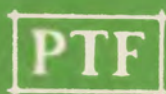


# POSTĘPY FIZYKI

DWUMIESIĘCZNIK  
POŚWIĘCONY UPOWSZECHNIANIU  
WIEDZY FIZYCZNEJ



TOM XXII

ZESZYT 4

---

1971

**ZARZĄD**

**Przewodniczący**  
**Prof. dr WOJCIECH RUBINOWICZ**  
**czł. rzecz. PAN**

**Wiceprzewodniczący**  
**Prof. dr ALEKSANDER JABŁOŃSKI**  
**czł. rzecz. PAN**

**Sekretarz**  
**Doc. dr HALINA CHEĆCIŃSKA**

**Skarbnik**  
**Doc. dr KAZIMIERZ ROSIŃSKI**

**Członkowie Zarządu**  
**Prof. dr JULIAN AULEYTNER**  
**Dr MIROŚŁAWA JASTRZĘBSKA**  
**Prof. dr KAROLINA LEIBLER**  
**Doc. dr JAN PETYKIEWICZ**  
**Prof. dr JAN WEYSSENHOFF**

**PRZEWODNICZĄCY ODDZIAŁÓW TOWARZYSTWA**

**Doc. dr EMANUEL TREMBACZOWSKI** (*Białystok*)  
**Doc. dr JERZY DERA** (*Gdańsk*)  
**Prof. dr WŁODZIMIERZ MOŚCICKI** (*Głównice*)  
**Doc. dr DANUTA KUNISZ** (*Kraków*)  
**Doc. dr MAKSYMILIAN PIŁAT** (*Lublin*)  
**Prof. dr MARIAN KRYSZEWSKI** (*Łódź*)  
**Dr MIECZYŚLAW PIRÓG** (*Opole*)  
**Doc. dr ANTONI ŚLIWIŃSKI** (*Poznań*)  
**Doc. dr WIKTOR NOWAK** (*Szczecin*)  
**Doc. dr STANISŁAW PRUSKI** (*Toruń*)  
**Doc. dr EDMUND IGRAS** (*Warszawa*)  
**Doc. dr MIRON GAJ** (*Wrocław*)

P O L S K I E T O W A R Z Y S T W O F I Z Y C Z N E

# POSTĘPY FIZYKI

DWUMIESIĘCZNIK POŚWIĘCONY UPOWSZECHNIANIU  
WIEDZY FIZYCZNEJ

TOM XXII, ZESZYT 4

PAŃSTWOWE WYDAWNICTWO NAUKOWE

1971

## RADA REDAKCYJNA

*Przewodniczący* — Szczepan Szczeniowski, czł. koresp. PAN (Warszawa),  
*Członkowie* — Władysław Kapuściński (Warszawa), Ludwik Natanson (Warszawa), Wojciech Rubinowicz, czł. rzecz. PAN (Warszawa),  
Leonard Sosnowski, czł. rzecz. PAN (Warszawa), Jan Weyssenhoff,  
czł. rzecz. PAN (Kraków)

## KOMITET REDAKCYJNY

*Redaktor Naczelny* — Jan Weyssenhoff, czł. rzecz. PAN (Kraków)  
*Członkowie Redakcji* — Andrzej Kisiel (Kraków), Henryk Lizurej (Kraków),  
Jerzy Pietruszka (Kraków)

*Adres Redakcji:* Kraków, Reymonta 4  
tel. 363-80, wewn. 442

Maszynopisy prac należy nadsyłać w 2 egzemplarzach pod adresem Redakcji. O przyjęciu do druku decyduje Komitet Redakcyjny.

Państwowe Wydawnictwo Naukowe — Oddział w Krakowie, ul. Smoleńsk 14

Nakład 2444 + 91 egz. Ark. wyd. 11,75. Ark. druk. 9<sup>1</sup>/<sub>2</sub>,  
Papier rotoogr. kl. III. 70 × 100, 80 g.  
Oddano do składania w kwietniu 1971  
Podpisano do druku w sierpniu 1971  
Druk ukończono w sierpniu 1971  
Zam. 367/71. M-12. Cena zł 15.—

Drukarnia Uniwersytetu Jagiellońskiego, Kraków, Czapskich 4

*Victor F. Weisskopf*

MIT

## Trzy stadia badania struktury materii \*

### Three Steps in the Structure of Matter

Victor F. Weisskopf, profesor i dziekan wydziału fizyki w Massachusetts Institute of Technology jest dobrze znanym fizykiem jądrowym. Nie tylko osobiście pracował w dziedzinie badań jądrowych, ale również jako dyrektor generalny CERN-u w latach 1961-66, a obecnie przewodniczący komitetu doradczego w dziedzinie fizyki wysokich energii Komisji Energii Atomowej wytyczał kierunki tych badań.

Sto lat temu, gdy Dymitr Iwanowicz Mendelejew ujął pierwiastki w układ okresowy, do chaosu pierwiastków został wprowadzony porządek. Zagadkowa regularność występująca w tym układzie pozostała jednak nie wyjaśniona przez 52 lata, tj. do czasu, gdy Niels Bohr opublikował swój słynny *Aufbauprinzip*, oparty na kwantowej teorii atomu. Doświadczenia fizyków sięgając w głąb struktury materii ujawniły właściwości jądra atomowego, a porządkując jądra według liczby neutronów i protonów znaleziono podobne prawidłowości jak w przypadku pierwiastków. Te regularności znalazły swoje wyjaśnienie w modelu powłokowym jądra, jaki zaproponowali w roku 1951 J. Hans, D. Jensen, Maria Goeppert-Mayer, Otto Haxel i Hans E. Suess. W ostatnim dwudziestoleciu bombardując protony i neutrony wysokoenergetycznymi wiązkami, odkryto wiele nowych krótko żyjących cząstek. Niedawno Murray Gell-Mann, Kazihiko Nishijima i Yuval Ne'eman zauważyli pewien porządek w pozornie chaotycznej liście tych cząstek. Wyjaśnienie tego porządku jest jednak ciągle problemem otwartym.

Mamy tutaj trzy stopnie penetracji natury materii: pierwszy, odnoszący się do struktury powłoki elektronowej atomu; drugi, zajmujący się strukturą jądra atomowego jako układem neutronów i protonów oraz trzeci, mający na celu zbadanie struktury cząstek elementarnych. Wśród tych trzech dziedzin badań, z których każda odsłoniła nowy świat zjawisk, istnieją interesujące podobieństwa i uderzające różnice.

\* Tłumaczenia artykułu, który ukazał się w *Physics Today*, 23, No 8, 17 (1970), dokonano za zgodą Wydawcy i Autora.

## Atomy

W wieku dziewiętnastym fizyka i chemia były oddzielnymi naukami. Chemia zajmowała się „niefizycznymi“ pojęciami takimi, jak niepodzielne atomy o określonych, niezmiennych, charakterystycznych kształtach i własnościach — pojęciami, dla których nie było miejsca we współczesnej im fizyce klasycznej. Fizyka tego okresu zajmowała się zmieniającymi się w sposób ciągły własnościami ciał stałych, cieczy i gazów, opisywanymi takimi stałymi, jak np. współczynniki sprężystości, lepkości, przewodnictwa, stałe dielektryczne itd. Fizyka nie była w stanie wyjaśnić pochodzenia konkretnych wartości tych stałych, jej celem było opisanie zachowania się materii dla danego dowolnego zbioru ich wartości.

Fizyka wieku dziewiętnastego nie miała możliwości zajmowania się atomami i ich własnościami. Co prawda, odkryto elektron a sugestie dotyczące jego ważnej roli we wnętrzu atomu można znaleźć w pracach J. J. Thomsona, Hendrika A. Lorentza i im współczesnych, to jednak dwie wielkości związane z elektronem — jego ładunek  $e$  i jego masa  $m$  — nie determinują ani długości, ani energii. Potrzebny był do tego kwant działania  $h$ , wprowadzony w roku 1900 przez Maxa Plancka.

Rok 1900 nie oznaczał tylko zmiany wieku, ale też zmianę w fizyce, której kulminacją było „ufizycznienie“ pojęć chemicznych. Mechanika kwantowa, dziecko dwudziestego wieku, stała się podstawą zrozumienia zjawisk chemicznych, takich jak stabilność atomów, ich wymiarów i energii wzbudzenia. Ona też wprowadziła atomowe jednostki długości i energii (promień Bohra i stała Rydberga), wynikające z równowagi między przyciąganiem kolumbowskiem elektronów przez jądro i kwantowo-mechaniczną zerową energią elektronów w ograniczonej przestrzeni. Ona wprowadziła do fizyki element „morfologiczny“: podstawowe równania mechaniki kwantowej determinują charakterystyczne kształty i formy, które odzwierciedlają wewnętrzną symetrię układów atomowych i molekularnych.

Mechanika kwantowa dała także fizyczne wytłumaczenie rozkładu przestrzennego uporządkowania wiązań chemicznych. Obserwowana stałość i niezmiennosc właściwości chemicznych okazały się konsekwencjami dyskretnych, dobrze zdefiniowanych stanów kwantowych. Chemiczne idee i pojęcia okazały się zawarte w fizyce kwantowej i chemia przestała być odrębną dziedziną nauki.

### Intuicja Bohra

Kwantowa teoria atomu stanowiła podstawę podanego przez Nielsa Bohra wyjaśnienia periodyczności własności atomów w tablicy Mendelejewa.

Ale jak Bohr mógł podać to poprawne wyjaśnienie w roku 1921 przed sformułowaniem mechaniki kwantowej i — co jest jeszcze bardziej zaskakujące — przed sformułowaniem w roku 1925 zakazu Pauliego?

Bohr konstruował swoje atomy przez dodawanie do pierwiastków elektronu

po elektronie. Siła jego intuicji była tak wielka, że potrafił przewidzieć regułę dopuszczającą przebywanie na jednej orbicie najwyżej dwóch elektronów. Bohr odczytał ten fakt z właściwości widm atomowych; dostrzegł go studiując zjawisko okresowości w tablicy Mendelejewa. Usilnie starając się zrozumieć podwójne obsadzenie orbit mówił o „niechęci do przyjmowania więcej elektronów o tych samych liczbach kwantowych“. Wywnioskował, że „elektrony o tych samych  $m$  i  $k$  są możliwe jedynie w przypadku, gdy harmonicznie oddziałują“.

Pauli, wielki krytyk i purytanin, nie chciał traktować takiej próby jako wyjaśnienia. Przeczul już w roku 1921, że w prawidłowościach tych ukryta jest jakaś ważna zasada. Jako interesujące świadectwo postawy Pauliego przytoczę pewne uwagi, które znalazłem na marginesie pewnej książki w bibliotece Pauliego w CERNie. Książka ta zawiera słynny artykuł Bohra o *Aufbauprinzip*. W trakcie dyskusji na temat dodania jedenastego elektronu do zamkniętej powłoki dziesięciu elektronów Bohr robi uwagę: „Musimy oczekiwać, że jedenasty elektron (Na) wejdzie na trzecią orbitę“ („Wir müssen erwarten, dass das elfte Elektron (Na) in die dritte Bahn geht“). Pauli, wyraźnie zirytowany tym stwierdzeniem, pisze pospiesznie na marginesie z dwoma wykrzyknikami „Nie musimy tego oczekiwać, wiemy to z widm!!“ (Wir müssen es nicht erwarten, aber wir wissen es aus den Spektren!!“).

Cztery lata później, po wnikliwej analizie widm atomowych i zjawiska Zeemana w silnych polach, Pauli był w stanie jasno sformułować swoją zasadę, stawiając tym samym na mocnym gruncie wyjaśnienie Bohra układu okresowego pierwiastków. Piętnaście lat później, w roku 1940, Pauli wykazał, że jego zasada dla cząstek o spinie połówkowym nie jest dodatkową nową zasadą, lecz wynika nieuchronnie ze struktury relatywistycznego równania falowego.

Wraz z rozwojem mechaniki kwantowej pojęcia chemii przestały być „niefizyczne“. Zrobiony został ważny krok w kierunku jedności nauki. Różne oddziaływania między atomami, które niegdyś były wyrażone przez siły chemiczne — siły Van der Waalsa, adhezję, lepkość, oddziaływanie elektrostatyczne, włoskowatość — zostały zredukowane do jednego dobrze znanego oddziaływania, tj. do elektrostatycznego przyciągania między elektronami i jądrem. Efekty tego przyciągania są zdeterminowane w zależności od ilości przez prawa mechaniki kwantowej.

## Podstawowe liczby

Mechanika kwantowa atomów i molekuł jest rządzona przez dwie podstawowe liczby, których małe wartości są decydujące dla charakteru obserwowanych zjawisk: stałą struktury subtelnej  $e^2/\hbar c$  i wzajemny stosunek mas elektronu i nukleonu  $m/M$ . Jeśli stała  $e^2/\hbar c$  byłaby bliska jedności lub od niej większa, mechanika atomowa byłaby dominowana przez efekty relatywistyczne. Np. pary elektronowo-pozytonowe byłyby wtedy istotnymi składnikami atomów.

Gdyby stosunek mas,  $m/M$ , odpowiedzialny za strukturę molekularną, nie

był tak mały, fizyka i chemia różniłyby się całkowicie między sobą. Średnia odległość między jądrami w molekuale jest zdeterminowana przez rozmiar elektronowej orbitali, długość, która może być rozpatrywana jako amplituda zerowych drgań elektronów. Jądra podlegają tej samej sile co elektrony (III prawo Newtona), ale ich drgania zerowe zredukowane są przez czynnik  $(m/M)^{1/2}$ ; z tych względów są one dobrze zlokalizowane wewnątrz molekuly. Formują one jądrowy szkielet, który pozwala na ogromną różnorodność molekularnej architektury, obejmującą kryształy i makromolekuly. Gdyby masa protonu była tego samego rzędu wielkości co masa elektronu, nie byłoby chemii ani żadnych ciał stałych, a w dalszej konsekwencji żadnego życia i żadnych umysłów do rozpatrywania tego problemu.

Przyczyna powyższej różnicy mas jest nadal nieznana. Jest ona na pewno związana z istnieniem silnych oddziaływań między nukleonami i jest jednym z centralnych problemów współczesnej fizyki cząstek. Dopóki nie zrozumiemy źródła dużej masy nukleonów i małej masy elektronów oraz wartości ładunku elektrycznego mierzonego w jednostkach  $hc$ , nie możemy twierdzić, iż rozumiemy podstawowe przyczyny, które powodują, że otaczający nas świat jest taki, jakim go widzimy.

### Jądra atomowe

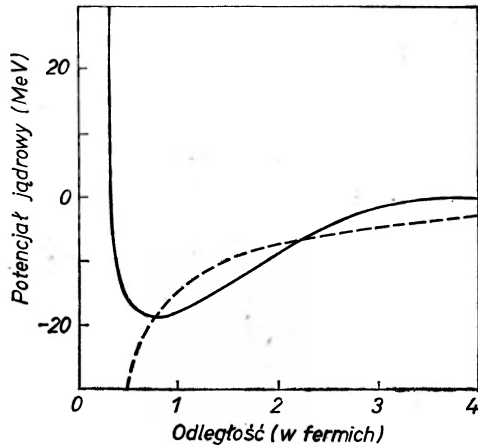
Nasz świat chemii i biologii może istnieć tylko w otoczeniu, w którym wymiany energii między cząstkami nie są zbyt gwałtowne i w którym są do dyspozycji dostateczne ilości energii do zainicjowania niegwałtownych zmian w strukturze molekularnej. Te łagodne warunki istnieją na Ziemi dzięki bezpiecznej odległości od gwiazd i dzięki ochronnemu działaniu osłony atmosferycznej. Większość materii w tym świecie istnieje w całkiem odmiennych warunkach. W środku gwiazd np. świat procesów jądrowych ma pierwszorzędne znaczenie. W świecie tym inna zasada uporządkowania jest odpowiednia. Na powierzchni Ziemi procesy jądrowe praktycznie nie zachodzą; występujące tu energie nie są wystarczające do ich zapoczątkowania. Spotykamy jedynie rzadkie przypadki tego typu procesów: naturalne pierwiastki promieniotwórcze, będące pozostałościami dalekiej przeszłości, kiedy to ziemską materią została prawdopodobnie wyrzucona w trakcie eksplozji supernowej.

### Siły jądrowe

Aby móc badać zjawiska jądrowe w naszych laboratoriach, musimy wywoływać je przy pomocy akceleratorów cząstek. Badania te bardzo się opłaciły, bo pozwoliły odkryć istnienie świata tak różnego a jednocześnie tak podobnego do naszego atomowego i molekularnego otoczenia. Przede wszystkim została odkryta nowa siła, działająca między nukleonami. Ta skomplikowana siła przedstawiona jest na rys. 1; odpychająca na odległościach mniejszych niż  $10^{-13}$  cm (1 fermi), staje się przyciągająca w obszarze między 1 i kilkoma fermi,



aby dalej na większych odległościach maleć wykładniczo do zera. Szczegóły działania tej siły zależą od względnych spinów i symetrii stanów kwantowych obu oddziaływujących cząstek.



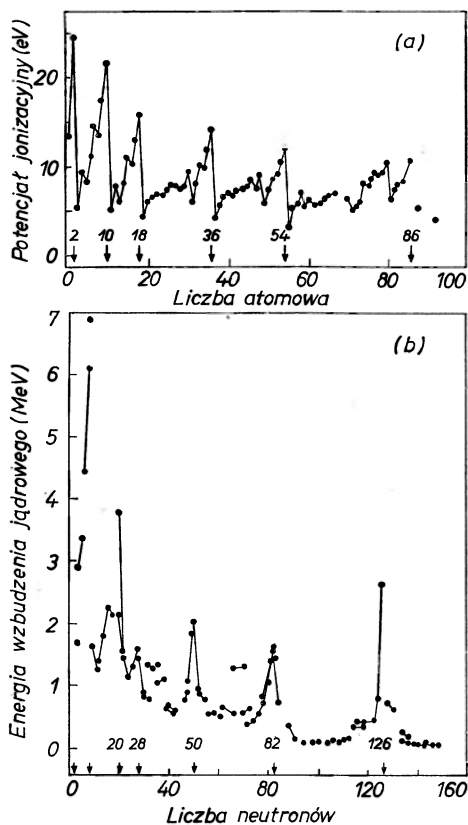
Rys. 1. Siły jądrowe są odpychające poniżej jednego fermi a przyciągające powyżej. Siły kulombowskie odpowiadające przeciwnym ładunkom równym  $3e$  mają krzywą potencjału zaznaczoną linią przerywaną. Kształt potencjału jądrowego jest podobny do kształtu potencjału molekularnego

W przeciwieństwie do siły elektrycznej, siła jądrowa nie może być zrealizowana w makroświecie. Makroskopowe pole elektryczne można wytworzyć przez skoncentrowanie wielu ładunków elektrycznych wewnątrz określonej objętości. Pola ładunków rozprzestrzeniają się daleko poza ten obszar i dodają się tworząc silne pole. Nie może to mieć miejsca w przypadku pola sił jądrowych, bowiem zasięg sił jądrowych jest niewiele większy od najmniejszej odległości, na jaką można zbliżyć nukleony.

Przybliżona wartość sił jądrowych w obszarze przyciągania jest porównywalna do przyciągania między dwoma ładunkami przeciwnych znaków o wartości  $3e$  każdy. Mając tę wartość możemy ocenić, że energie i rozmiary prostych jąder określone są dobrze znanymi wyrażeniami dla stałej Rydberga i promienia Bohra, z  $e$  zastąpionym przez  $3e$  i masą elektronu zastąpioną przez masę nukleonu. Wówczas energie jąder okazują się 200 000 razy większe, a wymiary jądrowe 20 000 razy mniejsze od odpowiednich wartości atomowych.

Pod wieloma względami fizyka jądrowa wydaje się powtórzeniem fizyki atomowej, z podobnymi widmami i liczbami kwantowymi. Istnieją jednak charakterystyczne różnice, jak np. nieobecność nadrzędnego pola sił, wywodzącego się z centralnej ciężkiej cząstki, i odmienna natura sił jądrowych, która powoduje przyciąganie między wszystkimi składnikami. W mechanice kwantowej jednakże, symetria zagadnienia jest czynnikiem determinującym szereg właściwości. Średnie pole przyciągające w jądrze, któremu przyporządkowany jest każdy nukleon, ma tę samą symetrię sferyczną co w atomie. Otrzy-

mujemy stąd podobne układy liczb kwantowych, podobny *Aufbauprinzip*, podobny układ okresowy właściwości jądrowych, z jądrami uporządkowanymi zgodnie z liczbą protonów i neutronów. Na końcach okresów znajdujemy



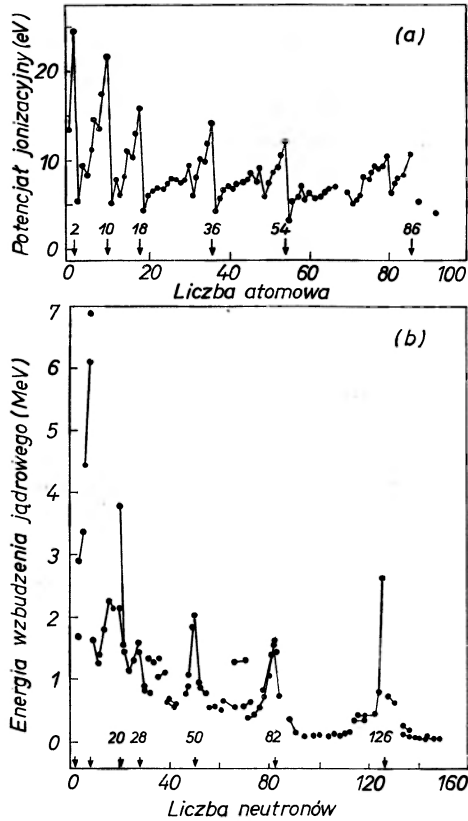
Rys. 2. Podobieństwo okresowości w atomach i jądrami są oczywiste na wykresach *a*) energii jonizacji atomów i *b*) energii wzbudzeń jąder atomowych. Największe energie występują dla gazów szlachetnych i jąder magicznych (strzałki), odpowiadających zamkniętym powłokom. Wzbudzenia jądrowe pokazane są dla pierwszych poziomów w jądrami parzysto-parzystych; linia ciągła łączy wszystkie jądra o tej samej liczbie protonów

jądra o zamkniętych powłokach i wysokich energiach wiązania. Te „magiczne” jądra są analogonami jądrowymi gazów szlachetnych. Rys. 2 ukazuje analogię między jądrowymi i atomowymi okresami na podstawie porównania energii jonizacji atomów z jądrowymi energiemi wzbudzenia. Ogólny charakter wykresów jest podobny, istnieją jednak istotne odchylenia.

### Odmienne właściwości

Analogia między widmami jądrowymi i atomowymi załamuje się w kilku punktach. Po pierwsze, porządek poziomów w uśrednionym potencjale jądra różni się od porządku w polu kulombowskim. Ponieważ siły jądrowe nie mają

mujemy stąd podobne układy liczb kwantowych, podobny *Aufbauprinzip*, podobny układ okresowy właściwości jądrowych, z jądrami uporządkowanymi zgodnie z liczbą protonów i neutronów. Na końcach okresów znajdujemy



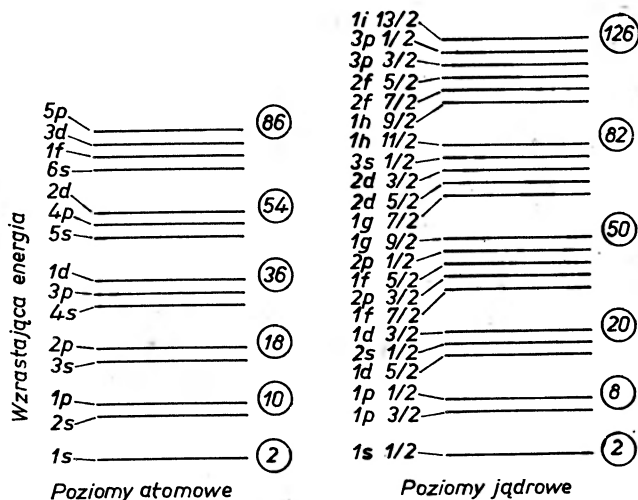
Rys. 2. Podobieństwo okresowości w atomach i jądrami są oczywiste na wykresach *a*) energii jonizacji atomów i *b*) energii wzbudzeń jąder atomowych. Największe energie występują dla gazów szlachetnych i jąder magicznych (strzałki), odpowiadających zamkniętym powłokom. Wzbudzenia jądrowe pokazane są dla pierwszych poziomów w jądrami parzysto-parzystych; linia ciągła łączy wszystkie jądra o tej samej liczbie protonów

jądra o zamkniętych powłokach i wysokich energiach wiązania. Te „magiczne” jądra są analogonami jądrowymi gazów szlachetnych. Rys. 2 ukazuje analogię między jądrowymi i atomowymi okresami na podstawie porównania energii jonizacji atomów z jądrowymi energiemi wzbudzenia. Ogólny charakter wykresów jest podobny, istnieją jednak istotne odchylenia.

### Odmienne właściwości

Analogia między widmami jądrowymi i atomowymi załamuje się w kilku punktach. Po pierwsze, porządek poziomów w uśrednionym potencjale jądra różni się od porządku w polu kulombowskim. Ponieważ siły jądrowe nie mają

osobliwości w środku jądra, poziom  $2s$  jest wyższy niż  $1p$ , jak pokazano na rys. 3, podczas gdy w polu kulombowskim porządek ten jest odwrócony. Po drugie, silne sprzężenie spin-orbita w jądrze zmienia liczby obsadzeń kolejnych



Rys. 3. Różnice w kolejności poziomów energetycznych wynikają z różnic sił atomowych i jądrowych. Nieobecność osobliwości w siłach jądrowych odwraca kolejność poziomów  $2s$  i  $1p$ ; sprzężenie spin-orbita zmienia liczby obsadzeń (zaznaczone w kółku) kolejnych powłok. Skala pokazuje tylko kolejność, a nie wartość energii

powłok, tak że końcom okresów odpowiadają inne liczby cząstek. Co więcej, ponieważ ma miejsce odpychanie pomiędzy elektronami w atomach i przyciąganie pomiędzy wszystkimi składnikami w jądrze, mamy do czynienia z odwróconą regułą Hunda. Reguła ta mówi, że podstawowy stan atomu jest stanem o najwyższej wielokrotności konfiguracji w ostatniej niezapełnionej powłoce, gdyż w tym stanie elektrony pozostają z dala od siebie. W jądrze przeciwnie, stan podstawowy ma najniższą wielokrotność, która jest równa zero dla dowolnej parzystej liczby obsadzeń. Stąd wszystkie jądra o parzystych liczbach protonów  $Z$  i neutronów  $N$  mają spin równy zero. Tylko nieparzyste liczby obsadzeń dają wkład do niezerowego momentu pędu.

Dalszą różnicą jest istnienie dwu typów składników jądrowych — neutronów i protonów — o prawie równej masie. Równoważność tych dwóch typów składników z punktu widzenia sił jądrowych prowadzi do przybliżonej degeneracji poziomów kwantowych, które różnią się jedynie tym, że neutrony są zastąpione przez protony. Degeneracja ta jest znoszona jedynie przez słabsze efekty elektryczne pochodzące od ładunku protonu. Dzięki tej degeneracji otrzymujemy nową symetrię i nową liczbę kwantową, spin izotopowy, który rządzi widmami jądrowymi.

Inną konsekwencją równości mas składników jądra jest brak wyraźnej lokalizacji lub dobrze zdefiniowanego środka we wnętrzu jądra. Toteż gdy

dwa jądra łączą się podczas reakcji jądrowej, produkt nie jest molekułą, lecz nowym jądrem. Np. dwa łączące się jądra tlenu dają jądro siarki. Nie tworzy się żaden szkielet lub superstruktura. W tym sensie możliwość tworzenia nowych struktur przez kombinację starych jest o wiele mniejsza w przypadku jąder niż atomów. Jednakże energia wyzwolana w trakcie łączenia się jąder jest  $10^6$  razy większa niż w reakcjach chemicznych.

Z powodu wzrastającego wraz z liczbą protonów efektu odpychania kulombowskiego istnieje górna granica liczby nukleonów, które mogą być związane w jądro. Możliwe, że jakiś specyficzny efekt powłokowy jest w stanie przesunąć tę granicę poza znane nam obecnie pierwiastki transuranowe. Także, w większej skali, przyciąganie grawitacyjne pomogłoby utrzymać nukleony obok siebie, jak to ma miejsce w ostatnio odkrytych gwiazdach neutronowych.

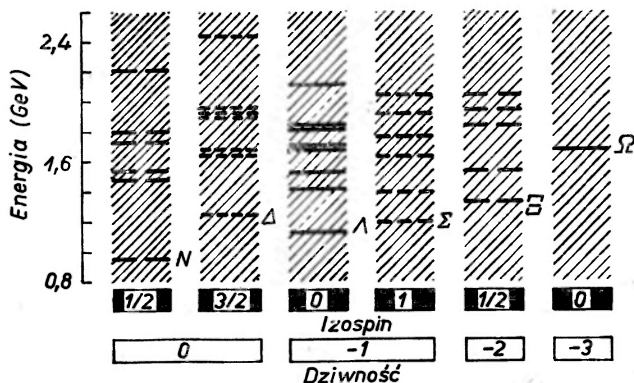
Inna nowa cecha pojawia się w świecie jądrowym. Przejścia między stanami kwantowymi o wyższej energii do stanów o niższej energii mają miejsce nie tylko poprzez emisję kwantów świetlnych, jak to ma miejsce w atomach, ale także poprzez emisję par leptonowych — elektronów i neutrin. Te emisje są przejawem zagadkowych słabych oddziaływań, które wykazują zdumiewające własności, jak np. niezachowanie symetrii prawo-lewo. One to pozwalają na przejścia między stanami o różnych ładunkach całkowitych. W ten sposób wszystkie jądra o tej samej liczbie nukleonów należą do tego samego systemu kwantowego niezależnie od ładunku. Układ jądrowy osiąga swój stan podstawowy przez kolejne przejścia do chwili, gdy będzie zawierać taką liczbę protonów, jaka odpowiada minimum energii.

### Nukleony i mezony

Trzecim stopniem w poznawaniu natury materii była penetracja struktury nukleonu. Okazało się, że nukleon zmienia swój stan, gdy bombarduje się go wiązką cząstek o energiach większych niż kilka setek MeV. Nukleon przechodzi do krótko żyjących „wzbudzonych“ stanów kwantowych, z których wraca do swego stanu podstawowego (neutron, proton) przez dokonującą się w różny sposób emisję różnicy energii. W widmie tych stanów „wzbudzonych“, przedstawionym na rys. 4, różnice energetyczne są rzędu  $10^8$  eV tj. około 1000 razy większe niż energie wzbudzenia jąder. Gdy zjawiska te zostały odkryte, stanów „wzbudzonych“ nie umieszczono w tym dobrze uporządkowanym układzie. Odnajdywano stan po stanie i każdy z nich traktowano jako nową cząstkę elementarną.

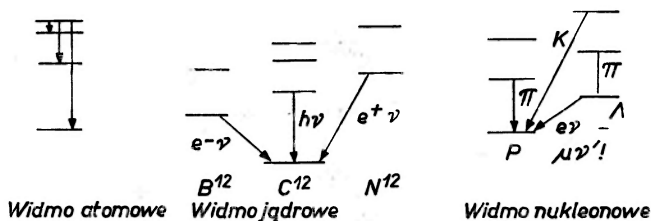
Po wnikliwym przestudiowaniu energii wzbudzeń, liczb kwantowych i produktów emisji Murray Gell-Mann, Kuzuhiko Nishijima, Juval Ne'eman i wielu innych przeniknęło ten pozorny chaos dużej liczby cząstek elementarnych i zaprowadziło w nim porządek przez wprowadzenie nowej liczby kwantowej „dziwności“ (lub hiperładunku) i teorio-grupowej klasyfikacji, SU3. Nowe cząstki oznaczone greckimi literami, jak np.  $\Delta$ ,  $\Sigma$ ,  $\Xi$  i  $\Omega^-$ , uznano za wzbudzone

stany nukleonu i zakwalifikowano do poszczególnych grup zgodnie z odpowiadającymi im wartościami określonych liczb kwantowych. Niektóre z tych liczb kwantowych, jak np. moment pędu i spin izotopowy, znane były z fizyki atomowej i jądrowej, ale pojęcie hiperładunku pojawiło się po raz pierwszy.



Rys. 4. Wiele „elementarnych“ cząstek zostało uznane za wzbudzone stany nukleonu z energiami 1000 razy większymi niż wzbudzenia jądrowe. Rozpadają się one na grupy scharakteryzowane wartościami liczb kwantowych jak izospin lub dziwność. Liczba kresek na każdym poziomie wskazuje wielokrotność stanów ładunkowych

To nowe królestwo zjawisk odkryło nie tylko nową liczbę kwantową, ale także nowe formy energii emitowanej lub absorbowanej w przejściach między stanami kwantowymi. Poza kwantami światła i parami elektronowo-neutronowymi emitowanymi w układach atomowych i jądrowych pojawiła się w tych

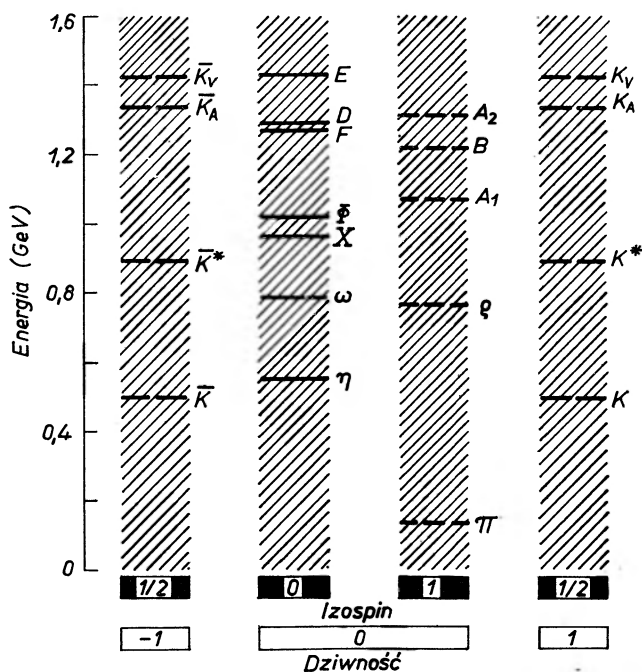


Rys. 5. Kwanty pól emitowane w trzech rodzajach widm. Kwanty świetlne (oddziaływanie elektromagnetyczne), pary leptonowe (słabe oddziaływania) i mezony (silne oddziaływania) charakteryzują odpowiednio atomowe, jądrowe i nukleonowe przejścia

przejściach nowa para leptonowa — para miuonowo-neutrinowa. Miuon jest ciężkim elektronem około 200 razy cięższym niż zwykły elektron. Ale rzeczywiście nową emitowaną lub absorbowaną formą energii są mezony. Rys. 5 pokazuje przykłady trzech typów kwantów pól i oddziaływań, w których one występują.

Jest wiele rodzajów mezonów; niektóre z nich obdarzone są spinem, ładunkiem lub hiperładunkiem. Duży zespół różnych mezonów może być skła-

syfikowany i zgrupowany w oparciu o te same liczby kwantowe, stosowane w przypadku widma nukleonu; tworzą one widmo mezonów, jak to pokazano na rys. 6. Podczas zmian stanu nukleonu różnice w liczbach kwantowych są



Rys. 6. Mezony klasyfikowane są w sposób podobny do widma nukleonu. Obie klasyfikacje są charakterystyką złożonej struktury, jak to proponuje model kwarków

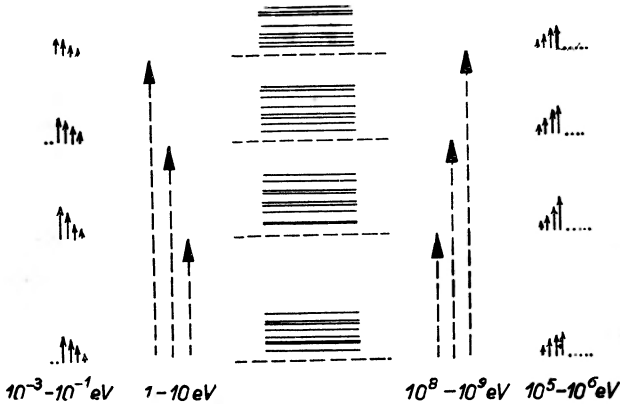
rzeczywiście dostarczane lub odbierane przez absorpcję lub emisję mezonów. W ten sposób klasyfikacja według liczb kwantowych wprowadziła porządek także w chaosie stanów mezonowych.

Czy jądra są podobne do molekuł?

Czy trzy rodzaje spektroskopii — atomowa, jądrowa i nukleonowa — są trzema równymi stopniami rozwoju w kierunku coraz to mniejszych cząstek? Istnieje w tej sprawie pewna wątpliwość. Bardziej właściwe byłoby rozpatrywanie jedynie 2 układów — atomu i nukleonu — a dopiero później zajmowanie się poziomami systemów złożonych; jak poziomami molekuł w pierwszym przypadku i jąder w drugim. Wtedy mielibyśmy widma atomowe i cząsteczkowe z jednej strony, a jądrowe i nukleonowe z drugiej. Ale wówczas widma jądrowe byłyby rozszerzeniem pojęcia widma nukleonowego w tym samym sensie, w jakim widma cząsteczkowe są rozszerzeniem pojęcia widm atomowych. Nukleony grają w jądrze rolę atomów w molekułach, a siły jądrowe rolę sił chemicznych. Ta analogia jest wzmocniona podobieństwami sił jądrowych i che-

micznych. Są one przyciągające przy większych odległościach i silnie odpychające przy małych i zależą od względnych spinów i symetrii partnerów.

Analogia ta jest uderzająca, gdy rozpatruje się szersze widmo wzbudzeń jądra, które zawiera nie tylko wzbudzenia układu proton-neutron, ale także wewnętrzne wzbudzenia nukleonów dane przez trzecią spektroskopię. Widmo otrzymuje się wówczas dodając wzbudzenia jądrowe do wewnętrznych wzbudzeń nukleonów, co bardzo przypomina widma molekularne, jak to widać na rys. 7.



