

# Наноразмерные диссипативные дискретные солитоны в резонансно возбуждаемых молекулярных J-агрегатах

А. С. Киселев, А. С. Киселев<sup>1)</sup>, Н. Н. Розанов<sup>1)</sup>

Санкт-Петербургский государственный университет информационных технологий, механики и оптики  
197101 Санкт-Петербург, Россия

ФГУП НПК “Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова”, 199034 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 5 мая 2008 г.

Выполнен анализ резонансного возбуждения лазерным излучением линейной ориентированной молекулярной цепочки, моделируемой системой двухуровневых схем, взаимодействующих через излучение. Найдены режимы модуляционной неустойчивости, волн переключения и диссипативных солитонов, которые для J-агрегатов могут достигать размеров около 1 нм.

PACS: 36.40.Vz, 42.75.Pc

Исследования локализованных (солитоноподобных) возбуждений в молекулярных цепочках [1–4] привели к многим новым представлениям в физике молекул и кристаллов и способствовали развитию теории солитонов. Однако работы этого направления относились, насколько нам известно, исключительно к консервативным солитонам (в системах с сохраняющейся энергией). Другой же класс солитонов, основанных на балансе диссипативных факторов – энергии, вводимой в систему и выводимой из нее, – в молекулярных цепочках до сих пор, по-видимому, не рассматривался, хотя диссипативные солитоны обладают интересными особенностями и значительно большей устойчивостью, чем консервативные солитоны [5]. Примером могли бы служить диссипативные солитоны в линейной френкелевской молекулярной цепочке, в которой источником энергии служит возбуждающее молекулы внешнее лазерное излучение, а сток энергии отвечает излучению молекул, передаче возбуждения другим молекулам и релаксации. В настоящем сообщении демонстрируются режимы модуляционной неустойчивости, волн переключения и диссипативных солитонов в одномерной молекулярной цепочке на основе J-агрегатов, возбуждаемой лазерным излучением. Выбор в качестве объекта исследования ориентированных J-агрегатов цианиновых красителей связан с коллективным (экситонным) механизмом их резонансного возбуждения. Этому отвечают большая величина их оптической нелинейности и субпикосекундные времена релаксации, что делает эти низкоразмерные

наноструктуры перспективными для приложений к обработке информации [6] и в лазерной технике [7].

Хотя в настоящее время имеется ряд моделей, достаточно детально описывающих ориентированные J-агрегаты цианиновых красителей (см. [8] и приведенную там литературу), мы выберем сравнительно простой вариант – линейную цепочку  $N$  идентичных двухуровневых систем с совпадающими частотами перехода  $\omega_{21}$ , одинаковым направлением дипольных моментов и взаимодействующих с резонансным внешним излучением и друг с другом через испускаемое системами излучение [9]. При этом уравнения Блоха для элементов матрицы плотности  $k$ -й системы записываются в виде

$$\frac{\partial \rho_{11}^{(k)}}{\partial t} = -i \frac{\mu \mathbf{E}_k}{\hbar} [\rho_{12}^{(k)} - \rho_{21}^{(k)}],$$

$$\frac{\partial \rho_{21}^{(k)}}{\partial t} = -i \omega_{21} \rho_{21}^{(k)} + i \frac{\mu \mathbf{E}_k}{\hbar} [\rho_{11}^{(k)} - \rho_{22}^{(k)}], \quad k = 1, 2, \dots, N. \quad (1)$$

Здесь  $\mu$  – матричный элемент дипольного перехода, направленный под углом  $\theta$  к оси цепочки,  $\mathbf{E}_k$  – электрическое поле, действующее на  $k$ -ю систему (молекулу), состоящее из внешнего монохроматического поля частоты  $\omega_0$  и вклада остальных молекул, рассматриваемого как излучение классических диполей. В пренебрежении эффектами запаздывания замкнутая система уравнений для медленно меняющихся на одном оптическом периоде величин имеет вид [9]

$$\frac{\partial R_k}{\partial t} = -i \Delta R_k + i \sum_{l=1}^N (\Delta_{lk} - i \gamma_{lk}) R_l Z_k - i \Omega Z_k, \quad (2)$$

