

1003-7713/2005/03-303-5

## Nd : YAG 中电声耦合非 Markovian 过程的激发光谱\*

王干全, 戴德昌, 罗琦, 严以京, 周建英\*\*  
(中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

**摘要:** 用 Brown 振子模型研究 YAG 基质材料中 Nd<sup>3+</sup> 4f 电子跃迁的电子-声子相互作用过程, 详尽推导电子-声子耦合的表达式, 计算了电声耦合常数不同时的激发光谱, 结果表明, 电声耦合作用使电子跃迁的吸收峰两边产生声子吸收峰, 电声耦合作用较强时, 可以产生多级声子吸收峰. 通过模拟实验激发光谱, 得到样品的电声耦合常数和声子频率等参数, 和半导体比较, 样品的电声耦合常数较小, 说明 4f 电子-声子的耦合属弱相互作用. 用这些参数计算时间分辨的荧光相干光谱, 其结果与实验结果一致.

**关键词:** 相干光谱; 激发光谱; 布朗振子  
**中图分类号:** TN241      **文献标识码:** A

## Electron-Phonon Coupling via non-Markovian Process in Nd : YAG\*

Wang Ganquan, Dai Dechang, Luo Qi, Yan Yijing, Zhou Jianying\*\*  
(State Key Laboratory of Optoelectronic Material and Technology, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275)

**Abstract** The 4f electronic transition accompanied by electron-phonon interaction was studied through the Brownian oscillator model in Nd: YAG. The expression of electron-phonon coupling was derived, the excitation spectroscopies of different electron-phonon coupling constants were calculated and the results indicated the absorption peak of phonon in two sides of electronic peak is produced by electron-phonon coupling. The stronger electron-phonon coupling, the more phonon peaks. Through excitation spectroscopy simulation, the electron-phonon coupling constant and phonon frequency were obtained. From these data, the theoretical time resolved coherent spectroscopy was calculated and is good agreement with experiment result. It also indicated that the electron-phonon coupling in rare earth ion's 4f electronic transition is weak because of the smaller constant of electron-phonon coupling compared with that of semiconductor.

**Key words** Coherent spectroscopy, Excitation spectroscopy, Brownian oscillator

### 1 引言

介质在共振光场作用下, 其粒子由低能级跃迁到高能级, 粒子高低能级的能量差和光场频率相匹配. 在溶液中, 粒子受到溶剂的影响而作布朗运动, 使得高能级和低能级的能量都会产生随机偏差, 表现在吸收谱线上, 则是谱线变宽, 如果用相干光场激

发, 则还表现在横向弛豫时间的改变.

Nibbering 等用光子回波方法研究溶剂对粒子吸收谱线形状的影响<sup>[1]</sup>, Cong 等则研究了溶液中光学退相干过程<sup>[2]</sup>, 本质上都是将粒子的随机运动看成是非马尔可夫(non-Markovian)过程, 按照这种模型, 溶液中粒子上下能级的频率围绕中心频率作随机波动, 但前后两个时间的波动幅度满足关系:

\* Project supported by the Natural Science Foundation of Guangdong Province(036593), the National Natural Science Foundation of China (10374120, 90201027) and 973 Project.

\*\* Corresponding author, Email: stszjy@zsu.edu.cn Received 20 April 2004; in final form 2 February 2005.

$\langle \delta\omega(t_1)\delta\omega(t_2) \rangle = \Delta^2 \exp(-\Lambda|t_1 - t_2|)$ , 通过频率的波动幅度, 计算出弛豫函数  $R(t, t_1)$ , 进而计算出信号强度, Nibbering 用该模型得到了和实验一致的结果.

在凝聚态中, 晶格的振动对晶体中粒子的光学跃迁也会有影响, Wu、Lupei、Becker 等研究了稀土离子晶格中的电声耦合作用<sup>[3-5]</sup>, 用 Raman 光谱测量了声子频率, Toutounji 等研究了电声耦合作用时的光学响应函数<sup>[6]</sup>. Tanimura、Yan 和罗琦等人则研究了泵浦探测过程中的电声耦合效应<sup>[7-9]</sup>. 由于三价稀土离子中发生的 4f 电子跃迁的是内层电子, 而 4f 电子受到外层电子较大的屏蔽, 因而一般认为电声耦合效应比较小<sup>[5]</sup>.