Rys. 7. Superpozycja wzbudzeń jądrowych (czarne strzałki) i wewnętrznych wzbudzeń nukleonu (strzałki zaznaczone linią przerywaną) daje widmo podobne do widma molekularnego, gdzie wzbudzenia rotacyjno-oscylacyjne (czarne) dodane są do wzbudzeń elektronowych (linie przerywane). Być może siły jądrowe, podobnie jak molekularne, nie są siłami podstawowymi, ale wywodzącymi się z prostych i bardziej fundamentalnych sił

W pewnym sensie siły jądrowe są mniej efektywne niż siły chemiczne. Np.: wiązanie deuteronu jest tak słabe, że dysocjuje już wówczas, gdy wiruje z jednym zaledwie kwantem momentu pędu. Przeciwnie, wiązania dwuatomowych molekuł są w stanie oprzeć się sile odśrodkowej rzędu 20 do 40 jednostek momentu pędu. Podobną różnicę ilustruje fakt, że energia wiązania nukleonu wewnątrz jądra jest o wiele mniejsza od jego wewnętrznych energii wzbudzeń, podczas gdy w molekułach te dwie energie są porównywalne. Być może bardziej stosowne jest porównanie sił jądrowych z siłami Van der Waalsa między atomami o zamkniętych powłokach. Materia jądrowa odpowiadałaby wtedy nadciekłemu helowi. Analogia ta idzie bardzo daleko tłumacząc względnie niezależny ruch nukleonów w jądrze (model powłokowy) i pewne typowe właściwości widma.

Skomplikowany charakter sił jądrowych skłania nas do założenia, że nie są to siły tak fundamentalne jak np. przyciąganie elektrostatyczne. Być może są one efektem wywodzącym się z bardziej podstawowych zjawisk, mających miejsce we wnętrzu nukleonu, wynikiem czegoś bardziej potężnego i prostego, w ten sam sposób, w jaki siła chemiczna jest wynikiem prostego oddziaływania elektrostatycznego.



## Model kwarków

Powróćmy do stanów wzbudzonych nukleonów i mezonów. W przeciwieństwie do królestwa atomowego i jądrowego porządek odnaleziony w trzeciej spektroskopii jest jak dotąd empiryczny. Nie może on być wytłumaczony lub wyprowadzony z wewnętrznej dynamiki układu, bowiem dynamika ta jest w dużej mierze nieznana. Intrygującą osobliwością tego porządku jest to, że widma nukleonów i mezonów wykazują pewną cechę, wskazującą na złożone struktury. Widmo nukleonowe posiada pewne charakterystyczne właściwości układu 3-cząstkowego, w którym każda cząstka jest elementem typowego tripletu pewnych podcząstek o spinie połówkowym. Widmo mezonów wygląda jak widmo pary takich cząstek lub raczej cząstki i antycząstki.

Pomimo że tzw. „model kwarków“ jest w stanie wytłumaczyć dużą liczbę zjawisk związanych ze wzbudzonymi nukleonami i mezonami, to jednak jest on obarczony wieloma logicznymi trudnościami. W odróżnieniu od świata atomów i jąder, energie wzbudzenia mezonów i nukleonów są tego samego rzędu (czasem nawet większe) co energie odpowiadające masie spoczynkowej układu w stanie podstawowym. Toteż w dowolnym procesie oddziaływania obecne będą (rzeczywiście lub wirtualnie) pary cząstek. Jak dotąd nie ma systematycznej metody traktowania tej nowej cechy.

## Nierozwiązana zagadka

Struktura nukleonów i mezonów jest w dużym jeszcze stopniu nieznana. Nie wiemy, co determinuje siły między nimi, ani też dlaczego energia stanu podstawowego jest w szczególnym związku z masą elektronu, związku, który był decydujący dla własności materii, którą widzimy wokół nas. Nie możemy żądać zrozumienia chemii bez zrozumienia dlaczego protony i neutrony są tak ciężkie, jak to obserwujemy.

Właśnie rozpoczynamy uczyć się, jak mówić o tych obiektach i ich oddziaływaniach. Relacje dyspersyjne, algebra prądów i bieguny Regge są drogami i pojęciami, przy pomocy których obserwowane fakty można ułożyć w logiczny schemat dający się pogodzić z regułami teorii względności i pól kwantowych. Najprawdopodobniej będziemy musieli mieć wiązki o dużo większych energiach niż to ma miejsce obecnie, nim dowiemy się, co dzieje się wewnątrz tych struktur. Obecnie wszystko, co robimy, to pozwalamy im zderzać się oraz badamy, jak oddziałują i w jakich stanach kwantowych oddalają się od siebie. Jest to podobne do odgadywania struktury atomów poprzez badanie „niskoenergetycznych“ zderzeń atomowych, tych mianowicie, które wzbudzają atomy, ale ich nie rozbijają. Byłoby to postępowanie trudne i prawdopodobnie bezowocne.

Widmo wzbudzonych stanów jądrowych i mezonowych zostało odkryte mniej niż 10 lat temu. Biorąc pod uwagę fakt, że potrzeba było 52 lat na wytłumaczenie okresowego układu pierwiastków, nie powinniśmy zniechęcać się naszą obecną niemożnością wytłumaczenia widma cząstek elementarnych.

*Tłumaczył Andrzej Buras*

*Jerzy Jastrzębski*

Instytut Badań Jądrowych  
Świerk k. Otwocka

## Separacja izotopów na wiązce

### On-line Isotope Separation

*Abstract:* This article gives a description of the on-line isotope separation method for the study of nuclei far-off the beta stability line. The ISOL systems (Isotope Separator On Line) developed in different laboratories are reviewed. Some applications to the nuclear structure and nuclear reaction studies are presented.

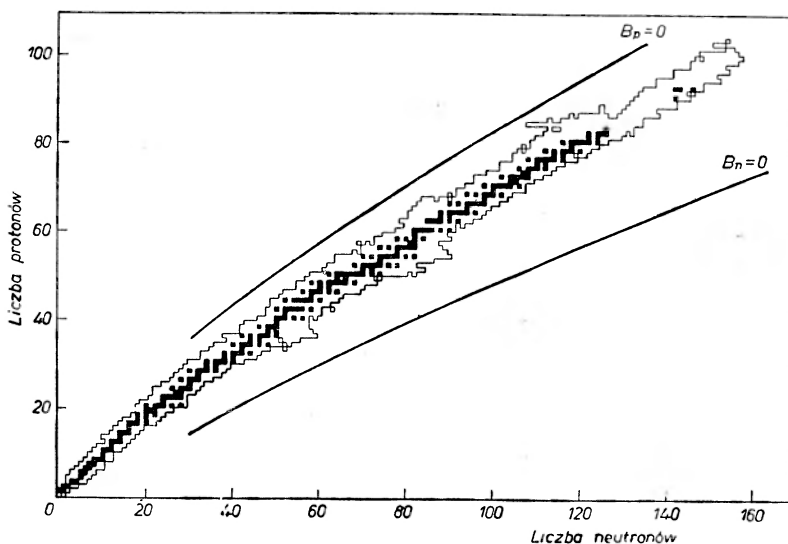
### 1. Wstęp

Od kilku lat coraz większym zainteresowaniem cieszą się w laboratoriach izotopy, położone względnie daleko od linii stabilności beta, tzn. charakteryzujące się dużym nadmiarem protonów lub neutronów w porównaniu z izotopami stabilnymi. Oczekuje się bowiem, że badanie tych jąder da nam szereg nowych wiadomości cennych nie tylko dla teorii struktury jądra czy reakcji jądrowych, lecz również dla innych dziedzin nauki czy nawet techniki.

Na klasycznym już dziś rysunku [1] (rys. 1) przedstawione są izotopy beta-stabilne i radioaktywne, o których posiadamy przynajmniej minimalny zakres informacji. Liniami ciągłymi oznaczone są przybliżone granice możliwości występowania izotopów, tzn. granice, poza którymi jądro w stanie podstawowym jest niestabilne ze względu na emisję protonu lub neutronu. Z rysunku tego widać, że istnieje możliwość co najmniej podwojenia ich liczby, jeżeli spełnione zostaną warunki eksperymentalne, konieczne do ich wytworzenia i obserwacji. Nie należy również zapominać, że dla wielu „znanych“ izotopów, pokazanych na tym rysunku, jedyną dotychczas zmierzoną wielkością był ich czas życia, lub w pewnych przypadkach wykazano jedynie ich istnienie.

Produkcja tych jąder jest możliwa na drodze reakcji jądrowych, takich jak kruszenie, rozszczepienie, fragmentacja czy wreszcie synteza lub reakcja przekazu przy bombardowaniu ciężkimi jonami. Jedynie w przypadku reakcji z ciężkimi jonami możliwe jest, poprzez odpowiedni dobór tarczy, jądra bom-

bardującego i energii, uzyskanie produktów końcowych względnie czystych. Pozostałe reakcje są na ogół bardzo mało selektywne i w bombardowanej tarczy powstaje jednocześnie kilkadziesiąt izotopów, różniących się zarówno liczbą protonów, jak i liczbą masową. Równocześnie przy oddalaniu się od linii stabilności czasy życia izotopów prędko maleją co, przy stosowaniu klasycznych metod chemii i separacji izotopowej, uniemożliwia często przeprowadzenie



Rys. 1. Izotopy beta-stabilne i radioaktywne, znane przed wprowadzeniem metod separacji na wiązce

jakichkolwiek rozsądnych pomiarów fizycznych na względnie czystych źródłach. By pokonać tę trudność stosuje się separację izotopową bezpośrednio na wiązce, budując tzw. systemy ISOL (Isotope Separator On Line). Pierwsze urządzenie tego typu skonstruowano w Kopenhadze już prawie dwadzieścia lat temu [2], jednak, prawdopodobnie z powodu braku w owym czasie dostatecznie dobrej aparatury jądrowej, czas jego eksploatacji był stosunkowo krótki. Następnie idea separacji na wiązce dojrzywała powoli w wielu laboratoriach i jak to się często zdarza, prawie równocześnie kilka projektów tego typu zostało zaakceptowanych do realizacji. Aktualnie pracuje ponad dziesięć separatorów na wiązce (p. tabl. III) i dalsze projekty są w trakcie akceptacji lub początkowej realizacji.

Zastosowanie separatorów we współczesnej fizyce i chemii jądrowej ma już bardzo długą historię. Artykuły przeglądowe np. [3—6, 97] podają szczegółowe dane dotyczące konstrukcji i wykorzystania separatorów izotopów pracujących poza wiązką.

Konstrukcja i zastosowanie separatorów izotopów na wiązce były omawiane w art. [6—9], jak również bardzo szeroko na konferencji w Lysekil [10]. Praca

przebiegowa na ten temat została wygłoszona na konferencji w Leyssin [11] i jest ona dostępną w materiałach tej konferencji. Zagadnienia związane z badaniami jąder dalekich od linii stabilności beta były również omawiane w pracy [98], która ukazała się niedawno w "Postęпах Fizyki".

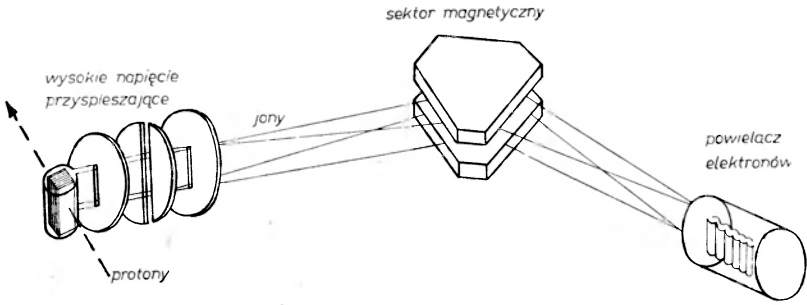
Artykuł niniejszy został przygotowany na podstawie wykładu wygłoszonego w szkole zimowej w Zakopanem w lutym 1970 r., ale zawiera szereg nowych wiadomości uzyskanych przez autora do października 1970 r. Z uwagi na przedki rozwój omawianej dziedzin i ogromną liczbę zarówno nowych rozwiązań technicznych, jak i uzyskanych wyników, nie jest możliwe w jednym artykule całkowite wyzerpanie poruszanego tematu. Dlatego ograniczyliśmy się tu do podania kilku zagadnień, związanych z techniką separacji na wiązce, jak również, w charakterze ilustracji, omówimy wybrane problemy, których badania przeprowadza się przy pomocy tych urządzeń. Nieco bardziej szczegółowo omówione będą dwa urządzenia tego typu, z których jedno pracuje w Orsay we Francji, a drugie w CERN-ie w Genewie.

## 2. Opis separacji na wiązce

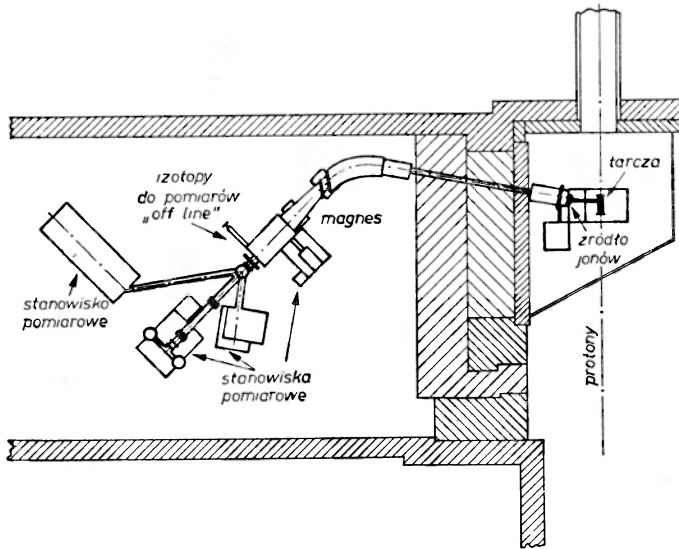
### 2.1. Wagi wstępne

Urządzenia ISOL można podzielić na dwie podstawowe grupy. Do pierwszej z nich zaliczamy separatory, w których produkty reakcji jądrowej zostają przed separacją zatrzymane. Działają one bezpośrednio z tarczy lub też dzięki odrzutowi zostają przeniesione do wychwytywacza (wprowadzamy tu ten termin jako odpowiednik ang. "catcher"), charakterystycznego się wysokim współczynnikiem dyfuzji. W jednym i drugim przypadku mamy do czynienia z atomami neutralnymi, które zostają zjonizowane albo w komorze tarczy, albo też w źródle jonów separatora, które na ogół umieszcza się możliwie najbliżej tarczy. Przed separacją magnetyczną (tzn. ze wzgl. na  $A$ ) dokonuje się często separacji pierwiastków (tzn. ze względu na  $Z$ ) wykorzystując zarówno różnice fizyczne między temperaturami parowania, potencjalami jonizacji, przedkosciami dyfuzji itp., lub też różnice absorpcji na związkach chemicznych, przez które produkty reakcji przechoǳą przed dojściem do źródła jonów. Wysokie napięcie separatora przyspiesza zjonizowane jednokrotnie atomy, które po wejściu do pola magnetycznego zostają rozdzielone w zależności od ich liczby masowej. Na kolektorze następuje już zbieżanie jonów jednej tylko masy, które są albo lizone bezpośrednio, albo też transportowane do urządzeń pomiarowych. W wielu przypadkach istnieje możliwość zainstalowania i równoczesnej pracy kilku kolektorów, tzn. równoczesnego badania kilku izotopów separowanego aktualnie pierwiastka. Dalsze rozważania tego artykułu ograniczają się głównie do separatorów tej grupy. W charakterze ilustracji rys. 2 i 3 pokazują schematycznie dwa urządzenia tego typu.

Druga grupa przyrządów separuje produkty reakcji jądrowych posiadające pełną energię kinetyczną i na ogół wielokrotnie zjonizowane. Separatory tego



Rys. 2. Zasada działania urządzenia w Orsay [17]. Tarcza o temperaturze ok.  $1600^{\circ}\text{C}$  bombardowana jest przez wiązkę protonów. Produkty reakcji zostają zatrzymane i po dyfuzji z materiału tarczy są jonizowane na powierzchni metalicznej. Jony przyspieszone przez różnicę potencjałów rzędu kilku kV są analizowane przez sektor magnetyczny i liczone przez powielacz elektronów



Rys. 3. Schemat urządzenia w CERN [19]. Tarcza o temperaturze pokojowej lub o temperaturze  $500\text{--}1000^{\circ}\text{C}$  bombardowana jest przez protony o energii 600 MeV. Produkty reakcji opuszczają tarczę na drodze dyfuzji i dochodzą do plazmowego źródła jonów. Jednokrotnie zjonizowane atomy radioaktywne przyspieszane są przez pole elektryczne rzędu 50 kV i transportowane na odległość kilku metrów do separatora izotopów. Istnieje możliwość pracy na kilku separowanych masach

typu, eliminując dyfuzję i jonizację, pozwalają na uzyskanie znacznie krótszych czasów transportu. Obecnie ustępują jednak jeszcze pierwszej grupie przyrządów pod względem świetlności lub zdolności rozdzielczej. Szczegółowy ich opis przekraczałby ramy niniejszego artykułu. Dlatego ograniczymy się tu tylko (tabl. III) do wymienienia pracujących urządzeń tego typu. Dokładniejsze informacje o zasadzie ich pracy mogą być znalezione w [12—14].

## 2.2. Czas transportu

Całkowity czas transportu, tzn. czas, jaki upływa między momentem zajścia reakcji jądrowej i momentem, w którym możliwa jest detekcja rozseparowanego produktu tej reakcji, zależy od konstrukcji tarczy i źródła jonów jak również od długości drogi, która musi być przebyta przez atomy neutralne (czas przelotu jonów może być zaniedbany). Oczekuje się biorąc pod uwagę obliczone z różnic mas energie rozpadu i opierając się na teorii rozpadu beta, że najkrótsze czasy życia jąder stabilnych ze względu na separację protonu lub neutronu będą rzędu  $10^{-2}$ — $10^{-3}$  s (rozpad  $\alpha$  może granicę tę jeszcze obniżyć w przypadku izotopów o niedostatku neutronów). By więc mieć możliwość badań w bardzo szerokim zakresie mas, należy dążyć do czasów transportu rzędu milisekund. Urządzenie pracujące na wiązce jest już jednak interesujące, o ile czas transportu będzie krótszy od ok.  $10^2$  s, granicy, poniżej której prace metodami klasycznymi stają się bardzo trudne lub wręcz niemożliwe.

Czas transportu można wyznaczyć eksperymentalnie. Mierzy się wówczas zanik w czasie natężenia zbieranych jonów (lub aktywności) izotopu stabilnego lub o znanym czasie życia, wyprodukowanego w reakcji jądrowej po wyłączeniu wiązki cząstek padających na tarczę (lub narastanie aktywności po włączeniu wiązki). Otrzymuje się krzywą  $i = i(t)$ , z której można wyznaczyć średni czas transportu w danych warunkach eksperymentalnych. W przypadku akceleratorów mających wiązkę pulsowaną, pomiary zależności  $i = i(t)$  przeprowadzać można między poszczególnymi impulsami cząstek [15].

Jednym z czynników opóźnienia w urządzeniach pracujących na wiązce jest dyfuzja produktów reakcji z materiału tarczy lub z wychwytywacza. Opierając się na elementarnej teorii dyfuzji można pokazać, że w pierwszym przybliżeniu średni czas  $\tau$  potrzebny cząstce na przebycie warstwy o grubości  $d$  wynosi

$$\tau_d = \frac{d^2}{6D},$$

gdzie  $D$  jest współczynnikiem dyfuzji zależnym od temperatury.

$$D = D_0 \exp[-E/RT] \text{ [cm}^2/\text{s]}.$$

Przy założeniu  $d = 5 \times 10^{-4}$  cm (1 mg/cm<sup>2</sup> grafitu) i żądaniu, by  $\tau_d$  był rzędu najkrótszych oczekiwanych czasów życia jąder dalekich od linii stabilności, otrzymuje się

$$D = 4 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}.$$

Bardzo mało materiałów w normalnych warunkach temperaturowych spełnia to wymaganie dla współczynnika dyfuzji. Dlatego stosuje się podwyższoną temperaturę tarczy lub wychwytywacza. Przykładowo w przypadku wychwytywacza tantalowego pracującego w temperaturze 2500°C współczynnik dyfuzji wynosi  $D = 1,5 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/s [16]. W tych warunkach średni czas dyfuzji pro-

duktów wbitych na drodze odrzutu do takiego wychwytywacza po reakcji z ciężkimi jonami wynosi ok. 5 ms.

Zależność  $i = i(t)$  w przypadku procesu dyfuzji nie może być jednak na ogół opisana przez prostą funkcję analityczną. Wychodząc z uproszczonych założeń można pokazać [17], że dla izotopu długożyciowego funkcja ta powinna mieć postać

$$i(t) = \sum_{i=1}^{\infty} A_0^i \exp(-\lambda_d^i t). \quad (*)$$

Współczynniki  $A_0^i$  i  $\lambda_d^i$  znajduje się rozkładając krzywą eksperymentalną  $i = i(t)$  na szereg krzywych wykładniczych. W tabelicy I pokazano średnie czasy dyfuzji i odpowiadające im natężenia zbieranych jonów (tzn. znormalizowane wielkości  $A_0^i \int e^{-\lambda_d^i t} dt$ ) w przypadku dyfuzji pierwiastków alkalicznych z grafitu [18].

Tabela I

Dyfuzja pierwiastków alkalicznych z cienkiej tarczy z wychwytywaczem grafitowym [18]

Materiał tarczy	Temperatura °C	Izotop dyfundujący	$\tau_d$ (ms)	$N_{total}$ %
U	1800	$^{128}\text{Cs}$	8,1	3
			45,1	9
			243	13
			2100	75
V	1650	$^{42}\text{K}$	5,8	6
			32,3	17
			178	26
			1360	51
Mo	1500	$^{24}\text{Na}$	4,5	22
			23	32
			73	40
			277	6
C	1800	$^7\text{Li}$	49,5	4
			247	21
			833	75

Czas dyfuzji jest jednym z najistotniejszych czynników opóźnienia w urządzeniach, w których tarcza jest umieszczona w komorze jonizacyjnej separatora (np. Orsay, Dubna, Berkeley).

Współczynnik dyfuzji gazów szlachetnych z pewnych materiałów (związki starynianowe i wodorotlenowe) jest bardzo wysoki, rzędu  $10^{-1}$  cm<sup>2</sup>/s. Tarcze z tych materiałów, w formie drobnoziarnistych proszków, stosowane były m. in. w ISOLDE [19]. Przy tak dużym współczynniku dyfuzji podstawowym czynnikiem opóźnienia jest w tym urządzeniu czas przejścia atomów neutralnych z tarczy do źródła jonów. Zależy on od rozmiarów i temperatury komory tarczy, linii transmisyjnej między tarczą a źródłem jonów i samej komory źródła

jonów. Stosując komorę tarczy o objętości 57 cm<sup>3</sup> (temperatura pokojowa), linię transmisyjną o długości 80 cm i średnicy 10 mm (temperatura pokojowa) i komorę źródła jonów o objętości 31,5 cm<sup>3</sup> i temperaturze 900°C z otworem wyjściowym o średnicy 1 mm uzyskano [20] dla <sup>118</sup>Xe średnie opóźnienie ok. 15 s. Funkcja  $i = i(t)$  opisana była przez prosty zanik wykładniczy. Dotychczas nie próbowano, ze względów technicznych, zastosowania materiałów o wysokiej emanacji gazów szlachetnych w urządzeniach posiadających tarczę umieszczoną w komorze jonizacyjnej.

Ze względu na opóźnienia w linii transmisyjnej w urządzeniach pracujących na wiązce neutronów z reaktora z tarczą umieszczoną w jego rdzeniu, korzystne jest umieszczenie również źródła jonów wewnątrz reaktora. Rozwiązanie takie, mimo trudności technicznych, zostało przyjęte w Studsvik [21] i jest opracowywane w Ames [22].

Przy stosowaniu tarcz w formie ciekłej [20] stwierdzono, że ważnym czynnikiem opóźnienia może być czas, potrzebny na wyparowanie produktów reakcji z powierzchni, natomiast konwekcja jest dostatecznie prędką, by utrzymać ich stałą koncentrację w roztopionym metalu. Funkcja  $i = i(t)$ , otrzymana dla tarcz ciekłych, może być również opisana przez prosty zanik wykładniczy. Wykonano pomiary dla różnych temperatur w przypadku separacji izotopów Cd z płynnej tarczy Sn i znaleziono, że stała tego zaniku  $\lambda_a$  zmienia się w funkcji temperatury wg zależności:

$$\lambda_a = k \exp[-k_1/T]. \quad (**)$$

O ile założyć, że zależność (\*\*) mająca formę ogólnego równania, opisującego prędkość reakcji chemicznej (równanie Arrheniusa) opisuje proces parowania, można przyjąć  $k_1 = Q/R$ , gdzie  $Q$  jest energią aktywacji reakcji parowania (ciepło parowania), a  $R$  stałą gazową. Wówczas, o ile głównym czynnikiem opóźnienia jest czas potrzebny na wyparowanie, a nie dyfuzja produktów w tarczy, znalezione tak ciepło parowania musi mieć wartość bliską danym, uzyskiwanym w pomiarach chemii fizycznej. Uzyskano dość dobrą zgodność wartości  $Q$  znalezionej z zależności (\*\*) i danych literaturowych odnośnie do ciepła parowania Cd z Cd (nie istnieją niestety dane dotyczące ciepła parowania Cd z Sn). Średni czas transportu izotopów Cd przy temperaturze tarczy 1000°C był  $\tau_a = 3,7$  min. Dla izotopów rtęci wyparowywanych z ołowiu przy temp. 680°C - wynosił on  $\approx 6$  min.

Ważną wielkością zarówno przy projektowaniu badań nad określonym izotopem krótkożyciowym, jak i przy wyznaczaniu przekrojów czynnych dla wielu izotopów krótkożyciowych jest tzw. czynnik redukcji. Definiuje się go jako stosunek między obserwowanym natężeniem jonów na kolektorze, a tym natężeniem, jakie byłoby w przypadku zerowego opóźnienia między produkcją i detekcją rozseparowanych jonów. W pracach [1], [23] wyprowadzono ogólne wzory na współczynniki redukcji w zależności od stałej dyfuzji  $D$ , parametrów konstrukcyjnych tarczy, źródła jonów, przewodu łączącego tarczę ze źródłem jonów itd.



Bardziej fenomenologiczne podejście do tego zagadnienia zastosowano w pracach [17, 24]. Rozpatrywano tam głównie opóźnienie pochodzące z dyfuzji, rozważania te mogą być jednak rozszerzone również na inne przypadki opóźnień. Prawdopodobieństwo opuszczenia wychwytywacza przez atom izotopu o stałej rozpadu  $\lambda_\beta$  rozpatruje się jako iloczyn prawdopodobieństwa dyfuzji i rozpadu radioaktywnego. (Po rozpadzie radioaktywnym atom jest dla kolektora „stracony“ — należy on już do innego, z założenia nie separowanego pierwiastka.) Można pokazać, że przy tym założeniu czynnik redukcji przy ciągłym bombardowaniu tarczy jest

$$F = \frac{n}{n_0} = \frac{\lambda}{\lambda_\beta + \lambda_d} = \frac{1}{1 + \tau_d/\tau_\beta}$$

o ile krzywa  $i = i(t)$  opisana jest przez jedną tylko stałą  $\lambda_d$ . Wzór ten może być łatwo uogólniony na dowolną liczbę wyrazów rozwinięcia (\*). Wielkości  $\lambda_d$  otrzymuje się z pomiarów eksperymentalnych.

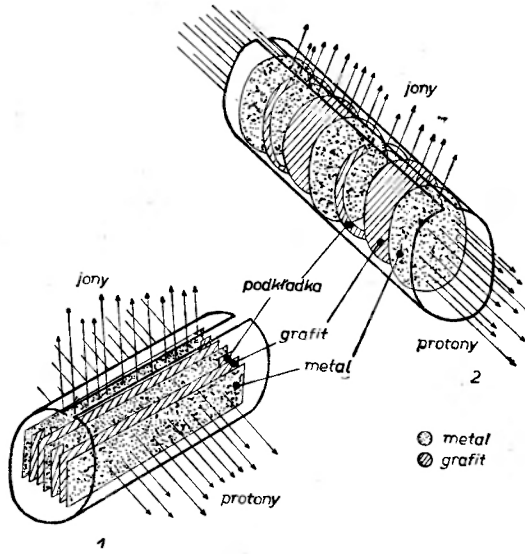
Analiza danych eksperymentalnych dotyczących opóźnień w wyniku dyfuzji i nie omawianych tu procesów separacji chemicznej przeprowadzona jest w pracach [25, 26].

### 2.3. Tarcza i źródło jonów

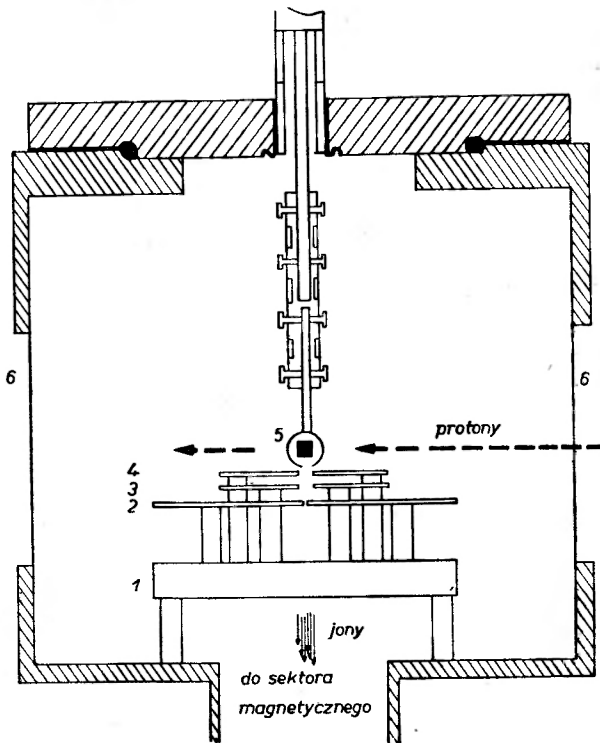
Zasada konstrukcji tarczy stosowanej w urządzeniu ISOL zależy zarówno od charakteru cząstek powodujących reakcję jądrową, jak i specyfiki problemów, do badania których dany separator jest przeznaczony.

Stosuje się dwa zasadniczo różne typy tarcz. Pierwszy nazywać będziemy umownie „tarczą cienką“ tzn. taką, którą produkty po reakcji jądrowej opuszczają na skutek odrzutu czy dzięki energii kinetycznej posiadanej po rozszczepieniu. Są one następnie zatrzymywane w wychwytywaczu. Grubość takich tarcz dochodzić może do kilku mg/cm<sup>2</sup> i zależy oczywiście od zasięgu produktów. Stosuje się je na ogół w przypadku reakcji jądrowych z cząstkami ciężkimi lub też w przypadku reakcji posiadających duże przekroje czynne (rozszczipienie). Tarcze cienkie mogą być umieszczone bezpośrednio w komorze źródła jonów. Rozwiązanie takie ma zasadnicze znaczenie przy obniżeniu czasu transportu (p. 2.2), ale nie zawsze ze względów technicznych jest łatwe do realizacji.

Cienka tarcza urządzenia w Orsay [17, 24] (rys. 4) składa się z ok. 100 płytek grafitowych (0,07 mm) spełniających rolę wychwytywacza. Na płytkach tych napyłony jest materiał, podlegający reakcji jądrowej. Całość otoczona jest ogrzewaną ( $\approx 1600^\circ\text{C}$ ) warstwą metaliczną (Ta lub W), na powierzchni której następuje jonizacja selektywna metali alkalicznych wytworzonych w tarczy (p. 2.4). Wysoka temperatura panująca w komorze tarczy wpływa na skrócenie czasu dyfuzji w wychwytywaczu. Komora tarczy jest więc w tym urządzeniu jednocześnie komorą jonizacyjną (rys. 5).



Rys. 4. Dwa rodzaje tarcz „cienkich” stosowanych w urządzeniu w Orsay



Rys. 5. Komora tarczy urządzenia w Orsay. 1 — izolator, 2, 3, 4 — płytki ogniskujące i przyspieszające, 5 — tarcza, 6 — cienkie okienko ze stali nierdzewnej

W urządzeniach nie ograniczających się jedynie do separacji pierwiastków alkalicznych stosuje się na ogół źródła jonów typu plazmowego, przy czym wyładowanie podtrzymywane jest dzięki obecności w źródle jonów dodatkowego gazu obojętnego. Wychwytywacz może być częścią źródła jonów, np. anodą grafitową [21, 28]. Ogólnie zastosowanie tarcz cienkich i wychwytywacza o dużym współczynniku dyfuzji pozwala na uzyskanie czasów transportu nawet do kilku milisekund.

O ile separator pracować ma na wiązce cząstek posiadających duży zasięg (np. ISOLDE na wiązce protonów o energii 600 MeV) stosowanie tarczy cienkiej związane byłoby z dużymi kłopotami technicznymi [29]. Utrzymując rozmiary komory tarczy w rozsądnych granicach, można ją stosować jedynie kosztem znacznego obniżenia intensywności. Może to być skompensowane dla izotopów krótkożyciowych przez krótkie czasy transportu, jest jednak nie opłacalne dla czasów rozpadu rzędu minut czy wielu sekund. Dlatego stosuje się tu drugi typ tarczy, tzw. „tarcze grube” [19], w przypadku ISOLDE o masie kilkuset gramów (rzędu 25 g/cm<sup>2</sup>), co odpowiada w przybliżeniu 1/10 zasięgu protonów o energii 600 MeV. Produkty reakcji jądrowej dyfundują lub zostają wyparowane bezpośrednio z materiału tarczy. Tarcze grube nie mogą być oczywiście umieszczone bezpośrednio w źródle jonów. W ISOLDE zastosowano linię transmisyjną długości ok. 80 cm między komorą tarczy a plazmowym źródłem jonów.

#### 2.4. Separacja pierwiastków

Separacja pierwiastków jest drugim, obok separacji magnetycznej, nieodzownym warunkiem uzyskania na kolektorze źródeł w formie czystej. Oczywiście, rozdzielać należy jedynie te pierwiastki, które wytwarzane są w badanym zakresie liczb masowych. Metody prędkiej chemii są obecnie rozwijane [25, 26], jednak dotychczas jest to prawdopodobnie najslabszy punkt programów ISOL. W istniejących urządzeniach separacji pierwiastków dokonuje się przede wszystkim metodami fizycznymi.

W pracach grupy z Orsay wykorzystano możliwość selektywnej jonizacji pierwiastków alkalicznych (tzw. jonizacja na powierzchni). Produkty reakcji jądrowej po dyfuzji z wychwytywacza padają na powierzchnię metaliczną (o temp. ok. 1600°C) [17, 24] lub grafitową [30]. Dla każdego pierwiastka ustala się równowaga między atomami neutralnymi i zjonizowanymi wg prawa Saha-Langmuir:

$$\frac{n^+}{n_0} = A \exp \{ (W - \varphi) / kT \},$$

gdzie  $W$  jest pracą wyjścia, a  $\varphi$  potencjałem jonizacji. Stosunek  $n^+/n_0$  jest znacznie większy dla pierwiastków alkalicznych w porównaniu z innymi produktami reakcji jądrowej. W tablicy II, wziętej z pracy [6], pokazane są stosunki  $n^+/(n^+ + n_0)$  dla pierwiastków alkalicznych i sąsiadujących z nimi pierwiastków z innych grup chemicznych. Z tabeli tej widać, że jonizacja powierzchniowa jest równocześnie doskonałą metodą separacji chemicznej.

Tablica 11

Wydajność jonizacji i separacja chemiczna przez jonizację powierzchniową na ogrzanej powierzchni metalicznej [6]

	$\frac{\text{Li}^+}{(\text{Li}+\text{Li}^+)}$	$\frac{\text{Li}^+ / (\text{Li} + \text{Li}^+)}{\text{Be}^+ / (\text{Be} + \text{Be}^+)}$	$\frac{\text{Na}^+}{(\text{Na} + \text{Na}^+)}$	$\frac{\text{Na}^+ / (\text{Na} + \text{Na}^+)}{\text{Al}^+ / (\text{Al} + \text{Al}^+)}$	$\frac{\text{K}^+}{(\text{K} + \text{K}^+)}$	$\frac{\text{K}^+ / (\text{K} + \text{K}^+)}{\text{Ca}^+ / (\text{Ca} + \text{Ca}^+)}$	$\frac{\text{Rb}^+}{(\text{Rb} + \text{Rb}^+)}$	$\frac{\text{Rb}^+ / (\text{Rb} + \text{Rb}^+)}{\text{Sr}^+ / (\text{Sr} + \text{Sr}^+)}$	$\frac{\text{Cs}^+}{(\text{Cs} + \text{Cs}^+)}$	$\frac{\text{Cs}^+ / (\text{Cs} + \text{Cs}^+)}{\text{Ba}^+ / (\text{Ba} + \text{Ba}^+)}$
Ta 1500°	$2 \times 10^{-4}$	$10^{10}$	$10^{-3}$	350	0,15	$10^4$	0,38	6000	0,78	1000
Ta 1800°	$6 \times 10^{-4}$	$3 \times 10^8$	$2,6 \times 10^{-3}$	350	0,17	5000	0,37	2000	0,73	360
Re 1500°	$6,6 \times 10^{-2}$	$3 \times 10^{10}$	0,29	140	0,99	1000	0,99	76	1	4,5
Re 1800°	$8,6 \times 10^{-2}$	$10^9$	0,30	65	0,98	500	0,99	45	1	4

O ile nie ogranicza się badań jedynie do pierwiastków alkalicznych, można w pewnych przypadkach korzystać z różnic lotności par produktów reakcji jądrowych. Metoda ta jest powszechnie stosowana w ISOLDE. W temperaturze pokojowej gazy szlachetne dyfundują łatwo z tarcz w formie proszków: Xe z  $\text{CeO}_2 \cdot (\text{H}_2\text{O})_x$ ; Kr z  $\text{ZrO}_2 \cdot (\text{H}_2\text{O})_x$ , czy wreszcie Ar z  $\text{TiO}_2 \cdot (\text{H}_2\text{O})_x$ , podczas gdy pozostałe produkty reakcji jądrowej zostają w tej temperaturze zatrzymane w materiale tarczy. Rozszerzenie tej metody polega na stosowaniu tarcz ciekłych o odpowiedniej temperaturze. Przykładowo w temperaturze 300-700°C jedynie rtęć dyfunduje w sposób obserwowalny z tarczy ołowianej; w temperaturze 600-1000°C kadm jest jedynym produktem obserwowalnym z tarczy cynowej.