<sup>1)</sup>e-mail: andreys.kiselev@yahoo.com; nrosanov@yahoo.com

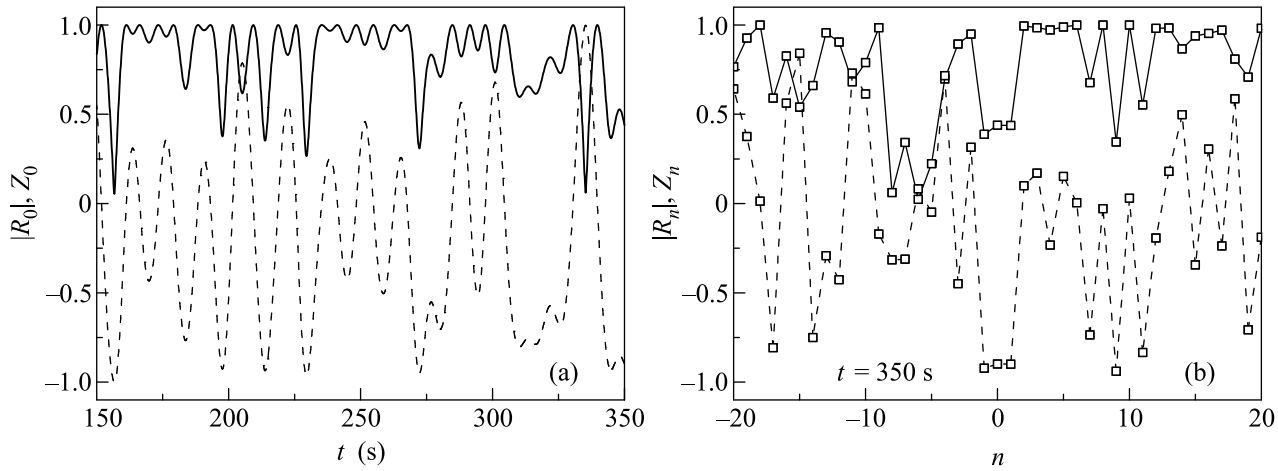


Рис.1. Режим модуляционной неустойчивости: (а) динамика характеристик  $|R_0|$ ,  $Z_0$  центральной молекулы; (б) и пространственное распределение  $|R_n|$ ,  $Z_n$  при  $t = 350$  с. Сплошные линии –  $|R_n|$ , штриховые –  $Z_n$ ;  $\Omega = 0.1 \text{ с}^{-1}$ ,  $\Delta = -10 \text{ с}^{-1}$ ,  $N = 101$ ,  $n = k - (N + 1)/2$ .

$$\frac{\partial Z_k}{\partial t} = \frac{i}{2} \sum_{l=1}^N \Delta_{lk} (R_k R_l^* - R_k^* R_l) - \frac{1}{2} \sum_{l=1}^N \gamma_{lk} (R_k R_l^* + R_k^* R_l) + \frac{1}{2} \Omega (R_k^* - R_k). \quad (3)$$

Здесь  $R_k = 2\rho_{21}^{(k)} \exp(i\omega_0 t)$ ,  $Z_k = \rho_{22}^{(k)} - \rho_{11}^{(k)}$  – разность населенностей,  $\Omega = \mu \varepsilon^{\text{ext}} / \hbar$  – частота Раби внешнего поля с амплитудой  $\varepsilon^{\text{ext}}$ ,  $\Delta = \omega_{21} - \omega_0$  – частотная расстройка. Матрицы  $\Delta_{lk}$  и  $\gamma_{lk}$ , элементы которых зависят от модуля разности индексов  $|l - k|$ , описывают коллективный сдвиг частоты и затухание, вызванные межмолекулярным взаимодействием, причем  $\Delta_{ll} = \gamma_{ll} = 0$ , а при  $l \neq k$

$$\Delta_{lk} = \frac{\mu^2}{\hbar a^3} \left[ \left( \frac{\cos(k_0 a |l - k|)}{|l - k|^3} + k_0 a \frac{\sin(k_0 a |l - k|)}{|l - k|^2} \right) \times \right. \\ \left. \times (1 - 3 \cos^2 \theta) - (k_0 a)^2 \frac{\cos(k_0 a |l - k|)}{|l - k|} \sin^2 \theta \right], \quad (4)$$

$$\gamma_{lk} = \frac{\mu^2}{\hbar a^3} \left[ \left( -\frac{\sin(k_0 a |l - k|)}{|l - k|^3} + k_0 a \frac{\cos(k_0 a |l - k|)}{|l - k|^2} \right) \times \right. \\ \left. \times (1 - 3 \cos^2 \theta) + (k_0 a)^2 \frac{\sin(k_0 a |l - k|)}{|l - k|} \sin^2 \theta \right]. \quad (5)$$