本工作采用 non-Markovian 过程和 Brown 振子近似, 计算了 Nd:YAG 的荧光激发谱和相干谱, 得到了和实验一致的结果.

## 2 电子跃迁的布朗振子模型和荧光激发谱

当系统受到外部环境作用时, 系统的 Hamilton 算符可以写成:

$$H = H_0 + H' \quad (1)$$

式中,  $H_0$  为无微扰时系统的能量算符;  $H'$  为系统和环境的相互作用项. 光和原子的相互作用通常看成偶极作用, 即:

$$H' = -\mu E(r, t) \quad (2)$$

其中,  $E(r, t)$  为光的电场;  $r$  为位移矢量;  $t$  为时间;  $\mu$  为偶极矩. 系统密度算符和 Hamilton 算符的关系可用 Liouville 方程表示:

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] \quad (3)$$

密度算符随时间的进化可以用进化算符  $u$  作用于初始态的密度算符而得到:

$$\rho(t) = u(t, t_0)\rho(t_0) \quad (4)$$

进化算符与系统的 Hamilton 算符有关, 当 Hamilton 算符包含时间时, 时间进化算符一般只能得到近似形式. 在知道了系统的密度算符后, 可以计算出系统的极化强度:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \text{Tr}[\hat{\mu}\hat{\rho}(t)] \quad (5)$$

式中  $\text{Tr}$  为对矩阵求迹;  $\hat{\mu}$  为偶极矩算符;  $\hat{\rho}$  为密度算符. 通过极化强度得到系统对光的响应.

对于分子中的二能级原子, 能量算符为:

$$H = |g\rangle H_g \langle g| + |e\rangle H_e \langle e| \quad (6)$$

式中,  $\langle g|$ 、 $\langle e|$  为基态和激发态电子波函数的左本

征矢量;  $|g\rangle$ 、 $|e\rangle$  为右本征矢量;  $H_g$ 、 $H_e$  为基态和激发态的能量算符:

$$H_g = T(q) + W_g(q) \quad (7)$$

$$H_e = \hbar\omega_{eg}^0 + T(q) + W_e(q)$$

式中,  $T(q)$  为核动能;  $W_g(q)$ 、 $W_e(q)$  分别为基态和激发态的势能;  $q$  为核坐标,

$$T(q) = \sum_j \frac{P_j^2}{2m_j} \quad (8)$$

$$W_g(q) = \sum_j \frac{1}{2} m_j \omega_j^2 q_j^2 \quad (9)$$

$$W_e(q) = \sum_j \frac{1}{2} m_j \omega_j^2 (q_j + d_j)^2 \quad (10)$$

$m_j$  为 Brown 振子的折合质量;  $\omega_j$  为振动频率;  $q_j$  为核间距与平衡核间距之差;  $d_j$  的物理意义见图 1. 图 1 为伴随着振动能级的二电子能级图<sup>[10]</sup>.

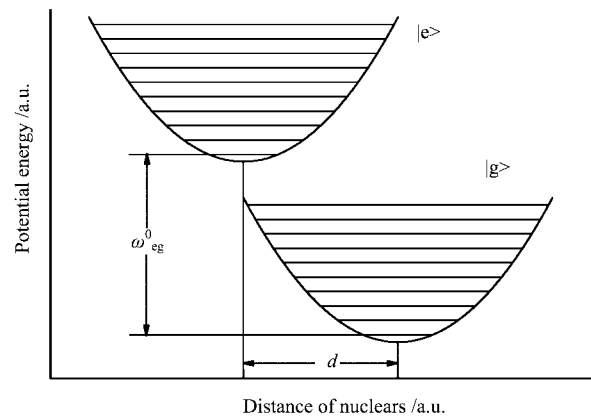


图 1 伴随着振动能级的二电子能级图

Fig. 1 The molecular vibronic level scheme for a two electron level system

系统波函数包括核振动部分和电子运动部分, 假定系统波函数可以分离为核振动波函数和电子运动波函数的乘积, 将系统的偶极矩对电子波函数求平均值, 得到系统的偶极矩为:

$$\mu = \mu_{ge}(q) |g\rangle \langle e| + \mu_{eg}(q) |e\rangle \langle g| \quad (11)$$