Pierwszym krokiem do rozdzielania pierwiastków metodami chemicznymi „on-line“ były w ISOLDE próby uzyskania izotopów Sb i Sn chemicznie rozseparowanych z tarczy Te [31]. Produkty reakcji przechodzą przez przewód pyreksowy, łączący tarczę ze źródłem jonów i odpowiednio przygotowany chemicznie. W zależności od sposobu tego przygotowania tylko Sn lub tylko Sb dochodzą do źródła jonów separatora. Obecnie metoda ta jest jednak jeszcze w stadium prób.

Można przewidzieć, że wymagania separacji izotopów na wiązce wpłyną w przyszłości poważnie na rozwój szybkich metod chemicznych, opracowanych dotychczas jedynie dla nielicznych przypadków.

## 2.5 Separator izotopów

Separatory izotopów umieszczone na wiązce nie różnią się na ogół zasadą działania od innych laboratoryjnych urządzeń tego typu. Szczegóły konstrukcji zostały jednak w wielu wypadkach dostosowane specjalnie do wymagań pracy na wiązce.

Jedną z modyfikacji często stosowanych jest umieszczenie źródła jonów w pobliżu tarczy, a separatora poza osłoną radiologiczną. Wymaga to opracowania transportu jonów na odległości kilku do kilkunastu metrów przed ich analizą magnetyczną.

Duże znaczenie mają takie parametry separatora jak zasada ogniskowania (ogniskowanie punktowe), rozbieżność wiązki poza płaszczyznę ogniskującą, dyspersja czy wreszcie zdolność rozdzielcza. Odpowiedni dobór tych parametrów jest istotny dla jednoczesnego badania kilku separowanych mas, co ma znaczenie dla maksymalnego wykorzystania czasu akceleratora czy reaktora. Ogniskowanie punktowe jest istotne również przy pomiarach przy pomocy detektorów półprzewodnikowych i pewnych typów magnetycznych spektrometrów beta. W separatorach z polem jednorodnym może być ono zrealizowane dzięki polu rozproszonemu elektromagnesu (kąt odchylenia 55°, p. np. praca [32]) lub też przez dodatkowe ogniskowanie elektrostatyczne wiązki jednej masy na kolektorze. Pierwsza z tych metod jest oczywiście bardziej wygodna przy jednoczesnej pracy z wieloma masami. Dąży się do maksymalnego zmniejszenia rozbieżności-wiązki poza płaszczyznę ogniskującą, by ułatwić jej wyprowadzenie

poza komorę dyspersyjną separatora do urządzeń pomiarowych, znajdujących się często w odległości kilku metrów (zarówno ze względu na tło, jak i zajmowaną przestrzeń). Znaczenie dużej dyspersji i dobrej zdolności rozdzielczej są tu również oczywiste.

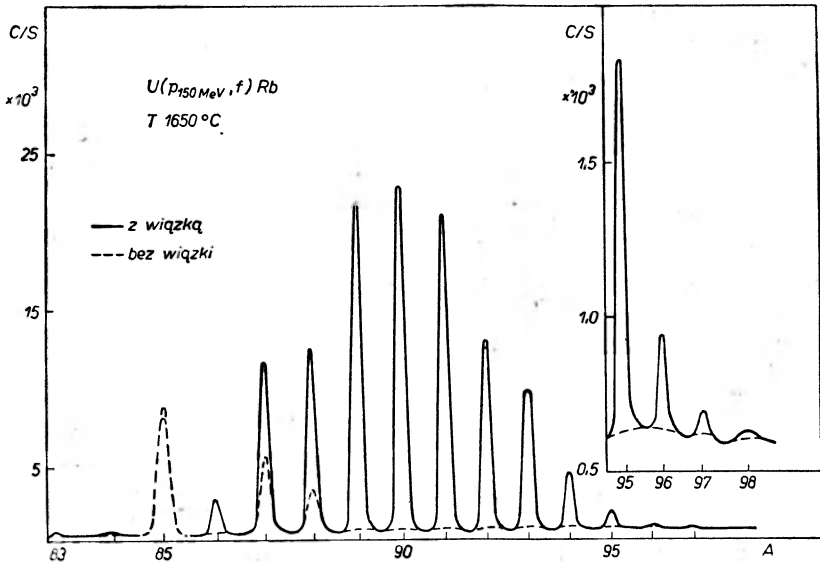
Separator izotopów skonstruowany w CERN-ie [32] (i w kilku innych laboratoriach) jest urządzeniem pozwalającym na jednoczesne wykorzystanie przynajmniej czterech mas w pracy na wiązce. Dysponuje się dużą dyspersją. Przykładowo, w okolicach nuklidów o  $A \approx 200$  odległość między sąsiednimi masami wynosi ok. 9 mm a średnica obszaru, na którym zbierana jest aktywność, ok. 2 mm. Zanieczyszczenia masami sąsiednimi są rzędu  $10^{-3}$  do  $10^{-2}$  w zależności od warunków pracy separatora (m. in. jakość próżni) oraz warunków fizycznych takich, jak przekroje czynne i czasy życia izotopów. Możliwa jest jednoczesna obserwacja izotopów w zakresie  $M_0 \pm 15\%$ .

Grupa w Orsay zastosowała standardowy spektrometr mas typu Niera. Przyrząd ten może dać na kolektorze tylko jedną masę jednocześnie, pozostałe masy zostają zatrzymane przez diafragmy. (Zanieczyszczenia masami sąsiednimi są rzędu  $2 \times 10^{-3}$ , [33].) Spektrometr ten jest urządzeniem stosunkowo małym (ciężar całego urządzenia nie przekracza 800 kg). Dlatego możliwy jest jego transport i wykorzystywanie w ten sposób wiązek z różnych akceleratorów czy też neutronów z reaktora. Aktualnie trzy spektrometry tego typu są wykorzystywane przez grupę w Orsay.

### 3. Metody pomiarów

Uzyskiwanie danych przy pomocy systemów ISOL, mimo że w wielu przypadkach analogiczne do metod stosowanych w spektroskopii klasycznej, wymaga czasami rozwiązań zmodyfikowanych lub zupełnie nowych. Dla ilustracji omówimy metodę pomiarów przekrojów czynnych stosowaną przez grupę w Orsay. Mierzy się bezpośrednio liczbę jonów danego izotopu, wytworzonego na drodze reakcji jądrowej stosując do tego tzw. powielacze elektronów. Dają one możliwość detekcji indywidualnych jonów, o ile na wyjściu powielacza stosować dostatecznie prędkie układy dyskryminujące i zliczające. Metoda ta może być więc używana zarówno dla izotopów stabilnych, jak i radioaktywnych. Ponieważ urządzenie w Orsay pozwala na zbieranie tylko jednej masy, zastosowano tam przyspieszające pole elektryczne zmienne. Amplituda dobrana jest w ten sposób, by dla danego pola magnetycznego izotopy w interesującym zakresie były kolejno przepuszczone przez diafragmę spektrometru. Metoda taka pozwala na uniknięcie błędów spowodowanych zmianami natężenia cząstek padających czy zmianami w wydajności źródła jonów itp. W praktyce, dla uniknięcia dyskryminacji masowej (zmiana wydajności w zależności od  $A$ ) pomiary przeprowadza się kolejno dla dwóch lub trzech izotopów. Impulsy pochodzące od detekcji indywidualnych jonów podawane są na analizator pracujący w układzie „multi-scalar“, przy czym impuls wyzwalający sprzężony

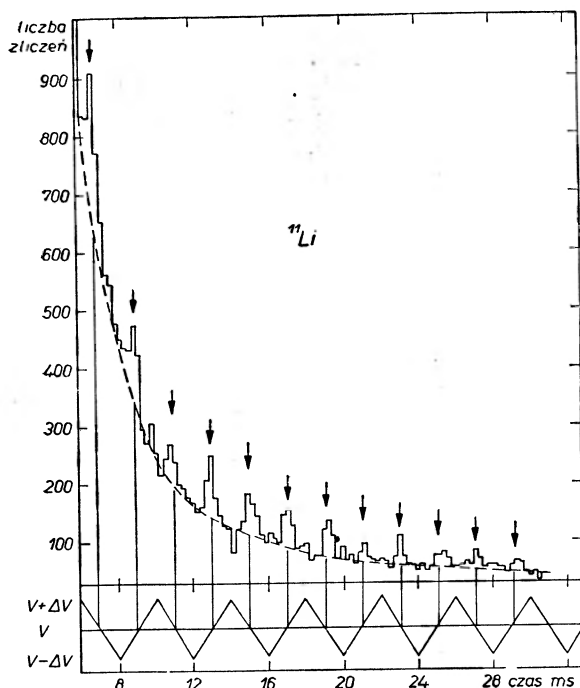
jest z oscylacją amplitudy pola elektrycznego. Rys. 6 pokazuje widmo izotopów Rb otrzymane przy rozszczepieniu  $U$  naturalnego protonami o energii 150 MeV [24]. Dla uzyskania względnych przekrojów czynnych liczbę zliczeń odpowiadających danej masie koryguje się ze względu na rozpad danego izotopu w czasie dyfuzji, w sposób opisany w 2.2. Metodę pulsującego pola elektrycznego wykorzystano również w pracy [34] do pomiaru czasu życia  $^{11}\text{Li}$  i  $^{27-31}\text{Na}$ . Rysunek 7 pokazuje rozpad i dyfuzję atomów  $^{11}\text{Li}$  i zanikające tło po impulsie protonowym (PS w CERN-ie). Czas dyfuzji wyznaczono przy pomocy analogicznego pomiaru dla stabilnego  $^6\text{Li}$ . Po poprawce na czas dyfuzji znaleziono półokres rozpadu  $^{11}\text{Li}$  równy  $8,5 \pm 1,0$  ms.



Rys. 6. Widmo izotopów Rb otrzymane przy rozszczepieniu uranu naturalnego protonami o energii 150 MeV [24]

Ważnym problemem przy pomiarach spektroskopii jądrowej są narastające aktywności łańcucha radioaktywnego. W przypadku względnie długich czasów życia (kilka sekund i więcej) możliwe jest stosowanie mechanicznego „liniowego” transportu zebranej na kolektorze aktywności do licznika znajdującego się na zewnątrz separatora, a następnie po zakończeniu pomiaru, usunięcie źródła posiadającego zbyt dużą aktywność izotopów filiacyjnych. Proces ten powtarza się wielokrotnie w sposób zautomatyzowany aż do zebrania odpowiedniej statystyki. Aktywność zbiera się na taśmie aluminiowej lub plastikowej. Opis transporterów tego typu znaleźć można np. w pracach [36].

Izotopy krótkożyciowe muszą być już mierzone bezpośrednio „na wiązce” jonów albo w komorze deflekcyjnej separatora [37], albo w komorze, do której wiązka ta jest wyprowadzona. Usuwanie narastających aktywności odbywać się może przez ciągły ruch taśmy zamkniętej. Możliwe jest również zastosowanie



Rys. 7. Pomiar czasu życia  $^{11}\text{Li}$  [34] (p. tekst)

transporterów rotacyjnych. W prostych przypadkach odróżnia się poszczególne izotopy łańcucha radioaktywnego w oparciu o ich oczekiwane czasy życia. Inną metodą, pozwalającą na określenie liczby  $Z$  mierzonej aktywności, jest pomiar energii promieniowania rentgenowskiego [21] przy pomocy detektora półprzewodnikowego i ew. koincydencje z tym promieniowaniem.

#### 4. Przegląd urządzeń ISOL

W tabelicy III przedstawiono charakterystyki większości urządzeń będących obecnie w eksploatacji, przeznaczonych do separacji izotopów na wiązce. Część z nich korzysta z wiązki neutronów z reaktora, które w tarczy rozszczepialnej produkują izotopy o niedostatku protonów. W innych wykorzystana jest reakcja kruszenia czy reakcje z ciężkimi jonami dające głównie w przypadku tarcz względnie ciężkich izotopy o niedostatku neutronów. Wreszcie wykorzystanie protonów wysokiej energii na tarczach rozszczepialnych pozwala na uzyskanie zarówno lekkich, jak i ciężkich izotopów danego pierwiastka.

W tabelicy III nie uwzględniono urządzeń tzw. „semi-on-line“, tzn. separatorów połączonych z akceleratorem przy pomocy pneumatycznego transportu próbek. Urządzenia takie nie pracują w sposób ciągły i zaliczyć je można do grupy pośredniej między klasycznymi urządzeniami separującymi aktywności poza wiązką a kompletnymi zestawami do pracy na wiązce.



## Separatory izotopów pracujące na wiązce

Ip.	Laboratorium	Urządzenie aktywujące i natężenie	Charakterystyka urządzenia ISOL	Charakterystyka tarczy i źródła jonów	Materiał tarczy	Separowane pierwiastki	Typowy średni czas transportu	Przykł. obs. izot. krótkożytych	Zastosowania	Literatura
1	Institut de Physique Nucléaire ORSAY, Francja	S. Cyklotron 150 MeV <i>p</i> Orsay $5 \times 10^{11}$ p/s P. S. 20 GeV <i>p</i> CERN $7 \times 10^{11}$ p/11 s Synchrotron 3 GeV <i>p</i> Saclay $3 \times 10^9$ p/13 s S. Cyklotron 50 MeV <i>p</i> Lyon Reaktor Saclay $10^8$ n/cm <sup>2</sup> s	Laboratoryjny spektrometr mas typu Niera; 60° magnes, <i>R</i> = 15 cm. Ciężar ok. 800 kg. Całk. wydajność 4% dla Rb i Cs	Cienka tarcza, prędko dyfuzja z grafitu o temp. 1600°C, selektywna jonizacja pierwiastków alkalicznych; tarcza w komorze jonizacyjnej	Unat. 300 mg/cm <sup>2</sup> <sup>235</sup> U 25 mg/cm <sup>2</sup> C 280 mg/cm <sup>2</sup> Si 1-10 mg/cm <sup>2</sup> <sup>181</sup> Ta, <sup>92-100</sup> Mo Th	Pierwiastki alkaliczne (Li, Na, K, Rb, Cs)	0,1-2 s (dyfuzja w graficie)	<sup>4</sup> Li 8 ms <sup>31</sup> Na 10 ms <sup>87</sup> Rb 135 ms	Pomiary $\sigma$ , spektroskopia jądrowa, opóźnione neutrony	[17, 24, 33]
2	CERN, Genewa, Szwajcaria (ISOLDE)	S. Cyklotron 600 MeV <i>p</i> $3 \times 10^{11}$ p/s	Separator izotopów typów „CERN”; magnes 55°, <i>R</i> = 1,5 m. Ogniskowanie punktowe polem rozproszonym. Zakres mas Mo $\pm$ 15%. Transport	Gruba tarcza w stanie ciekłym lub w formie proszku. Separacja pierwiastków przez warunki temp. i różnice ciśnień par oraz sel. abs. chem.	Ti 112 g Zr 150 g Sn 203 g Ce 135 g Pb 343 g Th 197 g Ge	Ar Kr Cd Xe Hg Rn Zn	$\approx$ 15 s dla gazów szlachetnych (głównie dyfuzja). 2-5 min. dla tarcz ciekłych	<sup>178</sup> Hg 0,4 s <sup>115</sup> Xe 19 s <sup>202</sup> Rn 13 s	Spektroskopia jądrowa: $\alpha$ , $\beta$ , $\gamma$ $Q_{\alpha}$ , $Q_{\beta}$ , $S_{\beta}$ . Opóźnione protony	[19]

			jonów na odległość 3 m od źródła jonów do separatora. Całk. wydajność 1-5%. Zanieczyszczenia $10^{-2}$ - $10^{-3}$	Tarcza poza źródłem jonów (80 cm). Plazmowe źródło jonów			(głównie parowanie)			
3	Princeton University, Princeton, N.J., USA (POLARIS)	Synchrotron 3 GeV $p$ $6 \times 10^{11}$ p/s (planowane: Sector focus cyclotron 45 MeV $p$ , 65 MeV $\alpha$ , 80 MeV $^3\text{H}$ )	Separator izotopów typu skandynawskiego; $90^\circ$ magnes, $R = 2$ m. Pole jednorodne, ogniskowanie liniowe. Transport na odległość 5 m od źródła jonów do separatora	Gruba tarcza w stanie ciekłym. Separacja pierwiastków przez warunki temp. i różnice ciśnień par. Tarcza poza źródłem jonów	Pb	Hg	6 min.	$^{186}\text{Hg}$ 1,4 m	Spektroskopia jądrowa	[83, 84]
4	ZIBJ Dubna (EMS-NAPTI)	Cyklotron ciężkich jonów U-300	Separator izotopów typu „DUBNA“. Odchylenie $90^\circ$ , $R = 0,7$ m. Ogniskowanie punktowe polem rozproszonym. Wydajność do 50% (Rn)	Cienka tarcza metaliczna, wychwytywacz tantalowy o temp. $2500^\circ\text{C}$ . Plazmowe źródło jonów	Ta Pb	Bi Ra, Rn	5 ms; dyfuzja z wychwytywacza tantalowego	$^{213}\text{Rn}$ 20 ms $^{215}\text{Ra}$ 1,6 ms	Spektroskopia jądrowa; poszukiwanie pierwiastków transuranych; poszukiwanie lekkich izotopów o nied. prot.	[16, 28, 85]

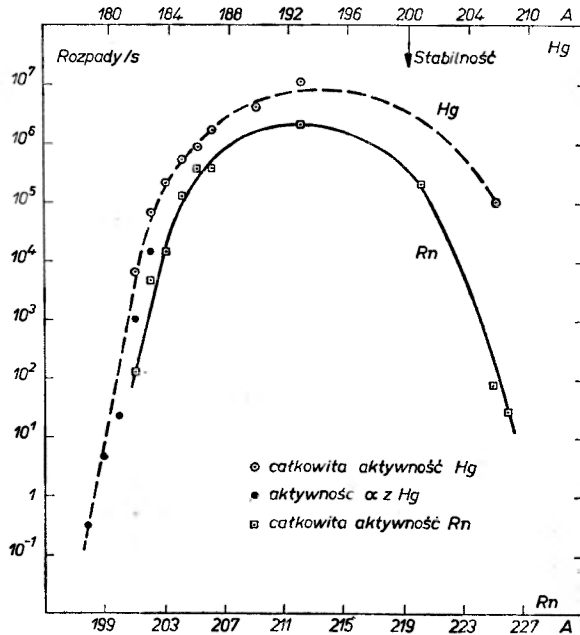
Lp.	Laboratorium	Urządzenie aktywujące i natężenie	Charakterystyka urządzenia ISOL	Charakterystyka tarczy i źródła jonów	Materiał tarczy	Separowane pierwiastki	Typowy średni czas transportu	Przykł. obs. izot. krótkożytych	Zastosowania	Literatura
5	ZIBJ Dubna	Cyklotron ciężkich jonów U-300	Separator wypełniony gazem, typu Cohena, odchylenie 60°, $R = 0,8$ m. Separacja niespowolnionych prod. reakcji. Zdoln. rozdz. 3%; (1/2 wys.); wydajność $\approx 15\%$ dla tarcz ok. 2 mg/cm <sup>2</sup>	Cienka tarcza (optimum 2 mg/cm <sup>2</sup> dla 200 MeV <sup>40</sup> Ar) bez wychwytywacza. Jonizacja po reakcji jądrowej	<sup>68</sup> Zn i inne	Ag (badanie własności separatora)	rzędu $\mu$ s		Poszukiwanie radioaktywności protonowej	[14]
6	Forskningsinstitutet for Atomfysik, Stockholm, Szwecja (PINGIS)	Cyklotron 43 MeV <sup>4</sup> He $3 \times 10^{11}$ a/s (planowane 126 MeV <sup>12</sup> C, 147 MeV <sup>14</sup> N)	Separator izotopów typu skandynawskiego	Cienka tarcza umieszczona w źródle jonów separatora (folia)	Pt 160 mg/cm <sup>2</sup>	Hg			Spektroskopia jądrowa (pomiaru wstępne)	[89]
7	Lawrence Radiation Laboratory, BERJELEY, Calif. USA	Liniowy akcelerator ciężkich jonów HILAC <sup>26</sup> Ne $10^{13}$ cz/s <sup>40</sup> Ar $6 \times 10^{11}$ cz/s	Elektrostatyczny filtr kwadrupolowy; zastosowanie kombinacji <i>de i rf</i> daje orbitę stabilną dla jednej	Cienka tarcza, wychwytywacz stały (grafit, wolfram) lub ciekły (cer, cyrkon) w temp. do	Sm $\approx 1$ mg/cm <sup>2</sup>	Er, Tm	$\leq 0,4$ s	<sup>154</sup> Yb 0,4 s	Pomiary wstępne dla zastosowań w spektroskopii	[86]

			lub kilku wartości $e/m$ . Wydajność całkowita 0,01%	2700°C. Magnetonowe źródło jonów				jądrowej (a)	
8	Iowa State Univ. AMES, Iowa USA (TRISTAN)	Reaktor $10^{12}$ n/cm <sup>2</sup> s	Separator izotopów typu skandynawskiego. Tarcza w rdzeniu reaktora, źródło jonów na zewnątrz	Cienka tarcza, z której dyfundują gazy szlachetne	<sup>235</sup> U (93%) 80 mg	Kr, Xe	≈ 12 s (czas dyfuzji między tarczą a źródłem jonów)	<sup>93</sup> Kr 1,3 s <sup>142</sup> Xe 1,2 s Opóźnione neutrony. Spektroskopia jądrowa	[64, 87, 88]
9	Forskningsradens Laboratorium Studsvik Szwecja (OSIRIS)	Reaktor $310^{11}$ n/cm <sup>2</sup> s	Separator izotopów typu „CERN”. Tarcza, będąca częścią komory jonizacyjnej, umieszczona w rdzeniu reaktora. Transport jonów na odległość 4 m od źródła jonów do separatora	Cienka tarcza, nałożona na ok. 50% powierzchni anody grafitowej. Pozostała powierzchnia anody spełnia rolę wychwytywacza. W przygotowaniu metody prędkiej chemii	<sup>235</sup> U (93%) 100 mg 7 mg/cm <sup>2</sup>	Zn, Ga, Ge, An, Br, Kr, Rb, Sr, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te, I, Xe, Cs, Ba	≤ 0,5 s	<sup>131</sup> In 0,2 s (identyfikacja $\beta$ , $\gamma$ , $Q\beta$ . Z prawdopodobną) Opóźnione neutrony	[21, 45]
10	Soreg Nuclear Research Centre Yavne, Israel (SOLIS)	Reaktor $10^9$ n/cm <sup>2</sup> s	Separator izotopów typu „CERN” pracujący na wyprowadzonej wiązce neutr. termicznych	Gruba tarcza w formie proszku. Tarcza poza źródłem jonów (30 cm). Separacja chemiczna Br, I, As i Sb z produktów rozszczepienia	<sup>235</sup> U zmieszany ze staryniem Ba i Ca ≈ 2 g	Kr, Xe		<sup>94</sup> Kr 0,19 s Niezależne wydajności w niskoenergetycznym rozszczepieniu	[65]

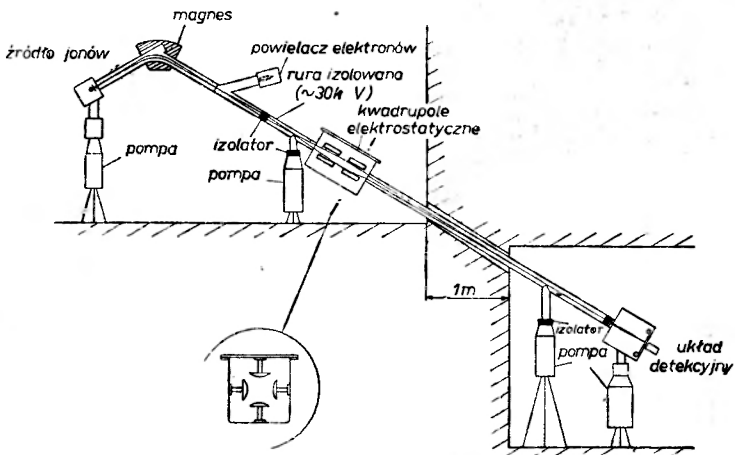
Lp.	Laboratorium	Urządzenie aktywujące i natężenie	Charakterystyka urządzenia ISOL	Charakterystyka tarczy i źródła jonów	Materiał tarczy	Separowane pierwiastki	Typowy średni czas transportu	Przykł. obs. izot. krótkożytych	Zastosowania	Literatura
									pieniu. Opóźnione neutrony. Spektroskopia jądrowa	
11	Centre d'Etudes Nucléaires, Grenoble, Francja	Reaktor $10^{11}$ n/cm <sup>2</sup> s Generator neutronów	Separator izotopów typu „CERN”. Tarcza w odległości 4,5 m od źródła jonów przy pracy z reaktorem; w odległości 1 m przy pracy z generatorem neutronów	Cienka tarcza, wychwytywacz srebrny (2 mg/cm <sup>2</sup> ) w temperaturze 650°C	<sup>235</sup> U (8%), 1 g 5 mg/cm <sup>2</sup>	Kr, Xe	15 s przy pracy z reaktorem; 1,5 s przy pracy z gen. neutronów	<sup>86</sup> Rb 5 s <sup>87</sup> Kr 1,3 s	Spektroskopia jądrowa. Opóźnione neutrony	[90, 91]
12	Uniwersität Giessen (doświadczenia w Munich) NRF	Reaktor	Spektrograf typu Herzog-Mattauch (komb. pola el. i magn.). Separacja niespowolnionych produktów rozszczepienia. Dobra zdol.	Cienka tarcza bez wychwytywacza; jonizacja po rozszczepieniu	<sup>235</sup> U 0,4 mg/cm <sup>2</sup>	Produkty rozszczepienia	≈ 1 μs		Rozkład ładunków w rozszczepieniu	[92, 93, 94]

			ność rozdzielcza, b. małe natężenie produktów sepa- rowanych							
13	Kernfor- schungs- anlage Julich, NRF	Reaktor $10^{14}$ n/cm <sup>2</sup> s	Separator wypeł- niony gazem, ty- pu Cohena. Sepa- racja niespowol- nionych produk- tów rozszczepie- nia. Zdoln. roz- dzielcza 4%, tran- smisja $1,4 \times 10^{-6}$	Cienka tarcza bez wychwyty- wacza; jonizacja po rozszczepieniu	<sup>235</sup> U 1 mg/cm <sup>2</sup>	Se, Kr, Y, Nb, Zr	$\approx 1 \mu\text{s}$	<sup>97</sup> Y 1,1 s <sup>90</sup> Zr 2,4 s <sup>97</sup> Sr 0,4 s	Opóź- nione neutrony. Spektro- skopia jądrowa	[12, 95, 96]

W charakterze ilustracji na rys. 3 przedstawione było rozwiązanie separacji na wiązce zastosowane w CERN-ie (ISOLDE). Urządzenie to oddano do eksploatacji w listopadzie 1967 r. Pracuje ono na wiązce protonów o energii 600 MeV



Rys. 8. Przykład natężenia separowanych izotopów w urządzeniu pracującym w CERN [38, 39]



Rys. 9. Spektrometr mas pracujący na wiązce protonów 150 MeV w Orsay, przeznaczony do badań spektroskopii jądrowej [24]

i natężeniu ok.  $5 \cdot 10^{11}$  p/s. Na rysunku 8 przedstawione są aktywności izotopów rtęci i radonu [38, 39] uzyskane odpowiednio przy bombardowaniu tarczy ołowianej (340 g) i torowej (200 g). Ocenia się, że wydajność separacji była

w tych eksperymentach rzędu 1-5% [40]. W tablicy III podane są również pierwiastki aktualnie separowane izotopowo przy pomocy ISOLDE. Warto tu zaznaczyć, że pomiary spektroskopii prowadzone na tym urządzeniu nie ograniczają się jedynie do badań nad rozpadem izotopów separowanych, lecz śledzi się również cały szereg promieniotwórczy powstający po rozpadzie izotopu separowanego (np. bada się rozpad  $\text{Hg} \rightarrow \text{Au} \rightarrow \text{Pt} \rightarrow \text{Ir} \rightarrow \text{Os}$ ). Separacja na wiązce pozwala w ten sposób również na otrzymywanie źródeł masowo czystych dla izotopów trudnoseparowalnych, takich jak Au, Pt czy Ir (nawet o względnie długich czasach życia), ale które nie mogą być uzyskane innymi metodami w formie czystej.

Jeden ze spektrometrów grupy w Orsay przedstawiony jest na rys. 9 [24]. Służy on do badań spektroskopii jądrowej i do prac związanych z emisją neutronów opóźnionych. Przy tych pomiarach stosuje się tarczę z uranu naturalnego i wiązkę protonów o energii 150 MeV. Dla zmniejszenia tła wyprowadza się rozseparowane jony z hali akceleratora do pomieszczenia za osłoną radiologiczną.

## 5. Przykłady badań prowadzonych przy pomocy urządzeń ISOL

Przed oddaniem do eksploatacji pierwszych separatorów pracujących na wiązce oczekiwano, że urządzenia te pozwolą na znaczne rozszerzenie zakresu badań struktury jądra i na obserwację wielu efektów związanych ściśle z położeniem badanych nuklidów z dala od linii stabilności beta. Propozycje tych badań przedstawione zostały np. w pracy Besa [41] i Bergströma [7] oraz szeroko omawiane na konferencji w Lysekil [10].

Wydaje się interesująca konfrontacja tych propozycji i przewidywań z uzyskanymi już obecnie wynikami.

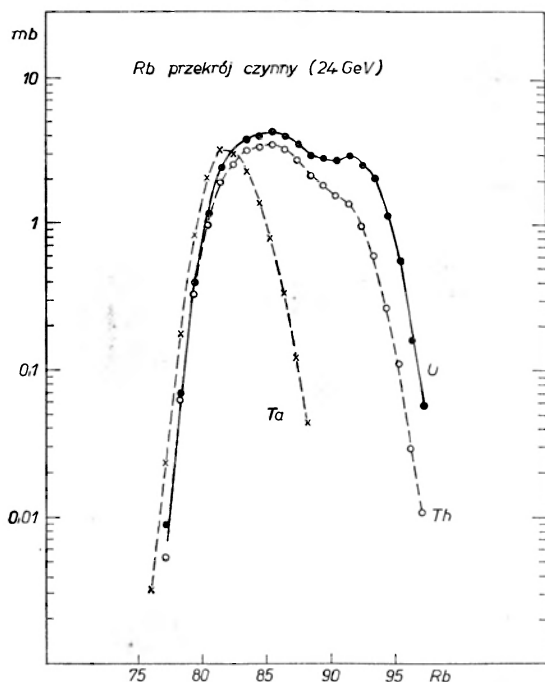
Konferencja dotycząca badań jąder dalekich od linii stabilności, która odbyła się w Leysin we wrześniu 1970 r. była m. in. podsumowaniem paroletniego okresu eksploatacji kilku urządzeń pracujących na wiązce. W materiałach tej konferencji [42] znaleźć można dokładniejsze omówienie wielu problemów, które w artykule niniejszym są jedynie naszkicowane lub, z braku miejsca, pominięte mileżeniem.

### 5.1. Pomiary przekrojów czynnych

Zastosowanie separatorów na wiązce pozwala na pomiary przekrojów czynnych reakcji kruszenia czy rozszczepienia w znacznie szerszym zakresie niż było to dotychczas możliwe przy zastosowaniu metod radiochemicznych. Szczególnie interesujące wydaje się badanie procesu reakcji jądrowych przy wysokich energiach cząstek bombardujących. Praca [15] potwierdza sugestię [43] dwóch mechanizmów odpowiedzialnych za wytwarzanie ciężkich fragmentów (Rb, Cs) w rozszczepieniu uranu czy toru protonami wysokoenergetycznymi ( $E_p = 24$  GeV). Obserwuje się dość wyraźnie dwa maksima w wielkości przekroju czynnego usytuowane ok.  $A = 92$  i  $84$  dla izotopów Rb i ok.  $A = 125$  i  $138$  dla izotopów Cs. Obecność struktury na krzywych rozszczepienia inter-



pretuje się [43] konkurencją reakcji zbliżonej w charakterze do kruszenia (maksimum o niedostatku neutronów) i odpowiednika reakcji rozszczepienia przy średnich energiach (maksimum o nadwyżce neutronów). Przy stosowaniu tarcz nierozszczepialnych rozkład produktów reakcji jest już w przybliżeniu opisany krzywą Gaussa (rys. 10) o maksimum położonym po stronie ubogiej w neutrony.



Rys. 10. Przekroje czynne na tworzenie izotopów rubidu przy bombardowaniu protonami wysokiej energii różnych tarcz (nieop. dane pracy [15])

Otrzymywane w tych reakcjach produkty lekkie [34, 44] (Li, Na) nie mogą być przypisane procesowi kruszenia: prawdopodobieństwo ich wytworzenia jest zbyt duże w porównaniu z przekrojami czynnymi dla fragmentów ciężkich. Mechanizm ich powstawania jest najprawdopodobniej związany z procesem zbliżonym do fragmentacji lub wyparowaniem tych fragmentów jako całości. W pracy [44] uzyskano nieoczekiwany efekt związany z liczbą neutronów fragmentów lekkich. Jądra sodu o parzystej liczbie neutronów są faworyzowane w porównaniu z sąsiednimi jądrami o  $N$  nieparzystym.

Granica czułości metody separacji na wiązce szacowana była w pracy [6] na kilka  $\mu\text{b}$ .

## 5.2. Wzory mas

Jedną z zasadniczych wielkości, charakteryzujących jądro atomowe, jest jego całkowita energia, zależy ona bowiem od podstawowych parametrów takich, jak siły oddziaływania między nukleonami czy symetria ładunkowa.

Dla jąder stabilnych można energię tę wyznaczać bezpośrednio, określając ich masy i korzystając z zależności między masą a energią. Dla jąder niestabilnych należy wyznaczyć całkowite energie ich rozpadu lub energię progów reakcji do tych jąder prowadzących. Dąży się w ten sposób do znalezienia ogólnego wzoru na masy jąder, możliwie mało odbiegającego od rzeczywistości. W uproszczonej formie wzór ten może być zapisany:

$$M(Z, \dot{A}) = M_H Z + M_N(A - Z) - a_1 A + a_2 A^{2/3} + a_3 \frac{[A/2 - Z]^2}{A} + a_4 \frac{Z^2}{A^{1/3}} + R,$$

gdzie łatwo odróżnić człony objętościowy, powierzchniowy, kulombowski, symetrii i wreszcie człon  $R$ , uwzględniający poprawki powłokowe i efektów separowania. Uporządkowując wzór mas ze względu na  $Z$ , można go zapisać w postaci

$$M(Z, A) = M(Z_A, A) + 1/2 B_A (Z - Z_A)^2 + R. \quad (*)$$

Widać, że dla danego  $A$  energia całkowita jąder zmienia się w sposób paraboliczny w funkcji  $Z$ . Parametry  $Z_A$  i  $B_A$  tej paraboli określone były dotychczas dzięki znajomości mas jąder leżących blisko linii stabilności, tam gdzie energie rozpadów beta są stosunkowo małe.

Jest oczywiste, że wyznaczenie mas jąder odległych od linii stabilności pozwoli na znaczne zmniejszenie niedokładności określenia  $Z_A$  i  $B_A$ , co jest równoznaczne z posiadaniem dokładniejszego wzoru mas.

Sprawdzanie wzorów mas odbywać się może dla tych jąder poprzez eksperymentalne wyznaczenie całkowitych energii rozpadu  $\alpha$  lub  $\beta$ . W przypadku wyznaczania energii rozpadu  $\alpha$  pomiary są względnie proste [39]. Uzyskane wyniki mogą być bezpośrednio porównywane ze wzorami mas, nie dają jednak całkowitych informacji o wielkościach  $Z_A$  i  $B_A$ . Informacje te uzyskane być mogą ze znajomości energii rozpadu beta. Tutaj należy jednak rozwiązać cały szereg problemów eksperymentalnych związanych z pomiarami widm beta o  $E_{\max} \approx 5 \div 10$  MeV (i krótkim czasie życia), co dotychczas udało się jedynie częściowo [34, 35, 45, 46] (konieczność znajomości schematu rozpadu, problemy kalibracji energetycznej i wydajnościowej, nieznaną kształtu widma beta itp.). Wydaje się, że przynajmniej w pewnych przypadkach [47, 48, 99] znacznie dokładniej określić będzie można parametry paraboli zdefiniowanej równaniem (\*) przez bezpośrednie pomiary mas jąder leżących bardzo daleko od linii stabilności. Zastosować tu można będzie spektrometr mas pracujący na wiązce, analogiczny do urządzenia z Orsay, z polepszonymi parametrami (zdolność rozdzielcza).

Innym aspektem sprawdzenia wzoru mas jest poszukiwanie istnienia izotopów leżących na skraju stabilności ze względu na emisję protonu lub neutronu, lecz jeszcze stabilnych, o ile stosowane parametry tego wzoru są poprawne. Przykładowo, w pracach [34, 49] pokazano, że izotop  $^{19}\text{Na}$  jest niestabilny ze względu na emisję protonu. Wzory mas [50, 51] przewidują odpowiednio energię separacji protonu w tym jądrze  $-0,36$  MeV i  $+0,21$  MeV. O ile udałoby

się rozszerzyć czułość metody stosowanej w pracy [34], możliwe byłoby sprawdzenie wzorów mas [50, 51], których przewidywania odnośnie do stabilności ciężkich izotopów Na różnią się zasadniczo między sobą [34]. Dokładniejsze omówienie tych aspektów sprawdzania wzorów mas można znaleźć np. w pracach [52, 102].

