

УДК 535.3

РЕЗОНАНСНАЯ КАРС-СПЕКТРОСКОПИЯ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ПРИМЕСИ ТЕТРАЦЕНА

П. Л. Кукк, А. М. Фрейберг

Исследуются КАРС-спектры примеси тетрацена в условиях резонанса с неоднородно-уширенным электронным переходом. В оптимальных условиях измерены низкотемпературные резонансные колебательные КАРС-спектры тетрацена в монокристаллической матрице антрацена и стеклянной матрице полистирола. Также измерены профили возбуждения определенного колебания в КАРС-спектрах и показана перспективность метода для изучения особенностей функции неоднородного распределения энергии электронных, а также колебательных переходов примесной молекулы.

Спектроскопия когерентного антистоксового рассеяния света (КАРС) стала в последние годы мощным методом исследования газов и жидкостей, в том числе прикладного значения. Метод используют для изучения колебательной структуры и динамических свойств как стабильных, так и короткоживущих молекул, определения состава органических примесей в жидкостях, температуры горения в пламени и т. д. [1, 2]. Экспериментальному исследованию КАРС-спектров молекул в твердом теле при гелиевых температурах посвящено, однако, сравнительно мало работ [3-6]. На наш взгляд, это объясняется прежде всего серьезными трудностями проведения КАРС-эксперимента при низких температурах, когда объект находится в криостате, а также высокими требованиями, предъявляемыми к качеству объекта. Кроме того, спектры примесных молекул в матрицах при гелиевых температурах неоднородно уширены (для обзора см. [7, 8]), что осложняет интерпретацию получаемых результатов.

Целью настоящей работы являлось исследование резонансных КАРС-спектров и профилей возбуждения КАРС-линий молекулярной примеси тетрацена в двух разных матрицах. Для выяснения влияния того обстоятельства, что в возбуждаемом объеме могут находиться молекулы с отличающимися резонансными частотами, выбирались матрицы, где неоднородный разброс энергий переходов существенно различен. В методической части работы подчеркнуты особенности проведения эксперимента в условиях резонанса с электронными переходами в примесной молекуле.

1. Методические замечания

1. В резонансном варианте КАРС-спектроскопии частоту ω_1 одного из накачивающих полей перестраивают через чисто электронный резонанс ω_{00} исследуемой молекулы, а частоту второй волны ω_2 — через стоксовый резонанс $\omega_{00} - \Omega$. Тогда генерируемый КАРС-сигнал на частоте $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ может находиться в резонансе с определенным вибронным переходом $\omega_{00} + \Omega'$ (Ω, Ω' — частоты внутримолекулярных колебаний в основном и возбужденном электронных состояниях). В формуле восприимчивости третьего порядка $\chi^{(3)}$, описывающей данный процесс, может быть до трех резонансных множителей

$$\chi^{(3)} \sim N [2\omega_1 - \omega_2 - \omega_{j0} - \Omega' + i(\Gamma_{0\Omega'} + \Delta\omega_{j0} + \Delta\Omega)]^{-1} \times \\ \times [\omega_1 - \omega_2 + i(\Gamma_{\Omega} + \Delta\Omega)]^{-1} [\omega_1 - \omega_{j0} + i(\Gamma_{00} + \Delta\omega_{j0})]^{-1}. \quad (1)$$

Здесь предположено, что функции неоднородного распределения энергий переходов примесных молекул концентрации N в матрице имеют лоренцевую форму с шириной Δ (см., например [9, 10]); Γ — феноменологические константы затухания когерентности. Неоднородный разброс частот колебаний молекул $\Delta\Omega$ в низкотемпературных матрицах, как правило, в ω_{00}/Ω раз меньше неоднородного уширения электронных резонансов $\Delta\omega_{00}$ [11]. Это позволяет, используя резонансное усиление КАРС за счет электронного резонанса, эффективно исследовать колебания основного (но не возбужденного) электронного состояния примесных молекул в средах с большой $\Delta\omega_{00}$. При этом разрешение определяется большей из величин Γ_{Ω} или $\Delta\Omega$. Эквивалентное разрешение для колебаний возбужденного электронного состояния достигается, если КАРС наблюдается из этого же состояния. Для этого резонансной лазерной накачкой нужно заселять возбужденный электронный уровень. Из формулы (1) следует также, что двухмерным сканированием (т. е. когда при некотором наборе фиксированных частот ω_1 сканируется частота ω_2 , или наоборот) и представлением КАРС-спектров как функции ω_1 и ω_2 можно весьма надежно определить природу отдельных резонансов в измеряемых спектрах [4, 12].

