

ФЕМТОСЕКУНДНАЯ ЛАЗЕРНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ

PACS 42.62.Fi; 42.65.Hw; 82.53.–k

Фемтосекундный лазерный контроль нестационарной анизотропии жидкости: селективная спектроскопия внутримолекулярных колебаний четыреххлористого углерода**В.Г.Никифоров, А.Г.Шмелёв, Г.М.Сафиуллин, В.С.Лобков**

На основе техники фемтосекундной поляризационной спектроскопии реализовано двухимпульсное управление нестационарной анизотропией в жидком четыреххлористом углероде при комнатной температуре. Жидкость возбуждалась последовательностью из двух линейно поляризованных лазерных импульсов, состояние анизотропии зондировалось слабым третьим импульсом с регистрацией оптического эффекта Керра. Показано, что путем варьирования задержки между возбуждающими импульсами, а также их относительной интенсивности достигается селекция вкладов отдельных внутримолекулярных мод в регистрируемый сигнал.

Ключевые слова: многоимпульсный лазерный контроль, сверхбыстрый оптический эффект Керра, колебательно-вращательная динамика молекул в жидкости.

1. Введение

Лазерное управление состоянием среды остается одним из приоритетных направлений теоретических и экспериментальных исследований. В настоящее время наиболее эффективным инструментом реализации лазерного управления является фемтосекундная техника [1], которая дает возможность возбуждать систему импульсами, сопоставимыми по длительности с периодом молекулярных колебаний. Экспериментально показано, что лазерный контроль позволяет решать фундаментальные задачи по управлению выходом продуктов химических реакций [2–4], переносу энергии в фотосинтетических комплексах [5, 6], по селективной фотоионизации изотопов молекул [7], селективной фотодиссоциации и созданию новых связей в молекулах [8], фотоизомеризации молекул [9] и др.

Одна из схем лазерного управления основана на применении многоимпульсного возбуждения. Волновой пакет в среде формируется в результате последовательного воздействия импульсов и свободной эволюции системы. Оптимизацией параметров импульсов (длительности, интенсивности, спектра частот импульсов, задержки между импульсами и т. д.) достигается заданное состояние среды. Впервые такая техника была использована для селективного усиления отдельных мод в молекулярном кристалле α -перилена [10]. Двухимпульсные и четырехимпульсные последовательности применялись для контроля когерентных фононных осцилляций в твердых материалах [11–18]. В жидкости с помощью двухимпульсного возбуждения осуществлялся контроль ориентационной анизотропии в ортодихлорбензоле [19] и реализовывалась селективная спектроскопия молекулярной динамики в хло-

роформе [20]. Опираясь на работу [21], в которой теоретически рассмотрено применение многоимпульсного нерезонансного возбуждения в жидкости, мы использовали двухимпульсную последовательность для селективной спектроскопии внутримолекулярных колебаний. С целью манипулирования нестационарной анизотропией жидкости мы варьировали интенсивности возбуждающих импульсов и время задержки между ними. Зондирование состояния среды осуществлялось пробным импульсом путем регистрации оптического эффекта Керра (ОЭК) с помощью оптического гетеродинамирования [22–24].

Регистрируемый сигнал ОЭК в жидкости является суперпозицией электронного отклика и отклика когерентных молекулярных колебаний и вращений. Колебательно-вращательный отклик в свою очередь содержит вклады мод внутримолекулярных колебаний, ориентационных и либрационных вращений. Одновременная регистрация этих откликов создает известные трудности для однозначного разделения совокупного сигнала на составляющие компоненты с фемто- и пикосекундными временами релаксации. Отмеченные обстоятельства предъявляют высокие технические требования к экспериментальной технике, что, на наш взгляд, является одним из препятствий для широкого применения многоимпульсного возбуждения в жидкости. В настоящей работе мы демонстрируем, как на основе двухимпульсного нерезонансного возбуждения реализуется управление интенсивностями вкладов отдельных внутримолекулярных мод в регистрируемый сигнал, что позволяет в эксперименте осуществлять селекцию внутримолекулярных откликов и обеспечивает качественно новые возможности анализа молекулярной динамики.

