

分子的飞秒强光电离*

吴成印 龚旗煌[†]

(北京大学物理学院 人工微结构和介观物理国家重点实验室 北京 100871)

摘要 文章以一个实验者的角度,介绍了分子的飞秒强光电离的研究现状.文章从对比飞秒激光电离质谱与纳秒激光电离质谱开始,接着介绍分子在激光场作用下的可能电离机理,着重描述了几个处理分子场致电离的理论模型和实验验证,最后对飞秒激光导致的分子在激光脉冲作用后取向研究进行了简单介绍.

关键词 飞秒激光质谱,场致电离,光电子能谱,脉冲后取向

Ionization of molecules irradiated by an intense femtosecond laser field

WU Cheng-Yin GONG Qi-Huang[†]

(State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Department of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract This review is written from an experimentalist's point of view and introduces the current status of the ionization of molecules in an intense laser field. The paper begins by comparing femtosecond laser mass spectra and nanosecond laser mass spectra. It continues with a description of the possible ionization mechanisms of molecules in the laser field, then focuses on the interpretation of the theoretical models for dealing with the field ionization of molecules and comparison of theoretical calculations with experimental measurements. The final section discusses the postpulse alignment of molecules induced by an intense femtosecond laser field.

Keywords femtosecond laser mass spectra, field ionization, photoelectron energy spectrum, postpulse alignment

1 飞秒激光质谱

近20年来,超短超强激光技术的迅速发展,特别是掺钛蓝宝石激光器的应用和啁啾脉冲放大(chirped pulse amplification)技术的成熟,使得实验室可以比较容易地获得脉宽小于100fs ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$)、强度大于 $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ 的聚焦激光脉冲序列.分子在这样强的飞秒激光脉冲作用下电离,与在纳秒激光脉冲作用下电离,其质谱信号显著不同^[1].纳秒激光除非在共振的情况下,通常只能产生一些很小的碎片离子;飞秒激光则几乎可以电离所有的分子,并产生较强的母体离子以及一些含有母体分子结构信息的碎片离子信号.

飞秒激光质谱和纳秒激光质谱的差别是由飞秒激光脉冲和纳秒激光脉冲的不同特性决定的.纳秒激光一方面激光强度较低,因而很难使分子通过非

共振吸收直接到达离子态产生母体离子信号;另外,纳秒激光的脉冲宽度通常大于分子的解离时间,解离的中性碎片会进一步吸收光子电离.因此,纳秒激光作用下分子的电离,除非共振的情况下,一般很难产生母体离子信号,通常只能观察到一些很小的碎片离子,如图1中所示, CH_3NO_2 分子在纳秒激光作用下只能观察到 NO^+ 的离子信号^[2].飞秒激光由于其超短超强的特性,超短指的是激光的脉冲宽度为几十飞秒,小于分子在激发态的解离时间,超强指的是激光的脉冲强度非常高,以致分子吸收光子的速率大于分子的解离速率,这样分子在飞秒激光作用下,可以通过非共振电离直接到达电离态,因此几乎所有分子都可以被800nm的飞秒激光直接电离而

* 国家自然科学基金(批准号:10534010,60378012,10521002)资助项目

2005-12-11收到

[†] 通讯联系人. Email: qhgong@pku.edu.cn

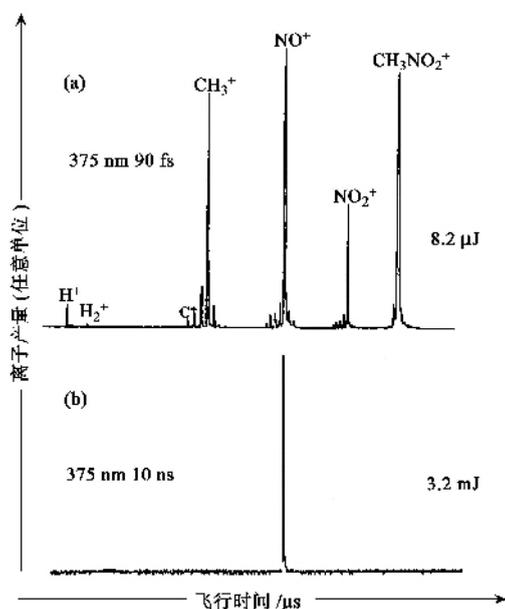


图1 375nm 激光脉冲作用下, CH_3NO_2 分子的飞行时间质谱。当激光脉冲宽度为10ns时, 只有碎片离子 NO^+ 的信号, 而当激光脉冲宽度为90fs时, 实验观察到比较强的母体离子信号 CH_3NO_2^+ 和丰富的碎片离子信号, 特别是 NO_2^+ 和 CH_3^+ 信号, 由于这些碎片离子来源于母体离子的直接解离, 因此反映了母体离子的结构信息 (详见文献 [2])

