зоны и формирующиеся в периодических средах с керровской нелинейностью [5–7].

Принципиально другой механизм формирования зонных солитонов обнаружен в системе периодически расположенных тонких слоев резонансных двухуровневых сред, разделенных слоем диэлектрика толщиной, равной половине длины световой волны [8–11]. Динамика светового поля в таких иде-

лизированных двухуровневых средах описывается уравнениями Максвелла–Блоха с учетом взаимодействия среды с прошедшей и отраженной волнами.

Солитонные решения в брэгговской среде имеют качественные отличия от солитонов, возникающих в однородной двухуровневой среде [12]. В общем случае зонные солитоны образуются вследствие взаимодействия встречных волн со средой и между собой [6, 13]. В качестве тонких слоев двухуровневых сред могут использоваться полимерные пленки, содержащие  $J$ -агрегаты красителей.  $J$ -агрегаты молекул характеризуются достаточно узкой экситонной линией поглощения, предельно коротким временем высвечивания, малыми временами релаксации и аномально высокой кубической восприимчивостью [14, 15]. Такие молекулярные системы обладают рядом новых, по сравнению с атомными двухуровневыми средами, нелинейно-оптических свойств. В частности, в пленках  $J$ -агрегатов, например  $J$ -агрегатов полиметиновых красителей [16, 17] и псевдоизоцианина (ПИЦ) [18, 19], критическую роль играет автолокализация экситонов, существенно изменяющая оптические свойства среды.

Автолокализация экситонных возбуждений в кристалле и в молекулярных пленках, играющая

\*E-mail: zabolotskii@iae.nsk.su

важную роль при экситон-фотонном взаимодействии, интенсивно исследуется на протяжении многих лет [17–20]. В недавних работах [21, 22] полученные экспериментальные данные анализируются с целью выявления влияния экситон-фононного взаимодействия на спектральные характеристики, флюоресценцию и нелинейные оптические свойства  $J$ -агрегатов. В работе [22] был измерен коэффициент нелинейного поглощения  $\beta_n$  импульсов света длительностью несколько десятков фемтосекунд и несколько наносекунд при прохождении их через полимерную пленку, содержащую  $J$ -агрегаты тиакарбодианина. Во случае наносекундных импульсов коэффициент  $\beta_n$  оказался в  $4 \cdot 10^4$  раз больше. Этот эффект объясняется автолокализацией экситонов, которые накапливаются вблизи верхней границы запрещенной зоны. Явление может сопровождаться значительным изменением статического дипольного момента молекулярной среды [18, 23, 24]. Например, в работе [18] обнаружено, что в системе сильно упорядоченных  $J$ -агрегатов под действием внешнего электрического поля происходит существенное (на 10–30 Д) изменение дипольного момента экситонных переходов, который в невозмущенном состоянии составляет 10–20 Д. В работе [24] дается оценка нижней границы увеличения статического дипольного момента экситонного перехода при экситонном возбуждении  $J$ -агрегатов при комнатной температуре, которая показывает, что это увеличение происходит примерно на 40%. Постоянная часть индуцированного дипольного момента экситонного перехода может приводить к возникновению связанных состояний экситонов из-за диполь-дипольного взаимодействия и к ряду других коллективных эффектов [15]. Влияние индуцированного статического дипольного момента изучалось в работах [25, 26]. В то же время исследование влияния диагональной и недиагональной частей дипольного момента экситонного перехода фононов на нелинейно-оптические характеристики системы  $J$ -агрегатов в динамическом режиме до установления равновесного состояния, по-видимому, не проводились.

Нелинейное экситон-фононное взаимодействие в сложных молекулярных системах, к которым относятся  $J$ -агрегаты, теоретически исследовалось в рамках квантовых и полуклассических моделей. Нередко при интерпретации экспериментальных данных в системе  $J$ -агрегатов используется модель, построенная первоначально для изучения распространения возбуждений в белке [27]. Например, в работе [28] эта модель применяется для описания нели-

нейного взаимодействия света с  $J$ -агрегатами с учетом распространения возбуждений вдоль молекул. В ряде работ модели, заимствованные из физики твердого тела, применялись для изучения спектральных характеристик  $J$ -агрегатов (см., например, [14, 15]). Идеализированное представление системы  $J$ -агрегатов в качестве системы двух-четырехуровневых сред без учета экситон-фононного взаимодействия использовалось в работах Малышева и др. [29, 30]. Аналогичные модели применялись к описанию экситонной динамики в сопряженных полимерах, например, в  $\pi$ -сопряженном полиацетилене [31]. В рамках этих моделей найдены решения в виде солитонов и кинков. Экспериментально формирование солитона в системе экситонов в  $\pi$ -сопряженном полимере наблюдалось авторами работы [32].

Основной целью настоящей работы является построение и решение эволюционной модели, описывающей нелинейно-оптическое взаимодействие света с упорядоченными двухуровневыми молекулярными структурами, периодически расположенными в брэгговской решетке. В рамках этой модели предполагается изучить новые нелинейные эффекты, связанные с учетом экситон-фотонного взаимодействия, и зависимости недиагональной части дипольного момента от смещения молекул в периодической среде.

Работа построена следующим образом. В разд. 2 выводится основная система уравнений. В разд. 3 для решения этой системы применяется адиабатическое описание эволюции акустического поля. В континуальном пределе найдены условия возникновения оптической бистабильности в периодической среде и изучено ее влияние на спектральные характеристики среды. Там же приводится односолитонное решение модели. В разд. 4 изучаются когерентный и некогерентный режимы неадиабатической эволюции акустического поля в молекулярной среде. В последнем разделе обсуждаются полученные результаты и возможности их применения.

## 2. ВЫВОД ОСНОВНЫХ УРАВНЕНИЙ

### 2.1. Гамильтониан взаимодействия

Молекулярные системы, такие как системы  $J$ -агрегатов и сопряженные полимеры, характеризуются сильным экситон-фононным взаимодействием. Для  $J$ -агрегатов это взаимодействие особенно сильно в области  $J$ -пика, где происходит сильное экситонное поглощение. В этой области динамическое изменение дипольного момента должно оказывать наибо-

лее сильное влияние на оптические характеристики системы. В связи с этим мы выбираем несущую частоту падающего электромагнитного поля, лежащей в области  $J$ -пика.

Рассмотрим взаимодействие экситонной системы, включающее экситон-экситонное, экситон-фононное и резонансное взаимодействия внешнего светового электромагнитного поля со средой. Для электромагнитного поля предполагается применение приближения вращающейся волны. Для поля, отвечающего фононным модам, это приближение не применяется, т. е. это поле в общем случае не имеет несущей частоты. Зависимость экситон-фононного и экситон-фотон-фононного взаимодействий от смещения молекул носит в общем случае нелинейный характер. В настоящей работе используем для простоты линейное по смещению молекул приближение.

Считаем, что молекулярная среда однородна и состоит из одинаковых групп молекул-мономеров, выстроенных вдоль оси  $x$ . В качестве физических примеров будем рассматривать систему упорядоченных  $J$ -агрегатов молекул красителей и некоторые сопряженные полимеры.

Мы будем учитывать только продольные колебания молекулярной среды, приводящие к переносу экситонов между мономерами или молекулярными группами, составляющими  $J$ -агрегат или сопряженный полимер, строить одномерную модель молекулярной среды без учета поперечных эффектов. Собственный дипольный момент мономера в  $J$ -агрегате, как правило, находится под углом к оси агрегата, лежащим в интервале  $(0 - \pi)$ . Пусть электромагнитное поле поляризовано вдоль оси  $x$ , поэтому мы учитываем только проекцию дипольного момента молекулярной среды на ось  $x$ . Кроме того, будем считать, что число  $N_m$  мономеров в агрегате, между которыми может перемещаться экситон, велико,  $N_m \gg 1$ . В состоянии равновесия положение мономеров описывается координатой

$$x^{(n)} = h_0 n, \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$

Их отклонение от положения равновесия описывается смещением

$$x_n = x^{(n)} - h_0 n.$$

Введем оператор  $c_n$  рождения экситона в точке  $x^{(n)}$ . Экситон может перескакивать только между соседними мономерами. Этот процесс описывается как линейными, так и нелинейными частями гамильтониана. Оценки показывают, что для транс-полиацетилена диполь-дипольное взаимодействие экс-

итонов вносит на порядок меньший вклад, чем экситон-фононное взаимодействие [33]. Аналогичные оценки для долгоживущих при комнатной температуре  $J$ -агрегатов, использованных в экспериментах [22, 24], дают такой же результат. Поэтому вкладом диполь-дипольного взаимодействия по сравнению с экситон-фононным взаимодействием мы пренебрегаем.

Общий гамильтониан взаимодействия имеет вид

$$\begin{aligned} H_e = & \hbar \sum_n \{ [\epsilon_0 + \alpha (x_{n+1} - x_{n-1})] |c_n|^2 - \\ & - [J_0 + \beta (x_{n+1} - x_n)] (c_{n+1}^* c_n + c_{n+1} c_n^*) \} + \\ & + \frac{1}{2m} \sum_n (p_n^{(z)})^2 + \kappa \sum_n (x_n - x_{n-1})^2 + \\ & + \sum_n d_0 [1 + \gamma (x_{n+1} - x_{n-1})] E (c_n^* + c_n), \quad (1) \end{aligned}$$

где  $\epsilon_0 = \hbar \omega_0$  ( $\omega_0$  — частота перехода между основным уровнем и нижней границей зоны прозрачности в молекулярной системе),  $\alpha, \beta$  — действительные константы экситон-фононного взаимодействия,  $J_0$  — коэффициент дисперсии экситонов, перемещающихся вдоль цепочки мономеров,  $d_0$  — проекция дипольного момента экситонного перехода на ось  $x$ ,  $E$  — амплитуда электромагнитного поля,  $p_n^{(z)}$  — оператор момента фононов,  $m$  — молекулярная масса смещающейся молекулы,  $\kappa$  — коэффициент упругости,  $\gamma$  — коэффициент линейного изменения дипольного момента, возникающего при смещении мономеров из положений равновесия.