В (4) и (5)  $k_0 = \omega_0 / c$  – волновое число излучения и  $a$  – расстояние между молекулами.

В J-агрегатах цианиновых красителей число когерентно связанных молекул  $N \sim 50-100$ , то есть  $N \gg 1$ , ввиду чего в ряде задач можно считать  $N = \infty$ . В этом случае для однородных (с характеристиками, не зависящими от номера молекулы)

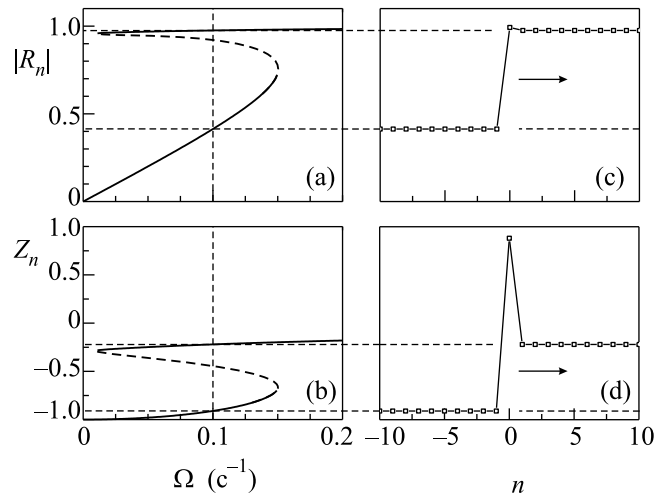


Рис.2. Ветви гистерезисных зависимостей  $|R_n|$  и  $Z_n$  от частоты  $\Omega$ . На (а) и (б) устойчивые ветви – сплошные линии, неустойчивые ветви – штриховые. На (с) и (д) мгновенное распределение характеристик  $|R_n|$  и  $Z_n$  в виде волн переключения.  $N = 101$ ,  $\Delta = -0.1 \text{ с}^{-1}$ , на (с) и (д)  $\Omega = 0.1 \text{ с}^{-1}$

решений (2) и (3) фигурирующие в этих уравнениях суммы выражаются через специальные функции  $Li_m(e^{ix}) = \sum_{l=1}^{\infty} \exp(ix) / l^m$ , причем  $Li_1(e^{ix}) = -\ln(1 - e^{ix})$  и  $\frac{d}{dx} Li_m(e^{ix}) = i Li_{m-1}(e^{ix})$ ,  $m > 1$ . Устойчивость однородных решений проверяется линеаризацией уравнений. В режиме модуляционной неустойчивости пространственно-временная динамика цепочки оказывается квазихаотической (рис.1). В области параметров, в которой модуляционная неустойчивость отсутствует, для определенных соот-