产生母体离子, 另外分子的中性解离碎片在激光脉冲宽度内也不可能再吸收光子发生电离, 因此飞秒激光电离质谱中的碎片离子主要来源于母体离子的直接解离。如图1所示, CH_3NO_2 在飞秒激光作用下的电离质谱信号中, 产生了很强的母体离子 CH_3NO_2^+ 和比较大的碎片离子信号 CH_3^+ 和 NO_2^+ [2]。由于这些碎片离子来源于母体离子的直接解离, 因此能够给出母体分子的一些结构信息。上述纳秒激光质谱和飞秒激光质谱的区别是一个比较普遍的现象, 不仅对光不稳定的有机分子适用, 而且对光热不稳定的生物分子也观察到同样的现象。

由于飞秒激光电离质谱中碎片离子来源于母体离子的直接解离, 因此通过控制激光的强度, 一般可以控制母体离子解离的程度。图2是萘分子在不同强度的飞秒激光脉冲作用下的飞行时间质谱图, 在激光强度较低时, 母体离子信号占主导地位, 随着激光强度的增加, 碎片离子信号逐渐增加 [3]。大量的实验表明, 800nm 的飞秒激光几乎可以电离所有的分子, 而且通过控制激光强度, 一般都可以控制母体离子解离的程度, 即母体离子和碎片离子的相对强度。正是由于飞秒激光电离质谱可以获得母体分子

及其结构方面的信息, 使其在化学分析方面具有重要的应用潜力, 因此飞秒激光作用下分子的电离机理迅速成为一个比较活跃的研究领域。

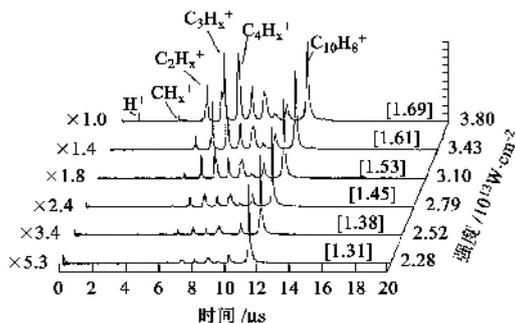


图2 萘 (C_{10}H_8) 分子在780nm、170fs 激光脉冲作用下的飞行时间质谱, 激光强度从 $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 变化到 $3.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 可以看出在激光强度较低时, 母体离子信号占主导地位, 随着激光强度的增加, 碎片离子所占比例变大 (详见参考文献 [3])

2 分子电离机理

如图3所示, 分子在激光脉冲作用下的电离机理, 按照当时激光场所能达到的强度可以分为以下几个阶段: (1) 多光子电离 (multiphoton ionization)。分子可以吸收多个光子发生多光子电离, 多余的能量将由光电子带走。如果存在中间共振能级, 则发生的是共振增强多光子电离。早期由于激光强度较低, 多光子电离可以用低级含时微扰理论来处理, 其激发速率与激光强度的 n 次方成正比关系。随着激光强度的增加, 存在一个饱和激光强度 I_s , 使得激光脉冲作用区域内的所有样品分子都被电离, 这时再增加激光强度, 并没有更多的离子产生。(2) 阈上电离 (above threshold ionization)。随着激光强度的进一步增加, 分子在电离过程中吸收了多于其电离所需要的光子数, 它起源于激光场诱导的分子库仑势垒的扭曲, 使得电离出的电子受到势垒的约束, 在脱离分子前仍要吸收光子, 因此光电子能谱将表现为一系列间隔光子能量的谱峰。(3) 隧道电离 (tunneling ionization)。当激光强度进一步提高达到 10^{13} W/cm^2 时, 激光场产生的交变电场和价电子与分子实间的库仑场叠加会严重扭曲分子实与价电子间的库仑势垒, 以至于价电子在这个扭曲的势垒里可以通过隧道效应而脱离原子, 这一过程称之为隧道电离。隧道电离的中心思想就是电离必须发生在光学周期的一部分, 这样电场就可以看作是准静态的, 在电离完成之前, 电场不改变方向。(4) 势垒抑制电离 (bar-

