

Исследование поверхностных плазмонов с помощью сканирующего акустического микроскопа

Ю.Берайгер-Хан, К.Блэйс, Ю.Е.Лозовик, М.М.Назаров, А.П.Шкуринов

Предложен новый метод исследования поверхностных плазмонов с помощью сканирующего акустического микроскопа. Для этого возбуждалась поверхностная электромагнитная волна (плазмон-поляритон) излучением лазера с одной стороны металлической плёнки, а также поверхностные акустические волны сканирующим акустическим микроскопом с другой её стороны. Впервые полученные акустические изображения плазмонов, распространяющихся по поверхности решётки, демонстрируют возможность изучения распределения поля плазмонной волны с помощью сканирующего акустического микроскопа.

Ключевые слова: *поверхностный плазмон, металлическая решётка, акустический микроскоп.*

1. Введение

Применение поверхностных электромагнитных волн (ПЭВ) является чувствительным и информативным методом исследования поверхностных слоёв [1]. ПЭВ (поверхностный плазмон) можно возбудить лазерным излучением на плёнке металла при использовании призмы [2] или дифракционной решётки [3], поскольку волновой вектор ПЭВ всегда больше волнового вектора света. В настоящее время развиваются общие принципы плазмонной оптики с высоким спектральным, временным [4] и пространственным разрешением [5]. В этой связи представляет большой интерес определение размера и формы области локализации, а также характеристик распространения плазмонов на поверхности. В настоящей работе предлагается новый метод визуализации плазмонов, основанный на сканирующей акустической микроскопии.

В ряде работ с использованием сканирующего туннельного микроскопа, атомно-силового микроскопа или оптического микроскопа ближнего поля предприняты попытки для прямой визуализации ПЭВ [5–7]. Однако применяемая в этих методах микроскопии острая игла существенно искажает исследуемое локальное электромагнитное поле вблизи поверхности, в то время как монохроматический и локальный пучок акустических волн, излучаемый акустическим микроскопом, возмущает его пренебрежимо мало. Кроме того, сканирующий акустический микроскоп (САМ) позволяет получать изображения поверхности в реальном времени.

Предлагаемый метод основан на том, что акустические свойства среды зависят от ее локальных параметров, таких как температура и электрическое поле, поэтому распределение поля плазмонной волны может наблюдаться в САМ. Нами была создана экспериментальная установка, объединяющая САМ и фемтосекундный лазерный спектрометр.

Акустический микроскоп позволяет возбуждать и регистрировать поверхностные акустические волны (ПАВ) и обычно работает на частотах 10–2000 МГц. Используются два режима работы САМ: низкочастотный, который обладает большой глубиной проникновения, либо высокочастотный, предпочтительный для достижения высокого пространственного разрешения. Акустический микроскоп применяется для решения различных прикладных задач, таких как обнаружение микротрещин, исследование проблем адгезии, визуализация биологических объектов, микроструктур, диагностика расслаивания и остаточного напряжения, измерение анизотропии и толщины плёнок, измерение скорости и затухания звука. Стоит заметить, что САМ – особенно удобное устройство для исследования биологических тканей и молекул. Имеется также опыт использования САМ в экспериментах с временным разрешением.

Наиболее существенным типом ПАВ при работе САМ является поперечная рэлеевская волна (имеющая, однако, и небольшую продольную составляющую). Поляризация такой ПАВ направлена перпендикулярно поверхности. Скорость этой волны приблизительно равна $0.9V_s$, где V_s – скорость поперечной волны в образце (в металлической плёнке и стеклянной подложке). Для сходящегося акустического пучка обычно существует угол, под которым возможно одновременное возбуждение и излучение ПАВ. На границе твёрдого тела и жидкости (вода на рис. 1) ПАВ затухает вследствие излучения волн во внешнюю среду [8], что позволяет возбуждать и регистрировать её с помощью линзы акустического микроскопа, находящейся над поверхностью. На детектор (акустическую линзу) с поверхности приходят волны двух типов: отражённые и переизлучённые в результате возбуж-

J. Bereiter-Hahn, C. Blase. Kinematische Zellforschung, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Deutschland, D-60439, Frankfurt am Main, Marie-Curie-Straße, 11

Ю.Е. Лозовик. Институт спектроскопии РАН, Россия, 142190 Троицк, Московская обл.