2. В резонансной среде имеет место поглощение волн накачки и генерируемого КАРС-сигнала. В рамках полуклассического метода расчета КАРС-спектров поглощение учитывается введением модифицированного фазового множителя F [13–15]. Интенсивность КАРС выражается следующей формулой:

$$I = [\chi^{(3)}]^2 F,$$

$$F = \frac{1 + \exp[-(2\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_3)L] - 2 \cos(\Delta kL) \exp[-(2\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_3)L/2]}{4(\Delta k)^2 + (2\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_3)^2} \times$$

$$\times \exp(-\alpha_3 L). \quad (2)$$

Здесь $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ — коэффициенты поглощения волн накачки соответственно на частотах $\omega_1, \omega_2, \omega_3$; L — толщина образца; Δk — фазовая расстройка.

Нас интересует, какова оптимальная концентрация примесей для измерения спектра КАРС. Для ответа на этот вопрос рассмотрим КАРС для колебания основного электронного состояния, когда ω_1 находится в резонансе с ω_{00} . В этом случае $\alpha_1 = \text{const}$, $\alpha_2 = 0$ и можно пренебречь частотной зависимостью α_3 , так как ширина полосы поглощения значительно больше ширины линии рассеяния. При точной установке угла фазового синхронизма можно принимать $\cos(\Delta kL) = 1$ и пренебречь членом $(\Delta k)^2$ по сравнению с коэффициентом поглощения в знаменателе формулы (2). Тогда

$$I \approx [\chi^{(3)}(\Phi)]^2 (1 - \exp[-(2\alpha_1 - \alpha_3)L/2])^2 \exp(-\alpha_3 L), \quad (3)$$

где $\chi^{(3)}(\Phi) = \chi^{(3)}/N$. Из формулы (3) следует, что при слабом поглощении ($\alpha L \ll 1$) сигнал пропорционален квадрату коэффициента поглощения (или концентрации). При увеличении концентрации сигнал насыщается, а затем будет уменьшаться из-за поглощения на частоте ω_3 (рис. 1, б). Если обозначить $x = \alpha_1/\alpha_3$, то при $x \ll 1$ сигнал тем больше, чем меньше α_3 ; при $x > 1$ КАРС-сигнал максимален, когда волна накачки ω_1 ослабляется в объекте в $(2x+1)$ раз. Так как для различных колебаний x неодинаков, то не существует единой оптимальной концентрации для измерения КАРС-спектра в широком спектральном интервале.

3. При расчете спектра возбуждения определенной КАРС-линии (зависимость интенсивности линии от резонансной частоты накачки ω_1) следует учитывать также частотную дисперсию коэффициентов поглощения в формуле (2). Для модельных расчетов предположим, что как полосу поглощения чисто электронного перехода $\alpha_1(\omega_1)$, так и форму $[\chi^{(3)}]^2$ можно аппроксимировать лоренцевыми кривыми равной ширины ($\Gamma = \Gamma_{00} + \Delta\omega_{00}$)

$$\alpha_1(\omega_1) = \frac{\alpha_M \Gamma^2}{(\omega_1 - \omega_{j0})^2 + \Gamma^2}, \quad [\chi^{(3)}]^2 = \frac{\alpha_M^2 \Gamma^2}{(\omega_1 - \omega_{j0})^2 + \Gamma^2}. \quad (4)$$

Результаты вычислений, согласно (2), при условии полного фазового синхронизма ($\Delta k=0$) представлены на рис. 1: *a* — формы профиля возбуждения, нормированные по максимуму; *b* — зависимость интенсивности КАРС при возбуждении в максимуме профиля возбуждения от оптической плотности объекта. Буквами указаны концентрации, при которых рассчитаны соответствующие профили возбуждения. Учитывая эти данные, следует воспользоваться объектами с оптической плотностью $\alpha_M L < 0.1$.