Wzór mas ma również istotne znaczenie dla zrozumienia takich procesów, jak synteza pierwiastków w procesach gwiazdnych [53, 54], możliwości istnienia pierwiastków super-ciężkich [55], obliczania wysokości bariery i czasów życia pierwiastków rozszczepialnych i izomerów kształtu [56, 57].

### 5.3. Emisja cząstek opóźnionych

Zjawisko emisji cząstek opóźnionych (neutronów lub protonów) znane jest już od dość dawna [58]. Jądro  $Z, N$  stabilne ze względu na emisję cząstki może, po rozpadzie  $\beta$  czy wychwycie elektronu, znaleźć się w stanie wzbudzonym (jądro o  $Z \pm 1; N \mp 1$ ), w którym energia separacji neutronu (protonu) jest mniejsza niż energia wzbudzenia tego jądra. Następuje wówczas emisja cząstki opóźnionej (w konkurencji z rozpadem gamma), tzn. aktywność tych cząstek zanika z czasem połowicznego rozpadu jądra ( $Z, N$ ). Zjawisko to obserwuje się jedynie, o ile  $Q_\beta$  jest większe niż energia separacji cząstki, a więc na ogół daleko od linii stabilności.

Dotychczas znane są emitery neutronów opóźnionych o czasach życia między częścią sekundy a minutą [59, 60]. Przed wprowadzeniem separacji na wiązce były one badane głównie metodami radiochemicznymi. Podzielono je na sześć grup w zależności od czasów życia, mimo że przewiduje się znacznie większą liczbę prekursorów, otrzymywanych w rozszczepieniu. Widma ich mają charakter ciągły, co wynika prawdopodobnie nie tylko z dużej gęstości poziomów emitujących te neutrony, lecz również z nałożenia się, w warunkach eksperymentalnych, widm neutronowych z wielu prekursorów naraz.

Te ograniczone wiadomości o neutronach opóźnionych były jednak wystarczające do konstrukcji i eksploatacji pierwszej generacji reaktorów jądrowych, budowanych dotychczas. Obecnie rozpoczyna się na świecie konstrukcję drugiej generacji reaktorów o mocach dochodzących do 1000 MW, tzw. prędkich reaktorów powielających. Już na samym wstępie projektowania tych reaktorów okazało się, że dostępne informacje na temat neutronów opóźnionych są nie wystarczające do określenia marginesu bezpieczeństwa ich pracy [61] lub, mówiąc inaczej, koszty budowy tych reaktorów muszą być większe z powodu nieznamości szeregu parametrów, dotyczących neutronów opóźnionych. Przykładowo, w reaktorze takim i paliwie złożonym z mieszaniny U-Pu duża część neutronów opóźnionych pochodzić będzie z uranu przeznaczonego na powielanie i te właśnie neutrony decydować mogą o dynamice reaktora. Innym aspektem tego zagadnienia jest konstrukcja reaktorów, w których prekursorzy neutronów opóźnionych są wydalone z rdzenia reaktora, co prowadzić może do zachwiania równowagi jego pracy. Będzie to miało miejsce np. w reaktorach

napedowych, gdzie ciekły wodór służy jednocześnie jako element chłodzący i napędowy. I wreszcie trzeci aspekt: wysoka temperatura panująca w reaktorach drugiej generacji wpływać będzie na selektywną dyfuzję różnych prekursorów w zależności od ich własności chemicznych. Dlatego dokładna identyfikacja pierwiastków i izotopów odpowiedzialnych za emisję neutronów jest tak ważna.

Znaczenie separatora umieszczonego na wiązce i pozwalającego na dokładne określenie  $Z$  i  $N$  krótkożyciowych prekursorów neutronów opóźnionych jest tu oczywiste. Pierwsze prace tego typu wykonane były w Orsay [62, 63], gdzie udało się zidentyfikować kilka prekursorów neutronów opóźnionych wśród izotopów Rb i Cs ( $^{93-97}\text{Rb}$ ,  $^{142-143}\text{Cs}$ ). Podobne prace prowadzone są obecnie w Ames [64], Studsvik [45] i Yavne [65]. Wśród 34 znanych (do października 1968 r.) prekursorów neutronów opóźnionych [60], 14 zostało zidentyfikowanych w przeciągu ostatnich lat przy pomocy separacji na wiązce.

Zjawisko emisji protonów opóźnionych dyskutowane było m. in. w pracach [66-71]. Eksperymentalnie efekt ten znaleziony został w wielu lekkich i średnich ( $A \approx 100$ ) jądrach, np. [7, 10].

Pierwsze wiadomości o promieniowaniu protonowym, znalezionym przy pomocy separatora pracującego na wiązce, pochodzą z ISOLDE [38, 47, 100]. Udało się tam zidentyfikować jako prekursorów protonów opóźnionych  $^{115}\text{Xe}$ ,  $^{117}\text{Xe}$ ,  $^{183}\text{Hg}$ ,  $^{181}\text{Hg}$  i  $^{179}\text{Hg}$ . W przypadku  $^{115}\text{Xe}$  udało się wyodrębnić grupy protonów, prowadzące do stanu podstawowego i pierwszych stanów wzbudzonych w  $^{114}\text{Te}$ , wykonując koincydencje między pozytonami i protonami.

W pewnych przypadkach istnieje również możliwość emisji cząstki  $\alpha$  ze stanu wzbudzonego. Zjawisko to jest dobrze znane i zostało zaobserwowane po raz pierwszy w rozpadach naturalnych łańcuchów promieniotwórczych (tzw. cząstki  $\alpha$  długozasięgowy). Poszukiwania długozasięgowych cząstek  $\alpha$  w rozpadach rtęci i radonu dały dotychczas wynik negatywny [38, 47].

Innym rodzajem aktywności protonowej, przewidywanym teoretycznie [68, 69, 72, 73], lecz dotychczas nie zaobserwowanym, jest emisja protonów ze stanu podstawowego jądra (analogicznie do emisji  $\alpha$ ). Zjawisko to może być obserwowalne dla jąder, w których energia wiązania ostatniego protonu jest ujemna ( $S_p < 0$ ). Jądro takie może jednak posiadać czas życia znacznie dłuższy od czasu jądrowego ( $T_{1/2} \gg 10^{-21}$  s) dzięki barierze kulombowskiej i centrobieżnej.

W Dubnej [14] skonstruowany został separator izotopów typu Cohena, m. in. do poszukiwania emisji protonów tego typu. Istnieje również duże prawdopodobieństwo znalezienia tego efektu w ISOLDE [47]. Przykładowo, najlżejsze izotopy rtęci znalezione tam dotychczas, to  $^{178}\text{Hg}$  ( $T_{1/2} \approx 0,4$  s) i prawdopodobnie  $^{177}\text{Hg}$ . Już jednak  $^{176}\text{Hg}$  prowadzi do izotopu  $^{176}\text{Au}$ , mającego ujemną energię wiązania protonu [51]. Oszacowany na podstawie wzorów przenikalności bariery czas życia  $^{176}\text{Au}$  [47] powinien być rzędu ns do  $\mu\text{s}$ . Uzyskanie  $^{176}\text{Hg}$  jest w pełni możliwe w ISOLDE po projektowanym zwiększeniu natężenia wiązki synchrocyklotronu lub też po specjalnym przystosowaniu tarczy do tego celu.

#### 5.4. Badanie rozpadu $\beta$ do wysokoleżących stanów wzbudzonych

Badania te stały się możliwe, w przypadku jąder względnie ciężkich, dzięki metodom separacji na wiązce, pozwalających na uzyskanie jąder o dużych wartościach  $Q_\beta$ . Dla energii wzbudzeń większych niż kilka MeV, gdzie oczekuje się istnienia  $10^4$ - $10^5$  poziomów/MeV, zasilanych przez rozpad beta, nie jest oczywiście na ogół możliwe wyróżnienie indywidualnych przejść. Wygodne jest wówczas wprowadzenie tzw. funkcji natężenia (*strength function*) zdefiniowanej [74]:

$$S_\beta = b(E) \{f(Z, Q-E) T_{1/2} 100\}^{-1},$$

gdzie  $b(E)$  jest zasilaniem (w %) przez rozpad  $\beta$  (lub EC) na 1 MeV poziomów o energii wzbudzenia  $E$ , a  $f(Z, Q-E)$  jest znaną funkcją, zdefiniowaną w teorii rozpadu  $\beta$ . Teoretycznie funkcja natężenia  $S_\beta$  była ostatnio dyskutowana w pracy [101].

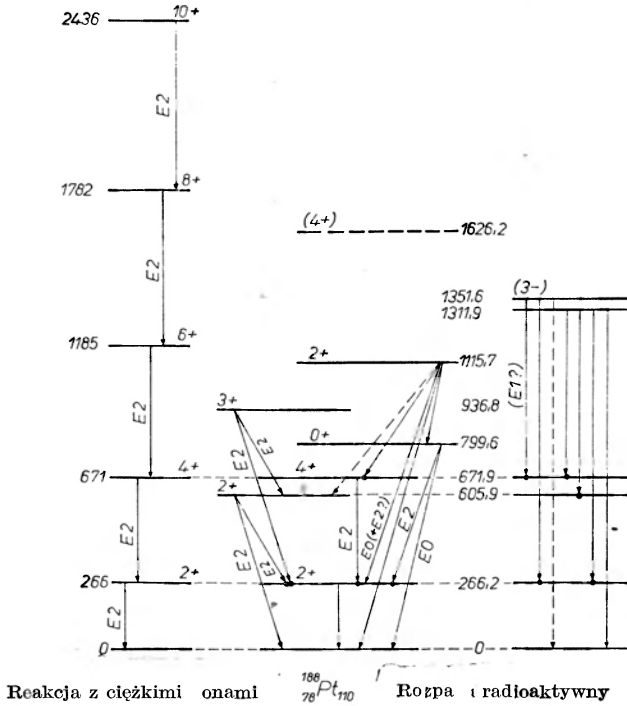
Eksperymentalnie [75] funkcja  $S_\beta(E)$  wyznaczona została dla szeregu jąder w obszarze ołowiu (Os, Ir, Pt, Au, Hg, Tl, Bi, Po, At, Rn). W pracach [74, 75] dyskutowana jest zależność funkcji  $S_\beta$  od struktury stanu wyjściowego i zasilanych stanów wysokoenergetycznych, jak również od efektów powłokowych.

Należy tu podkreślić, że pomiary  $S_\beta$  wykonywane były przy pomocy detektorów gamma o miernej zdolności rozdzielczej (NaI(Tl)). Wystarczyło to do określenia tej funkcji, nie dało jednak odpowiedzi na interesujące pytanie dotyczące istnienia wysokoleżących i względnie czystych poziomów zasilanych w sposób selektywny przez rozpad  $\beta$ . Pomiary przy pomocy dużych detektorów germanowych wydają się wskazywać na możliwości istnienia takich poziomów [76].

#### 5.5. Badania własności stanów wzbudzonych

Przy badaniach struktury jądrowej ogromnie ważna jest możliwość rozszerzenia naszych wiadomości dotyczących własności stanów wzbudzonych, które przed kilku jeszcze laty znane były głównie w jądrach uzyskiwanych z rozpadów izotopów względnie długo żyjących lub ewentualnie były otrzymywane na drodze reakcji jądrowych z cząstkami lekkimi. Zarówno jeden, jak i drugi typ pomiarów nie pozwalał na zbyt duże odejście od linii stabilności. Dlatego interesujące zagadnienia zmiany własności stanów jądrowych dla tej samej klasy jąder (np. posiadających to samo  $Z$  lub  $N$ ) były znane jedynie dla ograniczonej liczby przypadków. Z przyczyn eksperymetalnych było bardzo trudne lub niemożliwe badanie oczekiwanych nowych obszarów deformacji, śledzenie zmiany kształtu jąder, przewidywanego teoretycznie dla jąder przejściowych, otrzymanie większej liczby danych o stanach wysokowzbudzonych, badanie własności niektórych jąder o zamkniętej powłoce protonowej lub neutronowej lub ogólniej, sprawdzenie przewidywań teorii dla rozszerzonej ilości przypadków.

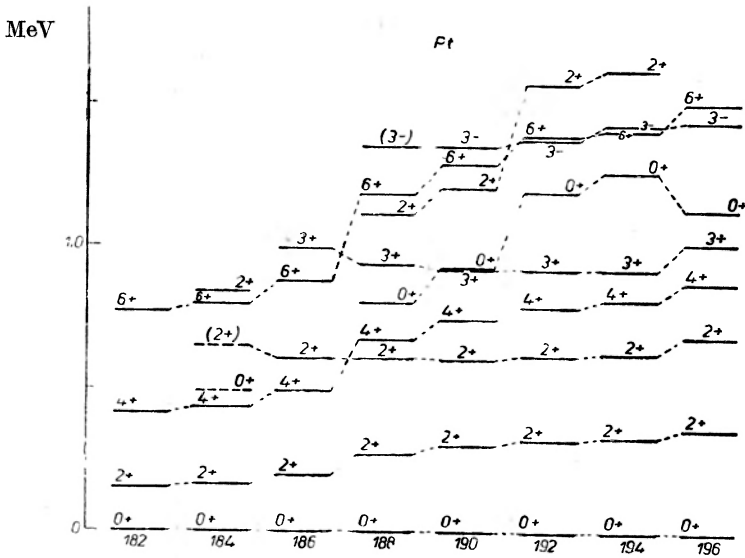
Zastosowanie reakcji jądrowych z ciężkimi jonami było pierwszym ważnym krokiem w kierunku systematycznego badania własności stanów wzbudzonych w jądrach leżących daleko od linii stabilności. Przez odpowiedni wybór tarczy, jądra padającego i energii możliwe jest obecnie badanie, przy pomocy tych reakcji, charakterystyk stanów wzbudzonych wielu izotopów tego samego pierwiastka. Metoda ta, mimo swych ogromnych zalet (możliwość identyfikacji izotopu przy pomocy krzywej wzbudzenia, populacja stanów o wysokim spinie,



Rys. 11. Poziomy wzbudzone  $^{188}\text{Pt}$  uzyskane na drodze reakcji z ciężkimi jonami [78] i poprzez badanie rozpadu radioaktywnego po separacji na wiązce [79]

orientacja jąder po reakcji), nie daje pełnego obrazu wzbudzeń jąder. Okazało się, że przy pomocy reakcji z ciężkimi jonami wzbudzają się w sposób selektywny poziomy należące do pasma (lub „quasi-pasma“) zbudowanego na stanie podstawowym [77, 78]. Nawet nieskończące stany o innej charakterystyce często pozostają w tym procesie wzbudzenia jąder nie zidentyfikowane. Tej selektywności nie posiadają rozpadu radioaktywnego (z kolei ograniczone przez różnice spinów stanów wzbudzonych i jądra początkowego). Obydwie te metody są więc komplementarne. Przykładowo jest to zilustrowane na rys. 11 [79], gdzie porównano dla jądra  $^{188}\text{Pt}$  dane uzyskane z reakcji z ciężkimi jonami [78] i przy pomocy rozpadu radioaktywnego, badanego po separacji na wiązce.

Rys. 12 pokazuje uzyskane w pracy [79] wiadomości o położeniu kolektywnych stanów wzbudzonych w parzystych izotopach platyny. Jądra te leżą w obszarze przejściowym między silnie zdeformowanym a sferycznym kształtem potencjału. Analizując stosunki prawdopodobieństw przejść i wielkości  $B(E2)$



Rys. 12. Niskoenergetyczne kolektywne poziomy wzbudzone w parzystych izotopach Pt [79]

z pierwszego stanu  $2^+$  w tych jądrach można pokazać monotoniczną zmianę ich własności przy oddalaniu się od linii stabilności i stopniową coraz lepszą zgodność z opisem rotacyjnym. Badania tego typu stanowią wkład eksperymentalny do opracowania uogólnionego modelu jądrowego opisującego jednocześnie jądra silnie zdeformowane, jądra przejściowe i jądra z obszaru wibracyjnego [80, 81, 82].

## 6. Konkluzje

Metoda separacji izotopów na wiązce okazała się, zgodnie z przewidywaniami, bardzo owocna przy badaniach struktury jądrowej, mechanizmu reakcji jądrowych i ogólnie własności jąder dalekich od linii stabilności. W tej chwili metoda ta jest dopiero w początkach swego rozwoju. W najbliższych latach przewiduje się znaczne rozszerzenie jej zakresu poprzez oddanie do eksploatacji nowych tarcz i rozwój metod prędkiej chemii. Powiększenie natężenia wiązki bombardującej (w CERN-ie o czynnik 10-100 w roku 1972), czy konstrukcja nowych urządzeń pracujących przy akceleratorach lub reaktorach o dużym natężeniu pozwoli na odejście jeszcze dalej od ścieżki stabilności beta. Wydaje się, że za kilka lat będzie możliwe osiągnięcie granic, poza którymi jądra nie istnieją jako systemy związane.

Autor artykułu składa podziękowanie profesorowi R. Bernas, dr J. Chaumont, profesorowi P. G. Hansen, dr A. Kjelberg, dr R. Klapisch, dr O. B. Nielsen, profesorowi R. Naumann i profesorowi G. Rudstam za liczne dyskusje i udostępnienie nie opublikowanych wiadomości na temat separatorów pracujących na wiązce.

## Literatura

- [1] G. Rudstam, *Nuclear Instrum. Methods*, **38**, 282 (1965).
- [2] O. Kofoed-Hansen, K. O. Nielsen, *Kgl. Danske Videnskab Selskab Mat. Fys. Medd.*, **26**, 7 (1951).
- [3] H. Hintenberger, *Ann. Rev. Nuclear Sci.*, **12**, 435 (1962).
- [4] E. Bruninx, *Atomic Energy Rev.*, **4**, 107 (1966).
- [5] F. Brown, *Nuclear Chemistry*, Vol. 2 str. 295, Academic Press, N. Y. 1968.
- [6] R. Klapisch, *Ann. Rev. Nuclear Sci.*, **19**, 33 (1969).
- [7] I. Bergström, *Nuclear Instrum. Methods*, **43**, 116 (1966).
- [8] G. Andersson, *Ark. Fys.*, **36**, 61 (1967).
- [9] R. A. Naumann, *PPAD 665E* (1969).
- [10] *Nuclides Far Off the Stability Line*, W. Forsling, C. J. Herrlander, H. Ryde ed. *Ark. Fys.*, **36** (1967).
- [11] W. L. Talbert, *CERN Rep. 70-30*, Geneva 1970, str. 109.
- [12] P. Armbruster, J. Eidens, E. Roeckl, *Ark. Fys.*, **36**, 293 (1967).
- [13] P. Armbruster, H. Ewald, G. Fiebig, E. Konecny, H. Lawin, H. Wollnik, *Ark. Fys.*, **36**, 305 (1967).
- [14] I. Bacho, D. D. Bogdanov, S. Daroczy, V. A. Karnaukhov, L. Petrov, G. M. Ter-Akopian, *ZIBJ Rap.*, No P13-4453, Dubna 1969.
- [15] R. Klapisch, J. Chaumont, J. Jastrzębski, R. Bernas, G. N. Simonoff, M. Lagarde, *Phys. Rev. Letters*, **20**, 743 (1968).
- [16] N. I. Tarantin, W. W. Gordeev, A. W. Demianov, *ZIBJ Rap.*, No P-2804, Dubna 1966.
- [17] R. Klapisch, J. Chaumont, C. Philippe, I. Amarel, R. Fergeau, M. Salome, R. Bernas, *Nuclear Instrum. Methods*, **53**, 216 (1967).
- [18] J. Chaumont, Informacja prywatna.
- [19] *The ISOLDE Isotope Separator On-line Facility at CERN*, A. Kjelberg, [G. Rudstam ed., *CERN Rep.*, No 70-3, Geneva 1970.
- [20] E. Hagebo, A. Kjelberg, P. Patzelt, G. Rudstam, S. Sundel, *CERN Rep.*, No 70-3 (ref. 19) str. 93.
- [21] I. Bergström, S. Borg, A. Engström, B. Grapengiesser, G. Holm, O. Jonsson, G. Rudstam, B. Rydberg, L. Westgaard, *Research Institute for Physics, Stockholm, Ann. Rep.*, 1968, s. 77, 1969 s. 79.
- [22] C. L. Duke, Informacja prywatna.
- [23] G. Rudstam, *CERN Rep.*, No 70-3 (ref. 19), str. 123.
- [24] I. Amarel, R. Bernas, J. Chaumont, R. Foucher, J. Jastrzębski, A. Johnson, R. Klapisch, J. Teillac, *Ark. Fys.*, **36**, 77 (1967).
- [25] G. Herrmann, *Ark. Fys.*, **36**, 111 (1967).
- [26] G. Herrmann, H. O. Denschlag, *Ann. Rev. Nuclear Sci.*, **19**, 1 (1969).
- [27] G. Rudstam, Informacja prywatna.
- [28] N. I. Tarantin, A. V. Demyanov, I. S. Ivanov, A. P. Kabachenko, *ZIBJ Rep.*, No P13-4061, Dubna 1968.



- [29] E. Hagebo, A. Kjelberg, S. Sundel, *Ark. Fys.*, **36**, 127 (1967).
- [30] J. Obert, Informacja prywatna.
- [31] J. Alstad, B. Bergersen, T. Jahnsen, A. C. Pappas, T. Tunaal, *CERN Rep.* No 70—3 (ref. 19), str. 109
- [32] G. Andersson, H. E. Jörgensen, K. O. Nielsen, *CERN Rep.*, No 70—3 (ref. 19), str. 19.
- [33] I. Amarel, *These a la Fac. des Sciences d'Orsay* (1967), nie publikowane.
- [34] R. Klapisch, C. Thibault-Phillippe, C. Detraz, J. Chaumont, R. Bernas, E. Beck, *Phys. Rev. Letters*, **23**, 652 (1969).
- [35] E. Beck, *Nuclear Instrum. Methods*, **76**, 77 (1969).
- [36] J. H. Norman, W. L. Talbert, D. M. Roberts, *TID-4500 Ames Laboratory*, 1968. A. Lindhal, O. B. Nielsen, G. Sidenius, *CERN Rep.*, No 70—3 (ref. 19), str. 55.
- [37] M. Alpsten, G. Andersson, A. Appelqvist, B. Bengtsson, E. Borgentun, B. Jonson, *CERN Rep.* No 70—3 (ref. 19) str. 39.
- [38] O. B. Nielsen, Informacja prywatna.
- [39] P. G. Hansen, H. L. Nielsen, K. Wilsky, M. Alpsetn, M. Finger, A. Lindahl, R. A. Naumann, O. B. Nielsen, *Nuclear Phys.*, **A148**, 249 (1970).
- [40] S. Sundel, Informacja prywatna.
- [41] D. R. Bès, *Nuclear Instrum. Methods*, **38**, 277 (1965).
- [42] CERN Rep.70—30, Geneva 1970.
- [43] G. Friedlander, *Physics and Chemistry of Fission, Proc. IAEA Symp.*, Vienna 1965, Vol. II, str. 265.
- [44] R. Klapisch, C. Philippe, J. Suchorzewska, C. Detraz, R. Bernas, *Phys. Rev. Letters*, **20**, 740 (1968).
- [45] G. Rudstam, Informacja prywatna.
- [46] J. Belhassen, M. Caillan, R. Foucher, A. Johnson, M. I. Macias-Marquez, *Inst. Physique Nucl.*, Orsay, Annuaire 1969.
- [47] P. G. Hansen, Informacja prywatna.
- [48] R. Klapisch, Informacja prywatna.
- [49] J. Cerny, R. A. Mendelson, G. J. Woznak, J. E. Esterl, J. C. Hardy, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 612 (1969).
- [50] I. Kelson, G. T. Garvey, *Phys. Letters*, **23**, 689 (1966).
- [51] W. D. Myers, W. J. Swiatecki, *UCRL-11980*, Lawrence Rad. Laboratory, Berkeley 1965.
- [52] J. Cerny, *Ann. Rev. Nuclear Sci.*, **18**, 27 (1968).
- [53] E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler, F. Hoyle, *Rev. Mod. Phys.*, **29**, 547 (1957).
- [54] P. A. Seeger, *Ark. Fys.*, **36**, 495 (1967).
- [55] S. G. Nilsson, C. Fu Tsang, A. Sobieczewski, Z. Szymański, S. Wycech, C. Gustafson, I. L. Lamm, P. Möller, B. Nilsson, *Nuclear Phys.*, **A131**, 1 (1969).
- [56] V. M. Strutinsky, H. C. Pauli, *Physics and Chemistry of Fission, Proc. II IAEA Symp.*, Vienna 1969, str. 155.
- [57] S. Bjørnholm, V. M. Strutinsky, *Nuclear Phys.* **A136**, 1 (1969).
- [58] R. Roberts, R. C. Meyer, P. Wang, *Phys. Rev.*, **55**, 510 (1939).
- [59] S. Amiel, *Physics and Chemistry of Fission, Proc. II IAEA Symp.*, Vienna 1969, str. 569.
- [60] P. del Marmol, *Nuclear Data*, **A6**, 141 (1969).
- [61] G. R. Keepin, *Delayed fission neutrons*, IAEA, Vienna 1968, str. 3.
- [62] I. Amarel, R. Bernas, R. Foucher, J. Jastrzębski, A. Johnson, J. Teillac, H. Gauvin, *Phys. Letters* **24B**, 402 (1967).
- [63] I. Amarel, H. Gauvin, A. Johnson, *J. Inorg. Nuclear Chem.*, **31**, 577 (1969).
- [64] W. L. Talbert, A. B. Tuckner, G. M. Day, *Phys. Rev.*, **177**, 1805 (1969).
- [65] S. Amiel, J. Gilat, A. Notea, E. Yellin, *Delayed fission neutrons*, IAEA, Vienna 1968, str. 115.

- [66] V. I. Goldansky, *Zh. Eksper. Teor. Fiz.*, **39**, 497 (1960).
- [67] V. I. Goldansky, *Nuclear Phys.*, **27**, 648 (1961).
- [68] V. A. Karnaukhov, G. M. Ter-Akopyan, *Phys. Letters*, **12**, 339 (1964).
- [69] J. Janecke, *Nuclear Phys.*, **61**, 326 (1965).
- [70] V. A. Karnaukhov, G. M. Ter-Akopyan, *Ark. Fys.*, **36**, 419 (1967).
- [71] R. D. Macfarlane, *Ark. Fys.*, **36**, 431 (1967).
- [72] B. S. Dželepov, *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.*, **15**, 496 (1951).
- [73] V. A. Karnaukhov, N. I. Tarantin, *Zh. Eksper. Teor. Fiz.*, **39**, 1106 (1960).
- [74] P. G. Hansen, *International Conference on Properties of Nuclear States*, Montreal 1969, Vol. II.
- [75] C. L. Duke, P. G. Hansen, O. B. Nielsen, G. Rudstam, *Nuclear Phys.*, **A151**, 609 (1970).
- [76] French Isolde — Nucl. Chem. col., dane nie opublikowane.
- [77] *Proceedings of the Summer Group on the Physics of the Emperor Tandem Van de Graaff Region*, BNL 948 (C-46) str. 1141, Brookhaven 1965.
- [78] J. Burde, R. M. Diamond, F. E. Stephens, *Nuclear Phys.*, **A92**, 306 (1967).
- [79] B. R. Erdal, M. Finger, R. Foucher, J. P. Husson, J. Jastrzębski, A. Johnson, R. Henck, P. Siffert, G. Astner, A. Kjelberg, P. Patzelt, *20 Konf. Struktury Jądra*, Leningrad 1970, *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.* (w druku).
- [80] K. Kumar, M. Baranger, *Nuclear Phys.*, **A122**, 273 (1968).
- [81] G. Gneuss, U. Mosel, W. Greiner, *Phys. Letters*, **31B**, 269 (1970).
- [82] S. T. Belyaev, Informacja prywatna.
- [83] R. A. Naumann, Informacja prywatna.
- [84] R. A. Naumann, G. Sidenius, *Nuclear Instrum. Methods*, **38**, 319 (1965).
- [85] N. I. Tarantin, A. P. Kabachenko, A. V. Demyanov, *ZIBJ Rap.* No 6—4756, str. 149.
- [86] J. M. Nitschke, *Nuclear Instrum. Methods*, **78**, 45 (1970).
- [87] W. L. Talbert, J. R. McConnell, *Ark. Fys.*, **36**, 99 (1967).
- [88] G. C. Carlson, W. C. Schick, W. L. Talbert, K. W. Wohn, *Nuclear Phys.*, **A125**, 267 (1969).
- [89] I. Bergström, S. Borg, A. Engström, S. Forsberg, W. Forsling, K. Fransson, T. Pihl, M. af Ugglas, *Research Institute for Physics*, Stockholm, Ann. Rep. 1968, s. 76; 1969, s. 101.
- [90] R. Bernas, Informacja prywatna.
- [91] J. P. Bocquet, R. Brissot, J. Crancon, J. A. Pinston, F. Schussler, A. Moussa, *Nuclear Phys.*, **A125**, 613 (1969).
- [92] H. Ewald, E. Konecny, H. Opower, *Physics and Chemistry of Fission*, Proc. IAEA Symp., Vienna 1965, Vol. I, str. 505.
- [93] H. Ewald, E. Konecny, H. Opower, H. Rösler, *Z. Naturforsch.*, **19a**, 194 (1964).
- [94] E. Konecny, H. Opower, H. Ewald, *Z. Naturforsch.*, **19a**, 200 (1964).
- [95] E. Roeckl, J. Eidens, P. Armbruster, *Z. Phys.*, **220**, 101 (1969).
- [96] J. Eidens, E. Roeckl, P. Armbruster, *Nuclear Phys.*, **A139**, 289 (1969).
- [97] L. Alväger, J. Uhler, *Progr. Nuclear Techniques and Instrumentation*, Vol. 3, p. 159, F. J. M. Farley ed., North-Holland Publ. Co., Amsterdam 1968.
- [98] W. Żuk, *Postępy Fizyki*, **21**, 471 (1970).
- [99] W. H. Johnson, *Conference on the Properties of Nuclei far from the Region of Beta-Stability*, Leysin 1970; CERN Rep. 70—30, Geneva 1970.
- [100] P. Hornshøj, K. Wilsky, E. Beck, P. G. Hansen, B. Jonson, M. Alpsten, G. Andersson, A. Appelqvist, B. Bengtsson, O. B. Nielsen *ibid.*
- [101] M. Yamada, K. Takahashi, S. I. Koyama *ibid.*
- [102] V. V. Volkov, preprint, Dubna 1970.

*Stanisław Kielich*

Institut Fizyki  
Uniwersytet im. A. Mickiewicza  
Poznań

## Wytwarzanie harmonicznych światła i mieszanie częstości wiązek laserowych \*

### Optical Harmonics Generation and Laser Light Frequency Mixing

*Abstract:* The essential results achieved during the first 10 years since the coming of lasers in the fields of second and third and higher harmonic generation in reflected and transmitted light, frequency mixing in various materials, picosecond pulse measurements, and nonlinear optical properties of liquids, gases, crystals and other materials are reported concisely from the available literature. Stress is laid on the newer and more stimulating experimental results, and suggestions are made concerning possible novel nonlinear materials and effects.

### 1. Wstęp

Zwykle światło przechodzące przez ciała przezroczyste nie zmienia ich własności optycznych, ponieważ indukowana w nich polaryzacja elektryczna  $P(\mathbf{r}, t)$  jest liniową funkcją natężenia pola elektrycznego  $E(\mathbf{r}, t)$  drgającego z częstością  $\omega$  w punkcie  $\mathbf{r}$  i chwili  $t$ . Liniowy związek między wektorami  $P(\mathbf{r}, t)$  i  $E(\mathbf{r}, t)$  wynika bezpośrednio z klasycznej elektronowej teorii Lorentza [1], traktującej atom jako izotropowy oscylator harmoniczny, a także z mechaniki kwantowej w pierwszym przybliżeniu rachunku zaburzeń [2]. W liniowym przybliżeniu rozwiązania równań Maxwella spełniają zasadę superpozycji, według której różne fale elektromagnetyczne rozchodzą się w ośrodku liniowym niezależnie, bez wzajemnego oddziaływania na siebie. W liniowych ciałach optycznie przezroczystych fale elektromagnetyczne rozchodzą się bez zniekształcenia, przy czym współczynnik załamania światła zależy tylko od własności i stanu termodynamicznego ośrodka, natomiast nie zależy od natężenia

---

\* Referat plenarny wygłoszony 6 kwietnia 1970 r. na IV Ogólnopolskiej Konferencji „Radiospektroskopia i elektronika kwantowa“ w Poznaniu. W ostatecznej redakcji artykułu uwzględniono jeszcze prace dostępne autorowi do końca czerwca 1970.

światła padającego. W ciałach optycznie niejednorodnych zwykle światło rozprasza się liniowo z częstością  $\omega$  światła padającego (to znaczy natężenie światła rozproszonego zależy liniowo od natężenia światła padającego  $I$ , zaś depolaryzacja lub polaryzacja światła rozproszonego nie zależą od natężenia światła  $I$ ) dostarczając informacji o mikrostrukturze ciał rozpraszających, jak również o optycznych własnościach atomów, molekuł, makromolekuł lub cząstek koloidalnych [1, 2]. Badania takiego rodzaju liniowych procesów, w których własności optyczne ciał są zachowane, objęte są optyką liniową [2].

Wszystkie zjawiska i prawa optyczne mają charakter liniowy, dopóki na badane optycznie ciała nie działają żadne siły zewnętrzne. Ciała optycznie izotropowe umieszczone w zewnętrznym polu elektrycznym lub magnetycznym zmieniają współczynnik załamania światła stając się optycznie dwójłomne. Dwójłomność elektryczną odkrył Kerr w 1875 roku, zaś dwójłomność magnetyczną Cotton i Mouton w 1907 roku. Klasyczne teorie obu zjawisk podali Voigt [3] i Langevin [4], a następnie rozwinęło wielu badaczy [2, 5-7]. Jeszcze wcześniej, w roku 1846, Faraday zauważył, że światło rozchodzące się w ośrodku wzdłuż kierunku przyłożonego pola magnetycznego, doznaje skręcenia płaszczyzny polaryzacji [2]. Zjawisko Faradaya nie ma swojego odpowiednika w ciałach izotropowych poddanych działaniu pola elektrycznego, natomiast w ciałach anizotropowych występuje liniowe elektrooptyczne zjawisko znane jako zjawisko Pockelsa [8] (tak zwana dwójłomność kołowa występuje w substancjach optycznie czynnych). Również inne czynniki zewnętrzne, jak naprężenia mechaniczne, przepływ cieczy, pole akustyczne itp., powodują zmiany współczynnika załamania światła [2, 9], molekularnego rozpraszania światła [10] oraz innych liniowych procesów optycznych. Optykę tych wszystkich zjawisk nazywamy niekiedy optyką parametryczną (chodzi o parametry zewnętrzne nieoptyczne).

Jeśli przez ciało przezroczyste przechodzi bardzo intensywne światło, wówczas współczynnik załamania światła oraz przenikalność elektryczna zależą od natężenia wiązki, co zgodnie z teoretycznymi przewidywaniami [6, 11] zostało zaobserwowane bezpośrednio przez wielu badaczy za pomocą gigantycznych impulsów laserów rubinowych [12, 13]. Lasery (pracujące w sposób ciągły lub impulsowy) są źródłem równoległej wiązki światła monochromatycznego, spójnego w czasie i przestrzeni o olbrzymiej gęstości strumienia energii [14]. Niespotykana w zwykłym świetle duża intensywność wiązki laserowej powoduje zależność współczynnika załamania światła od natężenia pola elektrycznego  $E(\mathbf{r}, t)$ . Tak silna fala elektromagnetyczna powoduje nieliniowość optyczną ośrodka sama ulegając następnie zniekształceniu w czasie propagacji. Zgodnie z analizą drgań Fouriera, obok fali pierwotnej o częstości podstawowej  $\omega$ , pojawiają się dodatkowe składowe harmoniczne o częstości podwójonej  $2\omega$ , potrójonej  $3\omega$  itd. [15-17]. W ośrodku poddanym działaniu bardzo silnego promieniowania elektromagnetycznego powstaje polaryzacja elektryczna  $P(\mathbf{r}, t)$  i magnetyczna  $M(\mathbf{r}, t)$ , które są w ogólności nieliniowymi funkcjami natężenia pola elektrycznego  $E(\mathbf{r}, t)$  i magnetycznego  $H(\mathbf{r}, t)$ . Pole elektryczne mające

harmonijną zależność od czasu  $t$  i współrzędnych przestrzennych  $\mathbf{r}$  (podobnie magnetyczne  $\mathbf{H}$ ) można przedstawić w postaci szeregu Fouriera

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_s \mathbf{E}(\omega_s, \mathbf{k}_s) \exp\{i(\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r} - \omega_s t)\}, \quad (1)$$

gdzie  $\omega_s$  jest częstością drgań kołowych  $s$ -tej fali,  $\mathbf{k}_s$  jej wektorem propagacji. Sumowanie w (1) rozciąga się po wszystkich częstościach i wektorach falowych zarówno dodatnich, jak i ujemnych, przy czym  $\omega_{-s} = -\omega_s$ ,  $\mathbf{k}_{-s} = -\mathbf{k}_s$  oraz dla transformaty Fouriera (amplitudy pola)  $\mathbf{E}^*(\omega_s, \mathbf{k}_s) = \mathbf{E}(-\omega_s, -\mathbf{k}_s)$ .