Эволюционные уравнения имеют вид

$$\begin{aligned} i \frac{\partial c_n}{\partial t} = & \frac{\partial H}{\partial c_n^*}, \quad \frac{\partial p_n^{(x)}}{\partial t} = -\frac{\partial H}{\partial x_n}, \\ \frac{\partial x_n}{\partial t} = & \frac{\partial H}{\partial p_n}, \dots \end{aligned} \quad (2)$$

## 2.2. Уравнения Максвелла

Пусть на поверхности оптически прозрачной плоской пластины нанесены канавки, вытянутые вдоль оси  $x$  и периодически расположенные на расстоянии  $2\pi/k_0$  друг от друга. Такая структура брэгговской решетки отвечает периодической модуляции линейного показателя преломления  $n(z)$  вдоль направления  $z$ . Пространственную модуляцию для бесконечной и однородной в направлении  $x$  среды можно представить в виде

$$n^2(z) = n_0^2 [1 + n_1 \cos(2k_c z) + n_2 \cos(4k_c z) + \dots], \quad (3)$$

где  $n_j$ ,  $j = 0, 1, 2, \dots$ , и  $k_c$  — константы. Считаем, что молекулы  $J$ -агрегатов выстроены вдоль дна канавок, т. е. расположены на расстоянии  $\pi/k_c$  друг от друга и вытянуты вдоль линий, перпендикулярных оси  $z$ , отвечающих условиям

$$\cos(2k_c z) = -1.$$

Пусть волновой вектор электромагнитного поля направлен вдоль оси  $z$ . Тогда периодическая модуляция среды приводит к возникновению фотонной запрещенной зоны в линейном спектре системы с границами

$$\omega_{1,2} = \omega_c (1 \pm n_1/4). \quad (4)$$

Для учета влияния на зонную структуру нелинейных эффектов, связанных с взаимодействием света с такой композитной средой, выведем уравнения Максвелла и Гейзенберга для периодической среды, следуя известной процедуре (см., например, [6–9]).

Уравнения Максвелла для случая распространения однокомпонентной электромагнитной волны с частотой, близкой  $\omega_c$ , в направлении оси  $z$  приводятся к виду

$$c^2 \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + c^2 \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - n^2(z) \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{\partial^2 P_m}{\partial t^2}, \quad (5)$$

где коэффициент преломления  $n$  имеет вид (3), а  $P_m(x, z, t)$  — нелинейная поляризация среды. Зависимость от координаты  $x$  возникает при учете смещения молекул вдоль оси  $x$  из положений равновесия и определяется самосогласованной системой уравнений, включающей уравнения динамики молекул. В настоящей работе рассматривается ситуация, когда зависимость амплитуды электромагнитного поля от переменной  $x$  возникает вследствие зависимости поляризации среды от этой переменной, которая приводит к возникновению нелинейных явлений, связанных со смещением молекул вдоль оси  $x$ , поскольку масштаб изменения амплитуды электромагнитного поля по координате  $x$  намного больше характерного масштаба деформаций молекул. Такая схема взаимодействия отвечает сильно вытянутой вдоль оси  $z$  среде с толщиной, много меньшей ее длины. Мы предполагаем, что взаимодействие в среде невелико. При этом условии справедливо неравенство

$$k_x \ll k_c,$$

где  $k_x$  — проекция на ось  $x$  волнового вектора электромагнитного поля, которая может возникнуть вследствие нелинейного взаимодействия со средой.

Обозначим

$$E(x, z, t) \equiv [\mathcal{E}_F(x, z, t) \exp(ik_c z) + \mathcal{E}_B(x, z, t) \exp(-ik_c z)] \exp(-i\omega_c t) + \text{c.c.}, \quad (6)$$

где  $\omega_c$  удовлетворяет дисперсионному соотношению  $n_0 \omega_c = kc$  ( $k \approx |k_c|$  — длина волнового вектора),  $\mathcal{E}_F, \mathcal{E}_B$  — амплитуды волн, распространяющихся соответственно слева направо и справа налево вдоль оси  $z$ . Применим приближение медленно меняющихся амплитуд, отвечающее условиям

$$\left| \frac{\partial^2 \mathcal{E}_{B,F}}{\partial x^2} \right| \ll \left| k_x \frac{\partial \mathcal{E}_{B,F}}{\partial x} \right|, \quad (7a)$$

$$\left| \frac{\partial^2 \mathcal{E}_{B,F}}{\partial z^2} \right| \ll \left| k_c \frac{\partial \mathcal{E}_{B,F}}{\partial z} \right|, \quad (7b)$$

$$\left| \frac{\partial^2 \mathcal{E}_{B,F}}{\partial t^2} \right| \ll \left| \omega_c \frac{\partial \mathcal{E}_{B,F}}{\partial t} \right|. \quad (7b)$$

Подставив соотношение (6) в уравнение (5), учитывая условия (7) и условие  $k_x \ll k_c$  и умножив результат на  $\exp(i(\mp k_c z + \omega_c t))$ , после усреднения по длине волны  $\lambda_0 = 2\pi/k_c$  и периоду  $T_0 = 2\pi/\omega_c$  получим

$$\frac{c}{n_0} \frac{\partial \mathcal{E}_F}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}_F}{\partial t} = \frac{in_1 \omega_c}{4} \mathcal{E}_B + \frac{\hbar}{2\mu\tau_0^2} P_-, \quad (8a)$$

$$-\frac{c}{n_0} \frac{\partial \mathcal{E}_B}{\partial z} + \frac{\partial \mathcal{E}_B}{\partial t} = \frac{in_1 \omega_c}{4} \mathcal{E}_F + \frac{\hbar}{2\mu\tau_0^2} P_+, \quad (8b)$$

где

$$P_{\pm} \equiv -\frac{id_0 \tau_0^2}{\hbar \omega_c n_0^2} \frac{1}{\lambda_0 T_0} \int_{\lambda_0} \int_{T_0} \frac{\partial^2 P_m}{\partial t^2} \times \exp(i(\pm k_c z + \omega_c t)) dt dz, \quad \mu = \frac{\gamma \hbar}{2\tau_0 \kappa}. \quad (9)$$

Здесь введен параметр

$$\tau_0 = \frac{n_0}{d_0} \sqrt{\frac{\hbar}{2\pi \omega_c \rho_0}}, \quad (10)$$

где  $\rho_0$  — средняя плотность, см. ниже формулу (16).

Введем вместо  $\mathcal{E}_{F,B}$  безразмерные функции  $\Sigma_{\pm}$ , такие что

$$\mathcal{E}_{F,B} = \frac{\hbar}{4d_0 \tau_0} (\Sigma_+ \pm \Sigma_-). \quad (11)$$

Тогда  $E(x, z, t)$  примет вид

$$E(x, z, t) = \frac{\hbar}{d_0 \tau_0} \{ \text{Re} [\Sigma_+(x, z, t) \exp(-i\omega_c t)] \times \cos(k_c z) - \text{Im} [\Sigma_-(x, z, t) \exp(-i\omega_c t)] \times \sin(k_c z) \}. \quad (12)$$

Обозначим

$$\tau \equiv t/\tau_0, \quad \zeta \equiv (n_0/c\tau_0)z. \quad (13)$$

Перепишем уравнения (8) с учетом соотношений (10), (11) и (13). Тогда после дифференцирования по  $\zeta$  и  $\tau$  получим систему уравнений

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \Sigma_+}{\partial \tau^2} - \frac{\partial^2 \Sigma_+}{\partial \zeta^2} = -\eta^2 \Sigma_+ + i\eta(P_+ + P_-) + \\ + \frac{\partial}{\partial \tau}(P_+ + P_-) + \frac{\partial}{\partial \zeta}(P_+ - P_-), \quad (14a) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \Sigma_-}{\partial \tau^2} - \frac{\partial^2 \Sigma_-}{\partial \zeta^2} = -\eta^2 \Sigma_- + i\eta(P_+ - P_-) - \\ - \frac{\partial}{\partial \tau}(P_+ - P_-) - \frac{\partial}{\partial \zeta}(P_+ + P_-). \quad (14б) \end{aligned}$$

Здесь  $\eta = n_1\omega_c\tau_0/4$  — брэгговский коэффициент.

При выполнении условий (7б) и (7в) получаем для правой части уравнения Максвелла (5)

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 P_m}{\partial t^2} = \frac{\partial^2}{\partial t^2} [2\pi\varrho d_0 (\langle c_n \rangle + \langle c_n^\dagger \rangle)] = 2\pi i\omega_c^2 \times \\ \times \varrho d_0 [P_n(z, t) \exp(-i\omega_c t) - P_n^*(z, t) \exp(i\omega_c t)], \quad (15) \end{aligned}$$

где  $\varrho$  — плотность двухуровневой среды. Здесь  $\langle c_n \rangle$  и  $\langle c_n^\dagger \rangle$  — операторы рождения и гибели экситона, усредненные по квантовым состояниям.

Пусть молекулярные полосы, состоящие из молекул  $J$ -агрегатов, расположенных вдоль линий  $z_j = j\pi/k_c$ , имеют толщину, много меньшую расстояния между ними. Для плотности можно записать соотношение

$$\varrho = \frac{\varrho_0\lambda_0}{2} \sum_j \delta(z - z_j). \quad (16)$$

Условие нулевой толщины полос молекул  $J$ -агрегата позволяет ввести условие антипериодичности для операторов рождения экситонов  $c_n$  ([6]:

$$c_n(z + \lambda_0/2, t) = -c_n(z, t). \quad (17)$$

Представим усредненное по квантовым состояниям значение оператора рождения экситона в виде

$$\langle c_n(z_{2j+1}, t) \rangle = C_n(t) \exp(-i\omega_c t).$$

Усредняя по длине волны  $\lambda_0$  и периоду осцилляций  $T_0$ , находим

$$\begin{aligned} P_\pm(n, z, t) = \frac{2\pi\omega_c^2 d_0^2 \tau_0^2}{\hbar n_0^2} \times \\ \times \langle \varrho P_n(z, t) \exp(\pm i k_c z) \rangle_{\lambda_0, T_0} \equiv -i C_n(z, t). \quad (18) \end{aligned}$$

Здесь зависимость поляризуемости среды от координаты  $x$  заменена зависимостью от  $n$ .