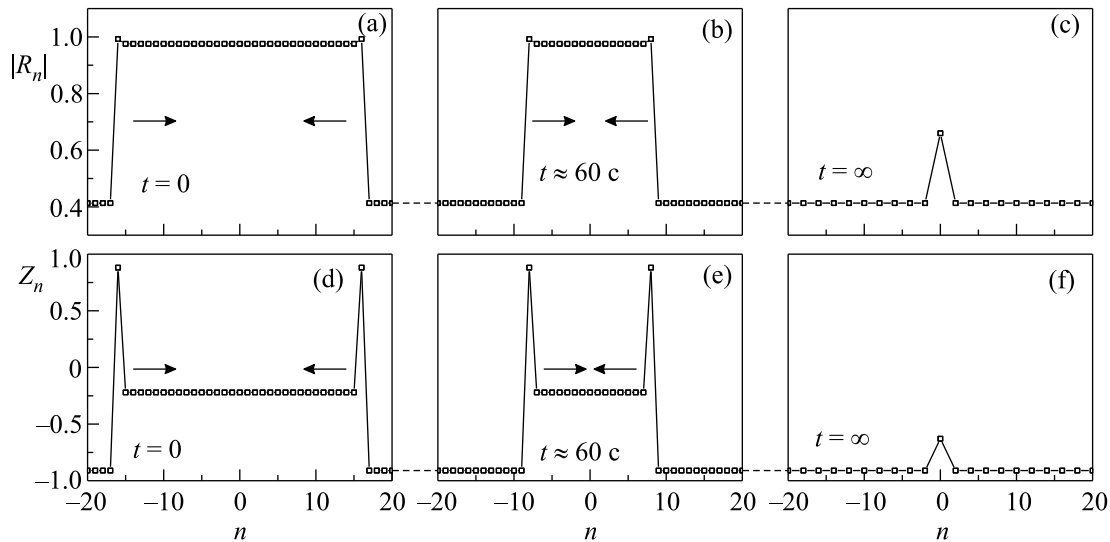


Рис.3. Режим столкновения двух волн переключения. Параметры те же, что на рис.2

ношений параметров может существовать несколько устойчивых однородных решений, что отвечает бистабильности [9]. Пример бистабильности приведен на рис.2а, б. Внутри области бистабильности существуют показанные на рис.2с, d волны переключения. Они представляют неподвижные или движущиеся (в зависимости от значения частоты Раби  $\Omega$ ) фронты пространственного переключения между однородными распределениями [5]. В данном случае вблизи фронта волны переключения имеются временные осцилляции молекулярных характеристик  $R$  и  $Z$  с частотой, по порядку величины близкой к частоте Раби (они ярче проявляются для разности заселенностей, см. рис.2d). Строго говоря, волны переключения реализуются при  $N = \infty$  и являются приближенным понятием при  $N \gg 1$ .

На рис.3 показан режим столкновения двух волн переключения. При расстояниях между фронтами, превышающих ширину фронта, они движутся независимо друг от друга. Но по мере сближения изрезанных фронтов их взаимодействие приводит к взаимному торможению и захвату с образованием локализованной структуры – диссипативного дискретного солитона, который здесь естественно интерпретировать как связанное состояние волн переключения [5]. Примечательна, по-видимому, рекордно малая ширина солитона – единицы нанометров (расстояние между молекулами в агрегате  $a \leq 1$  нм). Представленный солитон симметричен и, соответственно, не движется вдоль по цепочке.

Осцилляции фронтов волн переключения переносятся и на солитоны, как это показано на рис.4. Колебания близки к гармоническим с медленно ме-