Для реализации двухимпульсного управления выбран жидкий четыреххлористый углерод (CCl_4), широко используемый в качестве растворителя. Он прозрачен в видимой области спектра и в области 790 нм (несущая частота излучения лазера) и обладает комбинационно-активными низкочастотными внутримолекулярными модами, которые возбуждаются лазерными импульсами длитель-

В.Г.Никифоров, А.Г.Шмелёв, Г.М.Сафиуллин, В.С.Лобков. Казанский физико-технический институт КНЦ РАН, Россия, 420029 Казань, Сибирский Тракт, 10/7; e-mail: vgnik@mail.ru

Поступила в редакцию 9 декабря 2011 г., после доработки – 3 марта 2012 г.

ностью 30 фс. Помимо этого симметрия молекул CSl_4 обеспечивает слабое возбуждение вращательных откликов, что удобно для селективной регистрации откликов внутримолекулярных мод.

При анализе сигнала ОЭК требуется моделировать оптический отклик третьего порядка при одноимпульсном возбуждении и отклик пятого порядка при двухимпульсном возбуждении. Существуют несколько подходов к анализу сигнала ОЭК [25–28]. В нашей работе моделирование основано на феноменологической модели, представленной в [20, 21, 29], которая позволяет анализировать совокупный сигнал ОЭК при одно- и многоимпульсном возбуждении среды. Планирование и проведение экспериментов выполнено с учетом работы [21], где теоретически рассмотрены сценарии применения последовательности возбуждающих импульсов для манипулирования колебательным откликом молекул в жидкости в субпикосекундном диапазоне.

2. Эксперимент

Эксперименты выполнены с использованием техники поляризационной спектроскопии с регистрацией ОЭК. В отличие от традиционных экспериментов по регистрации ОЭК [22–24], среда возбуждалась последовательностью из двух импульсов излучения с одинаковой поляризацией. В эксперименте разные сценарии возбуждения реализовывались путем вариации задержки между накачивающими импульсами и их относительной интенсивности. Фемтосекундные импульсы генерировались стандартным $\text{Ti}:\text{сапфир}$ лазером (ООО «Авеста-проект»), накачиваемым второй гармоникой $\text{Nd}:\text{YAG}$ -лазера с диодной накачкой. Выходная мощность лазера накачки была равна 3.9 Вт. Средняя энергия импульса длительностью 30 фс на несущей длине волны 790 нм составляла 4×10^{-9} Дж. В эксперименте использовалась стандартная схема регистрации ОЭК [22–24, 29], когда измеряется интенсивность пробного луча, прошедшего через поляризатор, образец и анализатор. Для улучшения отношения сигнал/шум применялась техника оптического гетеродинамирования и синхронного детектирования. Образец представлял собой чистую профильтрованную жидкость (размер пор фильтра 0.2 мкм) в кварцевой кювете толщиной 3 мм.

На рис.1, 3–5 показаны нормированные интенсивности сигналов ОЭК. Величина сигнала характеризует состояние наведенной оптической анизотропии среды во время зондирования пробным импульсом. Время зондирования определяется задержкой между воздействиями на среду первого возбуждающего импульса и пробного импульса. Параметры эксперимента (задержки между возбуждающими импульсами, их относительные интенсивности и длительности) приведены в подписях к рисункам.