М.М. Назаров, А.П. Шкуринов. Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет и Международный учебно-научный лазерный центр МГУ им. М.В. Ломоносова, Россия, 119992 Москва, Воробьевы горы; e-mail: maxim@lasmed.phys.msu.ru

Поступила в редакцию 2 октября 2003 г.

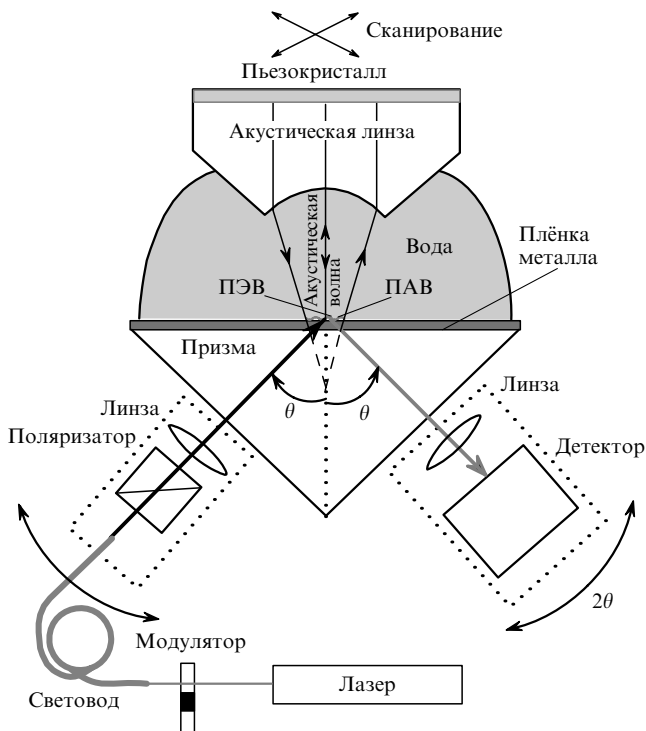


Рис.1. Схема экспериментальной установки.

дения ПАВ (см. рис.1). На детекторе происходит конструктивная или деструктивная интерференция волн этих типов. Это позволяет получать изображение деталей поверхности с поперечным пространственным разрешением порядка длины звуковой волны. Типичное разрешение в плоскости $x-y$ образца составляет $0.5-2$ мкм, а разрешение в направлении нормали к оси z равно $30-50$ нм [9]. Конфигурация используемого акустического микроскопа и его параметры описаны, например, в работах [9–11]. Акустические волны фокусируются на поверхность образца. Наличие водяной прослойки между акустической линзой и образцом (рис.1) способствует распространению продольной акустической волны. В каждой точке поверхности САМ работает сначала как излучатель, а потом как приёмник, регистрирующий отражённые акустические волны.

Аналогичную геометрию можно применить и для возбуждения ПЭВ. В работе [12], используя иммерсионный объектив, на границе масло–металл авторы возбуждают ПЭВ с помощью сфокусированного лазерного пучка. В отражённом оптическом пучке присутствует волна с изменённой фазой, излученная ПЭВ. Аналогично САМ в такой схеме сигнал на детекторе формируется путём интерференции излучённой и отражённой от поверхности оптических волн.

Итак, целью настоящей работы являлась разработка новой методики исследования «невозмущенного» плазмона. Впервые были получены акустические изображения плазмонов, распространяющихся по поверхности решётки.

2. Экспериментальная установка и методика эксперимента

Эксперименты проводились на установке, созданной на основе сканирующего акустического микроскопа ELSAM (фирма Leitz), схема которой приведена на

рис.1. В качестве неподвижного образца используется либо призма, либо периодическая поверхность (решётка) с нанесённой на неё плёнкой металла. Оптическое излучение фокусируется на поверхность металла снизу в пятно диаметром ~ 40 мкм. Угол падения и детектирования лазерного излучения θ можно менять. Используемый нами САМ имеет следующие параметры [11]: частота акустических волн 1 ГГц, длина акустической волны 1.5 мкм (поперечное разрешение 1.5 мкм), длительность ультразвукового импульса 28 нс, частота повторения импульсов 500 кГц, пиковая интенсивность 0.1 мВт/мкм², диаметр перетяжки сфокусированного пучка 1.5 мкм, фокусное расстояние 30 мкм, связывающая жидкость – вода, размер исследуемой области от 60×60 до 1000×1000 мкм. Для металлической решётки с «большим» (2 мкм) периодом можно получить изображение штрихов на поверхности (рис.2, д).