Подставляя выражение (18) в систему уравнений (14а) и (14б), получаем

$$\frac{\partial^2 \Sigma_+}{\partial \tau^2} - \frac{\partial^2 \Sigma_+}{\partial \zeta^2} = -\eta^2 \Sigma_+ + 2\eta C_n - 2i \frac{\partial C_n}{\partial \tau}, \quad (19a)$$

$$\frac{\partial^2 \Sigma_-}{\partial \tau^2} - \frac{\partial^2 \Sigma_-}{\partial \zeta^2} = -\eta^2 \Sigma_- + 2i \frac{\partial C_n}{\partial \zeta}. \quad (19б)$$

### 2.3. Уравнения среды

Усредненный по квантовым состояниям оператор рождения экситона в периодической молекулярной среде в рамках использованных выше условий и с учетом симметрии (17) представим в виде

$$\langle c_n(z, t) \rangle = 2C_n(t) \cos(k_c z) \exp(-i\omega_0 t) \delta(z - z_j). \quad (20)$$

Частота Раби принимает вид

$$\Omega = \tau_0^{-1} (\Sigma_+ \cos(k_c z) + i\Sigma_- \sin(k_c z)). \quad (21)$$

Подставляем выражение (20) в уравнения Гейзенберга для оператора рождения  $c_n$ . С учетом усреднения по квантовым состояниям фоновые операторы заменяем классическими функциями. Считаем, что при усреднении происходит расщепление фоновых и экситонных операторов. Используя (2), после дополнительного усреднения по  $\lambda_0$  и  $T_0$  находим систему уравнений

$$\begin{aligned} i \frac{\partial C_n}{\partial t} + i\Gamma C_n = [\omega_0 - \omega_c + \alpha(x_{n+1} - x_{n-1})] \times \\ \times C_n - J_0(C_{n+1} + C_{n-1}) - \\ - \beta[(x_{n+1} - x_n)C_{n+1} + (x_n - x_{n-1})C_{n-1}] + \\ + \frac{1}{2\tau_0} \Sigma_+ [1 + \gamma(x_{n+1} - x_{n-1})], \quad (22a) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial p_n^{(z)}}{\partial t} = \alpha(|C_{n+1}|^2 - |C_{n-1}|^2) - \\ - \beta(C_{n+1}^* C_n + C_{n+1} C_n^*) + \\ + \beta(C_n^* C_{n-1} + C_n C_{n-1}^*) + 2\kappa(x_{n+1} + x_{n-1} - 2x_n) + \\ + \frac{\hbar\gamma}{2\tau_0} (\Sigma_+ C_{n+1}^* + \Sigma_+^* C_{n+1} - \\ - \Sigma_+ C_{n-1}^* - \Sigma_+^* C_{n-1}), \quad (22б) \end{aligned}$$

$$\frac{\partial x_n}{\partial t} = \frac{1}{m} p_n^{(z)}. \quad (22в)$$

Здесь дополнительно введена феноменологическая константа затухания экситонного состояния  $\Gamma$ , описывающая радиационные потери и экситонную аннигиляцию. Отметим, что электромагнитное поле

входит в уравнения эволюции среды только в виде  $\Sigma_+$ . Система (19а), (22) — основная система эволюционных уравнений, которая изучается в настоящей работе.

### 3. АДИАБАТИЧЕСКАЯ ДЕФОРМАЦИЯ СРЕДЫ

#### 3.1. Решение модели

Условия, в которых возможно применение предлагаемой модели, определяются физическими свойствами и состоянием молекулярной среды. Поскольку тепловым возбуждением экситонов мы пренебрегаем, динамика экситон-фононного взаимодействия определяется характерным временем электромагнитного поля, например, длительностью импульса поля  $\tau_p$ . Значение времени жизни экситона для разных типов  $J$ -агрегатов и экспериментальных условий составляет  $\Gamma^{-1} \approx 50$  фс– $10^3$  пс [34–36]. Выбор упрощенной модели существенно зависит от соотношения времени  $\Gamma^{-1}$ , характерного времени динамики фононов  $\tau_s$  и  $\tau_p$ . Существенна также длина делокализации экситона  $N_m$ . Для  $J$ -агрегатов предположение о большой длине делокализации при комнатной температуре является достаточно жестким. Оценка длины (числа мономеров), на которую происходит перенос экситонов, дает значение  $N_m \sim 10$  [22]. При гелиевых температурах длина переноса в агрегатах Шейба может быть на порядки больше [19].

Экспериментальные результаты работы [22], описанные выше, объясняются эффектом автолокализации экситонов. Для скорости звука в среде, имеющей приблизительное значение  $3 \cdot 10^4$  см/с, изменение расстояния между молекулами, составляющее примерно  $1\text{--}3 \text{ \AA}$ , длится в течение времени  $\tau_s \approx 0.3\text{--}1$  пс. Поэтому за время действия импульса электромагнитного поля  $\tau_p \ll \tau_s$  не происходит локализации экситонов. В случае же длинного импульса электромагнитного поля ( $\tau_p \gg \tau_s$ ) происходит накопление значительного числа экситонов возле минимума верхней границы экситонной зоны и значительное увеличение их времени жизни.

Рассмотрим физическую ситуацию, когда  $\tau_p \gg \tau_s$  и  $\Gamma \ll \tau_s^{-1}$ . В этом случае для описания динамики фононов в молекулярной среде возможно применение адиабатического приближения. Последнее означает, что в уравнении (22б) следует положить

$$\frac{\partial^2 x_n}{\partial t^2} = 0. \quad (23)$$

При выполнении условия адиабатичности (23) уравнение (22б) может быть разрешено относительно линейного смещения молекул. Решение имеет вид

$$x_n - x_{n-1} = -\frac{\alpha}{2\kappa} (|C_n|^2 + |C_{n-1}|^2) + \frac{\beta}{2\kappa} (C_n^* C_{n-1} + C_n C_{n-1}^*) - \frac{\hbar\gamma}{4\tau_0\kappa} [\Sigma_+ (C_n^* + C_{n-1}^*) + \Sigma_+^* (C_n + C_{n-1})]. \quad (24)$$

При теоретическом исследовании эволюции самолокализованных экситонных состояний в  $J$ -агрегатах нередко используется обобщение нелинейного уравнения Шредингера. Модель качественно объясняет существование пространственно-локализованных долгоживущих экситон-фононных состояний, возникающих вследствие компенсации дисперсии кубичной нелинейностью. Эта модель применима для описания системы высокоупорядоченных агрегатов Шейба, находящихся при низких температурах [37], или системы сопряженных полимеров. Следуя этому подходу, мы предполагаем малое изменение функции  $C_n$  при изменении  $n$  на число порядка единицы. Это позволяет перейти к континуальному пределу в уравнениях (24) и (22а). Пренебрегаем нелокальными по  $n$  эффектами в нелинейных членах, т. е. считаем, например, что  $\beta C_n^2 C_{n+1}^* \approx \beta C_n^2 C_n^*$  и т. п. В то же время мы сохраняем линейную пространственную дисперсию с коэффициентом  $D_0 = J_0 \hbar_0^2$ , которая дает существенный вклад, например, в сопряженных полимерах.

Подставив решение (24) в уравнение (22а), получаем в итоге уравнение

$$i\frac{\partial\psi}{\partial t} + i\Gamma\psi = \left[ \nu - \frac{2}{\kappa} (\alpha - \beta)^2 |\psi|^2 - 2\mu (\alpha - \beta) (\Sigma_+ \psi^* + \Sigma_+^* \psi) \right] \psi - D_0 \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \mu_0 \Sigma_+ \left[ 1 - \frac{\gamma}{\kappa} (\alpha - \beta) |\psi|^2 - \gamma\mu (\Sigma_+ \psi^* + \Sigma_+^* \psi) \right], \quad (25)$$

где

$$\psi = \psi(x, t) = \lim_{\hbar \rightarrow 0} C_n(t), \quad \mu_0 = (2\tau_0)^{-1}, \\ \nu = \omega_0 - \omega_c - 2J_0.$$

#### 3.2. Приближение сильного брэгговского отражения

Уравнение (19а) описывает связь двух встречных волн, вызванную взаимодействием со средой.

Для упрощения задачи рассмотрим случай сильного брэгговского отражения. Из уравнения (19а) следует, что это приближение в рамках рассматриваемой задачи эквивалентно приближению квазиоднонаправленного распространения электромагнитного поля.

Представим функции  $\Sigma_+$  и  $\psi$  в (19а) в виде

$$\Sigma_+ = \tilde{\Sigma}_+ e^{-i\eta\tau}, \quad \psi = \phi e^{-i\eta\tau}. \quad (26)$$

При условии сильного брэгговского отражения, т. е. при [8]

$$\eta = \frac{n_0 n_1}{4d_0} \sqrt{\frac{\hbar\omega_c}{2\pi\rho_0}} > 1 \quad (27)$$

и (или) квазиоднонаправленного распространения электромагнитного поля вдоль оси  $z$  со скоростью, близкой к скорости света в среде, выполняется условие

$$2 \left| \eta \frac{\partial \tilde{\Sigma}_+}{\partial \tau} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 \tilde{\Sigma}_+}{\partial \tau^2} - \frac{\partial \tilde{\Sigma}_+}{\partial \zeta^2} \right|. \quad (28)$$

Применяя приближение сильного брэгговского отражения, находим решение уравнения (19а) в виде

$$\tilde{\Sigma}_+ = \tilde{\Sigma}_0 + \frac{1}{\eta} \phi, \quad (29)$$

где

$$\frac{\partial \Sigma_0}{\partial \tau} = 0.$$

Уравнение (25) с учетом (29) приводится к виду

$$i \frac{\partial \phi}{\partial t} + i\Gamma\phi = \left\{ \nu' - 2(\alpha - \beta) \left[ \alpha_1 |\phi|^2 + \mu \left( \tilde{\Sigma}_0 \phi^* + \tilde{\Sigma}_0^* \phi \right) \right] \right\} \phi - D_0 \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \mu_0 \tilde{\Sigma}_0 \left\{ 1 - \gamma \left[ \alpha_1 |\phi|^2 + \mu \left( \tilde{\Sigma}_0 \phi^* + \tilde{\Sigma}_0^* \phi \right) \right] \right\}, \quad (30)$$

где

$$\nu' = \nu + \eta + \frac{\mu_0}{\eta}, \quad \alpha_1 = 2 \left( \frac{\alpha - \beta}{\kappa} + \frac{\mu}{\eta} \right).$$

### 3.3. Внутренняя оптическая бистабильность

Пусть электромагнитное поле в композитной среде постоянно и однородно:

$$\Sigma_0 = \Sigma_0(x, z, t) = \text{const.}$$

Ограничимся рассмотрением ситуации, когда применимо уравнение (30) без учета пространственной