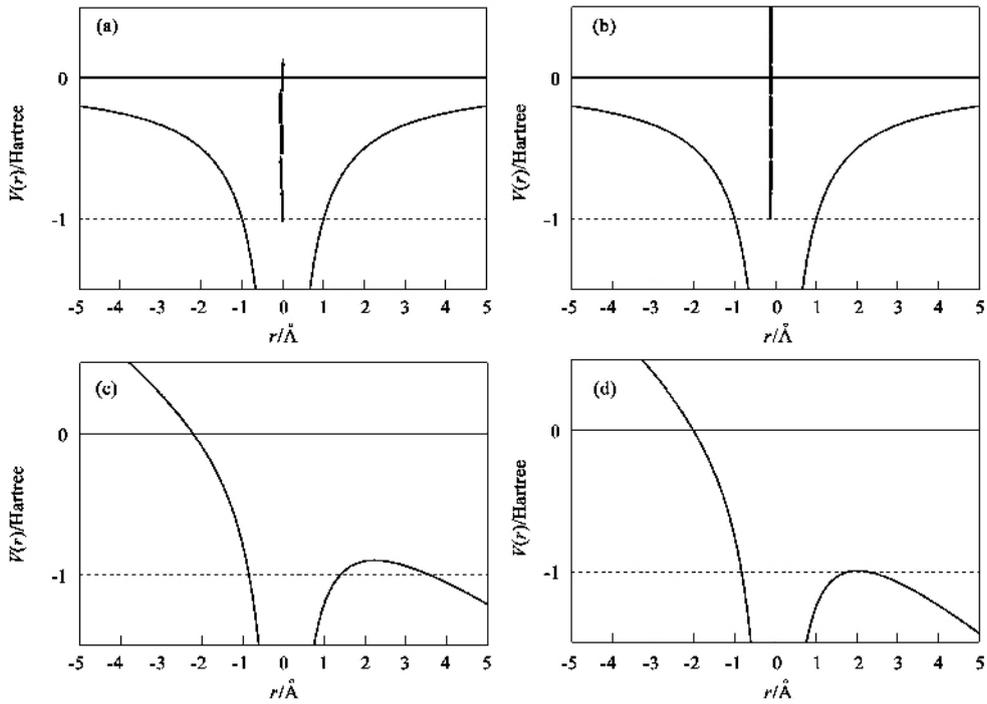


图3 分子在激光脉冲作用下的电离机理 (a)多光子电离 (b)阈上电离 (c)隧道电离和(d)势垒抑制电离,其中隧道电离和势垒抑制电离统称为场致电离

rier-suppressed ionization). 随着激光强度的进一步增加,激光场产生的交变电场和价电子与分子实间的库仑场叠加,最终会导致价电子所受分子实的束缚势垒的高度小于价电子的能量,这样价电子几乎可以自由脱离分子实的束缚而电离,这一过程称之为势垒抑制电离. 隧道电离和势垒抑制电离统称为场致电离(field ionization). 由于场致电离中电子首先通过隧道电离脱离核的束缚,然后沿激光的电矢量方向来回振动获得动能,电子隧穿时间的不确定将导致电子的动能也是不确定的,因此在光电子能谱上将表现为一个宽的无结构的谱峰,对应的电子能量为电子在一个交变激光电场中的平均能量,即激光脉冲的抖动能(ponderomotive potential).

早在1965年,Keldysh^[4]研究强电磁场作用下原子的电离机理时就给出了一个绝热系数(Keldysh adiabatic parameter) γ ,其定义为电子穿越势垒所需要的时间与激光电场方向发生改变的时间的比值,如果该值远大于1的话,则主要为多光子电离,如果小于1的话,则主要为场致电离. 分子的研究表明,该参数仍然可以用来判断分子在激光场中的电离机理,但是计算该系数更加复杂,需要计算分子在外激光场中的静电势.

当激光强度在 10^{13} — 10^{14} W/cm² 时,分子处在

多光子电离向场致电离过渡的区域,此时多光子电离和场致电离相互竞争. 从前面的描述中,我们知道处于不同电离机理产生的光电子能量将是非常不同的. 因此通过测量电子能量将是一个非常有效的手段来确定分子在强激光场中电离机理. 图4是苯、萘、蒽等分子在780nm、170fs、 3.8×10^{13} W/cm² 的激光脉冲作用下的光电子能谱,其中小于光子能量的谱峰来源于多光子电离;有规则的间隔光子能量的谱峰来源于阈上电离;而下面宽的无结构的谱峰则来源于场致电离^[5]. 据作者所知,这是实验上第一次直接观察到分子从阈上电离向场致电离过渡.