Акустическая линза САМ представляет собой сферическое углубление диаметром 50 мкм на одном конце сапфирового стержня. Пьезоизлучатель на другом его конце генерирует плоские акустические волны, излучаемые в направлении линзы. Излучение, выходящее из аксиально-симметричной акустической линзы микроскопа формирует на поверхности круговые ПАВ, распространяющиеся от границы области возбуждения к центру, а потом расходящиеся от центра. В наших экспериментальных условиях длина пробега акустической волны составляет около 30 мкм [8] и является радиусом образовавшейся концентрической решётки ПАВ, форма поверхности которой повторяет конфигурацию поля акустической волны. Для нашего эксперимента оцененная амплитуда формируемой решётки составляла несколько нанометров.

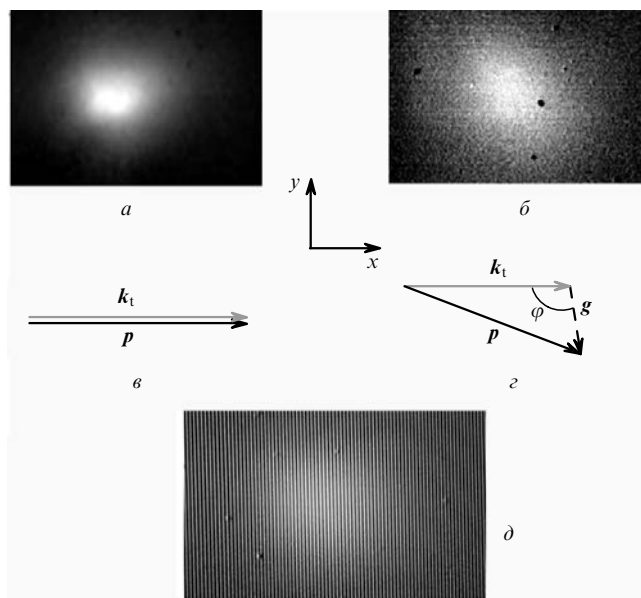


Рис.2. Изображения областей возбуждения ПЭВ в САМ и векторные диаграммы: коллинеарная схема, $\theta = 56^\circ$, $\lambda = 780$ нм, геометрия Кречмана, серебряная плёнка, размер изображения 250×175 мкм (а); неколлинеарная схема, $\theta = 60^\circ$, $\lambda = 750$ нм, $\varphi = 75^\circ$, решётка, серебряная плёнка, размер изображения 225×140 мкм (б); схема, иллюстрирующая выполнение условий фазового синхронизма для геометрии Кречмана (в); схема, иллюстрирующая выполнение условий фазового синхронизма для решётки ($d = 0.8$ мкм) (г); коллинеарная схема, $\theta = 38^\circ$, $\lambda = 800$ нм, $\varphi = 180^\circ$, решётка с большим периодом ($d = 2$ мкм), золотая плёнка, размер изображения 123×72 мкм (д).

2.1. Параметры оптической части экспериментальной установки

ПЭВ возбуждалась излучением титан-сапфирового лазера. Средняя мощность лазерного излучения на образце была равна 4 мВт во всем диапазоне перестройки длины волны лазера от 695 до 1005 нм. Мы применяли как импульсный (длительность импульса 100 фс, ширина спектра импульса 12 нм, частота повторения 80 МГц), так и непрерывный режим работы лазера. Плоскость поляризации пучка лазера после волновода задавалась поляризационной призмой Глана–Тейлора. Использовались р-поляризация (электрическое поле направлено параллельно плоскости падения) для коллинеарной геометрии возбуждения ПЭВ на решётке и геометрии Кречмана [2] и s-поляризация (электрическое поле направлено перпендикулярно плоскости падения) для неколлинеарной геометрии на решётке (рис.2,з). В зависимости от длины волны и типа исследуемой поверхности лазерный пучок направлялся на образец под углом от 30 до 60° к нормали и фокусировался линзой с фокусным расстоянием 6 см в пятно диаметром около 30 мкм. Коллимируемый отражённый от поверхности пучок регистрировался фотодиодом и синхронным вольтметром, показания которого использовались для оптимизации возбуждения ПЭВ по минимуму интенсивности зеркального отражения. Для введения лазерного излучения в перемещающуюся часть установки применялся одноодовый световод. Для визуального наблюдения области возбуждения ПЭВ и измерения ее размера вместо САМ над поверхностью образца помещался оптический микроскоп с ПЗС-камерой.