则系统的线性响应函数为:

$$R(t) = \frac{i}{\hbar} \theta(t) [J(t) - J^*(t)] \quad (12)$$

式中  $J(t) = \langle e | e^{\frac{i}{\hbar} H_e t} V_{ge}(q) e^{-\frac{i}{\hbar} H_g t} V_{eg}(q) \rho_g \rangle$  (13)  $\langle \rangle$  为对核的振动态求平均;  $\theta$  为单位阶跃函数 (当  $t \leq 0$  时,  $\theta(t) = 0$ ;  $t > 0$  时,  $\theta(t) = 1$ ).

当采用 Condon 近似时, 电子跃迁偶极矩与核坐标无关, 此时可以把  $V_{ge}(q)$ 、 $V_{eg}(q)$  当常数, 为简便, 令  $V_{ge}(q) = V_{eg}(q) = 1$ , 则 (13) 式变为:

$$J(t) = \langle e^{\frac{i}{\hbar} H_g t} e^{-\frac{i}{\hbar} H_e t} \rho_g \rangle \quad (14)$$

将 (7) 式代入 (14) 式中,且令

$$\omega_{eg} = \omega_{eg}^0 + \frac{1}{2} \sum_j d_j^2 \omega_j^2 \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \text{令} \quad U &= \frac{1}{\hbar} (H_e - H_g - \hbar \omega_{eg}) \\ &= \sum_j \frac{m_j \omega_j^2 d_j q_j}{\hbar} \end{aligned} \quad (16)$$

$U$  相当于能量算符中的微扰,  $U$  随时间的进化为:

$$U(t) = e^{\frac{i}{\hbar} H_g t} U e^{-\frac{i}{\hbar} H_g t} \quad (17)$$

采用二阶 Cumulant<sup>[10]</sup> 展开时, (14) 式变为:

$$J(t) = e^{-i\omega_{eg} t - g(t)} \quad (18)$$

$$\text{式中,} \quad g(t) = \int_0^t d\tau_2 \int_0^{\tau_2} d\tau_1 C(\tau_1) \quad (19)$$

$$\begin{aligned} C(\tau_1) &= \frac{1}{\hbar^2} \langle U(\tau_1) U(0) \rho_g \rangle \\ &= \sum_j \frac{m_j^2 \omega_j^4 d_j^2}{\hbar^2} C_j(\tau_1) \end{aligned} \quad (20)$$

$$C_j(\tau_1) = \langle q_j(\tau_1) q_j(0) \rho_g \rangle \quad (21)$$

$\tau_1, \tau_2$  为时间变量;  $C$  为临时变量. 假定系统的初始态为热力学平衡态,其密度算符为:

$$\rho_g = |g\rangle \langle g| \frac{e^{-\beta H_g}}{\text{Tr}(e^{-\beta H_g})} \quad (22)$$

式中  $\beta = 1/k_B T$ ,  $k_B$  和  $T$  分别是 Boltzmann 常数和温度. 将  $\rho_g$  代入 (21) 式中:

$$\begin{aligned} C_j(\tau_1) &= \sum_n \langle n | e^{\frac{i}{\hbar} H_g t} q_j e^{-\frac{i}{\hbar} H_g t} q_j \frac{e^{-\beta H_g}}{\text{Tr}(e^{-\beta H_g})} | n \rangle \\ &= \sum_n \langle n | e^{\frac{i}{\hbar} H_g t} q_j e^{-\frac{i}{\hbar} H_g t} q_j | n \rangle \times \\ &\quad \frac{e^{-(1/2+n)\beta\hbar\omega_j}}{\sum_n e^{-(1/2+n)\beta\hbar\omega_j}} \\ &= \sum_n \langle n | e^{\frac{i}{\hbar} H_g t} \sum_k | k \rangle \langle k | q_j e^{-\frac{i}{\hbar} H_g t} \times \\ &\quad \sum_k | k \rangle \langle k | q_j | n \rangle \frac{e^{-n\beta\hbar\omega_j}}{1 - e^{-\beta\hbar\omega_j}} \end{aligned} \quad (23)$$

在以上的推导中,使用了等式  $\sum_k |k\rangle \langle k| = 1$ ,  $|k\rangle$  为第  $k$  个振动本征态,求和包括所有的本征态.