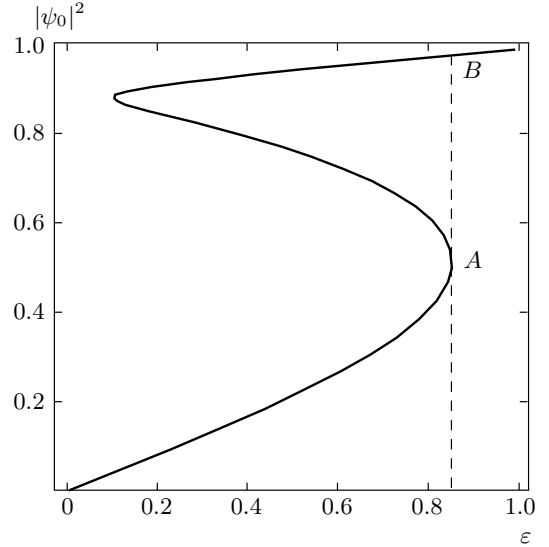


Рис. 1. Зависимость  $|\phi_0|^2$  от  $\varepsilon = E/E_c$  для транс-полиацетилена [33] (см. разд. 3.3),  $\nu'/\Gamma = 25$

дисперсии, т. е.  $D_0 = 0$ . Такая ситуация возможна в случае  $J$ -агрегатов с малой длиной делокализации экситона. Ищем стационарное и однородное решение  $\phi = \phi_0$ , отвечающее неравенствам:

$$\tau_p \gg \tau_s, \Gamma^{-1},$$

т. е.

$$\frac{\partial \phi_0}{\partial t} = \frac{\partial \phi_0}{\partial x} = 0.$$

Используя уравнение (30), получаем алгебраическое уравнение, описывающее зависимость амплитуды плотности экситонов  $|\phi_0|^2$  от  $|\Sigma_0|^2$ :

$$|\phi_0|^2 \left\{ \Gamma^2 + \left[ \nu' - 2(\alpha - \beta) \times \left[ \alpha_1 |\phi_0|^2 + \mu \left( \tilde{\Sigma}_0 \phi_0^* + \tilde{\Sigma}_0^* \phi_0 \right) \right] \right]^2 \right\} = \mu_0^2 |\Sigma_0|^2 \times \left\{ 1 - \gamma \left[ \alpha_1 |\phi_0|^2 + \mu \left( \tilde{\Sigma}_0 \phi_0^* + \tilde{\Sigma}_0^* \phi_0 \right) \right] \right\}^2. \quad (31)$$

Эта зависимость в общем случае является неоднозначной. Бистабильная зависимость при условии  $\nu'/\Gamma = 25$  показана на рис. 1. В качестве примера молекулярной среды выберем сопряженный полимер — транс-полиацетилен (trans-polyacetylene) [33], для которого  $\alpha = 4.1 \text{ эВ} \cdot \text{Å}^{-1} \gg \beta$ ,  $\kappa = 21 \text{ эВ} \cdot \text{Å}^{-2}$ ,  $J_0 = 2.5 \text{ эВ}$  и  $m = 3114 \hbar^2 \text{ эВ}^{-1} \cdot \text{Å}^{-2}$ . Характерная энергия перехода  $\hbar\omega = 2.0 \text{ эВ}$  и  $\Gamma = 0.05 \text{ эВ}$ . Дипольный момент  $d_0 = 1.9 \cdot 10^9 \text{ эме}$ . Амплитуду электромагнитного поля нормируем на величину

$E_0 = 2.6 \cdot 10^8$  В/м. При этом  $\tau_0 \sim 10^{-13}$ – $10^{-12}$  с. Для плотности молекулярной среды, состоящей из двухуровневых сред,  $\varrho_0 \sim 10^{15}$ – $10^{18}$  см $^{-3}$  параметр  $\eta$  может меняться в диапазоне 0–100, а  $\nu \sim 10^{12}$ – $10^{13}$  с $^{-1}$ .

Оптическая бистабильность в зависимости амплитуды прошедшей волны от амплитуды падающей волны в тонких пленках изучена детально [38]. Формула (31) описывает внутреннюю оптическую бистабильность в зависимости свойств среды от амплитуды падающего электромагнитного поля, которая приводит к бистабильной зависимости амплитуды прошедшей волны электромагнитного поля от амплитуды падающей волны. Оптическая бистабильность в однородных пленках  $J$ -агрегатов исследовалась теоретически в работах Малышева и др. [29] в рамках других моделей. В этих работах не учитывалась молекулярная динамика, которая, как показано на рассматриваемых в настоящей работе примерах, играет принципиальную роль.

Внутренняя бистабильность может проявляться в спектральных оптических свойствах периодической среды. Далее мы покажем, что в этих условиях рассматриваемая композитная среда может быть использована в качестве спектрального переключателя.

### 3.4. Спектральная бистабильность

Изучим влияние амплитуды электромагнитного поля на спектральные свойства периодической среды. Пусть  $\Sigma_0$ ,  $\phi_0$  — стационарные и однородные решения системы (19), (25), (26). Представим линейные отклонения от этого решения в виде

$$\Sigma_+ = (\Sigma_0 + u) \exp \{i[k\zeta - (\omega + \eta)\tau]\}, \quad (32a)$$

$$\psi = (\phi_0 + f) \exp \{i[k\zeta - (\omega + \eta)\tau]\}. \quad (32б)$$

Рассмотрим для простоты физические условия и молекулярную среду, для которых можно положить  $\Gamma = 0$ . Учет отличия  $\Gamma$  от нуля приводит к усложнению задачи, но не меняет результат принципиально. Подставив (32б) в уравнения (19а) и (25), получаем следующее дисперсионное соотношение:

$$(\omega^2 - 2\omega\eta - k^2) [(\omega^2 - 2\omega\eta - k^2) \times (\omega + \eta - \tau_0\nu_1) + 2\tau_0\nu_2\omega] = 0, \quad (33)$$

где

$$\nu_1 = \nu - \frac{3\alpha^2}{\kappa} |\phi_0|^2 - \gamma\mu_0\mu |\Sigma_0|^2 - (\alpha - \beta) \left( 3\mu + \gamma \frac{\mu_0}{\kappa} \right) (\Sigma_0\phi_0^* + \Sigma_0^*\phi_0),$$

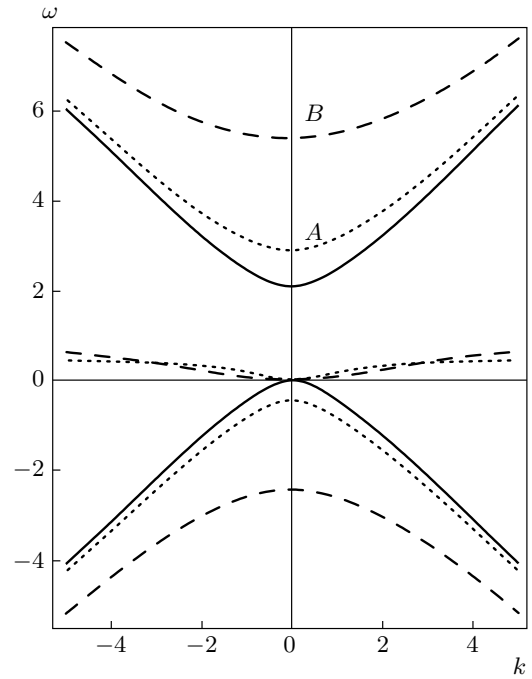


Рис. 2. Спектр запрещенной зоны (33). Значения констант те же, что и на рис. 1. Сплошные линии показывают запрещенную зону в отсутствие электромагнитного поля. Штриховые кривые соответствуют точке  $B$  на рис. 1, а пунктирные — точке  $A$

$$\nu_2 = (\alpha - \beta) \left( 2\mu + \gamma \frac{\mu_0}{\kappa} \right) |\phi_0|^2 - \mu_0.$$

Спектр (33) показан на рис. 2. Без учета взаимодействия света с молекулярной средой спектр содержит запрещенную зону шириной  $\omega_c n_1/2$ , см. формулу (4). В присутствии электромагнитного поля из-за экситон-фонон-фотонного взаимодействия происходит увеличение размеров запрещенной зоны и появляется кривая, лежащая в середине зоны, как показано на рис. 2. Поскольку зависимость  $|\phi_0|^2$  от  $\Sigma_0$  является многозначной, в окрестности значения амплитуды электромагнитного поля  $E_c \approx 0.9E_0$ , обозначающего границу устойчивости нижней ветви бистабильной кривой, показанной на рис. 1, происходит скачкообразное изменение параметров запрещенной зоны при небольшом изменении амплитуды электромагнитного поля. На рис. 2 значениям электромагнитного поля, лежащим вблизи и слева от критической точки  $E_c$ , отвечает кривая  $A$  на спектре, а значениям амплитуды электромагнитного поля, лежащим вблизи и справа от точки  $E_c$ , отвечает кривая  $B$ . Из численного анализа следует, что такая нелинейная среда действует как переключатель, позволяющий резко изменять парамет-



ры фотонной запрещенной зоны при малом изменении амплитуды электромагнитного поля. Скорость переключения состояний системы определяется временем формирования автолокализованного состояния экситонов, т. е. временем смещения атомов на расстояния порядка нескольких ангстрем, составляющим приблизительно 0.1–1 пс. Механизм переключения зонной структуры обусловлен тем же механизмом, который приводит к автолокализации экситонов. В связи с этим следует ожидать, что в окрестности точки  $E_c$  происходит скачкообразное изменение нелинейно-оптических свойств среды. В частности, должно значительно измениться поглощение света и эффективность параметрического взаимодействия световых волн.

Управление параметрами фотонной запрещенной зоны внешним электромагнитным полем возможно благодаря экситон-фононному и экситон-фотон-фононному взаимодействиям. Численный анализ показывает, что многозначная зависимость  $|\phi_0|^2$  от  $\Sigma_0$  возникает для значений коэффициента экситон-фононного взаимодействия больше критического значения  $\alpha_c$  и для  $\nu > 0$ . Экситон-фонон-фотонная связь ( $\gamma \neq 0$ ) при  $\alpha = 0$  не приводит к бистабильности. В то же время с ростом  $|\gamma|$  (здесь  $\gamma < 0$ ) увеличивается интервал изменения запрещенной зоны в бистабильном режиме, т. е. увеличивается расстояние между кривыми  $A$  и  $B$  на рис. 2. Сочетание двух этих типов взаимодействия позволяет сделать вывод о перспективности применения описанной в настоящей работе нелинейной периодической среды в качестве эффективного оптического переключателя.