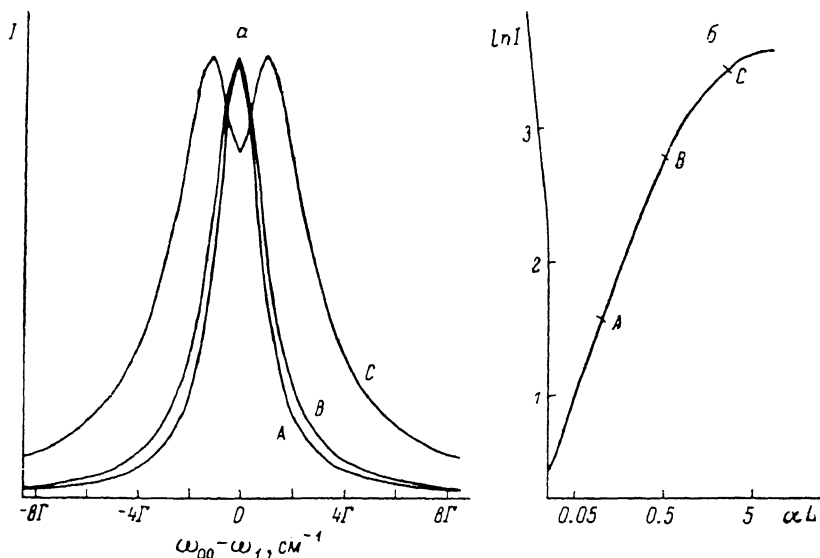


Рис. 1. Теоретические профили возбуждения КАРС в объектах с разной оптической плотностью, нормированные по максимуму (линейная шкала) (*a*). Зависимость интенсивности КАРС от оптической плотности объекта (двойная логарифмическая шкала) (*b*).

К сожалению, в эксперименте это требование трудно выполнить из-за чрезмерного ослабления сигнала (в 100 раз по сравнению с объектами с оптической плотностью $\alpha_M L \approx 1.5$, использованными в наших измерениях). Увеличение сигнала за счет увеличения интенсивности накачки недопустимо, так как это ведет к насыщению чисто электронного перехода [6, 18].

2. Эксперимент

Экспериментальная установка измерения КАРС-спектров состояла из двух лазеров на красителях VL-6 и VL-10 производства Тартуского филиала СКБ АН ЭССР (ширина линии генерации 0.8 см^{-1} , мощность импульса длительностью 10 нс до 100 кВт), накачиваемых эксимерным лазером ЭЛИ-3 на XeCl производства СКБ АН ЭССР (мощность импульса на 308 нм 7 МВт, частота повторения импульсов до 50 Гц) [17].

Лучи лазеров под углом фазового синхронизма фокусировались с помощью линзы с фокусным расстоянием 20 см на объект, который находился в гелиевом криостате при температуре 1.6 К. КАРС-сигнал выделялся в пространстве диафрагмой и анализировался с помощью спектрометра ДФС-24. Регистрация производилась с помощью ФЭУ-79 и стробирующего усреднителя импульсного сигнала BOXCAR M162 фирмы Princeton Applied Research. Данные накапливались в памяти ЭВМ «Электроника 60» [18], где они проходили первичную обработку, затем выпечатывались принтером УПЗС или направлялись в ЭВМ ЕС 1010 для дальнейшей обработки. Синхронное сканирование частоты лазера на красителе и спектрометра осуществлялось также с помощью ЭВМ «Электроника 60».

Использовались две матрицы разной природы, которые существенно отличались величиной неоднородного уширения спектров тетрацена.