对于谐振子,由于有等式:

$$\langle k | q | n \rangle = \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega}} (\sqrt{n+1} \delta_{k,n+1} + \sqrt{n} \delta_{k,n-1}) \quad (24)$$

(23) 式可化简为:

$$C_j(\tau_1) = \frac{\hbar}{2m_j \omega_j} \left( \frac{e^{\beta\hbar\omega_j} e^{-i\omega_j \tau_1}}{e^{\beta\hbar\omega_j} - 1} + \frac{e^{i\omega_j \tau_1}}{e^{\beta\hbar\omega_j} - 1} \right)$$

$$= \frac{\hbar}{2m_j \omega_j} [(\bar{n} + 1) e^{-i\omega_j t} + \bar{n} e^{i\omega_j t}] \quad (25)$$

式中  $\bar{n} = \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega_j} - 1}$ . 将 (25) 式代入 (20) 式,得

$$C(t) = \sum_j \omega_j^2 S_j [(\bar{n} + 1) e^{-i\omega_j t} + \bar{n} e^{i\omega_j t}] \quad (26)$$

式中  $S_j = m_j \omega_j d_j^2 / 2\hbar$  称为 Huang-Rhys 因子,  $S_j$  的大小反映了电声耦合的强度.

将  $C(t)$  代入 (19) 式中,经过简单的运算得

$$g(t) = \sum_j S_j \{ \coth(\beta\hbar\omega_j/2) [1 - \cos(\omega_j t)] + i[\sin(\omega_j t) - \omega_j t] \} \quad (27)$$

对于实际过程,势能函数总是偏离抛物线形状,因而引入唯象常数  $\gamma_j$ <sup>[10]</sup>, 则 (27) 式变为:

$$g(t) = \sum_j S_j \{ \coth(\beta\hbar\omega_j/2) - e^{-\gamma_j |t|/2} \times [\coth(\beta\hbar\omega_j/2) \cos(\omega_j t) - i \sin(\omega_j t)] \} \quad (28)$$

实际谱线宽度是电子跃迁和核振动两方面贡献的乘积,假定电子跃迁部分由函数  $J^{el}(t) = e^{-\gamma_{el} |t|/2}$  决定,则决定谱线宽度的函数为:

$$J(t) = e^{-g(t)} J^{el} \quad (29)$$

式中  $\gamma_j, \gamma_{el}$  为衰减常数,通常用其倒数  $T_j, T_{el}$ , 即声子、电子的退相干时间表示.

系统对光的吸收线形即为  $J(t)$  的 Fourier 变换:

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{2\pi} \text{Re} \int_0^\infty J(t) e^{i(\omega - \omega_{eg})t} dt \quad (30)$$

当用连续激光激发介质时,荧光强度和介质对光的吸收强度成正比,在一定范围内扫描激光频率时, (30) 式的吸收线形即为荧光的激发光谱.

图 2 显示了 Huang-Rhys 因子不同时,电子跃迁

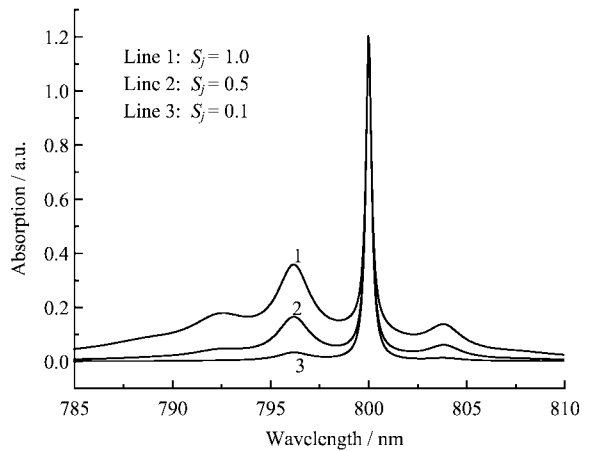


图 2 不同  $S_j$  时的电声耦合线形(共振波长为 800 nm)

Fig.2 Line shape of electron-phonon coupling in different  $S_j$

$T_j = 200$  fs,  $T_{el} = 1$  ps,  $\lambda = 800$  nm,  $\omega_j = 60$  cm<sup>-1</sup>.