### 3.5. Однофазное решение

Простейшее однофазное решение мы будем искать для случая квазиоднонаправленного распространения электромагнитного поля в виде

$$\Sigma_+(x, z, t) = \tilde{\Sigma}(x, \theta) \exp(-i\xi_0 \tau), \quad (34)$$

$$\psi(x, z, t) = \tilde{\psi}(x, \theta) \exp(-i\xi_0 \tau), \quad (35)$$

где  $\theta = \lambda(\tau - \zeta)$ , а  $\xi_0$  — отстройка от центра запрещенной зоны. Применяя эту подстановку, приводим уравнение (19а) к виду

$$\tilde{\Sigma}(\eta^2 - \xi_0^2) - 2i\xi_0\lambda \frac{\partial \tilde{\Sigma}}{\partial \theta} = 2(\eta - \xi_0)\tilde{\psi} - 2i\lambda \frac{\partial \tilde{\psi}}{\partial \theta}. \quad (36)$$

Решение уравнения (36) найдем для верхнего края невозмущенной запрещенной зоны  $\xi_0 = \eta$  и для ее центра  $\xi_0 = 0$ .

В первом случае ( $\xi_0 = \eta$ ) получаем

$$\tilde{\Sigma} = \tilde{\psi}\eta^{-1}. \quad (37)$$

При условии  $\Gamma = 0$  подстановка решения (37) в уравнение (25) приводит к нелинейному уравнению Шредингера для функции  $\tilde{\psi}(\theta, x)$ . Солитонные и другие типы решений этого уравнения изучены детально [39]. Для одномерной периодической среды с керровской нелинейностью динамика импульсов светового электромагнитного поля вблизи верхней части фотонной запрещенной зоны описывается нелинейным уравнением Шредингера для достаточно мощных начальных импульсов (см., например, обзор [5]). Подчеркнем, что в настоящей работе импульсы электромагнитного поля образуются вследствие иного физического механизма, а именно, из-за экситон-фононного взаимодействия, вызывающего нелинейную самолокализацию экситонов.

Рассмотрим второй случай ( $\xi_0 = 0$ ), отвечающий самоиндуцированной прозрачности электромагнитного поля в центре фотонной запрещенной зоны. Решение уравнения (36) имеет вид

$$\tilde{\Sigma} = \frac{2}{\eta}\tilde{\psi} - \frac{2i\lambda}{\eta^2} \frac{\partial \tilde{\psi}}{\partial \theta}. \quad (38)$$

Подставив решение (38) в уравнение (25), получим уравнение

$$i\lambda \frac{\partial \tilde{\phi}}{\partial \theta} + \frac{\partial^2 \tilde{\phi}}{\partial \chi^2} = (\tilde{\nu} - \tilde{\kappa}|\tilde{\phi}|^2)\tilde{\phi} + i\tilde{\gamma} \frac{\partial \tilde{\phi}}{\partial \theta} |\tilde{\phi}|^2, \quad (39)$$

где

$$\tilde{\nu} = \tau_0\eta \frac{\eta\nu + 2\mu_0}{\eta^2 + 2\mu_0},$$

$$\tilde{\kappa} = \frac{\tau_0\eta}{\kappa} \frac{[(\alpha - \beta)\eta + 4\mu][2(\alpha - \beta) + \gamma]}{\eta^2 + 2\mu_0},$$

$$\tilde{\gamma} = \frac{2\tau_0\mu_0\lambda\gamma[(\alpha - \beta)\eta + 4\mu]}{\eta\kappa(\eta^2 + 2\mu_0)}, \quad \chi = x \frac{(\eta^2 + 2\mu_0)^{1/2}}{\eta\sqrt{\tau_0 D_0}}.$$

Уравнение (39) содержит кубичную нелинейность и нелинейную зависимость скорости импульса связанного экситон-фонон-фотонного состояния от амплитуды поля. Последний член в правой части (39) возникает вследствие экситон-фонон-фотонного взаимодействия и приводит к нелинейной зависимости фазы импульса от интенсивности поля.

Ищем автомодельное решение уравнения (39) в виде

$$\tilde{\phi}(\theta, x) = F(\vartheta) \exp\left(i \int_0^{\vartheta} M(\vartheta') d\vartheta'\right), \quad (40)$$

где  $\vartheta = \theta - \lambda\chi v^{-1}$ ,  $v$  — проекция скорости импульса на ось  $x$ ,  $F$  и  $M$  — действительные функции  $\vartheta$ . Подстановка соотношения (34) в уравнение (39) дает

$$M = -\frac{v^2}{2\lambda} + \frac{\tilde{\gamma}v^2}{4\lambda^2}F^2, \quad (41)$$

$$\frac{\partial^2 F}{\partial \vartheta^2} = a_1 F - 2a_2 F^3 - 3a_3 F^5, \quad (42)$$

где

$$a_1 = \frac{v^2}{\lambda^2} \left( \tilde{\nu} - \frac{v^2}{4} \right), \quad a_2 = \frac{v^2}{2\lambda^2} \left( \tilde{\kappa} + \frac{\tilde{\gamma}v^2}{2\lambda} \right),$$

$$a_3 = \frac{\tilde{\gamma}^2 v^4}{16\lambda^4}.$$

Интегрируя уравнение (42), находим

$$\left( \frac{\partial F}{\partial \vartheta} \right)^2 = a_0 + a_1 F^2 - a_2 F^4 - a_3 F^6, \quad (43)$$

где  $a_0$  — константа интегрирования.

Приведем периодическое решение уравнения (43). Физическое обоснование для существования такого решения следующее. Для первоначально однородного по координатам  $x$  и  $z$  состояния характерно развитие модуляционной неустойчивости. Начальная стадия развития неустойчивости может быть в течение достаточно длительного для наблюдения времени описываться однофазным периодическим решением системы уравнений. Затем происходит бифуркация этого решения в двухфазное и т.д. Детальный анализ этого процесса выходит за рамки данной работы, поэтому ограничимся описанием начальной стадии развития неустойчивости, т.е. однофазным периодическим решением.

Решение описывает возникновение цепочки «темных» импульсов на стационарном фоне. Периодические решения уравнения (43) возникают при  $a_0 \neq 0$  ( $\sqrt{a_0}$  — половина амплитуды глубины модуляции волны).

Однофазное решение уравнения (39) имеет вид

$$\tilde{\phi} = \frac{\exp\left(-i\vartheta \frac{v^2}{2\lambda} + i \frac{\tilde{\gamma}v^2}{4\lambda^2} \Psi\right)}{\sqrt{d_0 + d_3^2 \text{sn}(\Theta, q)^2}}, \quad (44a)$$

$$\Psi = \int_0^\vartheta \frac{d\vartheta'}{d_0 + d_3^2 \text{sn}(\Theta, q)^2}, \quad (44b)$$

где

$$\Theta = \zeta_0 \vartheta \left( \zeta_0 = -\sqrt{s} \right), \quad d_3 = (s/|a_0|)^{1/4},$$

$\text{sn}$  — эллиптическая функция Якоби с модулем  $q \leq 1$ ,  $\Psi$  — действительная функция, описывающая изменение фазы солитона в виде сглаженной ступеньки. Константы  $d_0, s, q$  определяются из алгебраической системы уравнений

$$d_0^3 a_0 + d_0^2 a_1 = a_2 d_0 + a_3, \quad (45a)$$

$$s = d_1/q'^2, \quad q' = \sqrt{1 - q^2}, \quad (45b)$$

$$q' + 1/q' = |d_2|/\sqrt{|a_0 d_1|}, \quad (45в)$$

$$d_1 = 3d_0^2 a_0 + 2d_0 a_1 - a_2, \quad (45г)$$

$$d_2 = 3d_0 a_0 + a_1, \quad (45д)$$

где  $d_1, d_2$  — дополнительные (вспомогательные) константы.

Приведем упрощенные выражения для констант  $d_0, \zeta_0$  и  $d_3$  с учетом их реальных масштабов для изучаемых физических объектов:

$$d_0 \approx \frac{\gamma v \alpha}{4\kappa \sqrt{\nu \tau_0}}, \quad (46a)$$

$$\zeta_0 \approx -\frac{v \tau_0 \alpha}{2q' \lambda \sqrt{\kappa}}, \quad (46b)$$

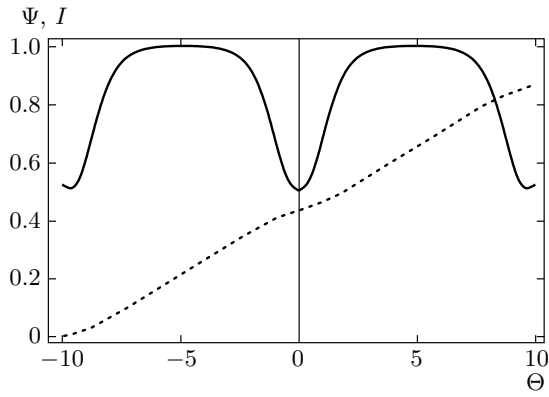
$$d_3 \approx -\frac{\tau_0 \alpha^2}{2\kappa \nu q'^2}. \quad (46в)$$

Константа  $q'$  определяется из уравнения

$$q' + \frac{1}{q'} \approx \frac{\sqrt{2\kappa} \nu}{\alpha \lambda \sqrt{a_0}}. \quad (46г)$$

В решение входят константы  $a_0, v, \lambda$ , которые принимают произвольные действительные значения, определяющиеся из начальных условий. Предел  $q \rightarrow 1$  соответствует трансформации пакета нелинейных осцилляций в цепочку разбегающихся «серых» солитонов. Зависимости интенсивности  $I$  и фазы  $\Psi$  решения (44) от автомодельной переменной показаны на рис. 3. Из анализа решения (44) следует, что экситон-фонон-фотонное взаимодействие приводит к деформации формы импульсов, образующих цепочку, и к возникновению нелинейной модуляции частоты, которая должна приводить в реальном эксперименте к замытию и уширению спектра импульса электромагнитного поля. Существование такого периодического решения означает, что в центре фотонной запрещенной зоны возникает область поляритонной самоиндуцированной прозрачности, вызванной нелинейным экситон-фонон-фотонным взаимодействием.