При возбуждении ПЭВ в геометрии Кречмана или при дифракции на периодическом рельефе угол падения θ (или частота лазерного излучения ω) определяется условием фазового синхронизма [1]. Для призмы это условие имеет вид $k_t = p$ (рис.2,в), а для дифракционной решётки $-k_t + g = p$, где $k_t = n(\omega/c) \sin \theta$ – проекция волнового вектора света на плоскость решётки; p – волновой вектор ПЭВ [1]; n – показатель преломления среды, в которой распространяется свет; g – вектор обратной решётки (рис.2,з).

2.2. Экспериментальные образцы

Для возбуждения ПЭВ в геометрии Кречмана применялась 90-градусная призма, изготовленная из стекла

ТФ 110 ($n = 1.8$), на основание которой наносилась пленка металла (серебро, золото, медь) толщиной 60 мкм. Плёнки серебра и меди покрывались защитной плёнкой SiO₂ толщиной 50 нм. В качестве периодической поверхности использовались дифракционные решетки, изготовленные на стеклянной подложке ($n = 1.45$) с глубиной штриха от 25 до 60 нм и периодом $d = 0.63, 0.8$ или 2 мкм. Профиль штриха может быть аппроксимирован функцией $z = |\sin(x/d)|$. Решетки были покрыты золотой или серебряной плёнкой с постоянной толщиной от 50 до 100 нм.

3. Результаты экспериментов и их обсуждение

Если падающий на образец лазерный пучок имеет поляризацию и угол падения, соответствующие оптимальным условиям возбуждения ПЭВ, то область возбуждения ПЭВ на изображении, получаемом с помощью САМ, имеет вид более яркого пятна, т. е. сигнал, принимаемый акустической линзой, в этой области сильнее (см. рис.2, 3).

Для исследования временных свойств сигнала САМ, лазерное излучение, падающее на образец, модулировалось механическим прерывателем с частотой 10–2000 Гц (рис.3,а). Наблюдаемые зависимости хорошо описываются моделью с экспоненциальной зависимостью локальной температуры поверхности от времени при нагреве и остывании. При периоде модуляции, меньшем характерного времени нагрева поверхности, амплитуда сигнала САМ не достигает своего стационарного значения и колеблется относительно среднего значения (рис. 3,а).

Характерное время нагрева (установления температурного равновесия) τ в наших условиях можно оценить как a^2/χ [13], где χ – коэффициент теплопроводности, a – размер области нагрева. Для металла это будет несколько микросекунд, но поскольку над поверхностью металла, где локализована ПЭВ, находится вода либо стекло, время нагрева определяется теплопроводностью этих веществ и составляет 1 мс для стекла и 2.6 мс для воды. Эти значения хорошо согласуются с нашими экспериментальными результатами: при возбуждении ПЭВ на призме мы получили $\tau_{Au} = 1.5 \pm 0.06$ мс, $\tau_{Ag} = 1.8 \pm 0.4$ мс (ПЭВ локализована на внешней стороне плёнки металла), при возбуждении ПЭВ на периодической поверхности – $\tau_{Au} = 2 \pm 0.5$ мс, $\tau_{Ag} = 0.95 \pm 0.02$ мс (ПЭВ локализована на внутренней стороне плёнки металла).