3. Анализ результатов эксперимента

Моделирование сигнала ОЭК выполнено на основе феноменологического подхода, представленного в работах [21, 29], краткое описание которого сводится к следующему. Детектируемый в эксперименте сигнал ОЭК $S(\tau)$ является усредненным по времени мгновенным откликом среды $s(\tau, t)$:

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} s(\tau, t) dt, \quad (1)$$

где τ – задержка между импульсом накачки и пробным импульсом. Функция $s(\tau, t)$ включает в себя молекулярные отклики $R(t)$, регистрируемые в эксперименте:

$$s(\tau, t) \propto E_{\text{lo}}(t - \tau) E_0(t - \tau) [R_c(t) + R_{\text{osc}}(t) + R_{\text{or}}(t) + R_{\text{lib}}(t)]. \quad (2)$$

Возбуждающий импульс $E_p(t)$, пробный импульс $E_0(t)$ и импульс поля локального осциллятора $E_{\text{lo}}(t)$ имеют длительность τ_p (полная ширина на полувысоте), огибающая их интенсивности моделируется функцией

$$I_p(t) \propto I_0(t) \propto I_{\text{lo}}(t) \propto \text{sech}\left(\frac{t}{0.38\tau_p}\right).$$

В случае применения двух возбуждающих импульсов выражение для $I_p(t)$ состоит из двух слагаемых:

$$I_p(t) = I_p^{(1)} \text{sech}\left(\frac{t}{0.38\tau_p}\right) + I_p^{(2)} \text{sech}\left(\frac{t - \tau_{12}}{0.38\tau_p}\right), \quad (3)$$

где $I_p^{(k)}$ – интенсивность k -го импульса; τ_{12} – задержка между импульсами.

Отклик электронной гиперполяризуемости $R_c(t)$ пропорционален коэффициенту «мгновенной» электронной кубической гиперполяризуемости γ и интенсивности возбуждающего импульса $I_p(t)$:

$$R_c(t) \propto \gamma I_p(t). \quad (4)$$

Функция отклика внутримолекулярных колебаний $R_{\text{osc}}(t)$ имеет следующий вид:

$$R_{\text{osc}}(t) \propto \sum_{i=1}^N r_{\text{osc}}(\Omega_{\text{osc}}^{(i)}, \tau_{\text{osc}}^{(i)}, \alpha_{\text{osc}}^{(i)}, t), \quad (5)$$

$$r_{\text{osc}}(\Omega_{\text{osc}}, \tau_{\text{osc}}, \alpha_{\text{osc}}, t) = \alpha_{\text{osc}}^2 (\Omega_{\text{osc}}^2 - \tau_{\text{osc}}^{-2})^{-1/2}$$

$$\times \int_0^{\infty} I_p(t - t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_{\text{osc}}}\right) \sin[(\Omega_{\text{osc}}^2 - \tau_{\text{osc}}^{-2})^{1/2} t'] dt',$$

где N – количество колебательных мод, возбуждаемых импульсом накачки; $\alpha_{\text{osc}}^{(i)}$ – коэффициент, характеризующий изменение поляризуемости молекулы при осцилляции i -й моды; $\Omega_{\text{osc}}^{(i)}$ и $\tau_{\text{osc}}^{(i)}$ – частота колебания и время релаксации i -й моды.

Если молекулы обладают анизотропией поляризуемости ($\Delta\alpha \neq 0$), лазерный импульс создает ориентационную анизотропию молекул, релаксация которой происходит по механизму вращательной диффузии. Данный молекулярный отклик описывается следующим выражением:

$$R_{\text{or}}(t) \propto \Delta\alpha^2 \int_0^{\infty} I_p(t - t') \exp\left(-\frac{t'}{\tau_{\text{or}}}\right) dt', \quad (6)$$

где τ_{or} – время релаксации ориентационного отклика.