和单个频率声子耦合时的吸收线形,可以看出,声子峰并不是对称出现在电子峰的两边,在高频区声子峰更高;  $S_j$  增大时,电声耦合强度变大,声子峰变高;  $S_j$  更大( $S_j=1$ )时,高频区出现了二级声子峰.

### 3 荧光的相干光谱

用有一定延时的双光束激光(波长固定,延时改变)激发样品,记录荧光强度,通过改变延时,得到相干光谱.用脉冲光激发介质时,由于脉冲光有一定的频率分布,介质按照吸收线形,对不同频率成分有不同强度的吸收.

高斯线形的激光光场可表示为:

$$E(t) = \varepsilon(t)e^{-i\Omega t} + c. c. \quad (31)$$

其中,  $\Omega$  为光场频率;  $\varepsilon(t) = e^{-t^2/2\Gamma^2}$  为光场慢变包络,  $\Gamma$  为包络的半高宽;  $c. c.$  为前一项的复数共轭.

时间间隔为  $t_d$  的两束高斯光,光场为:

$$\begin{aligned} E(t) &= \varepsilon_1(t)e^{-i\Omega t} + \varepsilon_2(t-t_d)e^{-i\Omega(t-t_d)} + c. c. \\ &= [\varepsilon_1(t) + \varepsilon_2(t-t_d)e^{i\phi_d}]e^{-i\Omega t} + c. c. \\ &= E_i(t)e^{-i\Omega t} + c. c. \end{aligned} \quad (32)$$

式中  $\phi_d = \Omega t_d$ ,  $t_d$  为两束激光之间的延时. Fourier 变换后,

$$\hat{E}_i(\omega) = \hat{E}_1(\omega) + \hat{E}_2(\omega)e^{i(\omega t_d + \phi_d)} + c. c. \quad (33)$$

光强为:

$$I_i(\omega) = I_1(\omega) + I_2(\omega) + 2I_{12} \quad (34)$$

$$I_{12} = \text{Re}[\hat{E}_1^*(\omega)\hat{E}_2(\omega)e^{i(\omega t_d + \phi_d)}] \quad (35)$$

假设  $I_1 = I_2 = I/2$ , 则荧光相干光谱信号为:

$$S(t_d) = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma(\omega + \Omega)I_{12}(\omega, t_d)d\omega \quad (36)$$

将(30)式和  $I_{12}$  代入(36)式中,可得:

$$\begin{aligned} S(t_d) &= \int_{-\infty}^{\infty} I_{12}(\omega, t_d) \int_0^{\infty} e^{i(\omega + \Omega - \omega_{eg})t} J(t) dt d\omega \\ &= \frac{1}{2\pi} \text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) [e^{i(\omega t_d + \phi_d)} + e^{-i(\omega t_d + \phi_d)}] \int_0^{\infty} J(t) e^{i(\omega + \Delta_{eg})t} dt \\ &= \frac{1}{2\pi} \text{Re} \int_0^{\infty} dt J(t) \left[ e^{i\Delta_{eg}t} e^{i\phi_d} \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) e^{i\omega(t+t_d)} d\omega + e^{-i\phi_d} \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) e^{i\omega(t-t_d)} d\omega \right] \\ &= \text{Re} \left[ e^{i\phi_d} \int_0^{\infty} dt e^{i\Delta_{eg}t} \hat{I}(t+t_d) J(t) + e^{-i\phi_d} \int_0^{\infty} dt e^{i\Delta_{eg}t} \hat{I}(t-t_d) J(t) \right] \\ &= S_+(t_d) + S_-(t_d) \end{aligned} \quad (37)$$

$$\text{式中, } \Delta_{eg} = \Omega - \Omega_{eg}, \quad \hat{I}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) e^{i\omega t} d\omega,$$

$$S_{\pm}(t_d) = \text{Re} \left[ e^{\pm i\phi_d} \int_0^{\infty} \hat{I}(t \pm t_d) J(t) e^{i\Delta_{eg}t} dt \right].$$

### 4 实验和计算结果及讨论

本工作实验装置见文献[12,13],激发光源是掺钛蓝宝石可调谐飞秒激光器,做激发光谱实验时,激光器处于连续运转状态,激光频率从 803 nm 扫描到 830 nm,做相干光实验时,激光脉宽为 50 fs,激光频率固定在为 816.7 nm 处.用双通道同时记录荧光信号和参比信号,记录信号用的探头是红外锗探头,样品是掺  $\text{Nd}^{3+}$  的 YAG,  $\text{Nd}^{3+}$  质量分数为 5%,实验温度为 77 K.