Jeśli natężenie pola elektrycznego  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  nie jest zbyt duże, wtedy indukowaną w ośrodku polaryzację elektryczną możemy rozwinąć w szereg potęgowy

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \sum_{n=1} \mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{r}, t), \quad (2)$$

w którym  $\mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{r}, t)$  określa polaryzację elektryczną  $n$ -tego rzędu dającą się przedstawić za pomocą analizy Fouriera w postaci składników

$$\mathbf{P}^{(n)}(\omega_{n+1}, \mathbf{k}_{n+1}) \exp\{i(\mathbf{k}_{n+1} \cdot \mathbf{r} - \omega_{n+1} t)\}. \quad (3)$$

Uwzględniając tylko zależność od wektora elektrycznego mamy dla  $i$ -tej składowej polaryzacji (3)

$$P_i^{(n)}(\omega_{n+1}, \mathbf{k}_{n+1}) = \chi_{ij_1 \dots j_n}^{\omega_{n+1}, \mathbf{k}_{n+1}} E_{j_1}(\omega_1, \mathbf{k}_1) \dots E_{j_n}(\omega_n, \mathbf{k}_n), \quad (4)$$

gdzie

$$\chi_{ij_1 \dots j_n}^{\omega_{n+1}, \mathbf{k}_{n+1}} = \chi_{ij_1 \dots j_n}(-\omega_{n+1}; \omega_1, \dots, \omega_n; -\mathbf{k}_{n+1}; \mathbf{k}_1, \dots, \mathbf{k}_n)$$

jest tensorem nieliniowej podatności elektrycznej  $n$ -tego rzędu. Zależność tensora nieliniowej podatności od częstości drgań nazywamy dyspersją czasową lub częstości, zaś — od wektorów falowych, dyspersją przestrzenną. Przy oddziaływaniu fal w ośrodku zachodzi synchronizacja czasowa i przestrzenna

$$\omega_{n+1} = \sum_{s=1}^n \omega_s, \quad (5)$$

$$\mathbf{k}_{n+1} = \sum_{s=1}^n \mathbf{k}_s + \Delta \mathbf{k}. \quad (6)$$

W interpretacji kwantowej (5) stanowi zasadę zachowania energii, zaś (6) zasadę zachowania pędów fotonów.

$\Delta \mathbf{k}$  uwzględnia nieznaczące odstępstwa od warunku (6), przy czym  $|\Delta \mathbf{k}| \ll |\mathbf{k}_{n+1}|$ .

Polaryzacje elektryczne wyższych rzędów (4) (i podobnie magnetyczne polaryzacje) dyskutowane są zarówno w ujęciu fenomenologicznym, jak i kwantowo-mechanicznym dla rozmaitych ciał izotropowych i anizotropowych [18-22] i stanowią teoretyczną podstawę nieliniowej optyki [16, 17, 23-27]. Równania (1)-(6) opisują procesy mieszania częstości drgań oddziałujących ze sobą

w ośrodku, różnych fal elektromagnetycznych, a w szczególności zjawiska wytwarzania optycznych harmonicznych. Jeśli jedno z pól elektrycznych w (1) jest bardzo silne, lub jeśli ośrodek poddany jest działaniu dodatkowego pola elektrycznego pompującego

$$\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\omega_p, \mathbf{k}_p) \exp\{i(\mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r} - \omega_p t)\} + \text{c. s.} \quad (7)$$

o natężeniu znacznie przewyższającym natężenia pól elektrycznych (1) oraz jeśli częstość drgań (pompująca)  $\omega_p$  jest porównywalna z  $\omega_s$  lub większa  $\omega_p > \omega_s$ , wtedy mamy do czynienia z parametrycznym oddziaływaniem fal elektromagnetycznych. Oprócz tego wzmocnienia oddziaływających parametrycznie fal możemy w nieliniowym ośrodku modulować fale świetlne, jeśli  $\omega_p \ll \omega_s$ . Teoretyczne podstawy powyższych nieliniowych procesów (koherentnych) przedstawione są w pierwszych monografiach Achmanowa i Chochłowa [16] i Bloembergena [17]. W niniejszym artykule omówimy wyniki teoretyczne i doświadczalne osiągnięte w dziedzinie mieszania fal świetlnych od początku powstania techniki laserowej, która w ciągu 10 lat przyczyniła się do wielu nowych odkryć i gwałtownego rozwoju badań w dziedzinie nieliniowej optyki<sup>1</sup>.

## 2. Podwojenie częstości w ciałach bez środka symetrii

Jeśli ośrodek nieliniowy znajdzie się w polu elektrycznym  $\mathbf{E}(\omega, \mathbf{k})$  fali elektromagnetycznej drgającej z częstością  $\omega$  i rozchodzącej się w kierunku  $\mathbf{k}$ , wtedy zgodnie z (4) składowa polaryzacji elektrycznej drugiego rzędu jest:

$$P_i^{(2)}(2\omega, 2\mathbf{k}) = \chi_{ijk}^{2\omega, 2\mathbf{k}} E_j(\omega, \mathbf{k}) E_k(\omega, \mathbf{k}), \quad (8)$$

gdzie  $\chi_{ijk}^{2\omega, 2\mathbf{k}} = \chi_{ijk}(-2\omega; \omega, \omega; -2\mathbf{k}; \mathbf{k}, \mathbf{k})$  jest tensorem nieliniowej podatności elektrycznej drugiego rzędu. W nieobecności dyspersji przestrzennej ( $\mathbf{k} = 0$ ) tensor  $\chi_{ijk}^{2\omega}$  posiada różne od zera składowe tylko w ciałach nie posiadających środka symetrii, przy czym jest tensorem symetrycznym względem pary wskaźników  $j$  oraz  $k$ , to jest  $\chi_{ijk}^{2\omega} = \chi_{ikj}^{2\omega}$ . W ośrodku optycznie przezroczystym (w obszarze odległym od dyspersji i absorpcji elektronowej) dla częstości podstawowej i drugiej harmonicznej, według Kleinmana [28], mamy również symetrię względem wskaźników  $i$  oraz  $k$ . W ten sposób w procesie generowania drugiej harmonicznej w ciałach przezroczystych i optycznie nieaktywnych tensor nieliniowej podatności jest całkowicie symetryczny względem wszystkich 3 wskaźników

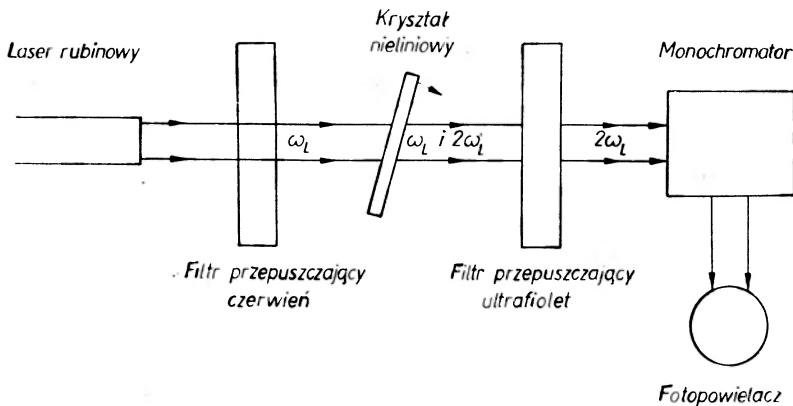
$$\chi_{ijk}^{2\omega} = \chi_{ikj}^{2\omega} = \chi_{kij}^{2\omega}$$

i jego liczba niezależnych składowych zmniejsza się z 27 do 10. Dalsza redukcja

<sup>1</sup> W *Postęпах Fizyki*, 20, 407 (1969) ukazał się przekład polski artykułu J. A. Giordmaine z *Phys. Today*, 22, 38 (1969), w którym przedstawione są ważniejsze odkrycia dokonane w nieliniowej optyce w ciągu ostatnich 10 lat.

liczby niezależnych składowych zależy od rodzaju symetrii krystalograficznej danego ciała.

W 1961 roku Franken i jego współpracownicy [30] wytworzyli po raz pierwszy drugą harmoniczną światła w kwarcu, który jest kryształem bez środka symetrii<sup>2</sup>. W tym pierwszym doświadczeniu z nieliniowej optyki, wiązka czerwonego światła lasera rubinowego o długości fali 6943 Å została zogniskowana na powierzchni płytki kwarcowej, po czym obserwowano światło wychodzące, które zawierało słabą wiązkę o częstotliwości dwukrotnie większej od częstotliwości drgań wiązki padającej (ultrafiolet o długości 3471,5 Å (rys. 1)). W czasie trwania impulsu laserowego (około 1 ms)  $10^{19}$  fotonów światła padającego o częstotliwości  $\omega$  wyzwoliło  $10^{11}$  fotonów o podwojonej częstotliwości  $2\omega$ . Zatem wydajność kwantowa procesu konwersji fotonów wiązki podstawowej w fotony wiązki drugiej harmonicznej wynosiła  $10^{-8}$ . Następne doświadczenia pokazały, że wydajność konwersji zależy w dużej mierze od kierunku propagacji wiązki laserowej względem osi optycznych kryształu.



Rys. 1. Schemat układu do wytwarzania drugiej harmonicznej w nieliniowych kryształach (np. kwarcu). Długość drogi przebytej przez światło w płytce kwarcu zmieniamy jej pochylaniem względem kierunku propagacji wiązki laserowej o częstotliwości  $\omega_L$ . Grubość czynną kryształu dobieramy w taki sposób, aby spełniała warunki właściwego dopasowania fazowego pomiędzy falą podstawową  $\omega_L$  i falą drugiej harmonicznej  $2\omega_L$ . Wytworzoną w nieliniowym kryształach wiązkę drugiej harmonicznej obserwuje się po przejściu przez filtr pochłaniający całkowicie wiązkę podstawową (czerwoną), przy czym jej natężenie rejestrujemy za pomocą monochromatora połączonego z fotopowielaczem

Doświadczenia wytwarzania drugiej harmonicznej za pomocą nieskupionej wiązki laserowej wykonane zostały przez Giordmaine [31] oraz Makera i innych [32], którzy w celu wzmocnienia natężenia drugiej harmonicznej zaproponowali niezależnie od siebie pomysły i różne metody dopasowania współczynników załamania (lub dopasowania fazowego). Metody te wynikają

<sup>2</sup> W języku polskim ukazały się dwa artykuły przeglądowe z ważniejszych badań generacji drugiej harmonicznej wykonanych do roku 1965, mianowicie: F. Kaczmarek, *Problemy Elektr. Telekom.*, zeszyt 12, str. 146, W-wa 1966 oraz A. Graja, *Postępy Fizyki*, 18, 539 (1967).

z warunków synchronizacji (5) i (6), które dla procesu wytwarzania drugiej harmonicznej przyjmują postać

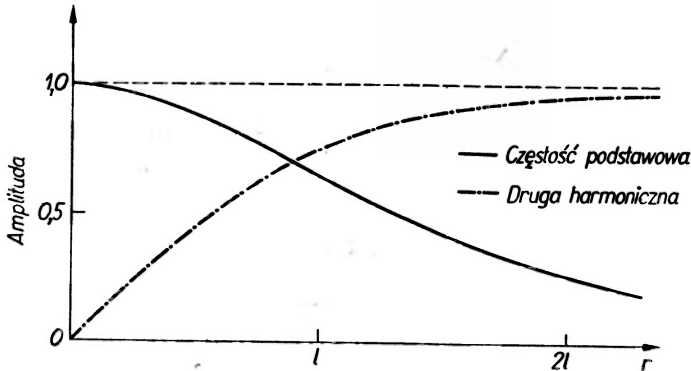
$$\omega_2 - 2\omega_1 = 0, \quad (5a)$$

$$\Delta k = k_2 - 2k_1, \quad (6a)$$

gdzie  $\omega_1$  i  $k_1$  oznaczają odpowiednio częstotści drgań i wektor falowy wiązki podstawowej, zaś  $\omega_2$  i  $k_2$  — częstotść drgań i wektor falowy drugiej harmonicznej, przy czym długość spójności fazowej wynosi [26]

$$L_s = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\lambda_1}{4(n_2 - n_1)}, \quad (9)$$

gdzie  $\Delta k$  jest dodatnie dla normalnej dyspersji oraz  $n_1 = n(\omega)$  i  $n_2 = n(2\omega)$  są współczynnikami załamania światła dla częstotści podstawowej  $\omega$  i drugiej harmonicznej  $2\omega$ .



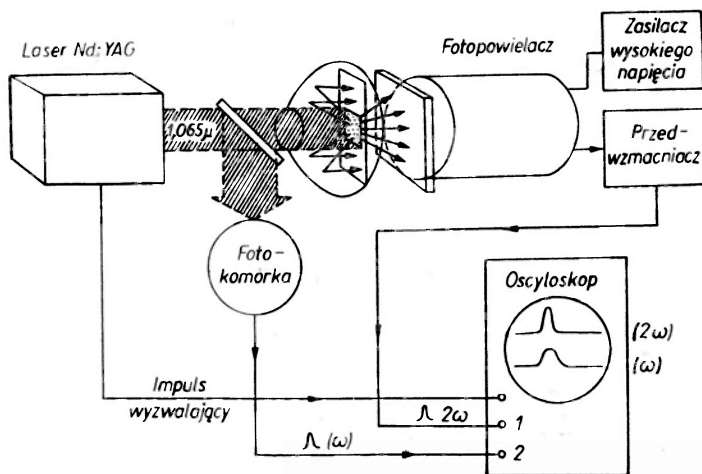
Rys. 2. Narastanie amplitudy fali drugiej harmonicznej kosztem energii fali podstawowej, rozchodzącej się w nieliniowym ośrodku bez centrum symetrii. Przy pełnym dopasowaniu fazowym ( $\Delta k = 0$ ) wydajność konwersji rośnie monotonicznie wraz z odległością  $l$  aż do 100%, kiedy to cała energia fali podstawowej przechodzi w energię fali drugiej harmonicznej. Jeśli  $\Delta k \neq 0$ , to otrzymuje się periodyczną zmienność natężenia drugiej harmonicznej wraz z odległością, przy czym okres tej zmian określa długość spójności fazowej [9]

Za pomocą techniki dopasowania współczynników załamania zwiększono wydajność konwersji drugiej harmonicznej do 20% w kryształach ADP [33]. Dodatkowe zastosowanie metody kaskadowego wzmocnienia podnosi wydajność konwersji do 30-35% w kryształach ADP i KDP [34]. Obserwowano również nasycenie wydajności konwersji w kryształach ADP [35], które związane jest z ograniczeniem długości oddziaływania dla drugiej harmonicznej przez dwójłomność optyczną kryształu [36].

Od czasu pierwszego doświadczenia Frankena [30] obserwowano drugą harmoniczną w licznych kryształach piezoelektrycznych i ferroelektrycznych oraz innych materiałach, zarówno za pomocą laserów impulsowych krystalicznych, jak i laserów półprzewodnikowych i gazowych [36-40].



Lasery krystaliczne pracujące na wolframianie wapnia aktywowanym neodymem ( $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{+3}$ ) emituje światło o długości  $10582 \text{ \AA}$  dogodnie do obserwacji drugiej harmonicznej o długości  $5291 \text{ \AA}$  leżącej w obszarze dużej czułości oka ludzkiego. Laser ten stosowano do wytwarzania drugiej harmonicznej przez kryształy KDP i ADP, kryształ ferroelektryczny  $\text{BaTiO}_3$  [39] oraz kryształy  $\text{CdS}$  [40],  $\text{ZnO}$ ,  $\text{PbTiO}_3$ . Analogiczną długość fali ( $10600 \text{ \AA}$ ) emitują lasery neodymowe, za pomocą których zaobserwowano dużą wydajność konwersji drugiej harmonicznej w  $\text{LiNbO}_3$  (niobian litu) [41],  $\text{K}_6\text{Li}_4\text{NbO}_3$  [42 a],  $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$  [42 b, c],  $\text{HfO}_3$  [42 d, e] i ostatnio w  $\text{LiIO}_3$  [42 c, 43 a]. Natężenie drugiej harmonicznej wytworzone w kryształach jodanu litu za pomocą lasera rubinowego [43 b] okazało się 150 razy większe niż w kryształach KDP, zaś przy użyciu lasera neodymowego aż 260 razy [43 a]. Wytwarzanie drugiej harmonicznej możliwe jest również w kryształach dwuosiowych, takich jak siarczany trójglicyny (TGS) [44]. W 1968 roku zapoczątkowano wytwarzanie drugiej harmonicznej w krystalicznych proszkach [45], co uwolniło eksperymentatorów od żmudnego przygotowywania próbek monokrystalicznych (rys. 3). Metoda proszkowa jest prosta i wygodna w stosowaniu pozwalając na szybką ocenę



Rys. 3. Aparatura Kurtza i Perry [45b] do badania wytwarzania drugiej harmonicznej w proszkach. Nie zogniskowana wiązka lasera z regulowaną dobrocią (używano lasera  $\text{Nd} : \text{CaWO}_4$  lub  $\text{Nd} : \text{YAG}$ ) pada na cienką warstwę (około  $0,2 \text{ mm}$ ) proszku badanego kryształu. Wiązkę o częstotliwości podstawowej usuwa się za pomocą szeregu filtrów, zaś detekcji drugiej harmonicznej dokonuje się fotopowielaczem, po czym ujawnia się ją na oscyloskopie. W celu polepszenia skuteczności zbierania drugiej harmonicznej przez detektor między laserem a próbką umieszczono reflektor paraboliczny z otworem przepuszczającym padającą wiązkę laserową

nieliniowych własności optycznych nowych materiałów [46]. Powyższe kryształy oraz inne kryształy organicznie barwione cechuje silna nieliniowość optyczna dyskutowana ilościowo przez wielu autorów [46].

Do wytwarzania drugiej harmonicznej stosuje się również lasery gazowe, które pozwalają na uzyskanie dokładnych danych ilościowych. Stosowano

lasery helowo-neonowe emitujące światło czerwone ( $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ ) i podczerwone ( $11526 \text{ \AA}$ ) [47] oraz lasery molekularne na  $\text{CO}_2$  emitujące światło o długości  $10591,5 \text{ \AA}$  [48]. Bjorkholm i Siegman [49], stosując laser gazowy He—Ne pracujący na długości  $6328 \text{ \AA}$ , przeprowadzili dokładne pomiary absolutne drugiej harmonicznej generowanej przez kryształ ADP i kryształ kalcytu.

Tablica I

Natężenia drugiej harmonicznej  $I^{2\omega}$  wytwarzanej w krystalicznych proszkach odniesione do natężenia  $I_{\text{kwarcu}}^{2\omega}$  w kwarcu [45b, 46c]

Materiał	Grupa punktowa	Rozmiary ziaren w mikronach	Kolor proszku	$I^{2\omega}/I_{\text{kwarcu}}^{2\omega}$
$\text{LiNbO}_3$	3 <i>m</i>	75—150	biały	600
$\text{HfO}_2$	222	75—150 <sup>a</sup>	biały <sup>b</sup>	300
$\text{KIO}_3$		75—150	biały	1200—2400
$\text{LiIO}_3$	6	75—150	biały	300
$\text{Ag}_2\text{HgI}_4$	$\bar{4}2$ <i>m</i>	5—10	żółty	1500
$\text{Cu}_2\text{HgI}_4$	$\bar{4}2$ <i>m</i>	5—10	pomarańczowy	200
$\text{KNbO}_3$	<i>mm</i> 2	75—150 <sup>a</sup>	biały <sup>b</sup>	2000
$\text{PbTiO}_3$	4 <i>mm</i>	75—150 <sup>a</sup>	żółtozielony	2400
$\text{C}_6\text{H}_4(\text{NO}_2)$	<i>mm</i> 2	25	jasnożółty	500
$\text{CO}(\text{NH}_2)_2$	42 <i>m</i>	75—150 <sup>a</sup>	biały <sup>b</sup>	400

<sup>a</sup> pojedynczy kryształ, <sup>b</sup> przezroczysty.

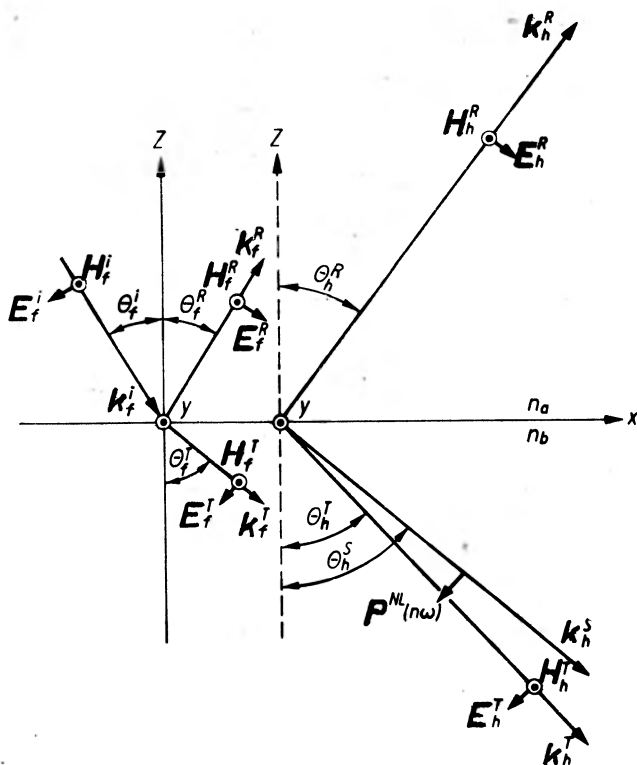
Badania generowania drugiej harmonicznej w kryształach dwójłomnych przeprowadzano zarówno za pomocą wiązek laserowych skupionych, jak i nieskupionych [37, 50, 51]. Rabin oraz Bey [52] pokazali, że dopasowanie fazowe generowania harmonicznych może zachodzić również w ciałach nieliniowych wykazujących dyspersję rotacji optycznej. Bloembergen i Simon [53] przeprowadzili badania generowania drugiej harmonicznej w kryształach optycznie aktywnych ( $\text{NaClO}_3$  i  $\text{NaBrO}_3$  należących do klasy kubicznej), w których na długość spójności otrzymali zamiast (9),

$$L_s^\pm = \frac{\lambda}{4 \{n^\pm(2\omega) - n^\mp(\omega)\}} \quad (10)$$

dwie różne wartości odpowiadające prawo- i lewoskrętnym falom kołowo spolaryzowanym.

Ostatnio Bloembergen i Shih [54] przeprowadzili teoretyczną analizę generowania drugiej harmonicznej przez kryształy dwuosiowe. Jeszcze wcześniej Bloembergen i Pershan [19] opracowali teorię generowania optycznych harmonicznych na powierzchni rozdziału między ośrodkiem liniowym i nieliniowym.

Fale harmoniczne występują zarówno w świetle odbitym, jak i załamany, przy czym przy określonych warunkach może nastąpić ich pełne odbicie od powierzchni ciała nieliniowego [55] (rys. 4).



Rys. 4. Wytwarzanie harmonicznych przy odbiciu na granicy dwóch różnych ośrodków. Płaszczyzna  $xy$  jest powierzchnią graniczną między ośrodkiem (np. liniowym) o współczynniku załamania światła  $n_a$  w dodatnim kierunku osi  $z$ , a drugim ośrodkiem odbijającym (nieliniowym) o współczynniku załamania  $n_b$  wzdłuż ujemnego kierunku osi  $z$  (oś  $y$  oraz wektory oznaczone  $\odot$  skierowane są w głąb płaszczyzny rysunku — prawoskrętny układ  $xyz$ ). Wektor elektryczny fali podstawowej  $E_f^i$  leży w płaszczyźnie padania i jest prostopadły do wektora magnetycznego  $H_f^i$  i wektora propagacji  $k_f^i$ . Analogicznie zorientowane są wektory  $E_f^r, H_f^r, k_f^r$  i  $E_f^t, H_f^t, k_f^t$  fali odbitej oraz załamanej przenikającej do drugiego ośrodka nieliniowego. Kąty podstawowej fali padającej, odbitej i załamanej oznaczone są odpowiednio przez  $\theta_f^i, \theta_f^r, \theta_f^t$ . Po prawej stronie rysunku pokazany jest proces nieliniowego pojawienia się składowych harmonicznych w fali odbitej ( $E_h^r, H_h^r, k_h^r, \theta_h^r$ ) oraz w fali przechodzącej ( $E_h^t, H_h^t, k_h^t, \theta_h^t$ ). W ośrodku nieliniowym o współczynniku załamania światła  $n_b$  rozchodzi się również fala nieliniowej polaryzacji  $P^{NL}(n\omega)$  generowana przez przechodzące światło laserowe  $E_f^t$ .

### 3. Podwojenie częstości w ciałach posiadających środek symetrii

Terhune i współpracownicy [56] zaobserwowali słabe generowanie drugiej harmonicznej w kryształach kalcytu, który posiada środek symetrii. W kalcydzie przyczyną podwojenia częstości nie może być elektryczna polaryzacja dipo-

lowa (8), ponieważ znikają wszystkie składowe tensora podatności  $\chi_{ijk}^{2\omega}$ . W ciałach posiadających środek symetrii występuje dodatkowa polaryzacja dipolowa drugiego rzędu, którą w przybliżeniu kwadrupolowym elektrycznym opisuje wzór [18, 19]:

$$P_i^{(2)}(2\omega, 2\mathbf{k}) = \kappa_{ijkl}^{2\omega, 2k} E_j(\omega, \mathbf{k}) \nabla_k E_l(\omega, \mathbf{k}), \quad (11)$$

w którym  $\kappa_{ijkl}^{2\omega, 2k}$  jest tensorem nieliniowej podatności dipolowej w przybliżeniu kwadrupolowym oraz  $\nabla$  — operatorem różniczkowym.

Polaryzacja dipolowa (11) jest tego samego rzędu wielkości co elektryczna polaryzacja kwadrupolowa, określona tensorem [18]

$$Q_{ij}^{(2)}(2\omega, 2\mathbf{k}) = \kappa_{ijkl}^{2\omega} E_k(\omega, \mathbf{k}) E_l(\omega, \mathbf{k}), \quad (12)$$

gdzie  $\kappa_{ijkl}^{2\omega}$  jest tensorem nieliniowej podatności kwadrupolowej w przybliżeniu dipolowym elektrycznym.

Nateżenie drugiej harmonicznej wytworzonej w ciałach z centrum symetrii procesem kwadrupolowym (11) lub (12) jest znacznie mniejsze od promieniotworzenia wywołanego mechanizmem dipolowym (8) występującym w ciałach bez środka symetrii. Mianowicie, stosunek elektrycznej podatności kwadrupolowej  $\kappa_{ijkl}^{2\omega}$  do dipolowej  $\chi_{ijk}^{2\omega}$  jest rzędu wielkości  $ka = 2\pi a/\lambda$ , gdzie  $a$  określa liniowe rozmiary mikroukładów charakterystycznych dla danego ośrodka (rozmiar atomów, molekuł, stałe sieci krystalicznej). W zakresie fal optycznych stosunek ten jest rzędu wielkości  $10^{-3}$  zgodnie z pomiarami podatności kwadrupolowej w kryształach kalcytu i podatności dipolowej w kryształach ADP [49].

W ogólnym przypadku w procesach generowania harmonicznych należy brać pod uwagę również polaryzacje wynikające z działania na ośrodek pola magnetycznego fali elektromagnetycznej, jak również polaryzacje magnetyczne indukowane polami elektrycznymi [19, 22, 57]. W drugim przybliżeniu polaryzacja mieszana wywołana jednoczesnym działaniem pola elektrycznego i magnetycznego jest [57]:

$$P_i^{(2)}(2\omega, 2\mathbf{k}) = \eta_{ijk}^{2\omega, 2k} E_j(\omega, \mathbf{k}) H_k(\omega, \mathbf{k}), \quad (13)$$

gdzie  $\eta_{ijk}$  jest pseudotensorem podatności elektryczno-magnetycznej, który posiada różne od zera składowe również w ciałach izotropowych (dzięki zjawisku Faradaya).

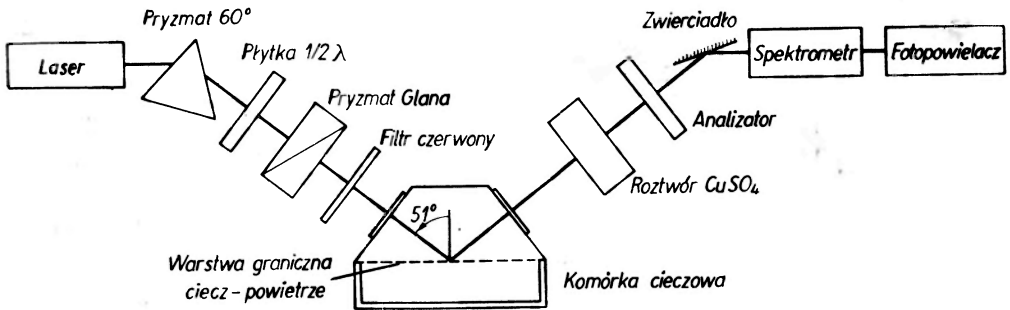
Silna fala świetlna może namagnetyzować ośrodek izotropowy zgodnie z równaniem na polaryzację magnetyczną [19]:

$$M_i^{(2)}(2\omega, 2\mathbf{k}) = \eta_{jki}^{2\omega, 2k} E_j(\omega, \mathbf{k}) E_k(\omega, \mathbf{k}), \quad (14)$$

gdzie pseudotensor  $\eta_{jki}$  podatności magnetyczno-elektrycznej opisuje przy  $\omega = -\omega$  odwrócone zjawisko Faradaya, odkryte przez Pershana i współpracowników [57b].

Ducuing i Bloembergen [58] zapoczątkowali badania drugiej harmonicznej w fali odbitej od powierzchni kryształów lub diod półprzewodnikowych [59, 60]. Od tego czasu obserwowano drugie harmoniczne przy odbiciu od powierzchni

metali (Ag, Au, Ge [61, 62]), półprzewodników (Zn, Te, In, Sb, Ga, As, In, As [63a]), halogenków alkalicznych i innych kryształów jonowych ( $\text{CaF}_2$ , NaF, KCl, NaCl [63b]). Ostatnio zaobserwowano drugą harmoniczną w fali odbitej od powierzchni cieczy ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CS}_2$ ,  $\text{C}_6\text{H}_6$  [63c] (rys. 5)). Generowanie drugiej harmonicznej odbitej od powierzchni ciał ze środkiem symetrii związane jest z elektrycznymi polaryzacjami kwadrupolowymi (11) i (12) oraz mieszaną polaryzacją (13) i magnetyczną polaryzacją dipolową (14).



Rys. 5. Układ do wytwarzania drugiej harmonicznej na powierzchni granicznej ciecz-powietrze [63c]. Stan polaryzacji niezogniskowanej wiązki lasera rubinowego (z modulowaną dobrocią za pomocą obracającego się pryzmatu) określany jest przez orientację płytki półfalowej i pryzmatu Glana. Druga harmoniczna odbita od powierzchni granicznej ciecz-powietrze analizowana jest pryzmatem polaryzacyjnym i następnie przefiltrowana przez komórkę z roztworem  $\text{CuSO}_4$  trafia do spektrometru i następnie do fotopowielacza

Tego typu nieliniowości pochodzą w metalach głównie od elektronów przewodnictwa [57], zaś w innych ciałach od elektronów związanych [20, 62] (w półprzewodnikach od elektronów walencyjnych [37]).

Stosunkowo małe natężenie drugiej harmonicznej promieniowanej przez ciała ze środkiem symetrii można powiększyć przez przyłożenie stałego pola elektrycznego [56, 60, 64], które usuwa środek symetrii ciała izotropowego. W tym przypadku składowe tensora  $\chi_{ijk}^{2\omega}$  w równaniu (8) stają się funkcjami natężenia pola  $E^0$ , wyrażając się następująco w przybliżeniu liniowym [65]

$$\chi_{ijk}^{2\omega}(E^0) = \chi_{xxyy}^{2\omega}(\delta_{ij}E_k^0 + \delta_{ik}E_j^0) + \chi_{yxyx}^{2\omega}\delta_{jk}E_i^0, \quad (15)$$

przy czym spełniony jest warunek

$$2\chi_{xxyy}^{2\omega} + \chi_{yxyx}^{2\omega} = \chi_{yyyy}^{2\omega}. \quad (16)$$

W nieobecności nieliniowej dyspersji elektronowej zachodzą zależności:

$$3\chi_{xxyy}^{2\omega} = 3\chi_{yxyx}^{2\omega} = \chi_{yyyy}^{2\omega}. \quad (17)$$

Niedawno Mayer [66] obserwował wypromieniowanie fali świetlnej o podwojonej częstości przez rozrzedzone substancje molekularne umieszczone w stałym polu elektrycznym. W gazach niedipolowych generowanie drugiej harmonicznej wywołane jest nieliniową polaryzowalnością powłoki elektronowej molekuł, natomiast w gazach dipolowych interweniuje reorientacja trwałych dipoli

molekularnych w stałym polu elektrycznym [66] (w niedipolowych substancjach zgęszczonych występuje również reorientacja dipoli indukowanych [67]). W substancjach silnie dipolowych ( $C_2H_5J$ ,  $C_2H_5Br$ ,  $CH_3J$ ) Mayer [66] zaobserwował anomalny wzrost natężenia drugiej harmonicznej, przy wartościach pola  $E^0$  bliskich progu przebiecia, który jest prawdopodobnie wywołany nasyeniem elektrycznym reorientacji dipoli molekularnych [67]. Znacznego natężenia drugiej harmonicznej należy oczekiwać przy generowaniu przez roztwory makromolekularne oraz koloidalne [65, 67].

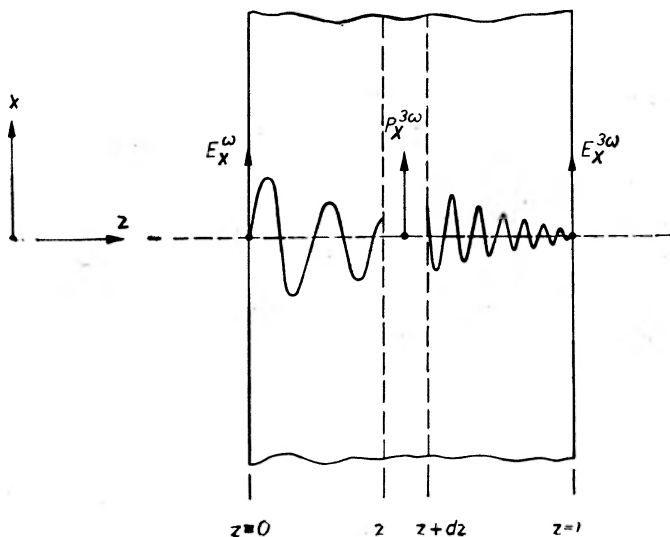
Sodha i Kaw [68] wykazali możliwość generowania drugiej harmonicznej przez plazmę w stałym polu elektrycznym.

#### 4. Potrojenie częstości drgań

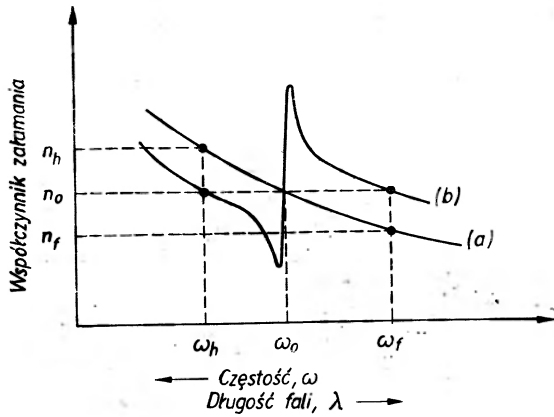
W ciałach izotropowych optycznie nieaktywnych (w nieobecności dyspersji przestrzennej i magnetycznej aktywności optycznej) nieliniowe oddziaływanie fal elektromagnetycznych pojawia się dopiero przy uwzględnieniu polaryzacji trzeciego rzędu

$$P_i^{(3)}(3\omega, 3\mathbf{k}) = \chi_{ijkl}^{3\omega} E_j(\omega, \mathbf{k}) E_k(\omega, \mathbf{k}) E_l(\omega, \mathbf{k}), \quad (18)$$

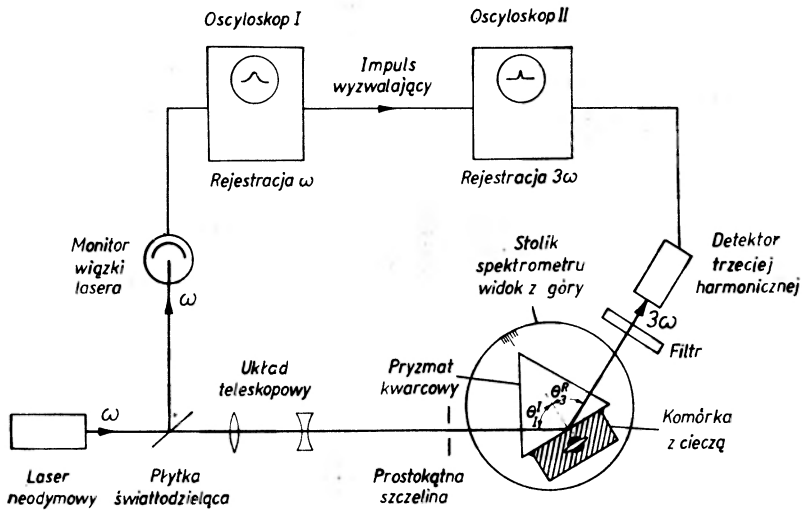
gdzie  $\chi_{ijkl}^{3\omega}$  jest tensorem nieliniowej podatności trzeciego rzędu, który posiada składowe różne od zera również w ciałach izotropowych [23] (rys. 6).