Помимо ориентационной анизотропии молекул возбуждаются также либрации молекул с частотой Ω_{lib} . Описание либрационного отклика основывается на функции распределения либрационных частот $\rho(\Omega_{\text{lib}})$, которая отражает локальную неоднородность среды:

$$R_{\text{lib}}(t) \propto \int_0^{\infty} d\Omega_{\text{lib}} \rho(\Omega_{\text{lib}}) r_{\text{lib}}(\Omega_{\text{lib}}, t), \quad (7)$$

$$r_{\text{lib}}(\Omega_{\text{lib}}, t) = \Delta\alpha^2 \Omega_{\text{lib}}^{-1} \int_0^{\infty} I_p(t - t') \sin[\Omega_{\text{lib}} t'] dt'.$$

Для описания функции распределения либрационно-отклика воспользуемся результатами работы [29], где показано, что эта функция, в частности для молекул хлороформа в жидкости, имеет вид распределения Максвелла:

$$\rho(\Omega_{\text{lib}}) \propto \Omega_{\text{lib}}^2 \exp\left[-\frac{\Omega_{\text{lib}}^2}{2(\Delta\Omega_{\text{lib}})^2}\right], \quad (8)$$

где $\Delta\Omega_{\text{lib}}$ – параметр (ширина) функции распределения.

В процессе анализа экспериментальных данных (рис. 1, 3–5) подобран единый набор констант, на основе которого моделируется сигнал ОЭК при всех сценариях возбуждения: $\Omega_{\text{osc}}^{(1)} = 216 \pm 4 \text{ см}^{-1}$, $\tau_{\text{osc}}^{(1)} = 1.9 \pm 0.3 \text{ пс}$, $\Omega_{\text{osc}}^{(2)} = 312 \pm 6 \text{ см}^{-1}$, $\tau_{\text{osc}}^{(2)} = 1.1 \pm 0.1 \text{ пс}$, $\Omega_{\text{osc}}^{(3)} = 458 \text{ см}^{-1}$, $\tau_{\text{osc}}^{(3)} = 1.9 \text{ пс}$, $\tau_{\text{or}} = 0.5 \pm 0.07 \text{ пс}$, $\Delta\Omega_{\text{lib}} = 117 \pm 8 \text{ см}^{-1}$. На рис. 2 показаны комбинационно-активные моды внутримолекулярных колебаний CCl_4 по данным комбинационного рассеяния и мнимая часть фурье-преобразования сигнала ОЭК, представленного на рис. 1, а. Видно, что лазерными импульсами эффективно возбуждаются моды 216 и 312 см^{-1} . Мода 458 см^{-1} в сигнале ОЭК не наблюдается. Для моде-

лирования колебательной динамики значение частоты $\Omega_{\text{osc}}^{(3)}$ было взято из данных рамановской спектроскопии и принято, что $\tau_{\text{osc}}^{(3)} \equiv \tau_{\text{osc}}^{(1)}$.

Анализ экспериментальных данных показал, что в четыреххлористом углероде возбуждаются все рассмотренные выше молекулярные отклики. При этом интенсивность ориентационного и либрационного откликов в силу симметрии молекулы CCl_4 мала по сравнению, например, с аналогичными откликами в хлороформе CHCl_3 [20]. Предметом нашего главного интереса являются отклики когерентных внутримолекулярных осцилляций $r_{\text{osc}}^{(i)}$. Моделирование показывает, что отсутствие отклика моды 458 см^{-1} в сигнале ОЭК связано с тем, что длительность лазерного импульса сравнима с периодом молекулярных колебаний моды 458 см^{-1} . В результате, во-первых, не происходит эффективного возбуждения моды и, во-вторых, в процессе регистрации когерентных осцилляций моды 458 см^{-1} интегрирование молекулярного отклика $r_{\text{osc}}^{(3)}$ и пробного импульса (см. (1) и (2)) приводит к потере информации о высокочастотной составляющей в совокупном сигнале ОЭК.