3 分子的电离几率

1965年 Keldysh^[4]研究原子在电磁场中的电离机理时,也给出了计算原子隧道电离几率公式,后来 Ammosov, Delone, Krainov 三人在此基础上发展了ADK理论^[6]. 该理论认为,原子在强电场中的电离速率,主要取决于原子的电离势. 这些理论比较成功地处理了多电子原子,特别是惰性气体原子在强激光场中的电离. 后来人们试图将这些理论应用到一些简单的双原子分子,但是不能解释实验发现 D₂ 和 O₂ 在飞秒强激光场作用下的抑制电离,即电离几

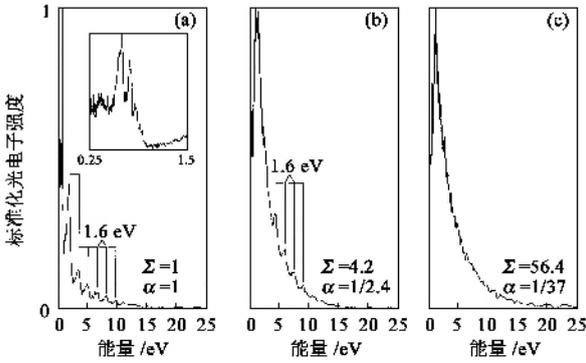


图4 (a)苯、(b)萘、(c)酮等分子在780nm、170fs、 3.8×10^{13} W/cm²的激光脉冲作用下的光电子能谱,其中小于光子能量的谱峰来源于多光子电离,有规则的间隔光子能量的谱峰来源于阈上电离,而下面宽的无结构的谱峰则来源于场致电离[详见参考文献5]

率远小于同等电离势惰性气体原子 Ar 和 Xe^[7]. 考虑到分子复杂的几何结构和轨道分布,不同的研究小组提出了不同的模型来处理分子的场致电离. 分子结构场致电离模型(molecular structure-based model)^[3]和分子轨道场致电离模型(molecular orbit-based model)^[8]认为分子最高占有轨道即 HOMO (highest occupied molecular orbit) 上的电子最容易发生电离,都比较精确地计算了 HOMO 电子在外激光场中的静电势,获得了分子在激光场中的电离几率. 但分子结构场致电离模型没有考虑分子 HOMO 轨道上电子云的实际分布. 例如在计算苯分子时,他们直接计算 HOMO 轨道上的电子在分子骨架平面上的静电势^[3]. 事实上苯分子电离的 HOMO 电子在分子骨架的平面上存在着一个节面, HOMO 电子在这个平面上没有分布.

分子轨道电离模型克服了这个缺陷,认为分子在强激光场作用下,电离几率是和 HOMO 轨道上的电子云分布密切相关,这点最近已经被实验结果直接证实. 因此该理论计算了 HOMO 轨道的电子分布,认为 HOMO 轨道的电子沿电子云分布最密集的方向被激光场电离,利用量子力学从头算的方法计算 HOMO 电子在外激光场作用下的静电势,通过数值求解电子在一维势阱里运动的薛定谔方程,获得了分子在外场作用下的电离几率. 然后电离几率对激光脉冲时间和空间积分,得到了一个激光脉冲作用下的离子信号强度,进而可以和实验测量的离子信号强度与激光强度曲线直接对比. 下面以丙酮分子为例,介绍分子轨道电离模型如何处理分子的场致电离. 图 5(a)是丙酮分子在 50fs、800nm、 $5.8 \times$