Rys. 6. Powstawanie trzeciej harmonicznej światła w nieliniowym izotropowym ośrodku z absorpcją zarówno dla fali podstawowej, jak i trzeciej harmonicznej [71]. Fala podstawowa  $E_x^\omega$  spolaryzowana jest wzdłuż osi  $x$  i rozchodzi się wzdłuż osi  $z$  przez warstwę izotropowego nieliniowego ośrodka o grubości  $l$ . W wyniku liniowej absorpcji fala  $E_x^\omega$  ulega osłabieniu zanim dotrze na odległość  $z$  w głąb ośrodka, gdzie generuje ona falę polaryzacji rzędu trzeciego  $P_x^{3\omega}$ . Indukowana w ten sposób nieliniowa polaryzacja wytwarza z kolei sygnał trzeciej harmonicznej  $E_x^{3\omega}$ , który ulega osłabieniu zanim pobudzi ośrodek. Zasadę dopasowania fazowego w generowaniu trzeciej harmonicznej przez ciecze ilustruje rysunek [7]

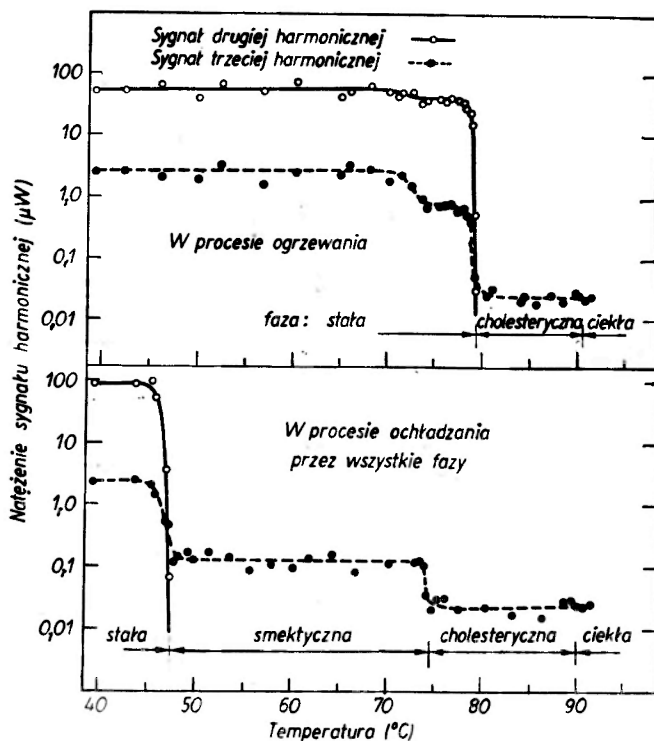


Rys. 7. Zasada dopasowania fazowego za pomocą anomalnej dyspersji. Krzywa *a* przedstawia ośrodek z normalną dyspersją mający współczynniki załamania  $n_h > n_f$  dla częstotliwości harmonicznej  $\omega_h$  i podstawowej  $\omega_f$ , odpowiednio; a więc bez dopasowania współczynników załamania  $\Delta n = n_h - n_f$ . Po wprowadzeniu odpowiedniej rezonansowej absorpcji przy pewnej pośredniej częstotliwości  $\omega_0$  ( $\omega_f < \omega_0 < \omega_h$ ), związana z tym anomalna dyspersja spowoduje zmieniony współczynnik załamania jak pokazano na krzywej *b*. W sprzyjających warunkach, odpowiadających wystarczająco dużej sile oscylatora i koncentracji rezonansowych pochłaniaczy, zmienione współczynniki załamania dla częstotliwości  $\omega_f$  oraz  $\omega_h$  dają się sprowadzić do wspólnej wartości  $n_0$ , przy której następuje dopasowanie fazowe w generowaniu harmonicznych. Bey oraz inni [71] podali pierwszy doświadczalny dowód na to, że w ośrodku bez naturalnego dopasowania można uzyskać dopasowanie fazowe w nieliniowym procesie optycznym przez wprowadzenie anomalnej dyspersji dookoła częstotliwości  $\omega_0$ , przy której mamy  $n_0 = n_f = n_h$



Rys. 8. Układ doświadczalny do badania trzeciej harmonicznej światła odbitego od powierzchni cieczy [75a]. Promieniowanie lasera neodymowego ( $\lambda = 1,06 \mu$ ) doznaje wewnętrznego odbicia na powierzchni granicznej kwarc-ciecz. Odbite promieniowanie trzeciej harmonicznej generowane na granicy zostaje selektywnie przepuszczone przez filtr optyczny i wchodzi do fotopowielacza, po czym zostaje ukazane na oscyloskopie II. Kąt padania wiązki laserowej  $\theta_1^I$  i kąt odbitej trzeciej harmonicznej  $\theta_3^R$  są zaznaczone zgodnie z rysunkiem 4

Pierwsze próby wytwarzania ultrafioletowej trzeciej harmonicznej o długości 2313 Å przy użyciu lasera rubinowego wykonali Terhune, Maker i Savage w kalcycie [56, 69], a następnie w kryształach kubicznych typu fluorku litu



Rys. 9. Pomiary natężenia promieniowania drugiej i trzeciej harmonicznej w ciekłym kryształach nonanoatu cholesterolu wykonane przez Goldberga i Schnura [78]. Przejścia fazowe przy ogrzewaniu i ochładzaniu (zaznaczone na wykresach) zostały określone wizualną obserwacją próbki w świetle zarówno przepuszczonym, jak i odbitym. W fazie stałej obserwowano znaczne natężenie drugiej harmonicznej (tego samego rzędu wielkości co w proszku kryształu kwarcu), które pod wpływem ogrzewania spada gwałtownie o 4 rzędy wielkości w okolicy 79 $^{\circ}\text{C}$  przy przejściu od fazy stałej do fazy cholesterycznej. W odwrotnym procesie powolnego ochładzania od izotropowej fazy ciekłej, poprzez cholesteryczne i smektyczne mezofazy, sygnał drugiej harmonicznej obserwuje się wyraźnie dopiero w punkcie rekrytalizacji do fazy stałej. Trzecią harmoniczną obserwowano we wszystkich fazach, zarówno w procesie ogrzewania, jak i ochładzania, przy czym jej natężenie w fazie stałej jest 100 razy większe od natężenia w fazie ciekłej. Podobne wyniki uzyskano w innych ciekłych kryształach, nie obserwując nigdy drugiej harmonicznej w fazach mezomorficznych, które należy uważać jako centrosymetryczne

oraz cieczech [69, 70]. Badano również niedawno generowanie trzeciej harmonicznej przez roztwory ciekłe [71] (rys. 7), również w zależności od stężenia barwników [72]. Udało się też zaobserwować promieniowanie trzeciej harmonicznej przez gazy [73], w tym także przez gazy szlachetne [74]. Ostatnio ukazała się praca Wang i Baardsena [75b] o generowaniu trzeciej harmonicznej odbitej od powierzchni ciał stałych (metali i półprzewodników). Bey i inni [76] przeprowadzili badania generowania trzeciej harmonicznej przez ciecze oświetlone światłem lasera neodymowego spolaryzowanym liniowo lub



kołowo (rys. 8). Badania wytwarzania trzeciej harmonicznej w gazach i cieczach mają duże znaczenie dla uzyskania cennych informacji o nieliniowych własnościach optycznych izolowanych atomów i molekuł [77].

Ostatnio Goldberg i Schnur [78] przeprowadzili badania indukowanego światłem laserowym promieniowania trzeciej harmonicznej w ciekłych kryształach (rys. 9). Badania te ujawniły pewien wpływ na generowanie trzeciej harmonicznej korelacji molekularnych odgrywających ważną rolę w nieliniowym rozpraszaniu światła i dwójłomności optycznej środowisk ciekłych [79].

Przeprowadzone były próby obserwowania generowania trzeciej harmonicznej w kryształach antymonku indu ( $\text{InSb}$ ) [80], którego wzrost natężenia w obecności pola magnetycznego był przewidziany przez Laxa i współpracowników [81]. Opracowano również teorię generowania trzeciej harmonicznej w plazmie i magnetoplazmie [82a] oraz w półprzewodnikach [82b].

## 5. Mieszanie częstości drgań wiązek laserowych

W ciałach bez środka symetrii dwie fale elektromagnetyczne o częstościach  $\omega_1$  i  $\omega_2$  i wektorach falowych  $\mathbf{k}_1$  i  $\mathbf{k}_2$  indukują polaryzację elektryczną drugiego rzędu przy częstości  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ :

$$P_i^{(2)}(\omega_3, \mathbf{k}_3) = \chi_{ijk}^{\omega_3, \mathbf{k}_3} E_j(\omega_1, \mathbf{k}_1) E_k(\omega_2, \mathbf{k}_2), \quad (19)$$

przy czym warunek synchronizacji czasowej i przestrzennej współdziałania trzech fal jest [83]:

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2, \quad (5b)$$

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \Delta \mathbf{k}. \quad (6b)$$

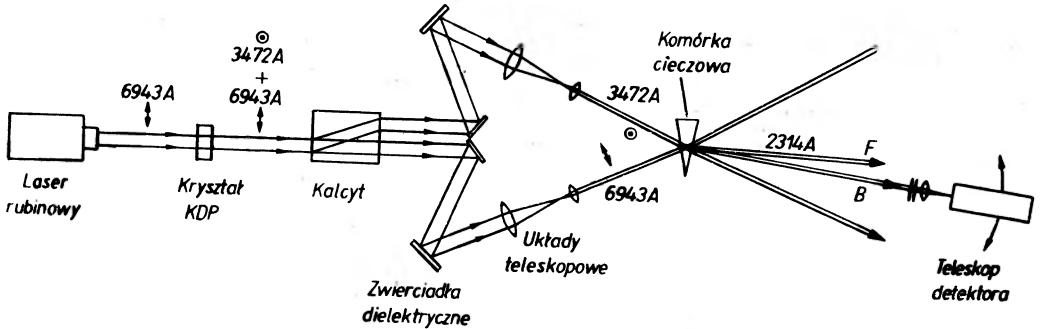
Dla tensora nieliniowej podatności drugiego rzędu  $\chi_{ijk}$  spełnione są następujące związki przestawień przestrzenno-czasowych [17]

$$\chi_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \chi_{jik}(\omega_1, -\omega_3, \omega_2) = \chi_{kij}(\omega_2, -\omega_3, \omega_1)$$

pozwalające na dowolne przestawienie częstości  $\omega_3, \omega_1, \omega_2$  równocześnie z odpowiadającymi im wskaźnikami  $i, j, k$  numerującymi współrzędne przestrzenne  $x, y, z$ . W środowiskach optycznie nieaktywnych bez dyspersji i absorpcji tensor  $\chi_{ijk}$  można uważać za całkowicie symetryczny względem wszystkich wskaźników. W ciałach przezroczystych optycznie aktywnych możemy tensor  $\chi_{ijk}$  rozdzielić na część symetryczną  $\chi_{ijk}^S = (\chi_{ijk} + \chi_{ikj})/2$  oraz część antysymetryczną  $\chi_{ijk}^A = (\chi_{ijk} - \chi_{ikj})/2$  względem wskaźników  $j$  oraz  $k$ . W ciałach naturalnie anizotropowych efekty wywołane częścią antysymetryczną  $\chi_{ijk}^A$  są nieznaczne w porównaniu z efektami wywołanymi częścią symetryczną  $\chi_{ijk}^S$ . Jednakże w ciałach izotropowych bez centrum symetrii, takich jak cieczy optycznie aktywne, część symetryczna znika  $\chi_{ijk}^S = 0$  i jedynym czynnikiem powodującym mieszanie dwóch różnych fal jest różna od zera w tym przypadku część antysymetryczna [21]. Giordmaine [21] i Butcher [23] przeprowadzili pełną dyskusję

nieznikających składowych tensora  $\chi_{ijk}$  dla wszystkich 32 klas krystalograficznych, tekstur i ciał izotropowych.

Mieszanie w kryształach TGS dwóch wiązek światła monochromatycznego pochodzących z dwóch różnych laserów rubinowych działających w różnych temperaturach zostało po raz pierwszy wykonane przez Bassa i innych [84]. Doświadczenie to powtarzano w innych wariantach i rozmaitych środowiskach. Mieszano dwie wiązki spójne jedną pochodzącą od lasera rubinowego, drugą od lasera  $\text{CaWO}_4 : \text{Nd}^{3+}$  [85] oraz wiązki dwóch laserów gazowych pracujących



Rys. 10. Układ do obserwacji mieszania dwóch fal świetlnych w cieczach optycznie czynnych [91]. Padająca wiązka światła lasera rubinowego o długości 6943 Å oraz wytworzona w kryształach KDP druga harmoniczna o długości 3472 Å, oddziałują wzajemnie w komórce z roztworem arabinozy ( $\text{C}_5\text{H}_{10}\text{O}_5$ ) dając spójną emisję sumacyjnej częstości. Ponieważ komórka z roztworem jest w kształcie pryzmatu, przeto mamy dwie składowe ( $F$  oraz  $B$ ) wiązki świetlnej o długości 2314 Å

w sposób ciągły na długościach 6300 Å i 11500 Å odpowiednio [86]. Mieszano również w kryształach KDP wiązkę światła lasera rubinowego z drugą wiązką niespójną pochodzącą z lampy rtęciowej [87]. Wytwarzano wiązki o częstości sumacyjnej za pomocą dwóch wiązek laserowych o różnych częstościach, np. widzialnej i podczerwonej [88, 89]. Badano również mieszanie fal podczerwonych i mikrofal w rozmaitych materiałach [90].

Giordmaine [21] zwrócił uwagę na możliwość mieszania fal w ciałach izotropowych optycznie aktywnych, w których nie występuje podwojenie częstości drgań. Generowanie o częstości sumacyjnej zaobserwowano w cieczach optycznie aktywnych i ich roztworach [91] (rys. 10). Teoria pozwala zrealizować mieszanie fal w gazach i cieczach w obszarach rezonansowych [92]. Bey oraz Rabin [93] przeprowadzili ogólną analizę współdziałania fal kołowo spolaryzowanych w ciałach optycznie aktywnych. Patel i Van Tran [94] pierwsi obserwowali (techniką dopasowania fazowego) nieliniowe oddziaływanie w antymonku indu ( $\text{InSb}$ ) trzech kołowo spolaryzowanych fal oraz generowanie częstości różnicowej  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$  w dalekiej podczerwieni.

W ciałach izotropowych optycznie nieaktywnych powstaje polaryzacja elektryczna trzeciego rzędu, która w przypadku działania na ośrodek trzech fal o częstościach  $\omega_1$ ,  $\omega_2$ ,  $\omega_3$  i wektorach falowych  $\mathbf{k}_1$ ,  $\mathbf{k}_2$ ,  $\mathbf{k}_3$  ma postać

$$P_i^{(3)}(\omega_4, \mathbf{k}_4) = \chi_{ijkl}^{\omega_4} E_j(\omega_1, \mathbf{k}_1) E_k(\omega_2, \mathbf{k}_2) E_l(\omega_3, \mathbf{k}_3), \quad (20)$$

przy czym zgodnie z warunkami synchronizacji (5) i (6) mamy teraz [83]:

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3, \quad (5c)$$

$$k_4 = k_1 + k_2 + k_3 + \Delta k, \quad (6c)$$

W przypadku tensora nieliniowej podatności trzeciego rzędu mamy związki przestawień czasowo-przestrzennych [17]:

$$\begin{aligned} \chi_{ijkl}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) &= \chi_{jikl}(\omega_1; -\omega_4, \omega_2, \omega_3) = \\ &= \chi_{kijl}(\omega_2; -\omega_4, \omega_1, \omega_3) = \chi_{lijk}(\omega_3; -\omega_4, \omega_1, \omega_2). \end{aligned}$$

Tensor  $\chi_{ijkl}$  posiada różne od zera składowe również dla ciał izotropowych posiadających środek symetrii, a więc dla gazów i cieczy normalnych. Nieznikające składowe tensora  $\chi_{ijkl}$  są stabelaryzowane dla wszystkich klas krystalograficznych [23, 83]. Jeśli w ciałach nie występuje dyspersja optyczna lub jeśli jest na tyle mała, że można ją zaniedbać, to możemy traktować tensor  $\chi_{ijkl}$  jako całkowicie symetryczny. Każde dodatkowe warunki symetrii zmniejszają znacznie liczbę niezależnych składowych tensora  $\chi_{ijkl}$ , który w ogólnym przypadku ma 81 składowych.

Niedawno Wynne [95] przeprowadził badania mieszania częstości optycznych trzeciego rzędu w półprzewodnikach takich jak GaAs, Si, Ge oraz InAs. Sodha i inni [96] przeprowadzili teoretyczną analizę nieliniowego mieszania częstości w plazmie.

## 6. Generowanie harmoniczných przez ultrakrótkie impulsy laserowe

Za pomocą laserów krystalicznych (rubinowe i neodymowe) możemy wytwarzać gigantyczne impulsy świetlne (o mocy nie mniejszej od 1 MW) w czasach trwania emisji krótszych od  $10^{-6}$  s. Moc chwilowa poszczególnych oscylacji tworzących impuls świetlny może być powiększona przez wzrost energii lub skrócenie czasu trwania impulsów. W ostatnich 4 latach rozwinęła się szybko w elektronice kwantowej technika wytwarzania ultrakrótkich impulsów emitowanych przez lasery neodymowe [97] i lasery Nd : YAG [98] z synchronizacją modów (*mode locking*). Czas trwania tych impulsów leży w granicach  $10^{-11}$ - $10^{-13}$  s, przy czym ich moc, jak pokazali Basow i inni [99] może być powiększona do  $10^6$  MW. Taka wiązka laserowa zogniskowana na powierzchni deuterku litu (LiD) powoduje emisję neutronów z plazmy powstającej w ognisku [99 b, c].

Technikę ultrakrótkich impulsów świetlnych zastosowano do wytwarzania drugiej harmonicznój w kryształach GaAs [100], kryształach KDP i ADP [101], kryształach LiNbO<sub>3</sub> [102, 103] oraz trzeciej harmonicznój w cieczach [104]. Obserwowano również trzecią harmonicznój w odbitych od powierzchni ciał pikosekundowych impulsach laserowych [105].

Informacje o przebiegach czasowych pikosekundowych impulsów laserowych

i ich szerokościach daje nie tylko obserwacja wydajności wytwarzania harmonicznych optycznych, ale prostsza technika obserwacji fluorescencji dwufotonowej [106] oraz technika kompresji impulsów [107].

W związku z rozwojem techniki generowania ultrakrótkich impulsów świetlnych dużą uwagę przywiązuje się do badania niestacjonarnych zjawisk optycznych. W polach pikosekundowych impulsów laserowych charakter przebiegu rozmaitych nieliniowych zjawisk jest pod wieloma względami zupełnie inny aniżeli to ma miejsce w przypadku pól impulsów mikro- i nanosekundowych. Czas trwania ultrakrótkich impulsów ( $10^{-12}$  s) jest porównywalny z czasami relaksacji molekuł i czasami ustalania się nieliniowości ciał [108] oraz czasami grupowego zapóźnienia współdziałających w ośrodku fal świetlnych. Dla procesów generowania harmonicznych i procesów parametrycznych [109] istotny jest tylko czas grupowego zapóźnienia fal, warunkujący falowe niestacjonarności [110]. Teoretyczna analiza generowania drugiej harmonicznej ultrakrótkimi impulsami była przedmiotem wielu prac Achmanowa i współpracowników [110] oraz innych autorów [102, 111].

## 7. Nieliniowe podatności optyczne ciał

Procesy wytwarzania optycznych harmonicznych są silnie uwarunkowane rodzajem struktury ciał, a więc kryształów, cieczy i gazów. Konsekwencją badania tych nowych nieliniowych zjawisk jest intensywne poszukiwanie rozmaitych materiałów, w których te zjawiska występują bardzo silnie. Nieliniowe własności rozmaitych substancji znajdujemy w trakcie badań doświadczalnych, a także na drodze przewidywań i obliczeń teoretycznych.

Wiele informacji o nieliniowych własnościach elektrycznych i optycznych atomów i molekuł uzyskano z badania innych zjawisk, takich jak zjawisko Kerra [112], indukowana optycznie dwójłomność [12, 13, 113] i nieliniowe rozpraszanie światła laserowego w gazach i cieczach [77, 114]. Dla niektórych atomów i prostych molekuł wykonano teoretyczne obliczenia nieliniowych polaryzowalności rzędu drugiego [115] i trzeciego [115-117]. Przedyskutowano również własności permutacyjne i ilość niezależnych składowych tensorów nieliniowej polaryzowalności molekuł dla wszystkich grup punktowych [118]. Dyskutowano również możliwość określenia nieliniowych własności optycznych makromolekuł [119] i cząstek koloidalnych [120].

Nieliniowe podatności optyczne ciał stałych określano za pomocą badania generowania optycznych harmonicznych, a także obliczono metodami klasycznymi [45 b, 46, 121] na podstawie przybliżonej relacji Millera [39 b] między liniowymi i nieliniowymi podatnościami. Bezpośrednie obliczenia ilościowe, metodami perturbacyjnymi mechaniki kwantowej, są bardzo złożone [122] i wykonano je dopiero niedawno dla półprzewodników III-V grup [123, 124] oraz dla niektórych kryształów walencyjnych [125]. Wielu autorów przeprowadziło teoretyczną analizę permutacyjnej symetrii nieliniowych podatności

Tablica II

Względne wartości składowych tensora nieliniowej podatności  $\chi_{ijk}^{2\omega}$  wyznaczone z pomiarów wytwarzania drugiej harmonicznej. (Wartość  $d_{36}$  dla kryształu KDP przyjęto równą 1; jej wartość bezwzględna wynosi  $d_{36}^{\text{KDP}} = 6 \times 10^{-9}$  jES [36])

Kryształ	Symetria	Długość fali lasera w mikronach	Względne wartości składowych nieliniowej podatności $d_{ij}(-2\omega, \omega, \omega)$	Droga spójności $L_{ij}$ w mikronach	Literatura
KH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (KDP)	42 m	0,6943	$d_{36} = 1,00$	18,5	[40]
		1,06	$d_{14} = 0,95 \pm 0,06$ $d_{36} = 1,00$	7,3 22,0	
KD <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (DKDP)	42 m	0,6943	$d_{14} = 1,01 \pm 0,05$ $d_{36} = 0,75 \pm 0,02$	14,6 20,6	[40]
		1,06	$d_{14} = 0,76 \pm 0,04$ $d_{36} = 0,92 \pm 0,04$	7,7 21,2	
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> (ADP)	42 m	0,6943	$d_{14} = 0,91 \pm 0,03$ $d_{36} = 0,93 \pm 0,06$	15,8 17,7	[40]
		1,06	$d_{36} = 0,99 \pm 0,06$ $d_{14} = 0,98 \pm 0,05$	21,0 13,2	
BaTiO <sub>3</sub>	4 mm	1,06	$d_{15} = 35 \pm 3$	3,1	[39]
			$d_{31} = 37 \pm 3$	5,8	[40]
Kwarc (SiO <sub>2</sub> )	32	1,06	$d_{33} = 14 \pm 1$	4,1	[39]
			$d_{11} = 0,82 \pm 0,04$ $d_{14} = 0,00 \pm 0,05$	20	
AlPO <sub>4</sub>	32	1,06	$d_{11} = 0,84 \pm 0,07$		[17]
CdS	6 mm	1,06	$d_{15} = 35 \pm 3$	1,8	[39]
			$d_{31} = 32 \pm 2$ $d_{33} = 63 \pm 4$	1,7 1,8	[40]
ZnO	6 mm	1,06	$d_{15} = 4,7 \pm 0,4$ $d_{31} = 4,3 \pm 0,4$		[17]
			$d_{33} = 13,4 \pm 0,4$		

optycznych dla rozmaitych ciał z uwzględnieniem multipolowych przyczynków elektrycznych i magnetycznych [19-23, 126] oraz dyspersji nieliniowej [127]. Badano również eksperymentalnie dyspersję nieliniowej podatności kryształu GaP [128] oraz nieliniowe własności półprzewodników w dalekiej podczerwieni [63a, 129].

W omówionych wyżej badaniach dużą wagę przywiązuje się do analizy spójności pola promieniowania [130] oraz statystyczno-fluktuacyjnych procesów towarzyszących generowaniu optycznych harmonicznych [131-133]. Ostatnio bada się szereg innych procesów związanych z propagacją ultrakrótkich i intensywnych impulsów laserowych [134], ich absorpcją w ciałach rezonansowych [135], oraz statystyką samego powstawania impulsów [136].

Przy poszukiwaniu nowych materiałów do wytwarzania optycznych harmonicznych należy pamiętać nie tylko o ich dużej nieliniowości, ale również

Podatności optyczne nowych nieliniowych materiałów wyznaczone z badań generowania drugiej harmonicznej

Kryształ	Symetria	Długość fali lasera w mikr.	Wartości składowych nieliniowej podatności $d_{ij}(-2\omega, \omega, \omega)$	Literatura
LiNbO <sub>3</sub>	3 <i>m</i>	1,06	$d_{22} = (6,3 \pm 0,6) d_{36}^{\text{KDP}}$ $d_{31} = (11,9 \pm 1,7) d_{36}^{\text{KDP}}$	[41b]
LiTaO <sub>3</sub>	3 <i>m</i>	1,06	$d_{33} = (83 \pm 21) d_{36}^{\text{KDP}}$ $d_{22} = (4,3 \pm 0,5) d_{36}^{\text{KDP}}$ $d_{31} = (2,6 \pm 0,5) d_{36}^{\text{KDP}}$ $d_{33} = (40 \pm 5) d_{36}^{\text{KDP}}$	[41b]
K <sub>3</sub> Li <sub>4</sub> NbO <sub>3</sub>	4 <i>mm</i>	1,064	$d_{31} = (19,3 \pm 4) d_{11}^{\text{K}}$	[42a]
Ag <sub>3</sub> AsS <sub>3</sub>	3 <i>m</i>	1,152	$d_{33} = (35 \pm 5) d_{11}^{\text{K}}$ $d_{22} = 50 d_{36}^{\text{KDP}}$ $d_{31} = 30 d_{36}^{\text{KDP}}$	[41c]
K <sub>3</sub> Li <sub>2</sub> Nb <sub>5</sub> O <sub>15</sub>	4 <i>mm</i>	1,06	$d_{31} = (19 \pm 4) d_{11}^{\text{K}}$	[46f]
Ba <sub>2</sub> NaNbO <sub>15</sub>	2 <i>mm</i>	1,064	$d_{31} = (35 \pm 7) d_{11}^{\text{K}}$ $d_{32} = (41,3 \pm 4) d_{11}^{\text{K}}$ $d_{33} = (42 \pm 3) d_{11}^{\text{K}}$	[42b]
HfO <sub>3</sub>		1,06	$d_{14} = (21 \pm 4) d_{11}^{\text{K}}$	[42d]
LiIO <sub>3</sub>	6	1,06	$d_{31} = (31 \pm 3) d_{36}^{\text{KDP}}$ $d_{31} = (38 \pm 6) d_{31}^{\text{K}}$	[43a]
NaClO <sub>3</sub>	23	0,6943	$d_{14} = 3,3 \times 10^{-9} \text{ jES}$	[53]
NaBrO <sub>3</sub>	23	0,6943	$d_{14} = 1,35 \times 10^{-9} \text{ jES}$	[53]

$d_{36}^{\text{KDP}}$  — podatność kryształu KDP, —  $d_{11}^{\text{K}}$  podatność kwarcu.

o istnieniu kierunków dopasowania, które pozwalają osiągnąć wzrost natężenia harmonicznych o kilka rzędów wielkości. W związku z tym również ważnym zagadnieniem jest poszukiwanie nowych metod synchronizacji prędkości fazowych, nie tylko w ciałach anizotropowych ale przede wszystkim w ciałach izotropowych. W ciałach naturalnie anizotropowych możemy kompensować dyspersję optyczną dzięki istnieniu liniowej dwójłomności optycznej [31, 32], natomiast w ciałach izotropowych możemy osiągnąć dopasowanie za pomocą dyspersji kołowej dwójłomności, występującej w substancjach optycznie aktywnych [52, 53, 75]. Być może, że w ciałach izotropowych uda się osiągnąć dopasowanie za pomocą zjawiska Faradaya lub innych zjawisk.

Badania optycznych harmonicznych w świetle przechodzącym przez ośrodek dają informacje o jego strukturze i przemianach fazowych, natomiast badania harmonicznych w świetle odbitym dostarczają danych optycznych o właściwościach powierzchni ciał, podwójnej warstwie elektrycznej [60] oraz zjawiskach powierzchniowych na granicy dwóch środowisk (np. gaz-ciało stałe, ciecz-ciało stałe, gaz-ciecz, elektrolit-półprzewodnik, itp.).

Nieliniowe podatności optyczne półprzewodników [125a]

Tablica IV

Kryształ		Wartości $d_{ij}^{2\omega} \times 10^7$ jES	
		Doświadczalne	Obliczone teoretycznie
InSb	$\bar{43} m$	$d_{14} = 16,5 \pm 3,5$	$d_{14} = 19$
GaSb		$14,0 \pm 2$	12
InAs		$11,0 \pm 1$	9,6
GaAs		$7,5 \pm 1,5$	5,7
GaP		$2,3 \pm 0,5$	3,4
CdTe		$4,0 \pm 1,5$	3,5
ZnTe		$3,1 \pm 0,7$	3,0
ZnSe		$1,4 \pm 0,4$	1,4
ZnS		$0,7 \pm 0,2$	0,85
CuCl		$0,2 \pm 0,1$	0,32
CdSe		6 mm	$d_{15} = 1,15 \pm 0,35$
	$d_{31} = 1,05 \pm 0,35$		
	$d_{33} = 2,00 \pm 0,7$		$d_{33} = 2,6$
CdS	$d_{15} = 0,60 \pm 0,09$		$d_{15} = d_{31} = 0,6$
	$d_{31} = 0,55 \pm 0,09$		
	$d_{33} = 1,00 \pm 0,15$		$d_{33} = 1,25$
ZnS	$d_{15} = 0,50 \pm 0,15$		$d_{15} = d_{31} = 0,48$
	$d_{31} = 0,45 \pm 0,15$		
	$d_{33} = 0,89 \pm 0,3$		$d_{33} = 0,95$
ZnO	$d_{15} = 0,07 \pm 0,03$		$d_{15} = d_{31} = 0,12$
	$d_{31} = 0,07 \pm 0,03$		
	$d_{33} = 0,22 \pm 0,05$	$d_{33} = 0,25$	

Tablica V

Nieliniowe własności optyczne kryształów związków międzymetalicznych atomów pierwiastków III, IV i V grupy układu okresowego

Materiał	$n(\omega)$	$n(2\omega)$	Długość $L_s$ w mikronach	$d_{14}$ w jednostkach $10^{-6}$ jES	
				doświadczenie <sup>a</sup>	teoria
InAs	3,49	3,54	$53 \pm 2$ [128b]	$1,0 \pm 0,3$ [48a]	1,0 <sup>b</sup>
			$60 \pm 10$ [48a]	$1,2 \pm 0,3$ [63a]	0,96 [125a]
GaAs	3,27	3,30	$104 \pm 7$ [128b]	1,0 [128b]	2,05 [124a]
			$111 \pm 10$ [48a]	$0,88 \pm 0,3$ [48a]	0,64 <sup>b</sup>
				$0,9 \pm 0,2$ [63a]	0,57 [125a]
GaP	3,05	3,11	$46 \pm 3$ [128b]	0,45 [128b]	0,95 [124a]
				0,26 [128b]	0,41 <sup>b</sup>
GaSb	3,80	3,82	$134 \pm 7$ [128b]	0,105 [88a]	0,34 [125a]
					0,70 [124a]
				1,51 [128b]	1,70 <sup>b</sup>
					1,2 [125a]
					0,80 [124a]

<sup>a</sup> wartości doświadczalne  $d_{14}$  wyznaczone z pomiarów drugiej harmonicznej światła lasera gazowego CO<sub>2</sub> o długości 10,6  $\mu$ .

<sup>b</sup> wartości obliczone na podstawie empirycznej reguły Millera [39b, 128b].

Nieliniowe własności optyczne materii przejawiają się w wielu innych procesach nie omówionych w niniejszym artykule. Do ważniejszych z tych nieliniowych zjawisk optycznych zaliczyć należy procesy wielofotonowe<sup>3</sup> [137], procesy parametryczne [138], zjawiska stymulowanego rozpraszania Rayleigha, Ramana<sup>4</sup> i Brillouina [27, 139], samoogniskowanie światła [140] oraz nieliniowa aktywność optyczna i nasycenie optyczne [141]. W zjawiskach tych obok procesów elektronowych i jonowych, niekiedy ważną rolę odgrywa optyczna reorientacja molekularna [6, 11] wykorzystana ostatnio w nowej metodzie generowania silnych impulsów pikosekundowych przez stałe lasery [142].

## 8. Wytwarzanie wyższych harmonicznych światła

Zgodnie z równaniem (4) określającym polaryzację  $n$ -tego rzędu możemy wytwarzać w ogólności wyższe harmoniczne od trzeciej, a więc czwartą i piątą harmoniczną światła. Achmanow, Chochłow i inni przeprowadzili szereg doświadczeń, w których po raz pierwszy obserwowali, najpierw czwartą harmoniczną [34, 143], a niedawno również i piątą harmoniczną światła lasera neodymowego [144]. Stosowali oni gigantyczny laser neodymowy emitujący światło o długości  $\lambda_1 = 10600 \text{ \AA}$  wzbudzające kaskadowy układ konwersji częstości złożony z trzech kryształów KDP (rys. 11). W pierwszym kryształcie o temperaturze pokojowej powstaje druga harmoniczna o długości  $\lambda_2 = 5300 \text{ \AA}$ , zaś drugi kryształ wytwarza trzecią harmoniczną o długości  $\lambda_3 = 3533 \text{ \AA}$  albo czwartą harmoniczną o długości  $\lambda_4 = 2650 \text{ \AA}$ . Zadanie trzeciego kryształu KDP polega na mieszaniu harmonicznym wytworzonych przez poprzednie dwa kryształy KDP, aby w ten sposób wytwarzać częstości sumacyjne  $\omega_5 = \omega_2 + \omega_3$  albo  $\omega_5 = \omega_1 + \omega_4$  dające piątą harmoniczną  $5\omega$ . Ponieważ w kryształach KDP lub ADP warunki synchronizacji sumowania częstości  $\omega_1$  i  $\omega_4$  nie spełniają się w temperaturze pokojowej, przeto autorzy [144] obniżyli temperaturę trzeciego kryształu do  $-70^\circ\text{C}$ . Przy przejściu przez temperaturę synchronizacji obserwowano silny wzrost ( $10^3$ - $10^4$ ) mocy piątej harmonicznnej dochodzącej do 1 kW w wiązce nieskupionej.

Wytworzona przez Achmanowa, Chochłowa i innych [144] piąta harmoniczna światła o długości  $\lambda_5 = 2120 \text{ \AA}$  jest najkrótszą falą ultrafioletową wytworzoną metodą kaskadowego generowania harmonicznym przez kryształy nieliniowe. Jeśli w tym doświadczeniu (rys. 11) zastąpimy trzeci kryształ przez komórkę zawierającą roztwory organicznych scyntylatorów, możemy przestrajać częstości ultrafioletu w zakresie  $4000$ - $2000 \text{ \AA}$  [143].

Ultrafiolet o długości  $2573 \text{ \AA}$  wytworzony został w kryształach KDP i ADP jako ciągła generacja drugiej harmonicznnej światła jonowego lasera argonowego o długości fali  $5145 \text{ \AA}$  [145]. Widzimy zatem, że układy elektroniki kwantowej

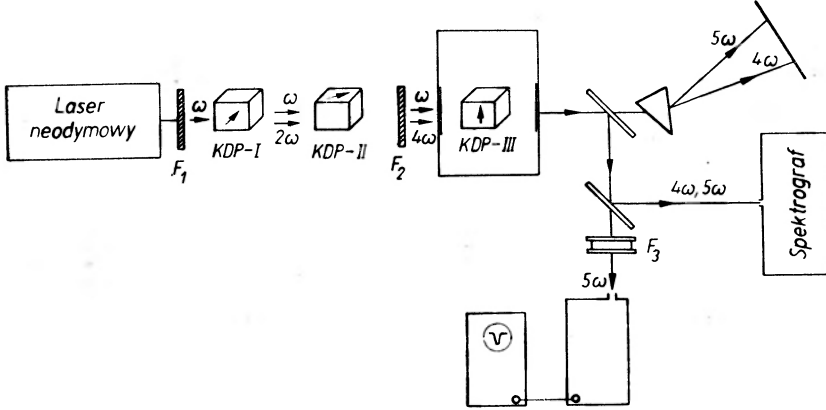
<sup>3</sup> W języku polskim ukazał się artykuł: M. Łukaszewski, *Postępy Fizyki*, **18**, 287 (1967).

<sup>4</sup> Artykuł przeglądowy: R. Mierzecki, *Postępy Fizyki*, **16**, 429 (1965).



wytwarzające wyższe harmoniczne optyczne są nowymi źródłami (impulsowymi lub ciągłymi) spójnego i intensywnego światła ultrafioletowego.

Do wytwarzania koherentnego światła w zakresie widzialnym i bliskiej podczerwieni stosuje się optyczne oscylatory parametryczne [138], których częstość można przestrajać płynnie za pomocą: a) mechanicznego obrotu



Rys. 11. Schemat układu kaskadowego Achmanowa, Chochłowa i innych [144] do wytwarzania piątej harmonicznej światła lasera neodymowego.  $F_1$ ,  $F_2$  i  $F_3$  kolejne filtry. Widma drugiej, czwartej i piątej harmonicznej otrzymano za pomocą specjalnego spektrografu

kryształu w rezonatorze, b) zmiany temperatury kryształu, c) liniowego zjawiska elektrooptycznego (zaletą tej ostatniej metody jest mała bezwładność rzędu  $10^{-12}$  s). Ponieważ większość laserów promieniuje światło czerwone i podczerwone (nie licząc lasera argonowego z zieloną linią  $4880 \text{ \AA}$  oraz azotowego lasera promieniującego ultrafiolet  $3371 \text{ \AA}$ ), przeto dzięki generatorom optycznych harmonicznych możemy wytwarzać spójne światło w dziedzinie widzialnej i ultrafioletowej. Parametryczne generatory światła dokonują procesu odwrotnego, zamieniając ultrafiolet lub światło zielone na światło widzialne lub podczerwień. W ten sposób dysponujemy źródłami fal elektromagnetycznych o dowolnej długości w szerokim przedziale widmowym. Prace nad parametrycznymi wzmacniaczami i generatorami światła omówione są w przeglądowych artykułach Achmanowa i Chochłowa oraz Giordmaine [138].

## 9. Harmoniczne rozpraszanie światła

Światło laserowe o dostatecznie dużym natężeniu  $I$  wywołuje w ośrodku obok elastycznego rozpraszania z częstością podstawową  $\omega$  również rozpraszanie wyższych rzędów o podwojonej częstości  $2\omega$ , potrójonej częstości  $3\omega$  etc., wobec czego całkowite natężenie światła rozproszonego wyraża się szeregiem [146]:

$$I_S = S^\omega I + S^{2\omega} I^2 + S^{3\omega} I^3 + \dots, \quad (21)$$

gdzie stała  $S^\omega$  opisuje liniowe rozproszenie światła badane intensywnie od czasów Rayleigha-Smoluchowskiego [26, 30, 35].