4. Обсуждение результатов

В настоящей работе экспериментальная реализация лазерного контроля наведенной анизотропии в жидкости основана на двухимпульсном возбуждении среды. Этот контроль достигается путем создания конструктивной либо деструктивной интерференции колебательных пакетов, соответствующей режиму усиления или подавления колебательных откликов в сигнале ОЭК. Поскольку отклик колебательной моды 458 см^{-1} в сигнале ОЭК не наблюдается (см. рис. 2), в эксперименте мы сосредоточились на манипулировании интенсивностями колебательных откликов мод 216 и 312 см^{-1} . Были проанализированы три сценария возбуждения: 1) усиление отклика моды 216 см^{-1} и подавление отклика моды 312 см^{-1} , 2) усиление отклика моды 312 см^{-1} и подавление отклика моды 216 см^{-1} и 3) подавление откликов обеих низкочастотных мод. Значения относительной интенсивности импульсов накачки и задержки между импульсами подбирались непосредственно в эксперименте в процессе наблюдения за изменением сигнала ОЭК. Усиление или подавление амплитуды колебательной моды после действия второго возбуждающего импульса мы рассматриваем по отношению к амплитуде данной моды в отсутствие второго импульса. Моделирование колебательного отклика при двухимпульсном возбуждении на основе (1)–(3) и (5) учитывает длительности импульсов, их интенсивности и релаксационные процессы. Если полагать, что лазерные импульсы идентичны, и пренебречь процессами релаксации, то отклик отдельной моды будет являться суммой двух гармонических осцилляций, возбуждаемых первым и вторым импульсами. Соответственно оценить изменение амплитуды A_{osc} отклика r_{osc} до действия второго импульса накачки ($\tau < \tau_{12}$) и после действия второго импульса ($\tau > \tau_{12}$) можно отношением

$$\frac{A_{\text{osc}}(\tau > \tau_{12})}{A_{\text{osc}}(\tau < \tau_{12})} = 2 \left| \cos\left(\tau_{12} \frac{\Omega_{\text{osc}}}{2}\right) \right|. \quad (9)$$

Сценарий подавления отклика моды 312 см^{-1} и усиления моды 216 см^{-1} приведен на рис. 3, где задержка между накачивающими импульсами равна 908 фс, а фазы вну-

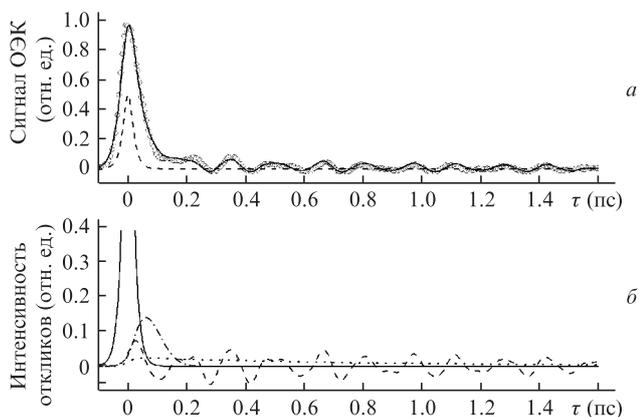


Рис. 1. Сигнал ОЭК в жидком CCl_4 при одноимпульсном возбуждении ($\tau_p = 30 \text{ фс}$): точки – экспериментальные данные, сплошная кривая – моделирование, штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (а) и результаты моделирования составляющих сигнала ОЭК: сплошная кривая – электронный отклик R_e , штриховая кривая – колебательный отклик R_{osc} , штрихпунктирная кривая – либрационный отклик R_{lib} , пунктир – ориентационный отклик R_{or} (б).

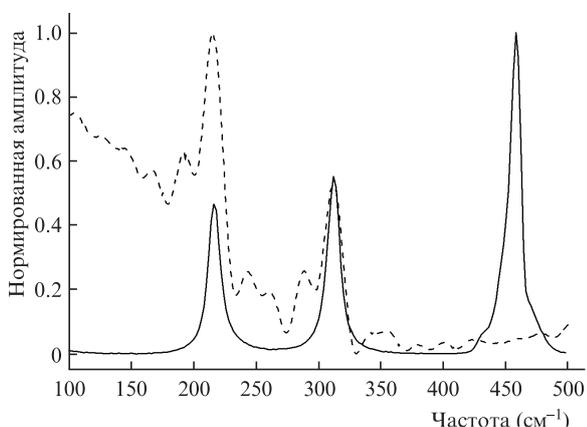


Рис. 2. Комбинационно-активные моды внутримолекулярных колебаний CCl_4 . Сплошная кривая – данные комбинационного рассеяния, штриховая – мнимая часть фурье-преобразования сигнала ОЭК, представленного на рис. 1, а.