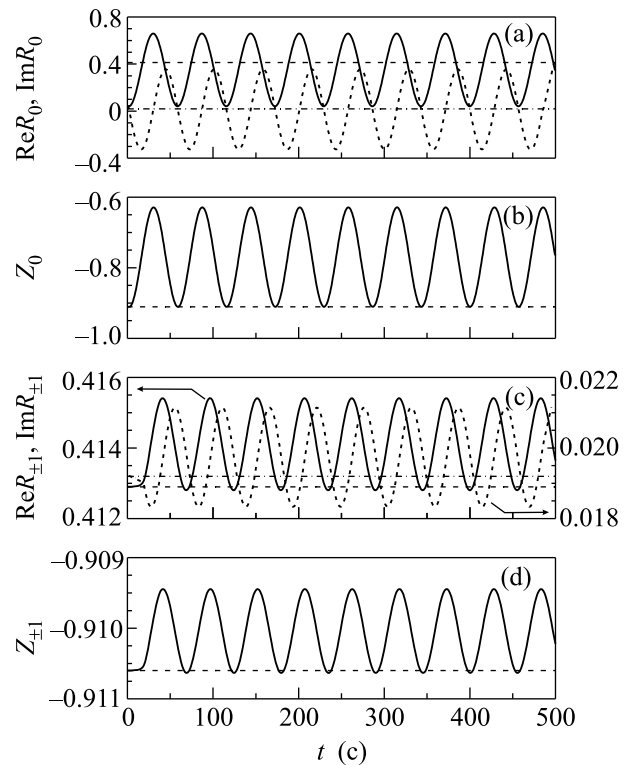


Рис.4. Временные осцилляции  $|R_0|$  и  $Z_0$  (а), (b) и  $|R_{\pm 1}|$  и  $Z_{\pm 1}$  (с), (d). На (а) и (b) сплошными линиями отмечены  $\text{Re } R_0$  и  $Z_0$ , штриховыми – соответствующие значения однородного распределения  $\text{Re } R_n$  и  $Z_n$ , пунктирной линией –  $\text{Im } R_0$ , штрих-пунктирной – значение амплитуды однородного распределения  $\text{Im } R_n$ . На (с) и (d) – то же, что на (а) и (b), для  $n = \pm 1$

нящимся при удалении от центра солитона средним по времени значением, причем заметное отклонение

от постоянного фона имеется только у центральных молекул (индексы  $k = 0, \pm 1$ ).

Таким образом, в данном сообщении продемонстрированы волны переключения и диссипативные дискретные молекулярные солитоны, характеризующиеся предельно малыми размерами (единицы нанометров). Применительно к столь узким солитонам число когерентно связанных молекул в цепочке  $N$  не имеет принципиального значения, то есть замена  $N \rightarrow \infty$  приводит лишь к малым количественным изменениям, главным образом, уровня фона. Модель двухуровневых схем популярна при описании ориентированных J-агрегатов красителей, хотя применяются и более полные модели трех- и четырехуровневых схем [8]. С учетом конечного времени релаксации уровней возможно получение и стационарных диссипативных солитонов. Для оценок параметров будем считать  $a = 0.9$  нм,  $\mu = 8.5 \cdot 10^{-30}$  м · Кл. Параметры солитонов существенно зависят от характеристик лазерного излучения. Длина волны лазерного излучения, резонансно возбуждающего J-агрегаты цианиновых красителей, около 580 нм, для принятого значения частотной расстройки требуемая интенсивность излучения  $\sim 1$  мкВт/см<sup>2</sup>, а единице времени на рис.1 и 4 отвечает 1 с. С увеличением расстройки необходимая для поддержания солитонов интенсивность излучения возрастает, а масштаб времени уменьшается. Например, для расстройки 100 Гц требуемая для поддержания солитона интенсивность лазерного излучения  $\sim 4$  Вт/см<sup>2</sup> (в условиях моностабильности однородного режима). В приведенном примере столь узкий солитон сформировался из исходно широкой неоднородности за счет ее постепенного сокращения. Возможно и инициирование нано-

размерного солитона узким пучком электронов. Считывание информации, записанной в форме солитона на нескольких молекулах, принципиально возможно при применении наноантенн, фокусирующих или направляющих излучение отдельных молекул [10]. Ввиду этого, эксперименты по формированию предельно узких молекулярных диссипативных солитонов и разработка соответствующих схем сверхплотной записи информации с помощью лазерного излучения с высокой стабильностью частоты представляются реальными.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований # 08-02-90112-Мол и Министерства образования и науки РНП 2.1.1.1189.

1. Я. И. Френкель, Т. М. Конторова, *Физический журнал* **1**, 137 (1939).
2. E. Fermi, J. R. Pasta, and S. M. Ulam, *Techn. Rep. LA-1940*, Los Alamos Sci., 1955.
3. A.S. Davydov and N.I. Kislukha, *Phys. Stat. Sol. (b)* **59**, 465 (1973).
4. А. С. Давыдов, Н. И. Кислюха, *ЖЭТФ* **71**, 1090 (1976).
5. Н. Н. Розанов, *Оптическая бистабильность и гистерезис в распределенных нелинейных системах*, М.: Наука, 1997.
6. M. Furuki, M. Tian, Y. Sato et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 472 (2000).
7. В. И. Авдеева, А. С. Кучьянов, А. И. Плеханов и др., *Квант. электрон.* **33**, 539 (2003).
8. H. Glaeske, V. A. Malyshev, and K.-H. Feller, *Phys. Rev. A* **65**, 033821 (2002).
9. V. Malyshev and P. Moreno, *Phys. Rev. A* **53**, 416 (1996).
10. O. Graydon, *Nature Photonics* **2**, 199 (2008).