10^{13} W/cm² 的激光脉冲作用下的飞行时间质谱,可以看到很强的母体离子信号(CH₃)₂CO⁺, 以及一些大的碎片离子信号 CH₃CO⁺和 CH₃⁺, 由于这些碎片离子信号来源于母体离子的直接解离,因此计算激光强度与离子信号强度关系的时候,离子信号强度为碎片离子信号和母体离子信号之和,即总包离子信号,实验结果见图 5(d)中的圆圈. 丙酮分子的 HOMO 轨道是羰基上氧原子的非键轨道,利用量子力学从头算的方法,可以知道该轨道在空间中的分布主要为氧原子的 P_x 方向,这样根据分子轨道场致电离模型,可以计算丙酮分子的 HOMO 电子在激光脉冲作用下的静电势,图 5(b)是强度为 3.4×10^{13} W/cm² 的激光脉冲作用下丙酮分子的 HOMO 电子的静电势,可以看到激光电场的作用形成了一个势垒,由于量子力学的隧道效应,电子会隧穿势垒发生电离,其隧穿几率可以通过量子力学数值积分的方法获得,结果见图 5(c). 考虑到聚焦的激光脉冲在时间和空间上都有一个分布,这样将导致不同时刻、不同空间的分子被电离的几率是不一样的. 如果实验过程中反应室样品浓度变化可以忽略的话,将电离几率对激光脉冲的时间和空间积分就得到一个激光脉冲产生的所有离子信号强度,见图 5(d)中的实线,可以看到理论和实验结果吻合得挺好. 分子的场致电离几率与分子 HOMO 轨道的电子云分布密切相关,因此分子沿不同的方向电离其电离几率将有很大的不同. 为了简化计算过程,上述电离模型只考虑分子沿电子云分布最密集的方向电离. 但实验中,分子束中的分子取向是随机的,因此应当将分子沿不同方向电离的电离几率考虑进去. Tong 等^[7]将原子的 ADK 理论扩展到分子,考虑了不同取向的分子对电离几率的影响,成功地解释了实验观察到相对于同等电离势的惰性气体原子,氧气等分子的抑制电离和氮气等非抑制电离,但是该理论不能解释实验观察到的氟气分子的非抑制电离. 可见目前还没有一个成熟的理论来解释所有分子在飞秒激光场下的场致电离.

4 分子电离几率的实验验证

为了后面叙述的方便,我们这里定义角度 θ 为分子轴向与激光电场方向的夹角. 不同 θ 角下分子的电离几率将直接验证上述理论模型,同时也是理解分子与激光场相互作用机理的重要参数. 但是近来的研究表明,对于我们目前常用的几十至几