В случае монокристаллической матрицы антрацена (объект в виде тонких $L < 0.1$ мм лепестков) низкотемпературные спектры поглощения и флуоресценции тетрацена квазилинейчатые и неоднородное уширение бесфононных линий не превышало 6 см^{-1} (распадная однородная ширина чисто электронной линии тетрацена имеет порядок 10^{-3} см^{-1}). В случае же полистироловой стеклянной матрицы ($L \approx 1$ мм) бесфононные линии не выделяются и наблюдаются лишь относительно бесструктурные вибронные полосы с шириной около 350 см^{-1} . При типичных средних плотностях мощности накачки на частоте ω_1 $1 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ фотовыжигания примесных центров не наблюдалось.

3. Результаты и обсуждение

Из формулы (4), описывающей нелинейную восприимчивость $\chi^{(3)}$, следует, что при надлежащем выборе фиксированной частоты ω_1 и сканировании частоты ω_2 в КАРС-спектре можно наблюдать до трех линий различной природы. Их максимумы соответствуют следующим резонансным условиям: $\omega_1 = \omega_{00}$, $\omega_1 - \omega_2 = \Omega$ и $2\omega_1 - \omega_2 = \omega_{00} + \Omega'$.

В спектре КАРС тетрацена в антраcene нам удалось наблюдать две линии. Они соответствуют чисто электронному резонансу $\omega_1 = \omega_{00} = 20\,245 \text{ см}^{-1}$ и резонансу с колебанием в основном электронном состоянии $\omega_1 - \omega_2 = \Omega = 1206 \text{ см}^{-1}$ (рис. 2, а). Как и следовало ожидать, интенсивность спектра максимальна, когда максимумы двух линий совпадают, и быстро убывает при расстройке. Ширины линий в спектре порядка 1 см^{-1} и, очевидно, ограничены ширинами линий генерации лазеров накачки. Линии, соответствующие резонансам типа $2\omega_1 - \omega_2 = \omega_{00} + \Omega'$, весьма слабые. Их наблюдаемая интенсивность в 20—50 раз меньше интенсивности резонансов типа $\omega_1 -$

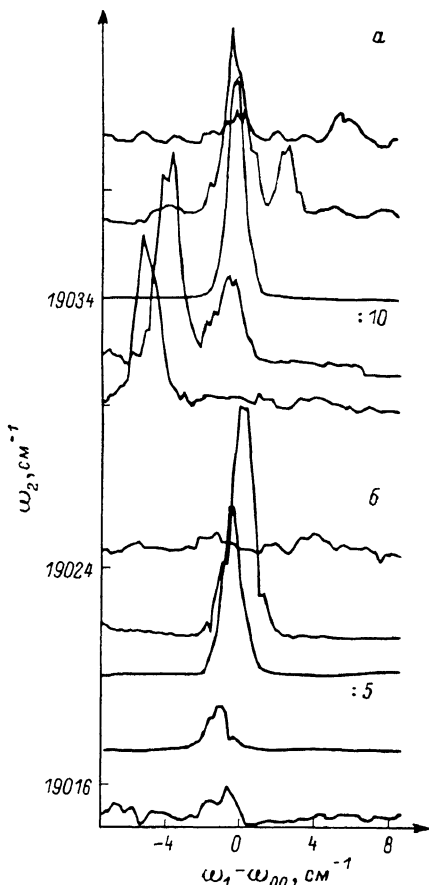


Рис. 2. Двухмерный КАРС-спектр примеси тетрацена в матрице монокристаллического антрацена.

Спектры расположены друг над другом в соответствии с энергетической шкалой ω_1 . а — КАРС-линии, соответствующие чисто электронному резонансу $\omega_{00} = 20245 \text{ см}^{-1}$ и колебательному резонансу основного электронного состояния $\Omega = 1206 \text{ см}^{-1}$; б — КАРС на колебании $\Omega' = 1220 \text{ см}^{-1}$ в возбужденном электронном состоянии.

$-\omega_2 = \Omega$ за счет поглощения на частоте $\omega_{00} + \Omega'$ (в конкретном случае $x=3$), а также за счет неоднородного разброса частоты ω_{00} . В работе [14] оба колебательные резонанса имели сравнимые интенсивности из-за слабого поглощения на частоте КАРС ($x=10-15$).