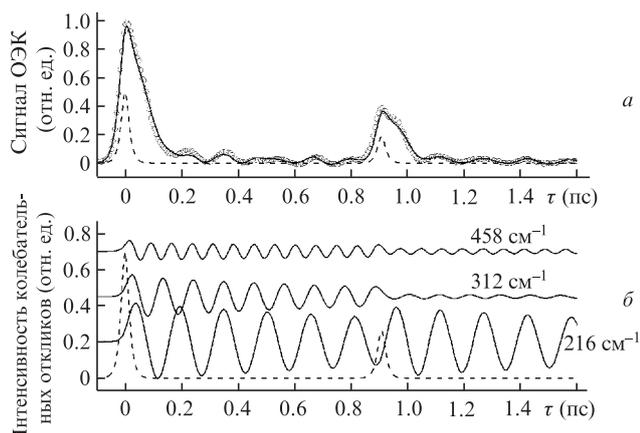


Рис.3. Сигнал ОЭК в жидком CCl_4 при двухимпульсном возбуждении ($\tau_p = 30$ фс, $\tau_{12} = 908$ фс, $I_p^{(2)}/I_p^{(1)} = 0.38$): точки – экспериментальные данные, сплошная кривая – моделирование, штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (а) и результаты моделирования колебательных откликов $r_{\text{ос}}^{(i)}$: штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (б).

тримолекулярных колебаний в момент действия второго импульса таковы: 11.7π для моды 216 см^{-1} , 16.9π для моды 312 см^{-1} и 24.8π для моды 458 см^{-1} . Отношение (9), определяющее эффективность усиления/подавления для данных мод, соответственно равно 1.8, 0.2 и 0.5.

Альтернативный сценарий, при котором происходит усиление отклика моды 312 см^{-1} и подавление отклика моды 216 см^{-1} , приведен на рис.4. Задержка между возбуждающими импульсами равна 845 фс, а фазы молекулярных колебаний в момент действия второго импульса составляют 10.9π для моды 216 см^{-1} , 15.8π для моды 312 см^{-1} и 23.2π для моды 458 см^{-1} . Отношение (9) для указанных мод соответственно равно 0.2, 1.9 и 0.5.

Третий сценарий (рис.5) реализуется при задержке $\tau_{12} = 1025$ фс и фазах молекулярных колебаний в момент действия второго импульса 13.2π для моды 216 см^{-1} , 19.1π для моды 312 см^{-1} и 28π для моды 458 см^{-1} . Данные значения приводят к подавлению откликов колебательных мод 216 и 312 см^{-1} , для которых отношение (9) соответственно

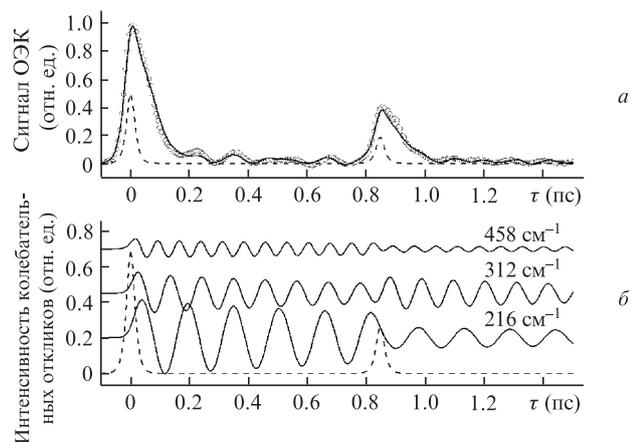


Рис.4. Сигнал ОЭК в жидком CCl_4 при двухимпульсном возбуждении ($\tau_p = 30$ фс, $\tau_{12} = 845$ фс, $I_p^{(2)}/I_p^{(1)} = 0.38$): точки – экспериментальные данные, сплошная кривая – моделирование, штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (а) и результаты моделирования колебательных откликов $r_{\text{ос}}^{(i)}$: штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (б).