在讨论  $\text{Nd}^{3+}$  的二能级中,下能级是  ${}^4\text{I}_{9/2}$ , 其 Stark 子能级有 5 个,在实验温度下,  $\text{Nd}^{3+}$  主要布居在能量最低的 Stark 能级(能量为  $0.14\text{J}$ ),图 3 所示的激发光谱中吸收强的 1 号和 4 号峰分别对应于能量为 0 的能级向  ${}^4\text{F}_{5/2}$  的 12432 及 12370  $\text{cm}^{-1}$  子能级的跃迁.在激发光谱中,荧光强度是在激光波长扫描范围内的这些子能级荧光强度的叠加,在相干光谱中,由于激发光为超短脉冲,频率分布有一定的范围,荧光强度是光的频谱范围内发生跃迁的子能级间产生荧光强度的叠加.

图 3 是实验结果和利用(30)式对实验的理论模拟结果.由于  $\text{P}_{12}$  峰和 1 号峰的距离是  $\text{P}_{11}$  峰和 1 号峰的距离的两倍,因而我们认定  $\text{P}_{11}$  峰和  $\text{P}_{12}$  峰分别是 1 号电子跃迁的一级和二级声子峰(声子频率

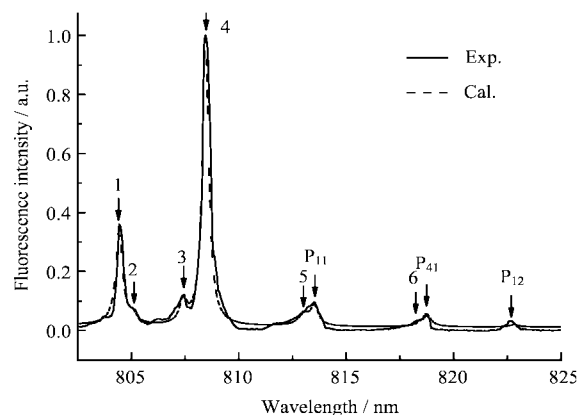


图3 荧光激发光谱实验结果和理论模拟

1~6. 电子峰, P. 声子峰.

Fig.3 Experiment result of fluorescence excitation spectroscopy and its fitting

1~6. The electronic and absorption peaks, P. The phonon absorption peaks.

为  $138.9 \text{ cm}^{-1}$ ).  $P_{41}$  峰位置没有对应的电子跃迁, 我们认定是 4 号电子跃迁的声子峰 (声子频率为  $155.4 \text{ cm}^{-1}$ ). 其他的电子峰比较低, 其声子峰更低, 实验结果中没有出现, 因而计算其电子跃迁时, 直接用洛仑兹线型计算.

表 1 是模拟图 3 中 1 号和 4 号峰的电声耦合的数据. 和掺  $\text{Yb}^{3+}$  的 YAG 中的 Raman 谱 (声子频率为  $327、344 \text{ cm}^{-1}$ [4]) 比较, 声子频率小一些. 和半导体的 Huang-Rhys 因子相比 (半导体的 Huang-Rhys 因子为  $11 \sim 212$ [11]), 稀土离子的 Huang-Rhys 因子较小, 和稀土离子的电声耦合作用较小相吻合.

表 1 拟合图 3 所得的数据  
Table 1 Data from fitting the Fig. 3

$S_j$	$\omega_j$	$T_j$	$T_{ei}$	Para.	$\lambda/\text{nm}$	No.
4.53	138.9	4510.4	1300.3	15.6	804.43	1
1.05	155.4	2565.0	1002.3	2.5	808.45	4

图 4 是荧光相干谱实验结果和用 (37) 式计算出来的理论相干光谱. 在相干光谱的实验中, 同时激发的几个跃迁的荧光之间可以形成“拍”, 两个频率的跃迁产生的第一个拍 (延时为 0 处的拍除外) 的位置在两个频率差的倒数处. 对于脉冲光, 在靠近中心频率位置的频谱成分光强较强. 本实验中靠近中心频率 (816.7 nm) 处的吸收是图 3 中 6 号电子跃迁和 1 号电子跃迁的声子峰, 从二者的频率差可以计算出第一个拍的位置在 470 fs 处, 和图 4 中 470 fs 出现拍的结果吻合.