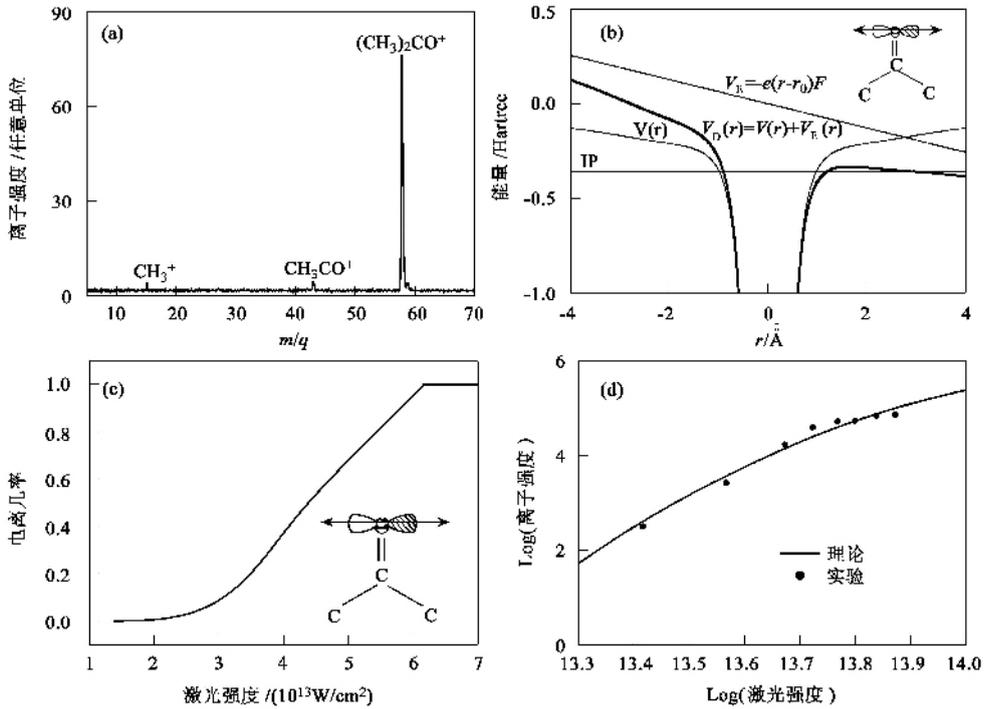


图5 分子轨道场致电离模型 (a) 丙酮分子在 50fs, 800nm, $5.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的激光脉冲作用下的飞行时间质谱, 产生了很强的母体离子信号 $(\text{CH}_3)_2\text{CO}^+$ 和较大的碎片离子 CH_3^+ 和 CH_3CO^+ , 这些碎片离子来源于母体离子的直接解离, 因此给出了母体离子的结构信息 (b) 丙酮分子在强度为 $3.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的激光场中的静电势 $V_D(r)$, 它包括价电子和核之间的库仑势 $V(r)$ 以及激光场产生的电场作用势 $V_E(r)$ (c) 丙酮分子在不同激光强度下的场致电离几率 (d) 激光强度和离子强度的双对数关系, 可见理论和实验吻合得很好. (具体请参考吴成印的博士论文或参考文献 [8])

百飞秒激光脉冲, 大多数分子由于激光电场和分子诱导偶极矩相互作用, 电离前已经发生取向. 取向和电离的同时存在, 使得实验上很难直接测量电离几率和 θ 角的关系. 最近 Alnaser 等^[9]利用脉宽 8fs、强度低于分子一价饱和和电离阈值的激光脉冲和氮气、氧气分子作用, 在这样的实验条件下, 分子通过非序列电离 (nonsequential ionization) 产生二价母体离子, 由于库仑排斥力, 二价母体离子会发生库仑爆炸, 产生一价碎片离子, 具体包括以下 3 个过程: (1) HOMO 轨道上的电子在外激光场作用下通过隧道电离, 产生一价母体离子和一个电子 (2) 下一个激光光学周期, 电子会通过散射 (rescattering) 过程回来和一价母体离子碰撞, 激发母体离子 (3) 母体离子的另一个电子被电离, 产生二价母体离子, 由于库仑排斥力, 二价母体离子会发生爆炸, 产生碎片离子. 对于氮气和氧气分子, 上述 3 个过程中, 仅第一步隧道电离几率与 θ 角密切相关, 而且上述实验条件下分子取向可以忽略. 这样通过观察氧气和氮气的库仑爆炸产生的碎片离子相对于激光偏振方向的角度分布, 就可以获得氮气、氧气分子的电离几率与 θ 角

的关系, 见图 6 左面部分. 可以看到, 对于氮气分子, 当分子轴向平行激光电场方向即 θ 角为 0 时, 电离几率最大, 而对于氧气分子, 则当分子轴向与激光电场方向夹角 θ 为 40° 度时, 电离几率最大, 分子轴向平行激光电场方向时, 电离几率很小. 氮气和氧气的电离几率和 θ 角的关系基本上再现了氧气和氮气 HOMO 轨道的形状, 即电子云的分布. 这个结果也可以很好地解释氧气等分子的抑制电离和氮气等分子的非抑制电离. 最近我们利用飞秒双光束实验证实氧气和氮气分子在脉宽为几十到百飞秒的激光作用下电离, 电离前分子已经发生取向, 分子的轴向沿激光的偏振方向. 取向, 氮气分子在此方向上电离几率最大, 而氧气分子在此方向上电离几率最小, 结果将导致氧气等分子的抑制电离和氮气等分子的非抑制电离. 另一个测量电离几率与 θ 角的关系是由 Litvinyuk 等^[10]通过飞秒激光脉冲在空间上先制备一定取向的分子, 然后另一束飞秒激光和取向一定的分子作用, 由于飞秒激光脉冲可以使分子在激光脉冲停止后仍发生取向, 因此通过测量不同时间间隔的离子信号强度,