В случае  $a_0 = 0$  несингулярное решение в виде «светлого» солитона найти не удастся. Сингулярное поведение, обусловленное в рамках этого уравнения фотон-фонон-экситонным взаимодействием, может



**Рис. 3.** Форма периодического решения (44). Характерная зависимость интенсивности  $I = |F|^2$  (сплошная кривая) и нелинейной части фазы  $\Psi$  (пунктирная кривая) от автомодельной переменной показаны в квазисолитонном пределе  $q = 0.999$ . Единицы произвольны

рассматриваться как указание на новый механизм самолокализации экситонов в дополнение к известному «давидовскому» механизму. Решение в виде «темного» или «серого» солитонов возможно при  $a_0 \neq 0$  в пределе  $q \rightarrow 1$ . Отметим, что в условиях нелинейной зависимости скорости от интенсивности поля существует решение в виде «темного» солитона, в отличие от случая  $\xi_0 = \eta$ , рассмотренного выше.

#### 4. НЕАДИАБАТИЧЕСКАЯ ДИНАМИКА АКУСТИЧЕСКОГО ПОЛЯ

##### 4.1. Когерентное взаимодействие

Рассмотрим временной масштаб, такой что

$$\tau_s \sim \tau_p \ll \Gamma^{-1}. \tag{47}$$

В этом случае адиабатическое приближение для акустического поля неприменимо. Динамика экситон-фононного взаимодействия описывается системой уравнений (19), (22) с учетом временной производной от амплитуды населенностей. Покажем, что в случае сильного брэгговского отражения эти уравнения описывают выход системы на стационарное постоянное или солитоноподобное решение, т. е. эта система описывает переходный процесс формирования стационарного состояния.

Соотношение (47) выполняется для некоторых  $J$ -агрегатов (см. Введение) и импульсов с длительностью  $\tau_p \sim 1$  пс. Рассмотрим случай большой дли-

ны делокализации экситонов  $N_m \gg 1$ , отвечающий большой степени упорядоченности  $J$ -агрегатов, достигаемой при низких температурах [18]. Для такой среды в присутствии электромагнитного поля возможна генерация связанных экситон-фононных состояний, распространяющихся вдоль молекулярной цепи в виде импульсов.

Уравнения (22б) и (22в) в континуальном пределе с учетом усреднения по квантовым состояниям принимают вид

$$\begin{aligned} \frac{1}{m} \frac{\partial^2 W}{\partial t^2} - 2\kappa h_0^2 \frac{\partial^2 W}{\partial x^2} = \\ = \frac{\alpha' \partial^2 |\psi|^2}{\partial x^2} + \frac{\hbar \gamma'}{2\tau_0} \frac{\partial^2}{\partial x^2} (\Sigma_+ \psi^* + \Sigma_+^* \psi), \end{aligned} \tag{48}$$

где

$$W = \frac{\partial}{\partial x} (x_n - x_{n-1}), \quad \alpha' = 2h(\alpha - \beta), \quad \gamma' = 2h\gamma.$$

Пренебрегая членами с коэффициентом  $h^2$ , приведем уравнение (22а) к виду

$$i \frac{\partial \psi}{\partial t} = (\nu' + \alpha' W) \psi + \mu_0 \Sigma_+ (1 + \gamma' W). \tag{49}$$

Применим условие сильного брэгговского отражения (28). Тогда с учетом (29) уравнения (48) и (49) будут иметь вид

$$\begin{aligned} \frac{1}{m} \frac{\partial^2 W}{\partial t^2} - 2\kappa h_0^2 \frac{\partial^2 W}{\partial x^2} = \\ = \frac{\partial^2}{\partial x^2} [A |\psi|^2 + B (\Sigma_0 \psi^* + \Sigma_0^* \psi)], \end{aligned} \tag{50}$$

$$i \frac{\partial \psi}{\partial T} = (1 + A' W) \psi + \frac{\mu_0}{\nu'} \Sigma_0 (1 + \gamma' W), \tag{51}$$

где

$$\begin{aligned} T = t\nu', \quad A = \alpha' + \frac{\hbar \gamma'}{2\tau_0 \eta}, \\ A' = \frac{1}{\nu'} \left( \alpha' + \frac{\mu_0}{\eta} \right), \quad B = \frac{\hbar \gamma'}{2\tau_0}. \end{aligned}$$

Система уравнений (50), (51) описывает волновую динамику распространения акусто-экситонных волн под действием накачки электромагнитным полем. Аналитического решения этих уравнений кроме однофазных автомодельных решений найти не удается.

Для более детального аналитического исследования системы (50), (51) найдем ее интегрируемую редукцию. Система (50), (51) приводится к интегрируемой системе при выполнении приближения однонаправленности распространения импульсов в уравнении (50), где в правой части

$$\frac{\partial}{\partial t} \approx -\sqrt{2m\kappa} h^2 \frac{\partial}{\partial x}. \tag{52a}$$

Введем новую «медленную» переменную  $\tilde{X}$ , такую что

$$\frac{\partial}{\partial \tilde{X}} = 2h\sqrt{2\kappa} \left( \frac{1}{\sqrt{m}} \frac{\partial}{\partial t} - \sqrt{2\kappa h^2} \frac{\partial}{\partial x} \right). \quad (526)$$

После введения новых функций

$$\begin{aligned} R_0 &= |\psi|^2, & R_+ &= \Sigma_0 \psi^* + \Sigma_0^* \psi, \\ R_- &= i(\Sigma_0 \psi^* - \Sigma_0^* \psi), \end{aligned} \quad (53)$$

получаем систему уравнений в линейном по  $h$  приближении:

$$\frac{\partial R_0}{\partial T} = -R_- (1 + \gamma' W), \quad (54a)$$

$$\frac{\partial R_+}{\partial T} = -R_- (1 + A' W), \quad (546)$$

$$\frac{\partial R_-}{\partial T} = R_+ (1 + A' W) + 2\mu_0 |\Sigma_0|^2 (1 + \gamma' W), \quad (54b)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial W}{\partial \tilde{X}} &= -a \frac{\partial}{\partial T} (A R_0 + B R_+) = R_- a [A + B + \\ &+ (A\gamma' + A'B) W] \approx R_- a (A + B), \end{aligned} \quad (54g)$$

где

$$a = \frac{\nu'}{4\sqrt{m}\kappa h^2}.$$

В правой части уравнения (54г) в квадратных скобках мы пренебрегли членами с множителем  $h^2$ .

Перепишем систему (54б)–(54г) в виде

$$\frac{\partial R_+}{\partial T} = -\mathcal{R}_- U, \quad (55a)$$

$$\frac{\partial R_-}{\partial T} = \mathcal{R}_+ U + G, \quad (556)$$

$$\frac{\partial U}{\partial \tilde{X}} = \mathcal{R}_-, \quad (55b)$$

где

$$\mathcal{R}_+ = R_+ - \rho_0, \quad \mathcal{R}_- = R_-, \quad U = 1 + A' W,$$

$$G = 2\mu_0 |\Sigma_0|^2 \nu'^{-1} - \rho_0, \quad \rho_0 = 2\mu_0 |\Sigma_0|^2 \gamma' / A',$$

$$X = \tilde{X} a (A + B).$$

Система (55) является частным случаем интегрируемой деформации [40] системы уравнений Максвелла–Блоха [41]. Подчеркнем, что эта система отличается от известной интегрируемой деформации уравнений Максвелла–Блоха [40] (подробнее см. в работе [41]).

Система уравнений (55) представляет собой условие совместности следующих двух систем линейных уравнений:

$$\frac{\partial \Phi}{\partial T} = \begin{bmatrix} -i\lambda & \frac{1}{2}U \\ -\frac{1}{2}U & i\lambda \end{bmatrix} \Phi, \quad (56a)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \tilde{X}} = \frac{1}{4\lambda} \begin{bmatrix} i\mathcal{R}_+ & \frac{G}{2\lambda} - i\mathcal{R}_- \\ -\frac{G}{2\lambda} - i\mathcal{R}_- & -i\mathcal{R}_+ \end{bmatrix} \Phi, \quad (566)$$

где  $\lambda$  — спектральный параметр.

Наиболее простые экспериментальные условия отвечают начально-краевым условиям следующего вида:

$$\begin{aligned} U(T, 0) &= 1, & \mathcal{R}_+(0, X) &= -\rho_0, \\ \mathcal{R}_-(0, X) &= 0, \end{aligned} \quad (57)$$

где  $X$  — безразмерная «медленная» переменная. Можно показать, что для этих и некоторых других начально-краевых условий решение для  $W$  описывается трансцендентом Пенлеве V [42]. Как показал численный анализ, при  $G(x) = \text{const}$  решение имеет автомодельную асимптотику для, по-видимому, произвольных начально-краевых условий. Это автомодельное решение

$$\begin{aligned} \mathcal{R}_+(T, X) &= \frac{1}{\sqrt{X}} \tilde{R}_+(\xi), \\ \mathcal{R}_-(T, X) &= \frac{1}{\sqrt{X}} \tilde{R}_-(\xi), \end{aligned} \quad (58)$$

$$U(T, X) = \sqrt{X} \tilde{U}(\xi), \quad \xi = 4T\sqrt{X},$$

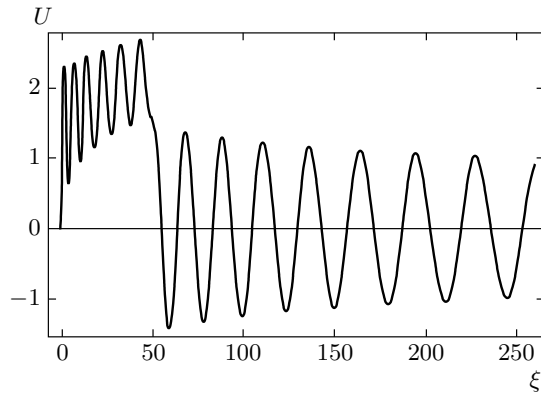
удовлетворяет следующей системе обыкновенных дифференциальных уравнений:

$$\frac{d}{d\xi} [\xi \tilde{U}(\xi)] = \tilde{R}_-(\xi), \quad (59a)$$

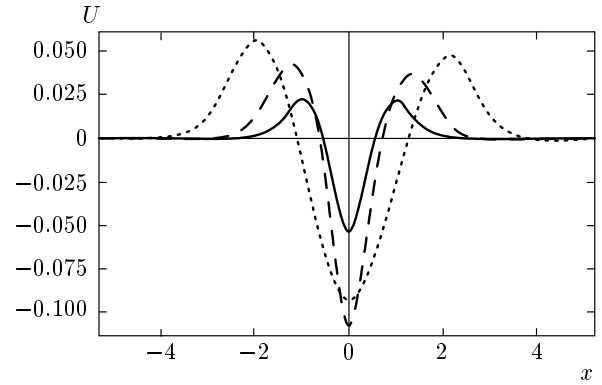
$$\frac{d}{d\xi} \tilde{R}_-(\xi) = \tilde{U}(\xi) \tilde{R}_+(\xi) + G, \quad (596)$$

$$\frac{d}{d\xi} \tilde{R}_+(\xi) = -\tilde{R}_-(\xi) \tilde{U}(\xi). \quad (59b)$$