Stała  $S^{2\omega}$  określa nieliniowe rozproszenie światła z podwojoną częstością zaobserwowane przez Terhune, Makera i Savage [114] za pomocą światła

gigantycznego lasera rubinowego skupionego w cieczach, których molekuly nie posiadają centrum symetrii ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CCl}_4$ ,  $\text{CH}_3\text{CN}$ ). Rozproszenie dwuharmoniczne obserwowano również w metanie poddanym ciśnieniu 100 atmosfer [147]. W stanie gazowym rozproszenie dwuharmoniczne jest bardzo czułe na rodzaj symetrii molekularnej i występuje tylko wtedy, gdy molekuly nie posiadające centrum symetrii w stanie podstawowym doznają nieliniowej polaryzacji drugiego rzędu przy częstotliwości  $2\omega$  [118]. W cieczach ujawnia się rola korelacji molekularnych typu radialnego i kąowego [79, 146, 148], dzięki którym może wystąpić słabe rozproszenie dwuharmoniczne również w przypadku molekul centrosymetrycznych<sup>5</sup> posiadających trwale kwadrupole elektryczne [79, 149]. W tym roku ukazała się obszerna praca Makera [150], w której przedstawione są badania szerokości linii spektralnych rozproszenia dwuharmonicznego w wielu cieczach. Znacznej intensywności nieliniowego rozproszenia należy oczekiwać w roztworach makromolekul [119] oraz cząstek koloidalnych [120].

Freund [151] obserwował rozproszenie dwuharmoniczne wywołane fluktuacjami kąowymi w pobliżu punktu krytycznego chlorku amonu, które dostarcza informacji o przejściach fazowych w ciałach stałych, np. przejście porządek-nieporządek [152]. Pomiar rozproszenia dwuharmonicznego w  $\text{NH}_4\text{Cl}$  w zależności od temperatury oraz kąta rozproszenia dały nie tylko miarę długości korelacji uporządkowania jonów  $\text{NH}_4^+$ , ale ujawniły istnienie domen o różnie zorientowanych jonach [151, 152].

W kwantowym ujęciu rozproszenie o podwojonej częstotliwości jest procesem trójfotonowym, w którym molekula pochłania dwa fotony światła padającego o częstotliwości  $\omega$  i emituje następnie foton o częstotliwości  $2\omega$ . Prócz tego elastycznego rozproszenia dwuharmonicznego możliwe jest nieliniowe ramanowskie rozproszenie drugiego rzędu [118], gdy dwa fotony o częstotliwościach  $\omega_1$  i  $\omega_2$  padają na molekule, która rozprasza nieelastycznie trzeci foton o częstotliwościach  $\omega_1 + \omega_2 \pm \omega_{kl}$ , gdzie  $\omega_{kl}$  jest częstotliwością przejścia molekuly ze stanu kwantowego  $k$  do  $l$ . W ogólności możliwe są również nieliniowe rozproszenia ramanowskie wyższych rzędów z częstotliwościami  $\omega_1 + 2\omega_2 \pm \omega_{kl}$ ,  $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \pm \omega_{kl}$  etc. [153]. Powyższe typy rozproszeń dostarczają cennych informacji o nieliniowych własnościach optycznych atomów i molekul [77]. Ostatnio Strizewski i Obuchowski [154] opracowali mikroskopową teorię nieliniowego rozpraszania światła w kryształach typu GaP, ZnSe i ZnO.

## 10. Nieliniowe polaryzowalności optyczne atomów i molekul

Wszelkie procesy wielofotonowe występujące w substancjach atomowych lub molekularnych opisane są tensorami nieliniowej polaryzowalności drugiego rzędu  $b_{ijk}$ , trzeciego rzędu  $c_{ijkl}$  itd. Moment dipolowy drugiego rzędu indukowany w molekule przy częstotliwości  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  ma postać

$$m_i^{(2)}(\omega_3) = \beta b_{ijk}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2), \quad (22)$$

<sup>5</sup> To nowe rozproszenie dwu-fotonowe zostało ostatnio odkryte przez S. Kielicha, J. R. Lalanne i F. B. Martina, *Phys. Rev. Letters*, 26 1295 (1971).

gdzie współczynnik porządkowania  $\beta$  wynosi  $1/4$  dla  $\omega_1 = \omega_2$  oraz  $1/2$ , jeśli wszystkie częstotliwości są różne lub równe zeru. W nieobecności dyspersji i absorpcji między poszczególnymi tensorami zachodzą następujące zależności:

$$2b_{ijk}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) = b_{ijk}(-2\omega; \omega, \omega) = 4b_{ijk}(-\omega; \omega, 0) = 2b_{ijk}(0; 0, 0). \quad (23)$$

Statyczne wartości nieliniowej polaryzowalności  $b_{ijk}(0; 0, 0)$  obliczono teoretycznie dla kilku dipolowych molekuł [115]. Składowe tensora  $b_{ijk}(-\omega; \omega, 0)$  można wyznaczyć z pomiarów zjawiska Kerra [112] lub molekularnego rozproszenia światła [155]. Wartości  $b_{ijk}(-2\omega; \omega, \omega)$  można określić z badań nieliniowego rozproszenia o częstotliwości podwojonej [114, 118] lub wytwarzania drugiej harmonicznej w obecności stałego pola elektrycznego [65-67].

W trzecim przybliżeniu rachunku zaburzeń indukowany w molekułce moment dipolowy przy częstotliwości  $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$  jest

$$m_i^{(4)}(\omega_4) = \gamma c_{ijkl}(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3), \quad (24)$$

gdzie  $\gamma$  wynosi  $1/4$ , jeśli wszystkie częstotliwości są różne,  $1/8$  — jeśli dwie częstotliwości są różne,  $1/24$  dla  $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3$  oraz  $1/6$  dla częstotliwości zerowych.

Bezpośrednie obliczenia teoretyczne nieliniowej polaryzowalności trzeciego rzędu wykonano dla atomów gazów szlachetnych oraz prostych molekuł zarówno dla przypadku statycznego [112, 116], jak i optycznego [117]. Wartości składowych tensora  $c_{ijkl}(-\omega; \omega, 0, 0)$  wyznaczono dla wielu molekuł z badań statycznego zjawiska Kerra [112, 155, 156] oraz optycznego zjawiska Kerra [113]. Składowe tensora  $c_{ijkl}(-3\omega; \omega, \omega, \omega)$  określa się z badań wytwarzania trzeciej harmonicznej światła w gazach i cieczach [74-76] lub trójharmonicznego rozpraszania światła [77, 153, 157]. Pomiar generowania drugiej harmonicznej w obecności pola elektrycznego [65-67] pozwalają wyznaczyć wartości  $c_{ijkl}(-2\omega; \omega, \omega, 0)$ , zaś z badań generowania częstotliwości różnicowych [73] określono składowe tensora  $c_{ijkl}(\omega_1 - 2\omega_2; -\omega_1, \omega_2, -\omega_2)$ . Wartości nieliniowych polaryzowalności optycznych wyznaczone omówionymi wyżej metodami zestawione są w tabelicy VI.

## 11. Uwagi końcowe

Na podstawie równań (3)-(6) można obliczyć natężenie  $n$ -tej harmonicznej wytworzonej w ośrodku nieliniowym optycznie przezroczystym o grubości  $l$

$$I(n\omega, l) \approx (\chi^{n\omega})^2 \left\{ \frac{\sin \frac{1}{2} l \Delta k}{\frac{1}{2} \Delta k} \right\}^2 I^n, \quad (25)$$

gdzie mamy teraz

$$\Delta k = k_{n+1} - nk. \quad (6d)$$

Wartości liczbowe liniowych i nieliniowych polaryzowalności atomów i molekuł obliczone teoretycznie lub wyznaczone z danych doświadczalnych. Podajemy tylko wartości średnie  $a = a_{ii}/3$ ,  $b = b_{ii3}/3 = b_{333}$  (dla osiowej symetrii),  $b = b_{123}$  (dla tetraedrycznej symetrii) oraz  $c = c_{4ij}/5 = c_{3333}$

Jed- nostki	$10^{-24} \text{ cm}^3$	$10^{-30} \text{ cm}^5/\text{jES}$			$10^{-36} \text{ cm}^7/\text{jES}^2$					
	Atom Molekuła	$a^\omega$	$b^0$	$b^\omega$	$b^{2\omega}$	$c^0$	$c^\omega$	$c^{2\omega}$	$c^{3\omega}$	$c^{2\omega-\omega_s}$
He	0,205					0,021 [117b] 0,021 [116c]	0,027 [156] 0,022 [117b]	0,023 [117b]	0,024 [117b] 0,021 [117a]	0,068 [73]
Ne	0,394						0,051 [156] 0,055 [112]		0,041 [117a] 0,214 [74]	
Ar	1,66						0,59 [156] 0,73 [112] 1,4 [156]		3,024 [74] 0,672 [117a] 9,264 [74]	1,39 [73]
Kr	2,52						1,6 [112]		1,704 [117a]	
Xe	4,11						3,9 [156] 4,0 [112]		23,496 [74] 5,328 [117a]	
H <sub>2</sub>	0,79					0,2 [115a]		0,36 [66]	1,920 [74] 2,568 [74]	1,21 [73]
N <sub>2</sub>	1,76							0,64 [66]		1,17 [73]
O <sub>2</sub>	1,60									
HF	2,46	-0,16 [115b]								
CO	1,95	±0,43 [115b] 0,19 [115a] 0,18 [117c]				1,0 [115a]		1,81 [66]		1,62 [73]
NO	1,72									3,78 [73]
LiN	3,35	-3,44 [115b]								
HF	3,13	0,98 [115b]								
CO <sub>2</sub>	2,65								2,744 [74]	1,80 [73]
NH <sub>3</sub>	2,26	-0,045 [115c]	-3,9 [112]							

CH <sub>4</sub>	2,6	0,04 [115c] 0,21 [112]		0,01 [147]	2,6 [112]	1,48 [66]	2,65 [73]
CCl <sub>4</sub>	10,5			0,03 [147]	12,0 [112] 7,2 [113b] 6,51 [155] 2,15 [113a]	3,6 [66]	
CH <sub>3</sub> F	3,55	-0,089 [115c]	-1,11 [115c]				
CHCl <sub>3</sub>	8,23		14,4 [112]		4,8 [113a]	4,4 [66]	
H <sub>2</sub> O	1,46	+0,11 [115c]					
CS <sub>2</sub>	8,74				56,5 [155] 50,1 [113a] 54,4 [112] 63,9 [113b]		
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	4,47					4,8 [66]	5,58 [73]
C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	10,32				-3 ± 6 [113b]		
C <sub>6</sub> H <sub>12</sub>	10,87				1,2 [113a]		
C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> CH <sub>3</sub>	12,29				27,2 [113a]		
C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> NO <sub>2</sub>	12,17				85,0 [113a]		
CH <sub>3</sub> I	7,28					8,0 [66]	
SF <sub>6</sub>	4,47				1,2 [156]		2,25 [73]

Wyrażenie (25) wskazuje co najmniej 3 sposoby zwiększenia natężenia harmonicznych optycznych polegające na:

a) stosowaniu gigantycznych impulsów laserowych dających duże natężenie  $I \approx EE^*$  wiązki świetlnej padającej na materiał wytwarzający odpowiednie harmoniczne światła,

b) używaniu substancji silnie nieliniowych, wykazujących duże wartości nieliniowych podatności  $\chi^{(n)}$ ,

c) spełnieniu warunku równości prędkości fazowych fali podstawowej i harmonicznej.

Wraz ze zmniejszeniem różnicy  $\Delta k$  długość spójności  $l_s = \pi/\Delta k$  wzrasta, a zatem wzrasta również długość odcinka, na którym przekazywana jest energia z fali podstawowej do fali harmonicznej (rys. 2). Dla  $\Delta k = 0$  wzór (25) pokazuje, że natężenie harmonicznych będzie rosło w przybliżeniu z kwadratem grubości ośrodka. Jeśli nie jest spełniony warunek dopasowania,  $\Delta k \neq 0$ , to wyraz w nawiasie po prawej stronie (25) zmienia się periodycznie wraz z odległością, powodując periodyczność natężenia harmonicznych w funkcji  $l$ . W idealnych warunkach energia fali padającej może być prawie całkowicie zamieniona na energię fali harmonicznej, a więc wydajność konwersji może osiągnąć teoretycznie wartość 100%. W praktyce wydajność konwersji drugiej harmonicznej wynosi 40% i może być powiększona w specjalnych warunkach do prawie 100% [42 b, 145]. Wpływ na wydajność konwersji harmonicznych ma rozbieżność, niemonochromatyczność i polaryzacja wiązki laserowej [158] oraz długość i orientacja kryształu [159]. Za pomocą specjalnego układu optycznego można zapewnić taką strukturę przestrzenną wiązki laserowej, aby podnieść wydajność konwersji drugiej harmonicznej do 100% [145, 159].

Nieliniowe kryształy muszą być dostępne w postaci monokryształów i wykazywać znaczną asymetrię własności, posiadać duży współczynnik załamania światła i dużą dwójłomność optyczną, a także przezroczystość w szerokim zakresie widmowym. Oprócz stosowanych dotychczas standardowych materiałów, takich jak kryształy kwarcu, KDP i ADP [160], odpowiednie własności w zakresie podczerwieni posiadają również kryształy  $Ag_3AsS_3$  [46, 161] i  $Ag_3SbS_3$  [162], które można wyhodować w postaci dużych pojedynczych kryształów o znacznej dwójłomności optycznej i braku czułości na zmiany temperaturowe. W tych przypadkach, gdy hodowla w postaci odpowiednich monokryształów nie jest możliwa lub zbyt trudna, możemy stosować metodę proszkową [45], która pozwoliła na szybkie przebadanie nieliniowych własności optycznych wielu nowych materiałów.

Nieliniowe podatności optyczne ciał stałych określono metodą badania optycznych harmonicznych, która do chwili obecnej pozwoliła uzyskać dane ilościowe dla ponad 100 organicznych i nieorganicznych (naturalnych lub syntetycznych) kryształów [163]. Aczkolwiek od wielu lat istnieją teorie kwantowo-mechaniczne nieliniowych podatności optycznych rzędu drugiego i trzeciego [18, 20, 23] oraz wyższych rzędów [20, 22], to jednakże dopiero w ostatnich dwóch latach wykonano *ab initio* bezpośrednio obliczenia numeryczne dla

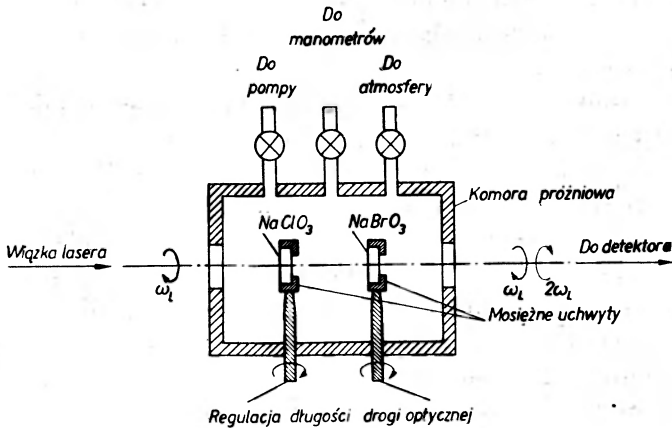
półprzewodników i innych kryształów o prostej strukturze [123-125, 129]. W obliczeniach tych poszczególni autorzy stosowali rozmaite proste modele oraz różne przybliżenia, które pozwoliły na otrzymanie wartości liczbowych podatności i porównanie ich z danymi doświadczalnymi. W wielu przypadkach można wykonać obliczenia nieliniowych podatności na podstawie prostego związku Millera [39b]

$$\chi_{ijk}^{2\omega} = \chi_{ii}^{2\omega} \chi_{jj}^{\omega} \chi_{kk}^{\omega} \delta_{ijk}^{2\omega} \quad (26)$$

między składowymi tensora nieliniowej podatności  $\chi_{ijk}^{2\omega}$  i liniowej podatności  $\chi_{ij}^{\omega}$ . Związek (26), który stosuje się do kryształów piezoelektrycznych i innych materiałów bez centrum symetrii, może być uogólniony do postaci

$$\chi_{ijk}^{\omega_3} = \chi_{il}^{\omega_3} \chi_{jm}^{\omega_1} \chi_{kn}^{\omega_2} \delta_{lmn}^{\omega_3} \quad (27)$$

Opracowano metody pomiaru dyspersji i absorpcji tensorów nieliniowej podatności [63a, 128], które są rzeczywiste tylko wtedy, gdy ośrodek jest



Rys. 12. Układ doświadczalny Simona i Bloembergena [53] dla stwarzania interferencji kołowo spolaryzowanego natężenia drugiej harmonicznej pozwalającej określać fazy zespolonej podatności nieliniowej w ośrodkach pochłaniających. Płytki krystaliczne NaClO<sub>3</sub> i NaBrO<sub>3</sub> są zamocowane w skrzyni próżniowej (w której można regulować ciśnienie powietrza między płytkami) w ten sposób, by można je oddzielnie obracać dookoła osi prostopadłej do wiązki laserowej celem zmienienia jej drogi optycznej. Gdy promieniowanie drugiej harmonicznej jest generowane przez jedną i tę samą wiązkę laserową w dwóch kolejnych kryształach, to istnieje określona zależność fazowa między obydwoma źródłami harmonicznego promieniowania. W ten sposób można ustalić czy nieliniowe podatności optyczne obu kryształów mają zgodne znaki, czy też przeciwnie.

przezroczysty zarówno dla częstotliwości podstawowej i częstotliwości harmonicznych, natomiast są wielkościami zespolonymi, gdy ośrodek jest pochłaniający dla wszystkich częstotliwości. Ostatnio przeprowadzono również dokładne badania bezwzględnych wartości nieliniowych podatności [160] oraz ich względnych wartości i znaków [46, 53, 160, 164] (rys. 12). Ostatnio doniesiono również o obserwacji drugiej harmonicznej w warunkach dopasowania fazowego indukowanego akustycznie [165]. Być może uda się znaleźć inne nowe i pomysłowe

metody dopasowania fazowego za pomocą innych zjawisk i czynników zewnętrznych, takich jak pole elektryczne lub magnetyczne, przepływ, ciśnienie, naprężenia mechaniczne itp.

## 12. Wnioski

Pomyślne badania nad własnościami optycznymi rozmaitych materiałów silnie nieliniowych, pełne zrozumienie oddziaływania intensywnych fal elektromagnetycznych w materii pozwoliły w ciągu zaledwie 10 lat na osiągnięcie szybkiego postępu badań w dziedzinie wytwarzania harmonicznych światła zarówno o generacji ciągłej, jak i impulsowej oraz ultrakrótkiej. W specjalnych warunkach możemy osiągnąć znaczną wydajność konwersji drugiej harmonicznej, przekraczającą 50%, co umożliwi wykorzystanie harmonicznych optycznych jako nowych źródeł intensywnego ultrafioletu oraz innych długości fal elektromagnetycznych. Wytwarzanie częstości sumacyjnych oraz różnicowych dostarcza użytecznych, nadających się do strojenia, źródeł dalekiej podczerwieni i mikrofal. Harmoniczne optyczne oraz ich własności polaryzacyjne znalazły zastosowanie jako czuła metoda pomiaru czasu trwania ultrakrótkich impulsów laserowych.

Wytwarzanie optycznych harmonicznych oraz procesy mieszania częstości światła laserowego stanowią nową i obiecującą metodę badania własności kryształów i innych materiałów,<sup>6</sup> a więc ich dyspersji optycznej, położenia i intensywności pasm absorpcyjnych, ustalanie symetrii mikroskopowej i makroskopowej ciał oraz ich struktury oraz ilościowe określenie nieliniowych podatności optycznych. Badania harmonicznych zarówno w świetle przechodzącym, jak i odbitym pozwoliły na doświadczalne sprawdzenie podstawowych praw odbicia i załamania światła, które, jak się okazało, mają w ogólności charakter nieliniowy. Znajomość tego, jak długo zachowują swoją ważność zwykle prawa optyki klasycznej, a kiedy zaczynają interweniować nieliniowe prawa załamania i odbicia światła, ma szczególne znaczenie dla zrozumienia i przewidywań właściwego działania rozmaitych nowych urządzeń opto-elektronicznych pracujących w warunkach bardzo intensywnego promieniowania laserowego.

Chociaż natężenie harmonicznych w świetle odbitym jest znacznie mniejsze niż w świetle przechodzącym, to jednakże dają one możliwość badania nieliniowości optycznych w materiałach pochłaniających. W ten sposób badać możemy zarówno wewnętrzną mikrostrukturę ciał, jak i ich powierzchniowe własności, szczególnie w kontakcie z innymi substancjami. Poznajemy elektronowe, atomowe, molekularne i jonowe własności materii w szerokim zakresie częstości, od ultrafioletu, poprzez zakres widzialny, podczerwień i daleką podczerwień aż do pasma milimetrowego. Okazało się, że nowe zjawiska optyczne są nie tylko odzwierciedleniem nieliniowych własności optycznych materii w elektrycznym przybliżeniu dipolowym, ale w ciałach centrosymetrycznych

<sup>6</sup> Artykuł przeglądowy: J. Kołodziejczak, *Postępy Fizyki* 21 369 (1970).



istota niektórych z nich tkwi w multipolowych polaryzacjach elektrycznych i magnetycznych. Badania wielofotonowego rozpraszania światła w gazach dostarczają bezpośrednich danych o nieliniowych polaryzowalnościach atomów i molekuł, natomiast w stanach zgęszczonych otrzymujemy ponadto cenne informacje o funkcjach korelacji międzydrobinowych, analizowanych w mechanice statystycznej.

Wyjątkowe własności i ogromna intensywność światła laserowego wymusiły z materii równie fascynujące jak nieoczekiwane odpowiedzi przejawiające się nagle w licznych pięknych zjawiskach odkrytych i badanych namiętnie w ciągu 10 lat, jakie upłynęły od narodzin lasera, nowego źródła światła.

#### Literatura

- [1] H. A. Lorentz, *The Theory of Electrons*, B. G. Teubner, Leipzig 1909; L. Rosenfeld, *Theory of Electrons*, Amsterdam 1951.
- [2] M. Born, *Optik*, Berlin, J. Springer 1933; M. W. Wolkenstejn, *Molekularnaja Optika*, Moskwa 1951.
- [3] W. Voigt, *Ann. Phys.*, **4**, 197 (1901).
- [4] P. Langevin, *Le Radium*, **7**, 249 (1910).
- [5] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media*, Pergamon Press, Inc. New York 1960, Wydanie polskie, PWN, Warszawa 1960.
- [6] S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **17**, 239 (1958); S. Kielich, A. Piekara, *Acta Phys. Polon.*, **18**, 439 (1959).
- [7] J. H. Van Vleck, *The Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities*, Oxford 1932; D. W. Davies, *The Theory of the Electric and Magnetic Properties of Molecules*, Willey, London 1967.
- [8] F. Pockels, *Lehrbuch der Kristallogoptik*, Leipzig 1906.
- [9] J. Frenkel, *Kinetic Theory of Liquids*, Oxford University Press, London 1946; I. L. Fabiëlinskiy, *Molekularnoyé Rassiejaniye Swyeta*, Moskwa 1965.
- [10] S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **23**, 321, 819 (1963); **A 37**, 447 (1970); *Optics Communications*, **1**, 345 (1970).
- [11] A. D. Buckingham, *Proc. Phys. Soc.*, B **69**, 344 (1956); S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **19**, 573 (1960); **30**, 683 (1966); **31**, 689 (1967).
- [12] G. Mayer, F. Gires, *C. R. Acad. Sc. Paris*, **258**, 2039 (1964); M. Paillette, *C. R. Acad. Sc. Paris*, **262**, 264 (1966); F. Gires, *Ann. Radioélect.*, **23**, 281 (1968).
- [13] P. D. Maker, R. W. Terhune, C. M. Savage, *Phys. Rev. Letters*, **12**, 507 (1964); P. D. McWane, D. A. Sealer, *Appl. Phys. Letters*, **8**, 278 (1966); C. C. Wang, *Phys. Rev.*, **152**, 149 (1966); F. Shimizu, *J. Phys. Soc. (Japan)*, **22**, 1070 (1967).
- [14] A. Piekara, *Nowe Oblicze Optyki*, PWN, Warszawa 1968.
- [15] P. A. Franken, J. F. Ward, *Rev. Mod. Phys.*, **35**, 23 (1963).
- [16] S. A. Achmanow, R. W. Chochłow, *Problemy njełiniejnoj optiki*, Moskwa 1964.
- [17] N. Bloembergen, *Nonlinear Optics*, Benjamin, New York 1965.
- [18] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan, *Phys. Rev.*, **127**, 1918 (1962).
- [19] N. Bloembergen, P. S. Pershan, *Phys. Rev.*, **128**, 606 (1962); P. S. Pershan, *Phys. Rev.*, **130**, 919 (1963); E. Adler, *Phys. Rev.*, **134**, A 728 (1964).
- [20] R. Loudon, *Proc. Phys. Soc.*, **80**, 952 (1962); P. N. Butcher, T. P. McLean, *Proc. Phys. Soc.*, **81**, 219 (1963); **83**, 579 (1964).

- [21] J. A. Giordmaine, *Phys. Rev.*, **138**, A 1599 (1965).
- [22] S. Kielich, *Proc. Phys. Soc.*, **86**, 709 (1965); *Acta Phys. Polon.*, **29**, 875 (1966).
- [23] P. N. Butcher, *Nonlinear Optical Phenomena*, Ohio State University 1965.
- [24] G. Birnbaum, *Optical Masers*, Academic Press, New York 1964; W. M. Fajñ, J. I. Channin, *Kwantowaja Radiofizika*, Sowietskoje Radio, Moskwa 1965.
- [25] J. C. Canit, *J. Phys.*, **26**, 433 (1965); P. S. Pershan, „*Nonlinear Optics*“ in *Progress in Optics*, vol. 5, p. 85, New York; Interscience, Amsterdam; North-Holland 1966.
- [26] R. W. Minck, R. W. Terhune, C. C. Wang, *Applied Optics*, **5**, 1595 (1966); R. W. Terhune, P. D. Maker, *Nonlinear Optics in Lasers*, edited by A. K. Levine Marcel Dekker, Inc. New York 1968, Vol. 2, p. 295.
- [27] N. Bloembergen, *Amer. J. Phys.*, **35**, 989 (1967).
- [28] D. A. Kleinman, *Phys. Rev.*, **126**, 1977 (1962); **128**, 1761 (1962).
- [29] J. F. Nye, *Physical Properties of Crystals*, Clarendon Press, Oxford 1957. Wydanie polskie, PWN, Warszawa 1962.
- [30] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, *Phys. Rev. Letters*, **7**, 118 (1961).
- [31] J. A. Giordmaine, *Phys. Rev. Letters*, **8**, 19 (1962).
- [32] P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff, C. M. Savage, *Phys. Rev. Letters*, **8**, 21 (1962).
- [33] R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage, *Appl. Phys. Letters*, **2**, 54 (1963).
- [34] S. A. Achmanow, A. I. Kowrigin, A. S. Piskarkas, R. W. Chochłow, *ŽETF, Piśma*, **2**, 233 (1965).
- [35] C. C. Wang, G. W. Racette, *J. Appl. Phys.*, **36**, 3281 (1965).
- [36] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, *Phys. Rev. Letters*, **11**, 14 (1963); G. D. Boyd, A. Ashkin, J. M. Dziedzic, D. A. Kleinman, *Phys. Rev.*, **137**, A 1305 (1965).
- [37] D. F. Edwards, J. G. Mavroides, B. Lax, *Bull. Amer. Phys. Soc.*, **7**, 14 (1962); B. Lax, J. G. Mavroides, D. F. Edwards, *Phys. Rev. Letters*, **8**, 166 (1962).
- [38] A. Savage, R. C. Miller, *Appl. Optics*, **1**, 661 (1962); R. C. Miller, A. Savage, *Bull. Amer. Phys. Soc.*, **7**, 329 (1962).
- [39] a) R. C. Miller, *Phys. Rev.*, **131**, 95 (1963); **134**, A 1313 (1964).  
b) R. C. Miller, *Appl. Phys. Letters*, **5**, 17 (1964).
- [40] R. C. Miller, D. A. Kleinman, A. Savage, *Phys. Rev. Letters*, **11**, 146 (1963).
- [41] a) G. D. Boyd, R. C. Miller, K. Nassau, W. L. Bond, A. Savage, *Appl. Phys. Letters*, **5**, 234 (1964).  
b) R. C. Miller, G. D. Boyd, A. Savage, *Appl. Phys. Letters*, **6**, 77 (1965); R. C. Miller, A. Savage, *Appl. Phys. Letters*, **9**, 169 (1966).  
c) K. F. Hulme, O. Jones, P. H. Davies, M. V. Hobden, *Appl. Phys. Letters*, **10**, 133 (1967).  
d) H. Fay, W. J. Alford, H. M. Dess, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 89 (1968).  
e) J. G. Bergman, A. Ashkin, A. A. Ballman, J. M. Dziedzic, H. J. Levinstein, R. G. Smith, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 92 (1968).  
f) T. R. Gurski, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 5 (1969).
- [42] a) L. G. Van Uitert, S. Singh, H. J. Levinstein, J. E. Geusic, W. A. Bonner, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 161 (1967); **12**, 224 (1968).  
b) J. E. Geusic, H. J. Levinstein, J. J. Rubin, S. Singh, L. G. Van Uitert, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 269 (1967); **E 12**, 224 (1968); **12**, 306 (1968).  
c) M. Bass, D. Bua, R. Mozzi, R. R. Monchamp, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 393 (1969).  
d) S. K. Kurtz, T. T. Perry, J. G. Bergman, Jr., *Appl. Phys. Letters*, **12**, 186 (1968).  
e) R. W. Wallace, S. E. Haris, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 111 (1969).
- [43] a) G. Nath, S. Haussühl, *Appl. Phys. Letters*, **14**, 154 (1969).  
b) G. Nath, S. Haussühl, *Phys. Letters*, **29A**, 91 (1969).  
c) J. Jerphagnon, *Appl. Phys. Letters*, **16**, 298 (1970).

- [44] a) A. W. Smith, *Appl. Optics*, **3**, 147 (1964).  
 b) A. S. Sonin, W. S. Suworow, *FTT*, **9**, 18, 29 (1967); **10**, 1031 (1968); W. S. Suworow, A. S. Sonin, *ŻETF*, **54**, 1044 (1968).  
 c) H. Vogt, H. Happ, H. G. Häfele, *Phys. Status Solidi*, (a) **1**, 439 (1970).
- [45] a) A. Graja, *Phys. Status Solidi*, **27**, K 93 (1968); *Acta Phys. Polon.*, **36**, 283 (1969); **A 37**, 539 (1970).  
 b) S. K. Kurtz, T. T. Perry, *J. Appl. Phys.*, **39**, 3798 (1968).  
 c) A. A. Filimonow, W. S. Suworow, I. S. Rez., *ŻETF*, **56**, 1519 (1969).
- [46] a) I. S. Rez, *Uspiechi Fiz. Nauk*, ZSRR, **93**, 633 (1967).  
 b) S. H. Wemple, M. DiDomenico Jr. I. Camlibel, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 209 (1968).  
 c) M. DiDomenico Jr., S. H. Wemple, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 352 (1968); *J. Appl. Phys.*, **40**, 720, 735 (1969).  
 d) J. E. Bjorkholm, *Appl. Phys. Letters*, **13**, 36 (1968); *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, **970** (1968).  
 e) S. K. Kurtz, *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 578 (1968).  
 f) L. G. Van Uitert, J. J. Rubin, W. A. Bonner, *IEEE J. Quantum Electronics, QE-4*, 622 (1968).  
 g) G. Burns, A. W. Smith, *IEEE, J. Quantum Electronics QE-4*, 584 (1968).
- [47] S. L. McCale, L. W. Davies, *J. Appl. Phys.*, **34**, 2921 (1963). A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, *Phys. Rev. Letters*, **11**, 14 (1963); M. P. Gołowiej, G. J. Kosourow, *ŻETF Piśma*, **9**, 225 (1969); G. F. Dobrzański, M. P. Gołowiej, G. I. Kosourow, *ŻETF Piśma 10*, 263 (1969).
- [48] a) C. K. N. Patel, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 1027 (1965); **16**, 613 (1966).  
 b) C. K. N. Patel, R. F. Slusher, P. A. Fleury, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1011 (1966).  
 c) J. J. Wynne, G. D. Boyd, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 191 (1968).
- [49] J. E. Bjorkholm, A. E. Siegman, *Phys. Rev.*, **154**, 851 (1967).
- [50] J. E. Bjorkholm, *Phys. Rev.*, **142**, 126 (1966); D. A. Kleinmann, A. Ashkin, G. D. Boyd, *Phys. Rev.*, **145**, 338 (1966).
- [51] S. A. Achmanow, A. P. Suchorukow, R. W. Chochłow, *ŻETF*, **50**, 474 (1966).
- [52] H. Rabin, P. P. Bey, *Phys. Rev.*, **156**, 1010 (1967).
- [53] H. J. Simon, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **171**, 1104 (1968); N. Bloembergen, H. J. Simon, C. H. Lee, *Phys. Rev.*, **181**, 1261 (1969).
- [54] H. Shih, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **184**, 895 (1969); N. Bloembergen, H. Shih, *Optics Communications*, **1**, 70 (1969).
- [55] R. K. Chang, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **144**, 775 (1966); R. Fischer, *Phys. Status Solidi*, **19**, 757 (1967).
- [56] R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage, *Phys. Rev. Letters*, **8**, 404 (1962).
- [57] a) S. S. Jha, *Phys. Rev.*, **140**, A 2020 (1965), **145**, 500 (1966).  
 b) P. S. Pershan, J. P. van der Ziel, L. D. Malmstrom, *Phys. Rev.*, **143**, 574 (1966).
- [58] J. Ducuing, N. Bloembergen, *Phys. Rev. Letters*, **10**, 474 (1963).
- [59] L. D. Malmstrom, J. J. Schlickman, R. H. Kingston, *J. Appl. Phys.*, **34**, 248 (1964); A. W. Smith, M. J. Nathan, J. A. Armstrong, A. E. Mitchel, K. Weisler, *J. Appl. Phys.*, **35**, 733 (1964).
- [60] C. H. Lee, R. K. Chang, N. Bloembergen, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 167 (1967); N. Bloembergen, C. H. Lee, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 835 (1967).
- [61] F. Brown, R. E. Parks, A. M. Sleeper, *Phys. Rev. Letters*, **14**, 1029 (1965).
- [62] a) N. Bloembergen, R. K. Chang, C. H. Lee, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 986 (1966).  
 b) N. Bloembergen, R. K. Chang, S. S. Jha, C. H. Lee, *Phys. Rev.*, **174**, 813 (1968); **178**, 1528 (1969).  
 c) G. I. Lewijew, E. G. Jaszczin, *ŻETF Piśma*, **10**, 257 (1969).  
 d) G. W. Kriwoszekow, W. I. Stroganow, *FTT*, **11**, 124, 2663 (1969).
- [63] a) R. K. Chang, J. Ducuing, N. Bloembergen, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 6, 415 (1965).