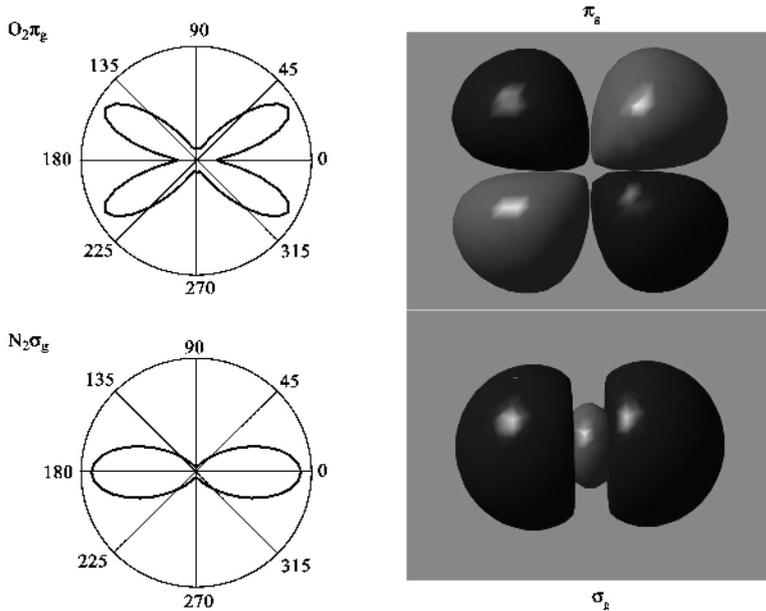


图6 左图 O_2 和 N_2 分子在 $8fs, 1.5 \times 10^{14} W/cm^2$ 激光脉冲作用下的碎片离子角分布,在此实验条件下,母体离子的二价离子通过非序列电离(non-sequential ionization)产生,由于分子取向可以忽略,库仑爆炸碎片离子的角分布反映了电离几率和分子轴向与激光偏振方向的夹角的关系(右图) O_2 和 N_2 分子的 HOMO 电子的电子云分布.可见分子场致电离几率和电子云分布密切相关,电离几率和分子轴向与激光偏振方向的夹角的关系基本再现了分子轨道的形状(详见参考文献[9])

他们成功地测量了氮气的电离几率在 θ 角为 0° 是 θ 角为 90° 时的 4 倍,即分子轴向平行于激光电场方向时,其电离几率是分子轴向垂直激光电场方向的 4 倍.但是利用这种方法,他们没有能够获得氧气的电离几率与 θ 角的关系.

5 展望

飞秒激光电离前分子会发生取向,因此利用强度低于分子电离阈值的激光脉冲和分子作用可以制备空间一定取向的分子,进一步的理论研究还表明,即使在激光脉冲停止后,分子的这种取向还可以在一定的时间内得到恢复,这样就实现了无外场条件下的分子取向^[11].激光脉冲作用后分子在无外场存在的情况下周期性取向具有广阔的应用前景,如散射、催化等表面过程的研究.最近人们提出了一系列理论方案,如双光束、多光束、电场加光束等来增加分子的取向程度或者实现分子的三维取向,实验则基本上还局限在双原子和三原子等线性分子的一维取向上.

如图 7 所示,分子和比较强的飞秒激光作用,分子内的诱导偶极矩和激光电场作用将使分子转动受到一个角度交流斯塔克位能(AC Stark Shift) $U(\theta)$ 的限制:

$$U(\theta) = -\frac{1}{2} [\alpha_{\parallel} \varepsilon^2 \cos^2 \theta + \alpha_{\perp} \varepsilon^2 \sin^2 \theta]$$

$$= -\frac{1}{2} \alpha_{\perp} \varepsilon^2 - \frac{1}{2} \Delta \alpha \varepsilon^2 \cos^2 \theta$$

式中 $\Delta \alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$, α_{\parallel} 和 α_{\perp} 分别为分子平行和垂直方向的极化率, ε 为激光电场强度.该位能对角度求导数,可得出分子受到的扭力 $-\frac{dU}{d\theta} \propto -\sin(2\theta)$,

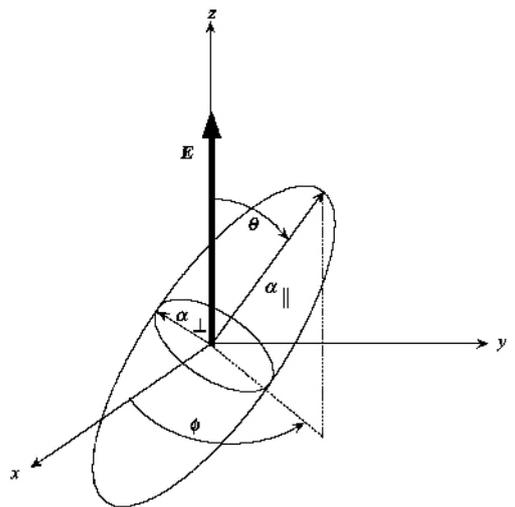


图7 线性分子在飞秒激光电场中,分子内的诱导偶极矩和激光电场作用使分子转动受到一个角度交流斯塔克位能 $U(\theta)$ 的限制,图中 α_{\parallel} 和 α_{\perp} 分别为分子平行和垂直方向的极化率