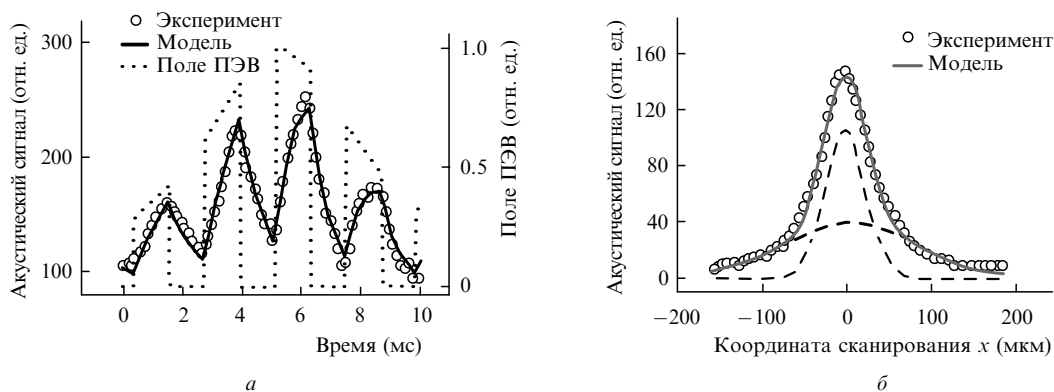


Рис.3. Сечение (пространственное) изображения в САМ пятна от ПЭВ по направлению сканирования акустической линзы вдоль оси x в случае модулированного (а) и непрерывного (б) лазерного излучения. Время и расстояние по оси x связаны через скорость сканирования 0.14 мкм/мс. Образец – серебряная решётка. Сплошные линии – модель с характерным временем нагрева (и остывания) 0.95 мкс. Период модуляции лазерного пучка 2.4 мс (полпериода пучок открыт – нагрев, следующие полпериода пучок закрыт – остывание). Модельная кривая на рис.3,б является суммой двух гауссовых кривых (штриховые линии) разной ширины.

Нагрев поверхности происходит вследствие поглощения ПЭВ. Максимальную температуру нагрева при поглощении пучка с гауссовым профилем можно оценить как $(1 - R)P/(\chi a_1)$, где a_1 – радиус пучка; P – мощность; R – коэффициент отражения [13]. В условиях нашего эксперимента температура в центре области возбуждения ПЭВ вследствие высокой теплопроводности металла превышала окружающую температуру всего на несколько градусов. При одинаковой средней мощности акустический сигнал одинаков для непрерывного и фемтосекундного режимов излучения, следовательно, все процессы, ведущие к образованию изображения в САМ, являются линейными и медленными.

Механизм усиления сигнала в САМ в нагретой области может определяться следующими причинами:

1. При повышении температуры на 10 К скорость звука в воде увеличивается от 1500 до 1530 м/с. Для металлов и стекла эти изменения гораздо меньше.

2. Из-за локального нагрева, вызванного поглощением ПЭВ в металле, локально нагревается вода, и в ней образуется тепловая линза для акустических волн.

3. Локальный нагрев создает градиент температуры по нормали к поверхности образца, и в результате возникает зависимость показателя преломления от z . Такая зависимость может увеличивать отражение акустических волн.

Оказалось, что нагрев поверхности резонансно возрастает при возбуждении ПЭВ. Действительно, вне ПЭВ-резонанса поглощается не более 1 % мощности падающего на образец лазерного излучения, в то время как при точном резонансе ПЭВ может поглотиться от 20 % до 90 % падающей мощности. На рис.4 представлена зависимость средней яркости изображения в САМ (усредненное напряжение на акустическом детекторе) от длины волны лазерного излучения при постоянной его мощности. Резонанс ПЭВ в этом случае достигается путём оптимизации частоты лазерного излучения и дополнительно контролируется по минимуму отражения. Хорошо видно, что оптимальное возбуждение ПЭВ позволяет усилить сигнал САМ на порядок.

Хотя для условий нашего эксперимента длина пробега ПЭВ сравнима с размером области её возбуждения (30 мкм), на рис.2,а и б хорошо видно, что нагретая область увеличивается в направлении распространения ПЭВ. Предположим, что падающий лазерный пучок имеет гауссово распределение интенсивности и пятно излучения на поверхности образца растянуто в направлении оси

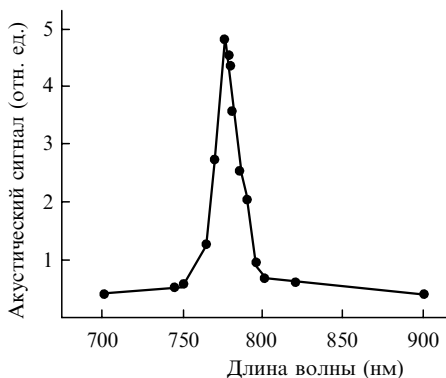


Рис.4. Зависимость средней яркости изображения в САМ от длины волны лазерного излучения. При $\lambda = 770$ нм выполняются условия возбуждения ПЭВ.