На рис. 4 показаны результаты численного решения системы (55) для нулевых начальных значений поляризации среды и деформаций молекул. Форма зависимости электромагнитного поля от  $\xi$  выбрана в виде ступеньки. Амплитуда акустической деформации молекулы, осциллируя, растет в области постоянной амплитуды электромагнитного поля при



**Рис. 4.** Зависимость амплитуды молекулярной деформации  $U$  от  $\xi$  для поперечной формы электромагнитного поля  $G(\xi) = \sqrt{2}[1 - \text{th}(50 - \xi)]$  для транс-полиацетилена [33]



**Рис. 5.** Форма молекулярной деформации для электромагнитного поля  $\Sigma_0(x, z) = \sqrt{2} \exp(-x^2)$  для транс-полиацетилена [33],  $\tau = 0.5$  (сплошная кривая), 1 (штриховая) и 2 (пунктирная)

$0 < \xi < 50$ , а затем в области нулевой амплитуды затухает, осциллируя с большей амплитудой. Такие осцилляции характерны для когерентного экситон-фонон-фотонного взаимодействия, происходящего на временах, много меньших времени жизни экситона.

Используя систему (55), можно показать, что упругая деформация  $U(\xi)$  и поляризация среды под действием постоянного и однородного поля  $\Sigma_0 = \text{const}$  асимптотически стремятся к следующему решению

$$\tilde{U}(\xi)\tilde{\mathcal{R}}_+ = -G, \quad \tilde{\mathcal{R}}_+(\xi) = 0, \quad \xi \rightarrow \infty, \quad (60)$$

для произвольных постоянных  $\tilde{\mathcal{R}}_+(0, X)$ ,  $\tilde{\mathcal{R}}_-(0, X)$ ,  $\tilde{U}(T, 0)$ . Этот переход сопровождается быстрыми осцилляциями амплитуды акустического поля и функций  $\mathcal{R}_\pm$ . На фоне решения (60) могут распространяться солитоны и другие типы решений уравнений (55). Используя выражение для представления Лакса (56), распространяющиеся на фоне устойчивого решения (60)  $N$ -солитонные решения системы (55) можно построить известными методами [39, 43].

#### 4.2. Некогерентное взаимодействие

Рассмотрим временной масштаб, такой что

$$\tau_s \gg \Gamma^{-1}.$$

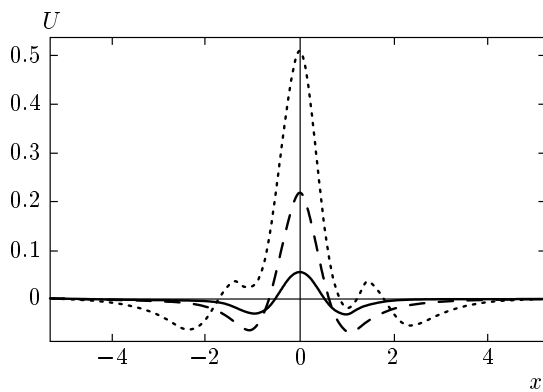
В этом случае экситонное состояние адиабатически следует за изменением деформации молекулярной среды. Если длительность импульса электромагнитного поля  $\tau_p \gg \tau_s$ , то амплитуду поля для временного масштаба порядка  $\tau_s$  можно считать посто-

янной. Для этого временного масштаба адиабатически исключаем  $\phi$  из уравнения (49) с учетом приближения сильного брэгговского отражения (28). В итоге получаем волновое уравнение

$$\frac{1}{m} \frac{\partial^2 W}{\partial t^2} - 2\kappa h_0^2 \frac{\partial^2 W}{\partial x^2} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} \times \left[ \left( A + \frac{B}{\eta} \right) \frac{|\mu_0 \Sigma_0|^2 (1 + \gamma'W)^2}{\Gamma^2 + (\nu' + A'W)^2} + 2B|\Sigma_0|^2 \right]. \quad (61)$$

Численный анализ поведения решений уравнения (61) для разных начальных условий показал, что генерация связанных экситон-фононных состояний возможна, если стационарная амплитуда поля имеет неоднородную (например, колокообразную) зависимость от переменной  $x$ . На рис. 5 показана форма акустической волны, распространяющейся вдоль оси  $x$ , для колокообразной формы электромагнитного поля. Акустическая волна возникает здесь вследствие экситон-фонон-фотонного взаимодействия. Численная оценка, сделанная для рассмотренных выше примеров  $J$ -агрегатов и сопряженных полимеров, показывает, что для  $\eta > 1$  последним членом в правой части (61) можно пренебречь. Для амплитуды поля порядка и менее  $E_c$  последний член в правой части (61) на два порядка меньше первого.

Численный анализ показал, что пространственная неоднородность электромагнитного поля приводит к автолокализации экситонов и к усилению нелинейных эффектов. В реальной среде неоднородность эффективного среднего поля может быть связана с наличием резонансных примесных ато-



**Рис. 6.** Форма молекулярной деформации для электромагнитного поля  $\Sigma_0(x, z) = \sqrt{2}[1 - \text{th}(2x - 1) + \text{th}(2x + 1)]$  и значений коэффициентов таких же, как на рис. 5,  $\tau = 0.5$  (сплошная кривая), 1 (штриховая) и 2 (пунктирная)

мов или наночастиц. В приближении среднего поля учет этих примесей аналогичен учету пространственно-неоднородных начальных условий. В присутствии оптически активных резонансных примесей возможно локальное усиление поля. В численных расчетах это усиление моделировалось колокообразным импульсом. Обнаружено, что начальное условие в виде «светлого» пространственного солитона приводит к формированию расходящихся упругих волн деформации молекул (см. рис. 5). На этом рисунке показана амплитуда деформации в разные моменты времени взаимодействия.

Случай поглощающей примеси моделировался «затемнением» электромагнитного поля в виде двух близко расположенных кинков с разными знаками. В этом случае пространственная деформация молекул локализуется в центре положения примеси (см. рис. 6). Пиковое значение деформации во втором случае на порядок больше, чем в первом при одинаковых начальных амплитудах «светлого» солитона и глубины просветления.

Поскольку деформация молекулы в изучаемых молекулярных структурах сопровождается автолокализацией экситонов, следует ожидать усиления нелинейно-оптических свойств среды в месте расположения поглощающих примесей. В зависимости от физических свойств примеси в ее окрестности возможно усиление поглощения или рассеяния света вследствие взаимодействия света с локализованными вблизи этой примеси экситонами.

### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе изучались особенности локализации импульсов электромагнитного поля и возможности наблюдения новых нелинейных эффектов, связанных с самолокализацией экситонов и упругими свойствами дипольного момента экситонного перехода в молекулярной периодической среде. Динамические эффекты самолокализации и изменения дипольного момента происходят на временах порядка 0.1–1 пс. Если характерные времена оптического взаимодействия  $\tau_p$  имеют тот же порядок, что  $\Gamma^{-1}$  или  $\tau_p$ , то статическое приближение для описания нелинейно-оптического взаимодействия электромагнитного поля с молекулярной системой неприменимо. Некоторые экспериментальные данные, полученные при изучении оптических свойств  $J$ -агрегатов, объяснялись существенным статическим изменением дипольного момента перехода, возникающим при самолокализации экситонов [18, 25, 26]. В настоящей работе показано, что учет изменения дипольного момента на характерных для колебаний молекул временах приводит к появлению новых спектральных особенностей.

Для  $J$ -агрегатов характерно критическое усиление поглощения в области  $J$ -пика, связанное с резонансным экситонным переходом. Поэтому следует ожидать, что эффекты, обусловленные акустическим изменением дипольного момента перехода, вносят вклад, который необходимо учитывать наряду с экситон-фононным взаимодействием. К таким эффектам относится скачкообразное изменение спектральных свойств композитной среды в области существования оптической бистабильности. На основании результатов экспериментов [22] можно сделать вывод об эффективности применения  $J$ -агрегатов в качестве нелинейной среды.

Зависимость дипольного момента от смещения молекул может быть использована для управления спектральными характеристиками проходящего через пленку  $J$ -агрегатов света посредством возбуждением колебательной моды с частотой  $\omega_s$ . Наблюдение сильной зависимости формы линии поглощения от числа фононов возможно лишь в системе упорядоченных однородных  $J$ -агрегатов и при возбуждении среды длинным импульсом электромагнитного поля. Для среды неупорядоченных  $J$ -агрегатов, которая изучалась в работах [22, 24], однородное уширение линии велико. Зависимость дипольного момента от упругих колебаний молекул приводит к размытию спектра.

Достоверные значения ряда коэффициентов

для  $J$ -агрегатов нам неизвестны. В значительной степени они определяются не только молекулярной структурой агрегатов, но и степенью их упорядоченности и однородности. Поэтому в качестве примера рассмотрим сопряженный полимер — сульфонат полидиацетилена-толуена (polydiacetylene-toluene sulfonate). Значения коэффициентов для него следующие [44]:

$$4\pi\rho_0 d_0^2 = 1 \text{ эВ}, \quad \alpha = 0.1 \text{ эВ}, \quad \beta = 0, \quad \omega_c = 2 \text{ эВ}, \\ \Gamma = 50 \text{ мэВ}.$$

Амплитуда электромагнитного поля  $E$ , которая использовалась в работе [22], составляла  $E_0 \approx 50\text{--}100$  ед. СГСЕ для наносекундного импульса и  $E_0 \approx (1.5\text{--}3) \cdot 10^3$  ед. СГСЕ для импульса длительности 50 фс. Качественная оценка вклада упругих свойств дипольного момента может быть сделана в предположении, что деформация молекулы отвечает изменению дипольного момента приблизительно на 10–100%. Для известных значений констант  $J$ -агрегатов и достаточно больших амплитуд электромагнитного поля вклад упругих свойств дипольного момента в динамику экситонов может быть на порядок больше вклада экситон-фононного взаимодействия давыдовского типа, приводящего к нелинейному сдвигу частоты. В то же время для приведенных выше значений констант, относящихся к сопряженным полимерам, и амплитуды электромагнитного поля вклад экситон-фотонного взаимодействия давыдовского типа доминирует. Численный анализ показал, что последнее взаимодействие приводит к появлению бистабильной зависимости заселенности экситонов от амплитуды падающего поля в рассматриваемой среде (см. рис. 1).