图8 飞秒激光场作用后分子取向示意图. 可见当激光脉冲宽度小于分子的转动周期, 激光脉冲停止后, 分子仍周期性取向

因为激光的脉冲宽度很短, 分子受到激光的快的冲力(rapid kick)正比于 2θ 的正弦, 因此分子轴向偏离激光电场方向大的分子将受到一个比较大的扭力使分子转动加快, 跟上分子轴向偏离激光电场方向小的分子, 这样在一个特定的时刻, 分子会表现出空间取向. 由于激光脉冲宽度远小于分子的转动周期, 因此激光脉冲快速停止后, 分子仍处在一个转动的相干叠加态, 虽然分子会自由转动, 但是经过分子的转动周期, 它们还要经过这个共同取向的时刻. 这样就实现了无外场条件下的分子取向(field-free alignment). 图8 给出了分子在飞秒强激光场诱导的分子取向示意图, 可见在激光脉冲停止后, 分子仍能够周期性地恢复这种取向.

利用分子取向导致的光致双折射, 北京大学人工微结构和介观物理国家重点实验室通过光学克尔方法, 测量了一系列分子在飞秒激光脉冲作用后的无外场取向情况¹². 图9 是室温下 CO_2 分子在 810nm、110fs、60TW 的激光脉冲作用下的分子取向情况, CO_2 分子的转动周期为 42.7ps, 可以看到不仅在转动周期处, 而且在 $T/4$ 、 $T/2$ 、 $3T/4$ 、 $5T/4$ 、 $3T/2$ 处都观察到分子取向, 甚至在 $T/8$ 和 $3T/8$ 处分子也呈现了一定程度的取向.

最近, Kanai 等^[13]利用取向的分子和飞秒激光脉冲作用, 发现取向的分子可以显著提高分子的电离几率以及谐波的转化效率. 如何提高分子在飞秒强激光场作用下的取向程度和如何利用取向分子开展研究将是未来几年的研究热点.

6 结束语

飞秒激光不仅是一个测量工具, 现在正成为一个控制工具, 可以操纵分子的行为, 如使分子聚焦、囚禁、取向等. 衷心希望能够和国内同行一道, 抓住机遇, 在这一领域能够做出拥有自己创新特色的工作.

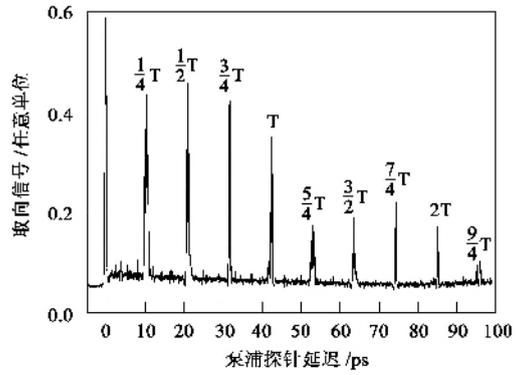


图9 810nm、110fs、60TW 的激光脉冲使室温 1 个大气压的 CO_2 分子在激光脉冲作用后仍能够呈现周期性取向, 信号减小可能来源于分子间碰撞引起的相干性减小

参 考 文 献

- [1] Ledingham K W D, Singhal R P. *Int. J. Mass Spectrom. and Ion Processes*, 1997, 163 : 149
- [2] Kilic H S, Ledingham K W D, Kosmids C *et al.* *J. Phys. Chem. A*, 1997, 101 : 817
- [3] Levis R J, Dewitt M J. *J. Phys. Chem. A*, 1999, 103 : 6497
- [4] Keldysh L V. *Sov. Phys. JETP*, 1965, 201 : 1307
- [5] Dewitt M J, Levis R J. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, 81 : 5101
- [6] Ammosov M V, Delone N B, Krainov V P. *Sov. Phys. JETP*, 1987, 64 : 1191
- [7] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D. *Phys. Rev. A*, 2002, 66 : 033402
- [8] Wu C Y, Xiong Y J, Ji N *et al.* *J. Phys. Chem. A*, 2001, 105 : 374
- [9] Alnaser A S, Voss S, Tong X M *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 93 : 113003
- [10] Litvinyuk L V, Lee K F, Dooley P W *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2003, 90 : 233003
- [11] Stapelfeld H, Seideman T. *Rev. Mod. Phys.*, 2003, 75 : 543
- [12] Xu N, Wu C Y, Huang J *et al.* *Optics Express*, 2006, 14 : 4992
- [13] Kanai T, Minemoto S, Hirofumi S. *Nature*, 2005, 435 : 470