x . Излучение падает на образец под углом θ , соотношение осей эллипса освещённой области имеет вид $X_0/Y_0 = 1/\cos\theta$. Сигнал САМ имеет пространственное распределение, которое может быть описано суперпозицией двух гауссовых кривых с единым центром и различной шириной (см. рис.3,б). Кривая с меньшей шириной соответствует размеру области возбуждения ПЭВ, а с большей – определяется диффузией тепла на поверхности. Размеры изображений в САМ превышают размеры области возбуждения приблизительно на 10 %–40 %. При использовании геометрии Кречмана ПЭВ распространяется вдоль плоскости падения (рис.2,а). Обозначим размер яркой области в изображении, полученном с помощью САМ, вдоль направления распространения ПЭВ как X_a , а перпендикулярно ему – как Y_a . Эти параметры задаются тремя величинами: размерами области возбуждения ПЭВ, т.е. размерами перетяжки лазерного пучка X_0, Y_0 на поверхности; расплыванием нагретой области ($\delta X_t, \delta Y_t$), которое определяется теплопроводностью, и длиной пробега ПЭВ X_{SEW} .

Величины X_0, Y_0 непосредственно измеряются оптическими методами, X_a и Y_a – по изображению в САМ (уменьшению амплитуды сигнала в два раза по сравнению с максимумом). В направлении y – поперёк распространения ПЭВ – длина пробега ПЭВ Y_{SEW} не приводит к уширению яркой области ($Y_{SEW} = 0$). Таким образом, у нас достаточно информации для того, чтобы оценить длину пробега ПЭВ X_{SEW} . В самом деле, $\delta X_t \approx \delta Y_t = Y_a - Y_0$, откуда

$$X_{SEW} = X_a - X_0 - \delta X_t \approx (X_a - Y_a) - (X_0 - Y_0). \quad (1)$$

Когда штрихи решётки на поверхности не перпендикулярны плоскости падения, ПЭВ, возбуждённая светом, распространяется под углом к плоскости падения (рис. 2,з), и ненулевая длина пробега ПЭВ приводит к уширению яркой области изображения в САМ в направлении, не лежащем в плоскости падения, что хорошо видно на рис.2,б. Аналогичным образом можно оценить длину пробега ПЭВ и в этом случае.

На рис.2,а показан сигнал САМ от серебряной плёнки при возбуждении ПЭВ в геометрии Кречмана. Все изображения получены в режиме вычитания фона, в качестве которого использовался сигнал САМ в отсутствие возбуждения ПЭВ. «Выключить» возбуждение ПЭВ можно путём изменения частоты лазерного излучения, угла падения или поляризации лазерного излучения. Пространственные размеры сигнала САМ и измеренные размеры пятна излучения лазера таковы: $X_a = 93$ мкм, $Y_a = 54$ мкм и $X_0 = 54$ мкм, $Y_0 = 30$ мкм. Уширение за счет теплопроводности равно 24 мкм. Длина пробега ПЭВ, оценённая с помощью выражения (1) составляет 15 мкм, что согласуется с её значением, недавно измеренным методом генерации второй оптической гармоники [4]. Указанная величина оказалась меньше теоретической оценки длины пробега ПЭВ (36 мкм), вычисленной лишь с учётом затухания ПЭВ, выраженного через $\text{Im} \varepsilon(\omega)$, где $\varepsilon(\omega)$ – диэлектрическая проницаемость металла на частоте ω . Это свидетельствует о существенном влиянии иных каналов затухания ПЭВ, например переизлучения ПЭВ в свет, затухания Ландау, инициированного неоднородностями поверхности [14], и др.

На рис.2,б показан сигнал САМ для случая, когда ПЭВ возбуждается в серебряной плёнке, нанесённой на

периодическую поверхность. Угол φ между вектором обратной решётки ($g = 2\pi/d = 7.8 \text{ мкм}^{-1}$) и плоскостью падения составлял 75° , в то время как угол между направлением распространения ПЭВ и плоскостью падения – 40° . Учитывая значения углов и расплывание области, нагретой ПЭВ, мы оценили длину свободного пробега ПЭВ как 20 мкм. Для золотых плёнок длина пробега получается меньше, чем для серебряных (вследствие большего поглощения ПЭВ в золоте), а от медной плёнки сигнала в САМ не наблюдалось.

4. Заключение

Вытянутость яркой области в САМ вдоль ожидаемого направления распространения плазмонов (даже для изотропной в среднем плёнки) свидетельствует о том, что плазмоны являются бегущими. На основании вытянутости пятна излучения в САМ вдоль возможного направления распространения ПЭВ на решётке можно сделать вывод, что влияние плазмонов, локализованных в области перегибов решётки (см., напр., [15]), несущественно.