В пользу существования механизма экситон-фотон-фононного взаимодействия свидетельствуют особенности спектра излучения самолокализованных экситонов [21, 22]. Некоторые экспериментальные результаты, полученные при изучении спектральных свойств сопряженных полимеров, также могут быть объяснены в рамках этого механизма взаимодействия. Например, в работе [44] обнаружен пик поглощения, возникающий при условии, что сумма или разность частот электромагнитного поля и фононов равна частоте экситонного перехода. Этот эффект не может быть объяснен в рамках модели Давыдова, в которой экситон-фононная связь приводит к нелинейному штарковскому сдвигу частоты. В то же время учет зависимости дипольного момента от смещения молекул вида

$$d = d_0(1 + \gamma U)$$

в условиях резонанса

$$\omega_{ex} = \omega + \omega_s,$$

где

$$U = ue^{i\omega_s t}, \quad G = ge^{i\omega t}, \quad (62)$$

$u, g$  — соответствующие медленные огибающие, приводит к появлению взаимодействия трехволнового типа. Это взаимодействие отвечает следующему вкладу в гамильтониан:

$$H_{3w} = d_0 \gamma g u \psi^* + \text{с.с.} \quad (63)$$

В рамках этого взаимодействия можно объяснить усиление поглощения в области трехволнового экситон-фонон-фотонного резонанса. В работе [44] обнаружено, что резонансы в поглощении возникают при изменении частоты электромагнитного поля и при условии совпадения разности частот  $\omega_{ex} - \omega$  с частотами фононных мод. Это согласуется с предложенной выше схемой трехволнового взаимодействия.

Резонансный характер взаимодействия позволяет заключить, что влияние фононов на величину дипольного момента вносит существенный вклад в спектр поглощения, сравнимый с экситон-фононным взаимодействием, аналогичным взаимодействию экситонов и фононов в молекулах белка [27], или превосходящий его в рассмотренных выше примерах  $J$ -агрегатов.

Если дипольный момент экситонного перехода для  $J$ -агрегатов является упругим и зависит от фононных мод, то влияние фононов на экситонное состояние возрастает пропорционально эффективному дипольному моменту переходу в экситонную зону. Влияние фононов на величину дипольного момента экситонного перехода свойственно ряду  $J$ -агрегатов, например ПИЦ-Вг [18]. Упорядоченная система  $J$ -агрегатов ПИЦ-Вг является, на наш взгляд, перспективной средой для наблюдения влияния фононов на структуру спектра поглощения света и управления структурой энергетических зон  $J$ -агрегатов. Для исследования изменения спектральных характеристик системы фононная мода может селективно возбуждаться двумя лазерными полями с разностной частотой, близкой частоте фононной моды.

Применение сложных молекулярных сред, таких как  $J$ -агрегаты или сопряженные полимеры, в качестве нелинейных сред в периодических структурах открывает новые возможности управления светом. В отличие от цитированных во Введении работ, в которых нелинейные эффекты в периодиче-

ских средах являлись следствием самодействия поля, здесь нелинейные эффекты обусловлены экситон-фононным взаимодействием. Этот факт позволяет использовать электромагнитное поле в качестве управляющего поля в бистабильной среде (см. разд. 2.3).

Применение импульсов электромагнитного поля с фемтосекундной длительностью приводит к нарушению условий приближения медленных огибающих. Для широкополосного импульса электромагнитного поля условие двухуровневости среды неприменимо. Поэтому в случае чисто оптической нелинейной периодической среды пространственный масштаб ограничен снизу микронными размерами. Лимитирующим фактором для использования молекулярных сред является характерное время деформации молекулы. Применение молекулярных сред в периодических структурах позволяет перейти к характерному масштабу акустических деформаций, который может быть порядка расстояния между мономерами в молекулярных цепочках.

В работе также показано, что применение примесей в виде имплантированных атомов или наночастиц может стимулировать локализацию экситонов и приводить к усилению поглощающих и нелинейно-оптических свойств среды. Применение примесей в тонких периодических средах позволяет уменьшить размеры нелинейной среды, что представляет интерес для приложений в микроэлектронике.

Автор благодарен А. И. Плеханову и Р. В. Маркову за плодотворные обсуждения различных аспектов работы. Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты №№ 03-02-16297, 04-02-81020-Бел2004), Междисциплинарного интеграционного проекта фундаментальных исследований СО РАН (грант № 8-6), Программы фундаментальных исследований Президиума РАН (грант № 8-2).

## ЛИТЕРАТУРА

1. E. Yablonovitch, Phys. Rev. Lett. **58**, 2059 (1987).
2. E. Yablonovitch, J. Opt. Soc. Amer. B **10**, 283 (1993).
3. M. Scalora, J. P. Dowling, C. M. Bowden, and M. J. Bloemer, Phys. Rev. Lett. **73**, 1368 (1994).
4. M. Scalora, J. P. Dowling, C. M. Bowden, and M. J. Bloemer, J. Appl. Phys. **76**, 2023 (1994).
5. C. M. de Sterke and J. E. Sipe, in *Progress in Optics*, ed. by E. Wolf, Elsevier, North-Holland (1994), Vol. XXXIII, Chap. 3, p. 205.
6. B. I. Mantsyzov, Phys. Rev. A **51**, 4939 (1995).
7. B. J. Eggleton et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 1627 (1996).
8. A. E. Kozhekin and G. Kurizki, Phys. Rev. Lett. **74**, 5020 (1995).
9. A. E. Kozhekin, G. Kurizki, and B. Malomed, Phys. Rev. Lett. **81**, 3647 (1998).
10. T. Opatrný, B. A. Malomed, and G. Kurizki, Phys. Rev. E **60**, 6137 (1999).
11. N. Aközбек and S. John, Phys. Rev. E **58**, 3876 (1998).
12. S. L. McCall and E. L. Hahn, Phys. Rev. **183**, 457 (1969).
13. A. A. Afanas'ev, V. M. Volkov, V. V. Dritz, and B. A. Samson, J. Mod. Opt. **37**, 165 (1990).
14. S. de Boer and D. A. Wiersma, Chem. Phys. Lett. **165**, 45 (1990).
15. J. Knoester, Phys. Rev. A **47**, 2083 (1993).
16. А. Н. Тапенин, *Фотоника молекул красителей родственных органических соединений*, Наука, Ленинград (1967).
17. А. А. Ищенко, УХН **60**, 1708 (1991).
18. K. Misawa, K. Minoshima, H. Ono, and T. Kobayashi, Chem. Phys. Lett. **220**, 251 (1994).
19. *J-aggregates*, ed. by T. Kobayashi, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore (1996).
20. E. I. Rashba, in: *Excitons* ed. by E. I. Rashba and M. D. Sturge, North-Holland, Amsterdam (1982), p. 543.
21. V. F. Kamalov, I. A. Struganova, and K. Yoshihara, Chem. Phys. Lett. **213**, 599 (1993).
22. Р. В. Марков, А. И. Плеханов, З. М. Иванова, Н. А. Орлова, В. В. Шелковников, А. А. Иванов, М. В. Алфимов, ЖЭТФ **126**, 549 (2004).
23. B. C. Chin, K. Misawa, T. Masuda, and T. Kobayashi, Chem. Phys. Lett. **318**, 499 (2000).
24. R. V. Markov, A. I. Plekhanov, V. V. Shelkovnikov, and J. Knoester, Phys. Stat. Sol. (b) **221**, 529 (2000).
25. H. Ezaki, T. Tokihiro, M. Kuwata-Gonokami et al., Sol. St. Commun. **88**, 211 (1993).
26. F. C. Spano, Chem. Phys. Lett. **234**, 29 (1995).



27. А. С. Давыдов, *Солитоны в молекулярных системах*, Наукова Думка, Киев (1988).
28. M. A. Drobizhev, M. N. Sapozhnikov, I. G. Scheblyukiny et al., *Pure Appl. Opt.* **5**, 569 (1996).
29. V. Malyshev and P. Moreno, *Phys. Rev. A* **53**, 416 (1996).
30. V. A. Malyshev, H. Glaeske, and K.-H. Feller, *Opt. Commun.* **169**, 177 (1999).
31. J. Orenstein, *Handbook of Conducting Polymers*, ed. by T. A. Skotheim, Dekker, New York (1986), Vol. 2.
32. K. Watanabe, H. Nakano, A. Honold, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2257 (1989).
33. A. J. Heeger, S. Kivelson, J. R. Schrieffer, and W. P. Su, *Rev. Mod. Phys.* **60**, 781 (1988).
34. V. Sundstrom, T. Gillbro, R. A. Gadonas, and A. Piskarskas, *J. Chem. Phys.* **89**, 2754 (1988).
35. E. Gaizauskas, K.-H. Feller, and R. Gadonas, *Opt. Commun.* **118**, 360 (1995).
36. R. Gadonas, K.-H. Feller, and A. Pugzlys, *Opt. Comm.* **112**, 157 (1994).
37. O. Kühn and V. Sundstrom, *J. Chem. Phys.* **104**, 4154 (1997).
38. А. М. Башаров, *ЖЭТФ* **108**, 842 (1995).
39. В. Е. Захаров, С. В. Манаков, С. П. Новиков, Л. П. Пятаевский, *Теория солитонов*, Наука, Москва (1980).
40. С. П. Бурцев, А. В. Михайлов, В. Е. Захаров, *ТМФ* **70**, 323 (1987).
41. А. А. Заболотский, *Опт. и спектр.* **95**, 775 (2003).
42. *Painlevé Transcendents. Their Asymptotics and Physical Applications*, ed. by P. Winternitz and D. Levi, Plenum, New York (1992); NATO ASI Ser., Ser. B: Phys., Vol. 278.
43. H. Steudel and A. A. Zabolotskii, *J. Phys. A: Math. Gen.* **37**, 5047 (2004).
44. B. I. Greene, J. F. Mueller, J. Orenstein et al., *Phys. Rev. Lett.* **61**, 325 (1988).