在激发光谱实验中, 由于温度为 77 K, 下能级中较高能量的 Stark 子能级上也存在一定量的粒子

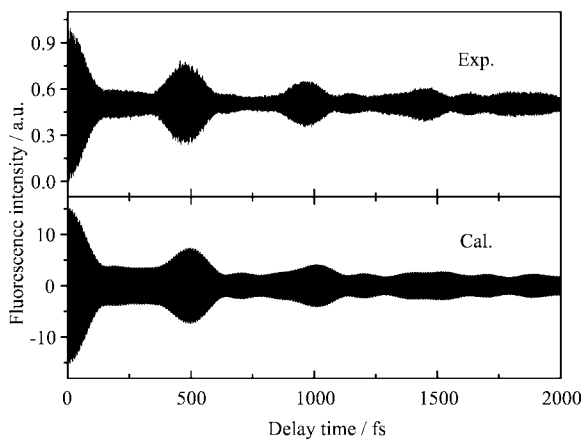


图 4 荧光相干谱和理论相干谱

Fig. 4 Experiment and theoretical coherent spectroscopy of fluorescence

布居, 因而产生了图 3 中 2、3、5、6 号电子跃迁. 5、6 号电子跃迁和 1、4 号电子跃迁的声子边带的频率相近, 使得确定 1、4 号电子跃迁的电声耦合常数和声子频率出现一定困难. 但可以确定的是, 稀土离子中电声耦合强度比半导体小得多. 如果降低实验温度, 可望得到更精确的结果.

### 5 结论

凝聚态中电声耦合的结果, 是在电子跃迁的两边产生声子吸收, 电子和声子的频率差就是声子频率. 当电声耦合作用较强时, 可以产生多级声子. 相干光谱实验中的拍是激光同时激发几个不同频率跃迁产生的荧光的相干叠加的结果, 两个频率跃迁产生的第一个拍的位置是这两个跃迁频率差的倒数. 和半导体中的电声耦合作用强度比较, 凝聚态中稀土离子的电声耦合作用较弱.

### 参 考 文 献

[1] Nibbering E T J, Douwe A W, Koos D. *Phys. Rev. Lett.*, 1991, **66**: 2464  
 [2] Cong P J, Yan Y J, Hans P Deuel, et al. *J. Chem. Phys.*, 1994, **100**: 785  
 [3] Wu X L, Bao X M, Jiang S S, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**: 2401  
 [4] Lupei A, Enaki V, Lupei V, et al. *J. Alloy and Compounds*, 1998, **275-277**: 196  
 [5] Becker P C, Williams G M, Edelstein N M. *Phys. Rev. B*, 1992, **45**: 5027  
 [6] Toutounji M, Small G J, Mukamel S. *J. Chem. Phys.*, 1998, **109**: 7949  
 [7] Tanimura Y, Mukamel S. *Phys. Rev. E*, 1993, **47**: 118  
 [8] Yan Y J, Mukamel S. *J. Chem. Phys.*, 1988, **89**: 5160  
 [9] Luo Q, Dai D C, Wang G Q. *J. Chem. Phys.*, 2001, **114**: 1870  
 [10] Mukamel S. *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*, Oxford University Press, 1995.  
 [11] Ridley B K, *Quantum Processes in Semiconductors*, World Publishing Corporation, Beijing Clarendon Press, Oxford, 1988. 259  
 [12] YU X Y, Luo Q, Li L W, et al. *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**: 3321  
 [13] Luo Q, Yu X Y, Qiu Z R, et al. *Appl. Phys. B: Lasers Opt.*, 2000, **70**: 53  
 [14] Kaminskii A A. *Laser Crystals*, Springer-Verlag Verlin Heidelberg, New York, 1981. 129