В области б (рис. 2) изображена линия, которая соответствует КАРС в возбужденном электронном состоянии молекулы тетрацена (колебание $\Omega' = 1220 \text{ см}^{-1}$). Поскольку интенсивность этой линии пропорциональна заселенности возбужденного электронного состояния, то она проявляется только в условиях, когда ω_1 находится в пределах неоднородно-уширенной линии чисто электронного перехода примеси.

Это позволяет разделять КАРС-процессы, которые разыгрываются в основном и в возбужденном электронном состоянии: при резонансном возбуждении $\omega_1 \approx \omega_{00}$ наблюдаются оба типа линий; при нерезонансном возбуждении $\omega_1 < \omega_{00} - \Delta\omega_{00}$ сохраняются только линии, соответствующие колебаниям основного электронного состояния. Разделение линий по зависимости их интенсивности от мощности накачки более неоднозначное, так как для разрешенных электронных переходов насыщение достигается уже при весьма низкой интенсивности накачки (меньше $10 \text{ кВт} \cdot \text{см}^{-2}$ [6, 16]).

На рис. 3 представлен спектр КАРС тетрацена в антраcene при резонансном возбуждении $\omega_1 \approx \omega_{00}$. Оптическая плотность объекта на частоте ω_1 $\alpha_M L = 1.7$, что приблизительно соответствует оптимальным условиям измерения для колебаний в области частот $1200\text{--}1250 \text{ см}^{-1}$ (см. раздел 1.2). Буквами А на рис. 3 указаны КАРС-линии матрицы антрацена с частотами $1171, 1187$ и 1260 см^{-1} . За дублет может быть ответственно колебание антра-

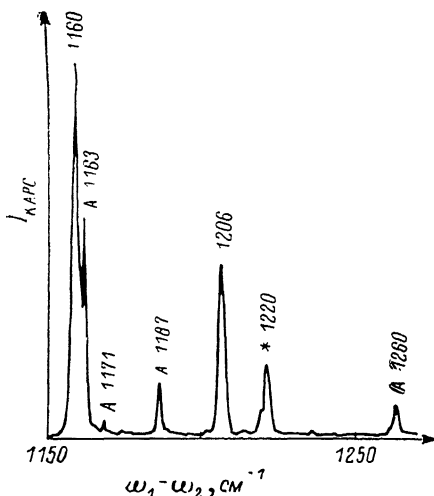


Рис. 3. Спектр [резонансного КАРС тетрацена в антраcene.

А — линии нерезонансного КАРС матрицы антрацена. Частота накачки $\omega_1 = \omega_{00} - 4 \text{ см}^{-1}$, интенсивность накачки $I_H(\omega_1) \approx 40$ и $I_H(\omega_2) \approx 200 \text{ кВт} \cdot \text{см}^{-2}$; * — линии, соответствующие КАРС с возбужденного электронного состояния.

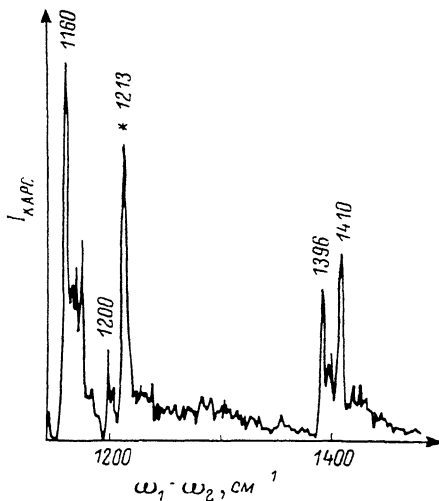


Рис. 4. Спектр резонансного КАРС тетрацена в полистироле.

Частота накачки $\omega_1 = \omega_{00} - 200 \text{ см}^{-2}$, $I_H(\omega_1) \approx I_H(\omega_2) \approx 40 \text{ МВт} \cdot \text{см}^{-2}$.