Оценка длины локализации ПЭВ указывает на важную роль механизмов затухания плазмонов, не определяющихся $\text{Im } \epsilon$. Отметим, что создаваемая сканирующим акустическим микроскопом ПАВ может служить управляемой локальной искусственной решёткой на поверхности, на которой могут рассеиваться, а при большой интенсивности и локализоваться, ПЭВ и другие поверхностные возбуждения, например магноны в магнитных материалах.

В принципе взаимодействие ПЭВ и ПАВ должно проявляться как бриллюэновское рассеяние поверхностных плазмонов на ПАВ [16–20], что можно использовать для визуализации ПЭВ. Также ПЭВ могут возбуждать акустические волны вследствие теплового расширения металла [21].

В настоящей работе развит новый экспериментальный метод визуального исследования ПЭВ. Он позволяет изучать локальные акустооптические свойства поверхности, область локализации, затухание и направление распространения ПЭВ. Этот метод способен расширить возможности применения САМ. Мы ожидаем,

что с помощью описанных исследований можно будет проанализировать акустические явления, связанные с локальным нагревом поверхности по принципу локального теплового визуализатора.

Авторы признательны А.А.Карабутову за полезное обсуждение результатов работы.

Настоящая работа выполнена при поддержке Министерства исследований и технологии Германии (BMBF, грант № 0081/99 13N7516) и РФФИ (гранты № 01-02-17314 и 02-02-17138).

1. *Поверхностные поляритоны*. Под ред. В.М.Аграновича и Д.Л.Милса (М.: Наука, 1985).
2. Kretschmann E., Raether H. *Zs. Naturforsch A*, **23**, 2135 (1968).
3. Petit R. (Ed.) *Electromagnetic Theory of Gratings* (New York: Springer-Verlag, 1980).
4. Lozovik Yu.E., Merkulova S.P., Nazarov M.M., Shkurinov A.P. *Phys. Lett. A*, **276**, 127 (2000).
5. Bozhevolnyi S.I., Pudonin F.A. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2823 (1997).
6. Kim Y.-K., Lundquist P.M., Helfrich J.A., Mikrut J.M., Wong G.K., Auvil P.R., Ketterson J.B. *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 3407 (1995).
7. Kawata S. (Ed.) *Near Field Optics and Surface Plasmon Polaritons* (Heidelberg: Springer-Verlag, 2001).
8. Викторов И.А. *Поверхностные акустические волны в твёрдом теле* (М.: Наука, 1981).
9. Briggs A. (Ed.) *Advances in Acoustic Microscopy. V. 1* (New York: Plenum Press, 1995).
10. Kundu T., Bereiter-Hahn J., Hillmann K. *Biophys. J*, **59**, 1149 (1991).
11. Kundu T., Bereiter-Hahn J., Hillmann K. *J. Acoust. Soc. Am.*, **91**, 3008 (1992).
12. Somekh M.G., Liu S., Velinov T.S., See C.W. *Appl. Opt.*, **39**, 6279 (2000).
13. Коротеев Н.И., Шумай И.Л. *Физика мощного лазерного излучения* (М.: Наука, 1991).
14. Lozovik Yu.E., Klyuchnik A.V. In: *Dielectric Function of Condensed Systems* (Amsterdam: Elsevier Science Publishers B.V., 1987, p. 301).
15. Lozovik Yu.E., Nazarov M.M., Shkurinov A.P. *Physica Scripta*, **60** (1), 60 (1999).
16. Katayama K., Sawada T., Shen Q., Harata A. *Phys. Rev. B*, **58**, 8428 (1998).
17. Fukui M., Toda O., So V.C.Y., Stegeman G.I. *Solid State Commun.*, **36**, 995 (1980).
18. Moretti A.L., Robertson W.M., Fisher B., Bray R. *Phys. Rev. B*, **31**, 3361 (1985).
19. Robertson W.M., Grimsditch M., Moretti A.L., Kaufman R.G. *Phys. Rev. B*, **41**, 4986 (1989).
20. Marvin A.M., Nizzoli F. *Phys. Rev. B*, **45**, 12160 (1992).
21. Inagaki T., Kagami K., Arakawa E.T. *Appl. Opt.*, **21**, 949 (1982).