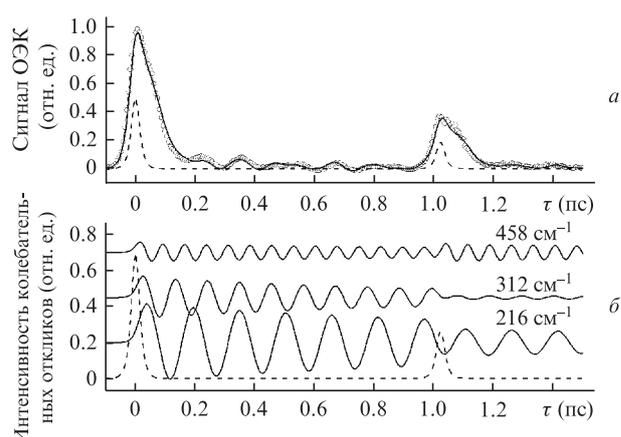


Рис.5. Сигнал ОЭК в жидком CCl_4 при двухимпульсном возбуждении ($\tau_p = 30$ фс, $\tau_{12} = 1025$ фс, $I_p^{(2)}/I_p^{(1)} = 0.38$): точки – экспериментальные данные, сплошная кривая – моделирование, штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (а) и результаты моделирования колебательных откликов $r_{\text{ос}}^{(i)}$: штриховая кривая – огибающая интенсивности возбуждающего импульса (б).

равно 0.6 и 0.2; для моды 458 см^{-1} это отношение составляет 2.

Как было показано выше, в сигнале ОЭК колебательный отклик моды 458 см^{-1} не регистрируется. Однако моделирование указывает на то, что двухимпульсное возбуждение также управляет интенсивностью отклика данной моды. Сценарии возбуждения при задержках 908 и 845 фс (рис.3 и 4) соответствуют подавлению амплитуды отклика. В сценарии с задержкой 1025 фс (рис.5) реализуется эффективное усиление амплитуды отклика. Другим важным обстоятельством является тот факт, что для режима подавления отклика колебательной моды на задержках, сравнимых с временем релаксации, требуется уменьшить интенсивность второго накачивающего импульса. Это согласуется с результатами работ [20, 21], в которых зависимость относительной интенсивности импульсов накачки от времени задержки между ними при условии полного подавления отклика колебательной моды используется для определения константы релаксации. Заметим также, что в жидкостях, где в сигнале ОЭК наряду с колебательными регистрируются интенсивные вращательные отклики, сценарий полного подавления колебательного отклика при минимально возможной задержке между возбуждающими импульсами можно применять для выделения вращательного отклика.

Важной особенностью двухимпульсного возбуждения по сравнению с одноимпульсным является большее количество контролируемых параметров. При этом число констант для моделирования оптических откликов среды остается неизменным. Это приводит к существенному уточнению процедуры разделения совокупного сигнала ОЭК на составляющие компоненты при моделировании разных сценариев возбуждения. Отметим, что результаты нашей работы подтверждают применимость модели [21, 29] для интерпретации сигналов ОЭК с многоимпульсным возбуждением, а также экспериментально подтверждают главные результаты работы [21], где теоретически рассмотрены сценарии многоимпульсного управления нестационарной анизотропией в жидкости.

В заключение еще раз подчеркнем основной результат нашей работы – экспериментальную демонстрацию се-

лективной спектроскопии внутримолекулярных колебаний четыреххлористого углерода путем двухимпульсного управления наведенной анизотропией жидкости.