цена 1163 см^{-1} наряду с колебанием тетрацена 1160 см^{-1} . В линию 1220 см^{-1} дают вклад два процесса: КАРС в возбужденном электронном состоянии тетрацена и слабый резонанс типа $2\omega_1 - \omega_2 = \omega_{00} + \Omega'$ (см. формулу (1)).

Линия около 1206 см^{-1} соответствует колебанию основного электронного состояния молекулы тетрацена. В условиях нерезонансного возбуждения его частота постоянна и равна 1203 см^{-1} . При подходе частоты ω_1 к резонансу ближе чем на 13 см^{-1} , наблюдаемая частота колебания будет постепенно увеличиваться, достигая величины 1206 см^{-1} , если $\omega_1 = \omega_{00} - 4 \text{ см}^{-1}$. Возможно, такое поведение связано с тем обстоятельством, что при сканировании частоты накачки ω_1 резонансно возбуждаются разные центры внутри неоднородного контура. Однако тогда придется предположить существование определенной корреляции между частотами ω_{00} и Ω .

На рис. 4 приведен спектр КАРС примеси тетрацена в полистироле, где частота чисто электронного перехода $\omega_{00}^0 = 20\,800 \text{ см}^{-1}$. Несмотря на значительное неоднородное уширение чисто электронного перехода ($\Delta\omega_{00} = 340 \text{ см}^{-1}$), наблюдается КАРС-спектр с четко выделенными линиями $\omega_1 - \omega_2 = \Omega$. Определенное уширение линии (ширины линий $4\text{--}5 \text{ см}^{-1}$) по сравнению с линиями в матрице антрацена, по-видимому, связано с неод-

нородным разбросом частот колебаний в данной матрице. Линии, соответствующие резонансам типа $2\omega_1 - \omega_2 = \omega_{00} + \Omega'$, не наблюдаются, так как они неоднородно уширены и должны иметь ширину порядка $\Delta\omega_{00}$. В случае полистироловой матрицы заметен нерезонансный фон, который практически отсутствует в матрице антрацена.

Представляет интерес форма спектра возбуждения КАРС в области электронного резонанса. Для двух разных образцов тетрацена в антраcene они изображены на рис. 5 и сравниваются со спектрами пропускания. Видно, что в обоих случаях максимумы спектров возбуждения сдвинуты в низкочастотную сторону относительно максимумов соответствующих спектров пропускания. Особенностью спектра возбуждения (рис. 5, б) является достаточно узкий (ширина на полувысоте $\approx 3 \text{ см}^{-1}$) провал на частоте $\omega_1 = \omega_{00} - 4 \text{ см}^{-1}$. Аналогичную, но весьма слабую особенность на частоте $\omega_1 = \omega_{00} - 3 \text{ см}^{-1}$ можно увидеть и на рис. 5, а. При интенсив-