Работа поддержана грантом ЦКП ПФУ, грантом Президента РФ поддержки ведущих научных школ № НШ-4531.2008.2 и грантом РФФИ № 09-02-00136а.

- Steinmeyer G. *J. Opt. A : Pure Appl. Opt.*, **5**, R1 (2003).
- Zewail A.H. *Femtochemistry: Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond* (Singapore: World Scientific Series in the 20-th Century Chemistry, 1994, p. 912).
- Zare R.N. *Science*, **279**, 1875 (1998).
- Wiersma D.A. *Femtosecond Reaction Dynamics* (Amsterdam: North Holland, 1994, p. 320).
- Herek J.L., Wohlleben W., Cogdell R.J., Zeidler D., Motztkus M. *Nature*, **417**, 533 (2002).
- Batista V.S. *Science*, **326**, 245 (2009).
- Lindinger A., Lupulescu C., Plewicki M., Vetter F., Merli A., M.Weber S., Wöste L. *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 033001 (2004).
- Levis R.J., Menkir G.M., Rabitz H. *Science*, **292**, 709 (2001).
- Prokhorenko V.I., Nagy A.M., Waschuk S.A., Brown L.S., Birge R.R., Miller R.J.D. *Science*, **313**, 1257 (2006).
- Weiner A.M., Leaird D.E., Wiederrecht G.P., Nelson K.A. *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**, 1264 (1991).
- Dekorsy T., Kutt W., Pfeifer T., Kurz H. *Europhys.Lett.*, **23**, 223 (1993).
- Hase H., Mizoguchi K., Harima H., Nakashima S., Tani M., Sakai K., Hangyo M. *Appl. Phys. Lett.*, **69**, 2474 (1996).
- DeCamp M.F., Reis D.A., Bucksbaum P.H., Merlin R. *Phys. Rev. B*, **64**, 092301 (2001).
- Hase M., Kitajima M., Nakashima S., Mizoguchi K. *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 4921 (2003).
- Roeser C.A.D., Kandyla M., Mendioroz A., Mazur E. *Phys. Rev. B*, **70**, 212302 (2004).
- Wu A.Q., Xu X. *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 251111 (2007).
- Misochko O.V., Lebedev M.V., Schäfer H., Dekorsy T. *J. Phys. Condens. Matter*, **19**, 406220 (2007).
- Liebig C.M., Wang Y., Xu X. *Opt. Express*, **18**, 20498 (2010).
- Никифоров В.Г., Сафиуллин Г.М., Шмелев А.Г., Леонтьев А.В., Лобков В.С. *Письма в ЖЭТФ*, **86**, 757 (2007).
- Shmelev A.G., Nikiforov V.G., Safiullin G.M., Lobkov V.S., Samartsev V.V. *Laser Phys.*, **20**, 2015 (2010).
- Монсеев С.А., Никифоров В.Г. *Квантовая электроника*, **34**, 1077 (2004).
- Ruhman R., Williams L.R., Joly A.G., Kohler B., Nelson K.A. *J. Phys. Chem.*, **91**, 2237 (1987).
- McMorrow D., Lotshaw W.T., Kenney-Wallace G.A. *IEEE J. Quantum Electron.*, **24**, 443 (1988).
- Righin R. *Science*, **262**, 1389 (1993).
- Kobayashi T., Terasaki A., Hattori T., Kurokawa K. *Appl. Phys. B*, **47**, 107 (1988).
- McMorrow D. *Opt. Commun.*, **86**, 236 (1991).
- Tanimura Y., Mukamel S. *J. Chem. Phys.*, **99**, 9496 (1993).
- Steffen T., Fourkas J.T., Duppen K. *J. Chem. Phys.*, **105**, 7364 (1996).
- Никифоров В.Г., Лобков В.С. *Квантовая электроника*, **36**, 984 (2006).