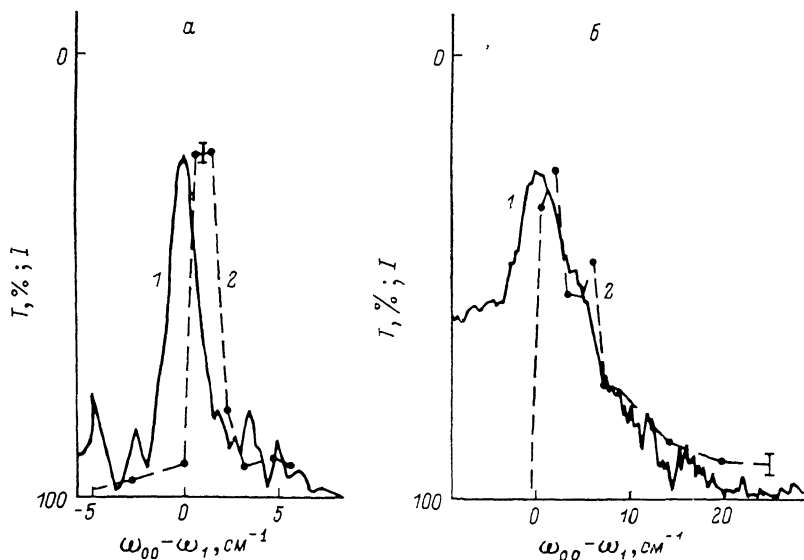


Рис. 5. Спектры пропускания T примеси тетрацена в антраcene в области чисто электронного перехода (1) и профили возбуждения КАРС (2) для колебаний 1206 см^{-1} в двух случаях неоднородного уширения чисто электронного перехода: $\Delta\omega_{00} = 2$ (а) и 6 см^{-1} (б).

Оптическая плотность обоих объектов равна 1.4, толщина $L = 0.05 \text{ мм}$. $I_{\text{н}}(\omega) \approx 3 \text{ кВт} \cdot \text{см}^{-2}$ при измерении спектра возбуждения и меньше $100 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ при измерении спектра пропускания.

ностях накачки, которые использовались для измерения спектров возбуждения, наблюдалась квадратичная зависимость интенсивности КАРС от интенсивности накачки при неизменной форме профиля возбуждения. Следовательно, эффектами насыщения [19] в нашем случае можно пренебречь.

Провал в спектре возбуждения не объясняется в рамках используемой нами простой теоретической модели. В более точных вариантах теории [20, 21], где учитывается полный колебательный спектр исследуемой примесной системы, получают форму профиля возбуждения КАРС в следующем виде:

$$I_{\text{нв}}(\omega) \approx |[\alpha_0(\omega) - \alpha_0(\omega + \Omega)][\alpha_0(\omega) - \alpha_0(\omega - \Omega)]|^2, \quad (5)$$

где α_0 — поляризуемость молекулы. Для качественного анализа приписываем $\alpha_0(\omega) = \alpha_1(\omega_1)$, $\alpha_0(\omega + \Omega) = \alpha_3 = \text{const}$, $\alpha_0(\omega - \Omega) = \alpha_2 = 0$ и получаем простую формулу

$$I_{\text{нв}}(\omega) \approx |[\alpha_1(\omega_1) - \alpha_3] \alpha_1(\omega_1)|^2. \quad (6)$$

Формула (6) предсказывает наблюдение двух особенностей в спектре возбуждения, определяемых условием $\alpha_1(\omega_1) = \alpha_3$. Это условие приблизительно выполняется в области фононного крыла чисто электронной ли-

нии, чем, по-видимому, определяется отсутствие сигнала при возбуждении в области $\omega_1 > \omega_{00}$. Оно выполняется также на определенных частотах в предрезонансной области $\omega_1 < \omega_{00}$. При этом в спектре возбуждения должен наблюдаться провал. Так как частота, для которой выполняется условие $\alpha_1(\omega_1) = \alpha_3$, зависит от величины неоднородного уширения (от отношения интенсивности чисто электронной линии к фоновому крылу в спектре пропускания объекта), то провал в разных кристаллах может располагаться на разном удалении от центра чисто электронной линии. Из формулы (6) следует также, что резонансное усиление КАРС-сигнала за счет чисто электронного перехода больше в условиях, когда $\alpha_3 \rightarrow 0$, т. е. когда частота генерируемого сигнала находится в области прозрачности или слабого поглощения объекта [5].

Длинноволновое смещение максимума профиля возбуждения по отношению к максимуму спектра пропускания можно качественно объяснить на основе рис. 1. Оптическая плотность объектов, спектры которых представлены на рис. 5, относительно большая. Их на рис. 1 характеризует кривая, которая близка к кривой *C*. Если же работать с объектами с меньшей оптической плотностью, то смещение должно отсутствовать (кривые *A*, *B* на рис. 1). В эксперименте такая ситуация, по-видимому, реализуется на относительно толстых кристаллах ($L \approx 1$ мм), где за счет дефектов кристаллической решетки КАРС-сигнал генерируется в основном в тонком приповерхностном слое кристалла [22] и смещения не наблюдается.

В итоге данной работы 1) изучены КАРС-спектры примеси тетрацена в условиях резонанса с неоднородно-уширенным электронным переходом и дана их интерпретация; 2) исследованы спектры возбуждения КАРС; 3) показана перспективность метода резонансного КАРС для спектроскопического исследования примесных систем с большим неоднородным уширением электронного перехода.

Авторы благодарны Э. Х. Рейнот за изготовление объектов, Т. Ю. Халдре за комплектацию и наладку вычислительной части экспериментальной системы и И. Ю. Техвер за теоретические консультации.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Werncke W., Weigmann H.-J., Lau A., Tschol T. J., Dat T. P. // *J. Raman Spectroscopy*. 1985. V. 16. N 1. P. 67—69.
- [2] Бункин А. Ф., Коротеев Н. И. // УФН. 1981. Т. 134. № 1. С. 93—123.
- [3] Decola P. L., Andrews J. R., Hochstrasser R. M., Trommsdorff H. P. // *J. Chem. Phys.* 1980. V. 73. N 9. P. 4695—4696.
- [4] Andrews J. R., Hochstrasser R. M. // *Chem. Phys. Lett.* 1981. V. 82. N 3. P. 381—385; V. 83. N 3. P. 427—431.
- [5] Steehler J. K., Wright J. C. // *J. Chem. Phys.* 1985. V. 83. N 7. P. 3188—3199.
- [6] Riehe M. T., Wright J. C. // *Chem. Phys. Lett.* 1987. V. 138. N 6. P. 565—570.
- [7] Sild O., Haller K. (Eds.) *Zero-Phonon Lines and Spectral Hole Burning in Spectroscopy and Photochemistry*. Springer—Verlag, Berlin, Heidelberg, 1988. P. 183.
- [8] Chang T.-C., Small G. J. // *Chem. Phys.* 1985. V. 99. P. 479—487.
- [9] Oudar J.-L., Shen Y. R. // *Phys. Rev. A*. 1980. V. 22. N 3. P. 1141—1158.
- [10] Кукк П., Фрейберг А. // Изв. АН ЭССР, физ.-мат. 1981. Т. 30. № 4. С. 357—362.
- [11] Gorokhovskii A. A., Kikas J. // *Opt. Comm.* 1977. V. 21. P. 272—274.
- [12] Steehler J. K., Wright J. C. // *Appl. Spectroscopy*. 1985. V. 39. N 3. P. 451—463.
- [13] Heilweil E. J., Hochstrasser R. M., Souma H. // *Opt. Comm.* 1980. V. 35. N 2.
- [14] Andrews J. R., Hochstrasser R. M., Trommsdorff H. P. // *Chem. Phys.* 1981. V. 62. N 2. P. 87—96.
- [15] Ender D. A., Otteson M. S. et al. // *Opt. Lett.* 1982. V. 7. N 12. P. 611—613.
- [16] Kikas J. V., Treshchalov A. B. // *Chem. Phys. Lett.* 1983. V. 98. N 4. P. 295—298.
- [17] Михельсоо В. Т., Клементи Т. И. // Тр. ИФ АН ЭССР. 1984. № 56. С. 7—17.
- [18] Рейнот Т. О., Рюнкару Э. В. // Тез. докл. VII Республ. конф. молодых ученых. Паланга, 1985. С. 114.
- [19] Oulette F., Denariez-Roberge M.-N. // *Can. J. Phys.* 1982. V. 60. N 6. P. 1477—1483.
- [20] Lukashin A. V., Frank-Kamenskii M. D. // *J. Raman Spectroscopy*. 1982. V. 12. N 3. P. 234—237.
- [21] Pfeiffer M., Lau A., Werncke W. // *J. Raman Spectroscopy*. 1984. V. 15. N 1. P. 20.
- [22] Кукк П. Л., Рейнот Э. Х., Халдре Т. Ю. // Изв. АН ЭССР, физ.-мат. 1989. Т. 38.

Институт физики АН ЭССР
Тарту

Поступило в Редакцию
2 ноября 1988 г.
В окончательной редакции
18 апреля 1989 г.