- b) C. C. Wang, A. N. Dumiński, *Phys. Rev. Letters*, **20**, 668 (1968).  
 c) C. C. Wang, *Phys. Rev.*, **178**, 1457 (1969).
- [64] J. H. McFee, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 228 (1967).
- [65] S. Kielich, *IEEE J. Quantum Electronics QE-5*, 562 (1969); *Optics Communications*, **1**, 86 (1969); *Acta Phys. Polon.*, **36**, 621 (1969); *Opto-electronics*, **2**, 5 (1970).
- [66] G. Mayer, *C. R. Acad. Sci. Paris*, **267B**, 54 (1968).
- [67] S. Kielich, *Chem. Phys. Letters*, **2**, 569 (1968); *Acta Phys. Polon.*, **A 37**, 205 (1970).
- [68] M. S. Sodha, P. K. Kaw, *J. Phys. Soc. Japan*, **21**, 2684 (1966).
- [69] R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage, *Appl. Phys. Letters*, **2**, 54 (1963); P. D. Maker, R. W. Terhune, C. M. Savage, *Third Conference on Quantum Electronics*, Paris, 1963 Columbia University Press, New York 1964.
- [70] P. D. Maker, R. W. Terhune, *Phys. Rev.*, **137**, A 801 (1965).
- [71] P. P. Bey, J. F. Giuliani, H. Rabin, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 819 (1967); *IEEE J. Quantum Electronics*, *QE-4*, 932 (1968).
- [72] R. K. Chang, L. K. Galbraith, *Phys. Rev.*, **171**, 993 (1968).
- [73] W. G. Rado, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 123 (1967).
- [74] G. H. C. New, J. F. Ward, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 556 (1967); J. F. Ward, G. H. C. New, *Phys. Rev.*, **185**, 57 (1969).
- [75] a) P. P. Bey, J. F. Giuliani, H. Rabin, *Phys. Rev.*, **184**, 849 (1969).  
 b) C. C. Wang, E. L. Baardsen, *Phys. Rev.*, **185**, 1079 (1969).
- [76] P. P. Bey, J. F. Giuliani, H. Rabin, *Phys. Letters*, **26A**, 128 (1968).
- [77] S. Kielich, *J. Phys.*, **28**, 519 (1967).
- [78] a) G. Durand, C. H. Lee, *Compt. Rend.*, **264B**, 1393 (1967); *Mol. Cryst.*, **5**, 171 (1968).  
 b) L. S. Goldberg, J. M. Schnur, *Appl. Phys. Letters*, **14**, 306 (1969).  
 c) J. W. Shelton, Y. R. Shen, *Phys. Rev. Letters*, **25**, 23 (1970).
- [79] S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **33**, 89, 141 (1968); *IEEE J. Quantum Electronics*, *QE-4*, 744 (1968).
- [80] N. Van Tran, J. H. McFee, C. K. N. Patel, *Phys. Rev. Letters*, **21**, 735 (1968).
- [81] B. Lax, W. Zawadzki, M. H. Weiler, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 462 (1967); J. Kolo-dziejczak, *Phys. Status Solidi*, **24**, 323 (1967).
- [82] a) M. S. Sodha, P. K. Law, *Progr. Theor. Phys.*, **34**, 557 (1965); *Proc. Phys. Soc.*, **88**, 373 (1966).  
 b) M. S. Sodha, H. K. Srivastava, *Proc. Phys. Soc.*, **90**, 435 (1967).
- [83] J. E. Midwinter, J. Warner, *Brit. J. Appl. Phys.*, **16**, 1135, 1667 (1965); J. Warner, *Opto-electronics*, **1**, 25 (1969).
- [84] M. Bass, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, *Phys. Rev. Letters*, **6**, 18 (1962); M. Bass, P. A. Franken, J. W. Ward, G. Weinreich, *Phys. Rev. Letters*, **9**, 446 (1962).
- [85] R. C. Miller, A. Savage, *Phys. Rev.*, **128**, 2175 (1962).
- [86] N. I. Adams, P. B. Schoefer, *Proc. IEEE*, **51**, 1366 (1963).
- [87] A. W. Smith, N. Braslau, *J. Appl. Phys.*, **34**, 2105 (1963).
- [88] a) W. L. Faust, C. H. Henry, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1265 (1966).  
 b) J. A. Goldin, W. G. Dmitriew, W. K. Tarasow, N. W. Szkunow, *ŽETF Piśma*, **4**, 297 (1966).  
 c) D. J. Bradley, G. Magyar, M. C. Richardson, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 51 (1967).
- [89] J. E. Midwinter, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 68 (1968); D. J. Bradley, *Optica Acta*, **15**, 431 (1968).
- [90] K. E. Niebur, *Appl. Phys. Letters*, **2**, 136 (1963); F. Zernike Jr. P. R. Berman, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 999 (1965); T. Yapina, K. Inoue, *Phys. Letters*, **26A**, 281 (1968), *IEEE J. Quantum Electronics QE-5*, 140 (1969); L. O. Hocker, D. R. Sokoloff, V. Daneu, A. Szoke, A. Javan, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 401 (1968); T. Y. Chang, N. Van Tran, C. K. N. Patel, *Appl. Phys. Letters*, **13**, 357 (1968); T. J. Bridges, T. Y. Chang, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 811 (1968); D. W. Faries, K. A. Gehring,

- P. L. Richards, Y. R. Shen, *Phys. Rev.*, **180**, 363 (1963); F. Zernike, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 931 (1969); F. Brown, *IEEE J. Quantum Electronics QE-5*, 586 (1969); V. Daneu, D. Sokoloff, A. Sanchez, A. Javan, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 398 (1969).
- [91] P. M. Rentzepis, J. A. Giordmaine, K. W. Wecht, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 792 (1966); J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, *J. Chim. Phys.*, **1**, 215 (1967).
- [92] N. V. Cohan, H. F. Hameka, *J. Chem. Phys.*, **45**, 3825 (1966).
- [93] P. P. Bey, H. Rabin, *Phys. Rev.*, **162**, 794 (1967).
- [94] a) C. K. N. Patel, N. Van Tran, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 189 (1969).  
b) N. Van Tran, C. K. N. Patel, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 463 (1969).
- [95] J. J. Wynne, *Phys. Rev.*, **178**, 1295 (1969).
- [96] M. S. Sodha, P. K. Kaw, *Proc. Phys. Soc.*, **88**, 373 (1966); M. S. Sodha, B. K. Sawhney, R. L. Sawhney, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, **3**, 377 (1969).
- [97] A. J. De Maria, D. A. Stetser, H. A. Heynau, *Appl. Phys. Letters*, **8**, 176 (1966); A. J. De Maria, R. Gagasz, H. A. Heynau, A. W. Penney, G. Wisher, *J. Appl. Phys.*, **38**, 2693 (1967).
- [98] M. Di Domenico Jr. J. E. Geusic, M. H. Macros, R. G. Smith, *Appl. Phys. Letters*, **8**, 180 (1966); D. J. Bradley, *Laboratory Practice*, **18**, 538 (1969).
- [99] a) N. G. Basow, P. G. Kriukow, W. S. Letochow, J. W. Senatskii, *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 606 (1968); N. G. Basow, P. G. Kriukow, J. W. Senatskii, S. W. Czekalin, *ŽETF*, **57**, 1175 (1969).  
b) N. G. Basow, P. G. Kriukow, S. D. Zakharow, J. W. Senatskii, S. W. Czekalin, *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 864 (1968).  
c) G. W. Gabeli, J. C. Buskneil, P. S. Peercy, E. D. Jones, *Phys. Rev.*, **188**, 300 (1969).
- [100] J. A. Armstrong, *Appl. Phys. Letters*, **10**, 16 (1967); H. P. Weber, *J. Appl. Phys.*, **38**, 2231 (1967); J. R. Klauder, *Appl. Phys. Letters*, **14**, 147 (1969).
- [101] W. H. Glenn, M. J. Brienza, *Appl. Phys. Letters* **10**, 221 (1967); W. H. Glenn, *IEEE J. Quantum Electronics QE-5*, 284 (1969).
- [102] J. Comly, E. Garmire, *Appl. Phys. Letters*, **12**, 7 (1968); S. L. Shapiro, *Appl. Phys. Letters*, **13**, 19 (1968).
- [103] R. J. Orlow, T. Usmanow, A. S. Czirkin, *ŽETF*, **57**, 1069 (1969).
- [104] R. C. Eckart, C. H. Lee, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 425 (1969).
- [105] N. Bloembergen, W. K. Burns, M. Matshuoka, *Optics Communications*, **1**, 195 (1969); C. C. Wang, E. L. Baardsen, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 396 (1969).
- [106] J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro, K. W. Wecht, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 216 (1967); J. R. Klauder, M. A. Duguay, J. A. Giordmaine, S. L. Shapiro, *Appl. Phys. Letters*, **13**, 174 (1968); J. K. Karasiuk, P. P. Paszinin, A. M. Prochorow, *ŽETF Pisma*, **7**, 117 (1968); S. L. Shapiro, M. A. Duguay, *Phys. Letters*, **28A**, 698 (1969); D. J. Bradley, G. H. C. New, B. Sutherland, S. J. Gaughey, *Phys. Letters*, **28A**, 532 (1969); R. J. Harrach, *Appl. Phys. Letters*, **14**, 148 (1969); K. H. Freyhage, *Appl. Phys. Letters*, **14**, 318 (1969).
- [107] J. A. Giordmaine, M. A. Duguay, J. W. Hansen, *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 252 (1968); E. B. Treacy, *Phys. Letters*, **28A**, 34 (1969); *Appl. Phys. Letters*, **14**, 112 (1969); R. A. Fisher, J. A. Fleck, Jr., *Appl. Phys. Letters*, **15**, 287 (1969).
- [108] R. G. Brewer, C. H. Lee, *Phys. Rev. Letters*, **21**, 267 (1968).
- [109] W. H. Glenn, *Appl. Phys. Letters*, **11**, 333 (1967).
- [110] S. A. Achmanow, A. S. Czirkin, K. N. Drabowicz, A. I. Kowrigin, R. W. Chochłow, A. P. Suchorukow, *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 598 (1968); S. A. Achmanow, A. P. Suchorukow, A. S. Czirkin, *ŽETF*, **55**, 1430 (1968).
- [111] R. C. Miller, *Phys. Letters*, **26A**, 177 (1968).
- [112] A. D. Buckingham, B. J. Orr, *Quart. Rev.*, **21**, 195 (1967).
- [113] a) S. Kielich, *Proc. Phys. Soc.*, **90**, 847 (1967).

- b) G. H. Meeten, *Trans. Faraday Soc.*, **64**, 2267 (1968).  
 c) L. D. Jewlewa, M. A. Kowner, *Optika i Spektrosk.*, **36**, 601 (1969).
- [114] R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage, *Phys. Rev. Letters*, **14**, 681 (1965).
- [115] a) A. D. McLean, M. Yoshimine, *J. Chem. Phys.*, **46**, 3682 (1967).  
 b) J. M. O'Hare, R. P. Hurst, *J. Chem. Phys.*, **46**, 2356 (1967).  
 c) G. P. Arrighini, M. Maestro, R. Moccia, *Sympos. Faraday Soc.*, **2**, 48 (1968).
- [116] a) L. L. Boyle, A. D. Buckingham, R. L. Disch, D. A. Dunmur, *J. Chem. Phys.*, **45**, 1318 (1966).  
 b) A. Szweig, *Chem. Phys. Letters*, **1**, 195 (1967).  
 c) M. N. Grasso, K. T. Chung, R. P. Hurst, *Phys. Rev.*, **167**, 1 (1968).
- [117] a) E. L. Daves, *Phys. Rev.*, **169**, 47 (1968).  
 b) P. Sitz, R. Yaris, *J. Chem. Phys.*, **49**, 3546 (1968).  
 c) R. G. Brewer, A. D. McLean, *Phys. Rev. Letters*, **21**, 271 (1968).
- [118] S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **26**, 135 (1964); S. J. Cyvin, J. E. Rauch, J. C. Decius, *J. Chem. Phys.*, **43**, 4083 (1965); L. D. Jewlewa, T. J. Karagodowa, *Optika i Spektrosk. (ZSRR)*, **32**, 991 (1967); Z. Ożgo, *Acta Phys. Polon.*, **34**, 1087 (1968); L. L. Boyle, *Int. J. Quant. Chem.*, **3**, 231 (1969).
- [119] R. Bersohn, *J. Amer. Chem. Soc.*, **86**, 3505 (1964); B. Fanconi, W. L. Peticolas, *J. Chem. Phys.*, **50**, 2244 (1969); B. Fanconi, B. Tomlinson, L. A. Nafie, W. Small, W. L. Peticolas, *J. Chem. Phys.*, **51**, 3993 (1969).
- [120] S. Kielich, *J. Colloid Interface Sci.*, **27**, 432 (1968); *Chem. Phys. Letters*, **1**, 675 (1968).
- [121] O. G. B. Garrett, *IEEE J. Quant. Electronics QE-4*, 70 (1968).
- [122] J. F. Ward, *Rev. Mod. Phys.*, **37**, 1 (1965); J. B. Keller, M. H. Millman, *Phys. Rev.*, **181**, 1730 (1969); G. S. Agarwal, *Optics Communications*, **1**, 132 (1969).
- [123] S. S. Jha, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **171**, 891 (1968); *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 670 (1968).
- [124] C. Flytzanis, J. Ducuing, *Phys. Rev.*, **178**, 1218 (1969); K. C. Rustagi, *Phys. Letters*, **29A**, 185 (1969).
- [125] a) B. F. Levine, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 787 (1969); **25**, 440 (1970).  
 b) J. C. Philips, J. A. Van Vechten, *Phys. Rev.*, **183**, 709 (1969).  
 c) J. A. Van Vechten, D. E. Aspnes, *Phys. Letters*, **30A**, 346 (1969).  
 d) W. D. Johnston, Jr., I. P. Kaminow, *Phys. Rev.*, **188**, 1209 (1969).
- [126] Y. R. Shen, *Phys. Rev.*, **167**, 818 (1968).
- [127] W. J. Gaspers, *Phys. Rev.*, **133**, A 1249 (1964); H. Cheng, P. B. Miller, *Phys. Rev.*, **134**, A 683 (1964).
- [128] a) W. L. Faust, C. H. Henry, R. H. Eick, *Phys. Rev.*, **173**, 781 (1968).  
 b) J. J. Wynne, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **188**, 1211 (1969).
- [129] P. A. Wolff, G. A. Pearson, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1015 (1966); J. Kołodziejczak, *Acta Phys. Polon.*, **33**, 183, 585 (1968), *Phys. Status Solidi*, **29**, 645 (1968); C. C. Wang, N. W. Ressler, *Phys. Rev.*, **188**, 1291 (1969).
- [130] L. Mandel, E. Wolf, *Rev. Mod. Phys.*, **37**, 231 (1965).
- [131] J. Ducuing, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **133**, A 1493 (1964).
- [132] S. A. Achmanow, A. I. Kowrygin, A. S. Czirkirkin, O. N. Czunajew, *ŽETF*, **50**, 829 (1966).
- [133] R. Asby, *Phys. Rev.*, **187**, 1062, 1070 (1969).
- [134] A. A. Gütter, H. P. Weber, R. Dändliker, *Phys. Rev.*, **185**, 629 (1969); M. D. Crisp, *Optics Communications*, **1**, 59 (1969).
- [135] S. McCall, E. Hahn, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 908 (1967); C. K. Patel, R. Slusher, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 1019 (1967); M. Duguay, S. L. Shapiro, P. Rentzepis, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 1014 (1967); W. M. Arutynien, W. P. Czaltykien, *ŽETF*, **57**, 1710 (1969).
- [136] J. A. Fleck, Jr., *Appl. Phys. Letters*, **13**, 365 (1968); T. I. Kuzniecowa, *ŽETF*, **57**, 1673 (1969).

- b) G. H. Meeten, *Trans. Faraday Soc.*, **64**, 2267 (1968).  
 c) L. D. Jewlewa, M. A. Kowner, *Optika i Spektrosk.*, **36**, 601 (1969).
- [114] R. W. Terhune, P. D. Maker, C. M. Savage, *Phys. Rev. Letters*, **14**, 681 (1965).
- [115] a) A. D. McLean, M. Yoshimine, *J. Chem. Phys.*, **46**, 3682 (1967).  
 b) J. M. O'Hare, R. P. Hurst, *J. Chem. Phys.*, **46**, 2356 (1967).  
 c) G. P. Arrighini, M. Maestro, R. Moccia, *Sympos. Faraday Soc.*, **2**, 48 (1968).
- [116] a) L. L. Boyle, A. D. Buckingham, R. L. Disch, D. A. Dunmur, *J. Chem. Phys.*, **45**, 1318 (1966).  
 b) A. Szweig, *Chem. Phys. Letters*, **1**, 195 (1967).  
 c) M. N. Grasso, K. T. Chung, R. P. Hurst, *Phys. Rev.*, **167**, 1 (1968).
- [117] a) E. L. Daves, *Phys. Rev.*, **169**, 47 (1968).  
 b) P. Sitz, R. Yaris, *J. Chem. Phys.*, **49**, 3546 (1968).  
 c) R. G. Brewer, A. D. McLean, *Phys. Rev. Letters*, **21**, 271 (1968).
- [118] S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **26**, 135 (1964); S. J. Cyvin, J. E. Rauch, J. C. Decius, *J. Chem. Phys.*, **43**, 4083 (1965); L. D. Jewlewa, T. J. Karagodowa, *Optika i Spektrosk. (ZSRR)*, **32**, 991 (1967); Z. Ożgo, *Acta Phys. Polon.*, **34**, 1087 (1968); L. L. Boyle, *Int. J. Quant. Chem.*, **3**, 231 (1969).
- [119] R. Bersohn, *J. Amer. Chem. Soc.*, **86**, 3505 (1964); B. Fanconi, W. L. Peticolas, *J. Chem. Phys.*, **50**, 2244 (1969); B. Fanconi, B. Tomlinson, L. A. Nafie, W. Small, W. L. Peticolas, *J. Chem. Phys.*, **51**, 3993 (1969).
- [120] S. Kielich, *J. Colloid Interface Sci.*, **27**, 432 (1968); *Chem. Phys. Letters*, **1**, 675 (1968).
- [121] O. G. B. Garrett, *IEEE J. Quant. Electronics QE-4*, 70 (1968).
- [122] J. F. Ward, *Rev. Mod. Phys.*, **37**, 1 (1965); J. B. Keller, M. H. Millman, *Phys. Rev.*, **181**, 1730 (1969); G. S. Agarwal, *Optics Communications*, **1**, 132 (1969).
- [123] S. S. Jha, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **171**, 891 (1968); *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 670 (1968).
- [124] C. Flytzanis, J. Ducuing, *Phys. Rev.*, **178**, 1218 (1969); K. C. Rustagi, *Phys. Letters*, **29A**, 185 (1969).
- [125] a) B. F. Levine, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 787 (1969); **25**, 440 (1970).  
 b) J. C. Philips, J. A. Van Vechten, *Phys. Rev.*, **183**, 709 (1969).  
 c) J. A. Van Vechten, D. E. Aspnes, *Phys. Letters*, **30A**, 346 (1969).  
 d) W. D. Johnston, Jr., I. P. Kaminow, *Phys. Rev.*, **188**, 1209 (1969).
- [126] Y. R. Shen, *Phys. Rev.*, **167**, 818 (1968).
- [127] W. J. Gaspers, *Phys. Rev.*, **133**, A 1249 (1964); H. Cheng, P. B. Miller, *Phys. Rev.*, **134**, A 683 (1964).
- [128] a) W. L. Faust, C. H. Henry, R. H. Eick, *Phys. Rev.*, **173**, 781 (1968).  
 b) J. J. Wynne, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **188**, 1211 (1969).
- [129] P. A. Wolff, G. A. Pearson, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1015 (1966); J. Kołodziejczak, *Acta Phys. Polon.*, **33**, 183, 585 (1968), *Phys. Status Solidi*, **29**, 645 (1968); C. C. Wang, N. W. Ressler, *Phys. Rev.*, **188**, 1291 (1969).
- [130] L. Mandel, E. Wolf, *Rev. Mod. Phys.*, **37**, 231 (1965).
- [131] J. Ducuing, N. Bloembergen, *Phys. Rev.*, **133**, A 1493 (1964).
- [132] S. A. Achmanow, A. I. Kowrygin, A. S. Czirkin, O. N. Czunajew, *ŽETF*, **50**, 829 (1966).
- [133] R. Asby, *Phys. Rev.*, **187**, 1062, 1070 (1969).
- [134] A. A. Gütter, H. P. Weber, R. Dändliker, *Phys. Rev.*, **185**, 629 (1969); M. D. Crisp, *Optics Communications*, **1**, 59 (1969).
- [135] S. McCall, E. Hahn, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 908 (1967); C. K. Patel, R. Slusher, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 1019 (1967); M. Duguay, S. L. Shapiro, P. Rentzepis, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 1014 (1967); W. M. Arutynien, W. P. Czaltykien, *ŽETF*, **57**, 1710 (1969).
- [136] J. A. Fleck, Jr., *Appl. Phys. Letters*, **13**, 365 (1968); T. I. Kuzniecowa, *ŽETF*, **57**, 1673 (1969).

- [137] W. L. Boncz-Brujewicz, W. A. Chodowoj, *Uspiechi Fiz. Nauk*, **85**, 3 (1965); S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **30**, 393 (1966); W. L. Peticolas, *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **18**, 233 (1967).
- [138] S. A. Achmanow, R. W. Chochłow, *Uspiechi Fiz. Nauk*, **88**, 439 (1966); J. A. Giordmaine, *Italian Phys. Soc. Proc. Internat. School, Phys. Enrico Fermi*, Course, **42** (1967), Academic Press, New York 1969, str. 493.
- [139] W. S. Starunow, I. L. Fabelinskii, *Uspiechi Fiz. Nauk.*, **98**, 441 (1969); M. Maier, W. Kaiser, J. A. Giordmaine, *Phys. Rev.*, **177**, 580 (1969).
- [140] S. A. Achmanow, A. P. Suchorukow, R. W. Chochłow, *Uspiechi Fiz. Nauk*, **93**, 19 (1967); S. A. Achmanow, R. W. Chochłow, *Uspiechi Fiz. Nauk*, **95**, 231 (1968).
- [141] S. Kielich, *Opto-electronics*, **1**, 75 (1969); *Optics Communications*, **1**, 129 (1969); P. W. Atkins, R. G. Woolley, *J. Chem. Soc.*, A 515 (1969).
- [142] J. P. Laussade, A. Yariv, *IEEE J. Quantum Electronics QE-5*, 435 (1969); R. A. Fisher, P. L. Kelley, T. K. Gustafson, *Appl. Phys. Letters*, **14**, 140 (1969), **E**, **16**, 255 (1970); J. C. Comly, A. Yariv, E. M. Garmire, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 148 (1969); M. A. Duguay, J. W. Hansen, *Appl. Phys. Letters*, **15**, 192 (1969).
- [143] G. A. Abakumow, A. P. Simonow, W. W. Fadjejew, L. A. Charitonow, R. W. Chochłow, *ŽETF Pisma*, **9**, 15 (1969).
- [144] A. G. Achmanow, S. A. Achmanow, B. W. Żdanow, A. I. Kowrigin, N. K. Podsimskaja, P. W. Chochłow, *ŽETF Piśma*, **10**, 244 (1969).
- [145] M. W. Dowley, E. B. Hodges, *IEEE J. Quantum Electronics QE-4*, 552 (1968); M. W. Dowley, *Appl. Phys. Letters*, **13**, 395 (1968).
- [146] S. Kielich, *Bull. Soc. Amis, Sci. Letters*, Poznań, ser. B, **17**, 43 (1962/63); *Acta Phys. Polon.*, **25**, 85 (1964).
- [147] P. D. Maker, *Physics of Quantum Electronics*, Mc Graw-Hill Book Co., New York 1966, s. 60.
- [148] R. Bersohn, Y. H. Pao, H. L. Frisch, *J. Chem. Phys.*, **45**, 3184 (1966); *Intern. J. Quantum Chem.*, **1S**, 829 (1967); D. L. Weinberg, *J. Chem. Phys.*, **47**, 1307 (1967); W. L. Striżewski, W. M. Klimienko, *ŽETF*, **53**, 244 (1967).
- [149] S. Kielich, *Chem. Phys. Letters*, **1**, 441 (1967); *Phys. Letters*, **27A**, 307 (1968).
- [150] P. D. Maker, *Phys. Rev.*, Ser. A, **1**, 1923 (1970).
- [151] I. Freund, *Phys. Rev. Letters*, **19**, 1288 (1967); *Chem. Phys. Letters*, **1**, 551 (1968).
- [152] M. Luban, N. Wisser, A. J. Greenfield, *J. Phys. C. Solid State Phys.*, **3**, 1 (1970); I. Freund, L. Kopf, *Phys. Rev. Letters*, **24**, 1017 (1970).
- [153] S. Kielich, *Physica*, **30**, 1717 (1964), *Bull. Acad. Sci. Ser. Ser. Sci. Math. Astron. Phys.* **12**, 53 (1964).
- [154] W. L. Striżewski, W. W. Obuchowski, *ŽETF*, **58**, 929 (1970).
- [155] S. Kielich, *Acta Phys. Polon.*, **22**, 299 (1962); *Prace Komisji Mat.-Przyrodn. PTPN*, **11**, 205 (1964).
- [156] A. D. Buckingham, D. A. Dunmur, *Trans. Faraday Soc.*, **64**, 1776 (1968).
- [157] S. Kielich, M. Kozierowski, *Acta Phys. Polon.*, A **38**, 271 (1970).
- [158] S. A. Achmanow, *Izw. Akad. Nauk ZSRR, Ser. Fiz. Mat.*, **4**, 68 (1965); S. A. Achmanow, A. S. Czirkin, *Radiotekhnika i elektronika*, **11**, 1915 (1966).
- [159] W. D. Wolosow, M. I. Raszczektajewa, *Optika i Spektrosk.*, **28**, 105 (1970).
- [160] J. Jerphagnon, S. K. Kurtz, *Phys. Rev.*, Ser. B, **1**, 1739 (1970).
- [161] B. Trevelyan, *J. Opto-electronics*, **1**, 9 (1969); W. Bardsley, P. H. Davies, M. V. Hadden, K. F. Hulme, O. Jones, W. Pomeroy, J. Warner, *J. Opto-electronics*, **1**, 29 (1969).
- [162] W. B. Gandrut, G. D. Boyd, J. H. McFee, F. H. Wehmeier, *Appl. Phys. Letters*, **16**, 59 (1970).
- [163] R. Bechman, S. K. Kurtz, *Tablice Landolt-Börnstein*, Group III, tom **2**, s. 167, Springer Verlag, Berlin 1969.
- [164] R. C. Miller, W. A. Nordland, *Appl. Phys. Letters*, **16**, 174 (1970).
- [165] G. D. Boyd, F. R. Nash, D. F. Nelson, *Phys. Rev. Letters*, **24**, 1298 (1970).



*Maria Świącicka*

Institut Fizyki PAN  
Zakład Spektroskopii Ciała Stałego  
Warszawa

## Ramanowska spektroskopia półprzewodników

### Raman Scattering in Semiconductors

*Abstract:* A review of the theoretical and experimental studies of the Raman effect in crystals, during the past ten years, is given.

The expressions for the Raman tensor, efficiency, linewidths and electrooptical coefficients are discussed. The experimental results, associated with the Raman scattering due to the optical phonons in semiconductors, are presented and analysed.

### 1. Wstęp

Światło padające na ośrodek stały, ciekły lub gazowy ulega rozproszeniu we wszystkich kierunkach, przy czym światło rozproszone ma natężenie mniejsze niż padające, lecz tę samą długość fali. Jest to dobrze znane zjawisko rozproszenia Rayleigha. W 1928 r. C. V. Raman [1] badając widmo światła rozproszonego odnalazł w nim promieniowanie o częstości większej i mniejszej od częstości fali padającej. Jeśli częstość fali padającej jest  $\omega_i$ , to obserwujemy promieniowanie rozproszone  $\omega_s$  o częstości  $\omega_s = \omega_i \pm \omega$ . Zjawisko to polega na tym, że kwant promieniowania rozprasza się od molekuly znajdującej się w stanie podstawowym, której udziela energii  $\hbar\omega$  i wobec tego kwant rozproszony ma po tym akcie energię mniejszą  $\hbar\omega_s = \hbar\omega_i - \hbar\omega$ , dostajemy tzw. składową stokesowską promieniowania rozproszonego. Fotony padające mogą również ulec rozproszeniu od już wzbudzonej molekuly, wówczas kwant padający absorbuje kwant  $\hbar\omega$  sprowadzając molekulę do stanu podstawowego i zostaje wypromieniowany foton o energii  $\hbar\omega_s = \hbar\omega_i + \hbar\omega$ . Jest to tzw. składowa antystokesowska promieniowania rozproszonego. Klasyczna teoria rozproszenia Ramana od cieczy i gazów podana jest w książce A. Piekary [25] oraz J. Klimontowicza [26].

Obie składowe promieniowania rozproszonego od cieczy i gazów były od dawna badane przy użyciu konwencjonalnych źródeł światła. Zjawisko Ramana jest procesem o małej wydajności, dlatego do jego obserwacji potrzebne są źródła światła o możliwie dużym natężeniu promieniowania oraz czułe metody detekcji. Przy detekcji fotograficznej, czas ekspozycji waha się od jednej do

kilkunastu godzin. Używając lampy rtęciowej jako źródła światła i długiego czasu ekspozycji udawało się nawet zaobserwować ramanowskie rozproszenie światła od ciał stałych. Jednakże rozwój ramanowskiej spektroskopii półprzewodników datuje się od czasu wprowadzenia laserów (1962 r.). Użycie silnego, monochromatycznego źródła światła, jakim jest laser, pozwoliło zaobserwować obie składowe rozproszenia Ramana w widmie pierwszego i wyższych rzędów oraz wymuszone rozproszenie Ramana w materiałach półprzewodnikowych.

Mechanizm zjawiska Ramana w ciele stałym jest inny niż dla cieczy i gazów, a mianowicie polega na oddziaływaniu fotonów z drganiami sieci nie bezpośrednio, a poprzez elektrony. Światło padające o częstości  $\omega_i$  oddziaływając z kryształem, wytwarza (pochłania) jedno lub więcej drganie sieci o częstości  $\omega$  i zostaje wypromieniowany foton o częstości  $\omega_s$  mniejszej (większej) od częstości promieniowania padającego,  $\omega_s = \omega_i \pm \omega$ , czyli składową stokesowską (antystokesowską) promieniowania.

W rozproszeniu Ramana biorą udział zarówno optyczne, jak i akustyczne drgania sieci (fonony), przy czym rozproszenie na fononach akustycznych nazywamy rozproszeniem Brillouina. Teoria przewiduje, że w efekcie Ramana fotony mogą być rozpraszane na niefononowych drganiach sieci, jak np. na plazmonach, falach spinowych, jonach paramagnetycznych itp., co nie zostało, jak dotąd, potwierdzone doświadczalnie.

Rozpraszanie Ramana może być procesem spontanicznym — promieniowanie rozproszone jest wówczas emitowane anizotropowo we wszystkich kierunkach po całym kącie  $4\pi$  oraz wymuszone, w którym fotony rozproszone wysyłane są w określonym kierunku. Jeśli w efekcie Ramana bierze udział jeden fonon, otrzymujemy widmo pierwszego rzędu, jeśli dwa lub więcej fononów — widmo drugiego i wyższych rzędów.

Przesunięcie linii Ramana, ich szerokość oraz natężenie zależą od temperatury. Zależność ta, przewidziana teoretycznie, została potwierdzona w wielu eksperymentach.

Pomiar rozproszenia Ramana od kryształów jest ważną metodą dostarczającą informacji o częstościach drgań sieci. Ze względu na małą wydajność efektu do badań półprzewodników stosuje się laserowe źródła światła. Wybór lasera zależy od szerokości przerwy wzbronionej badanego półprzewodnika, ponieważ kryształ musi być przezroczysty dla długości fali światła padającego. Dla półprzewodników z małą energią przerwy wzbronionej, rozproszenie bada się w świetle odbitym. Jednak efekt jest wówczas słaby, ze względu na małą objętość rozpraszającą i trzeba stosować lasery o dużej mocy.

## 2. Efekt Ramana pierwszego rzędu

Kwantowa teoria rozproszenia Ramana zostanie podana zgodnie z pracami R. Loudona [2, 3].

W każdym rozproszeniu Ramana pierwszego rzędu zostaje pochłonięty jeden

foton o częstości  $\omega_i$ , wytworzony foton  $\omega_s$  oraz wytworzony lub pochłonięty fonon  $\omega$ . Wytworzony foton o częstości  $\omega_s = \omega_i - \omega$  daje składową stokesowską; o częstości  $\omega_s = \omega_i + \omega$  — składową antystokesowską. Zajmiemy się rozpraszaniem na fononach optycznych. Tylko niektóre drgania sieci o określonych typach symetrii biorą udział w rozproszeniu Ramana; drgania takie nazywać będziemy Raman-aktywnymi. Wektor falowy może mieć jakąkolwiek wartość leżącą wewnątrz strefy Brillouina. Wartość maksymalna wynosi  $\pi/d$  ( $d$  — stała sieci) i zwykle równa jest  $3 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-1}$ . Światło padające o liczbie falowej  $20000 \text{ cm}^{-1}$  ma wektor falowy wewnątrz kryształu rzędu  $2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  i dla rozproszenia światła w kącie  $90^\circ$ , zachowanie wektora falowego wymaga, aby był on  $\sim \sqrt{2} \cdot 2 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  dla fononu wytworzonego (pochłoniętego), co jest małe w porównaniu z  $\pi/d$ , czyli fonony biorące udział w rozproszeniu Ramana pierwszego rzędu muszą mieć długość fali dużo większą od stałej sieci.

W procesie rozproszenia Ramana występują dwa typy oddziaływań:

- A. oddziaływanie fotonu z fononem (promieniowanie-sieć),
- B. oddziaływanie elektronu z fononem (elektron-sieć).

Rozpatrzmy kolejno każde z nich.

A. Załóżmy, że kryształ znajduję się w swoim elektronowym stanie podstawowym przed każdym aktem rozproszenia (wszystkie pasma walencyjne zapelnione i puste pasma przewodnictwa) oraz że wraca do swego stanu podstawowego po każdym procesie. Elektronowe stany pośrednie odnoszą się do elektronu w jednym z pasm przewodnictwa i dziury w jednym z pasm walencyjnych. Stan pary elektron-dziura oznaczymy przez pojedyncze wskaźniki  $\alpha$  i  $\beta$  pamiętając, że każdy z nich obejmuje cztery informacje — numery pasm i wektory falowe stanu pasma walencyjnego i przewodnictwa. Energię stanu pary względem stanu podstawowego oznaczymy przez  $\hbar\omega_\alpha$  lub  $\hbar\omega_\beta$ . Między operatorami kreacji i anihilacji  $a_k^+$  i  $a_k^-$  dla fotonu o wektorze falowym  $\vec{k}$  i energii  $\hbar\omega_k$  zachodzi związek:

$$(n_k - 1 | a_k | n_k) = (n_k | a_k^+ | n_k - 1) = n_k^{1/2}, \quad (1)$$

gdzie  $n_k$  jest całkowitą liczbą fotonów o wektorze falowym  $k$ . Hamiltonian oddziaływania między elektronami i polem promieniowania, omówiony dokładnie przez Heitlera [4] ma postać:

$$H_{ER} = \frac{e}{m} \sum_j \sum_k \left( \frac{2\pi\hbar}{\eta V \omega_k} \right)^{1/2} [a_k^- e^{ikr_j} + a_k^+ e^{-ikr_j}] \vec{\varepsilon}_k \vec{p}_j, \quad (2)$$

gdzie:  $p_j$  — pęd  $j$ -ego elektronu;  $r_j$  — jego położenie,  $\eta$  — optyczna stała dielektryczna,  $V$  — objętość kryształu,  $\vec{\varepsilon}_k$  — jednostkowy wektor polaryzacji fotonu  $\vec{k}$ .

Elementy macierzowe hamiltonianu  $H_{ER}$  między parą stanów  $|\alpha\rangle$  i  $|\beta\rangle$  znikają tylko wówczas, gdy  $|\alpha\rangle$  i  $|\beta\rangle$  są różne dla stanu dziury lub elektronu. Element macierzowy pędu w obu przypadkach oznacza się  $\vec{p}_{\alpha\beta}$ . W przypadku, gdy elektronowi  $j$  odpowiadają różne stany w pasmie przewodnictwa  $|\alpha\rangle$  i  $|\beta\rangle$  w  $|\alpha\rangle$

i  $|\beta\rangle$ ,  $\vec{p}_{\alpha\beta} = (a|p_j|b)$ . W przypadku, gdy elektronowi  $j$  odpowiadają różne stany w pasmie walencyjnym  $|c\rangle$  i  $|d\rangle$  (rozproszenie na dziurach),  $\vec{p}_{\alpha\beta} = -(c|p_j|d)$ .

B. Gałąź fononową i wektor falowy fononu oznaczymy odpowiednio przez  $s$  i  $\vec{q}$ . Operatory kreacji i anihilacji są zdefiniowane analogicznie do (1),  $\hbar\omega_{sq}$  i  $n_{sq}$  są odpowiednio energią fononu i liczbą obsadzenia. Wzbudzenie fononu powoduje przemieszczenie atomów w sieci, co zaburza potencjał periodyczny działający na elektrony prowadząc do energii oddziaływania elektron-sieć. Załóżmy kryształ składający się z dwu podsieci odpowiadających dwu atomom w komórce elementarnej. Przesunięcie podsieci w położeniu  $R$  dane jest przez:

$$\vec{u}(\vec{R}) = \left( \frac{\hbar}{2(M_1 + M_2)N\omega_{sq}} \right)^{1/2} \hat{\xi}_{sq} e^{iqR}(b_{s-q}^+ + b_{sq}^-), \quad (3)$$

gdzie  $M_1$  i  $M_2$  są masami atomów w dwu podsieciach,  $N$  — ilość komórek elementarnych w kryształ,  $\hat{\xi}_{sq}$  — wektor jednostkowy, zależny od kierunku, ale nie od wielkości  $q$ .

Rozwińmy zaburzony potencjał periodyczny w szereg Taylora w składowych przesunięcia atomowego  $u_i$  ( $i = x, y, z$ ). Człon zerowego rzędu jest niezaburzonym potencjałem periodycznym, a pierwszy nieznikający człon wyższego rzędu jest brany jako przybliżone oddziaływanie elektron-sieć. Hamiltonian oddziaływania elektron-sieć  $H_{EL}$  zależy liniowo od składowych naprężenia  $S_{ij}$

$$S_{ij} = \frac{\partial u_i}{\partial R_j} = i \left( \frac{\hbar}{2(M_1 + M_2)N\omega_q} \right)^{1/2} \hat{\xi}_{sq}^i q^j e^{iqR}(b_{s-q}^+ + b_{sq}^-). \quad (4)$$

Nieznikający element  $H_{EL}$  między dwiema parami stanów jest:

$$\langle \alpha | H_{EL} | \beta \rangle = \Xi_{\alpha\beta}^{ij} \bar{S}_{ij}, \quad (5)$$

gdzie wskaźniki  $i, j$  oznaczają sumowanie po wszystkich składowych przesunięcia atomowego  $x, y, z$ . Naprężenie  $\bar{S}_{ij}$  wyraża się wzorem (4), ale bez członu eksponencjalnego.  $\Xi_{\alpha\beta}^{ij}$  jest potencjałem deformacji.

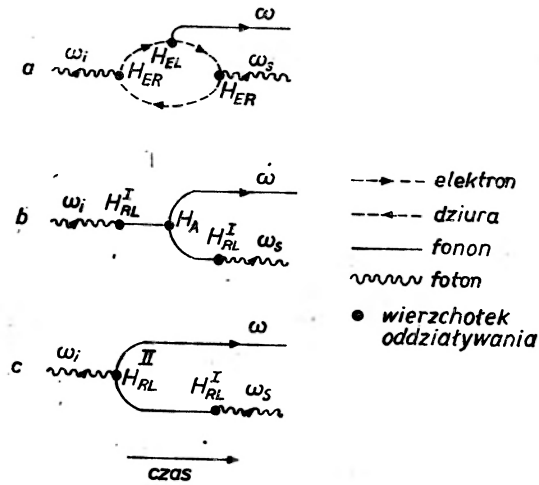
Zachowanie wektora falowego wymaga, aby dla stanu  $|\alpha\rangle$  był on inny niż dla stanu  $|\beta\rangle$  o małą wielkość  $q$ . Jeśli  $H_{EL}$  jest zaburzeniem jednoelektronowym,  $|\alpha\rangle$  i  $|\beta\rangle$  może być różne dla stanu dziury lub elektronu, ale nie dla obu jednocześnie. Gdy  $|\alpha\rangle$  i  $|\beta\rangle$  są identyczne dla obu pasm element macierzy  $\Xi_{\alpha\beta}^{ij}$  uwzględnia efekty oddziaływania elektronu i dziury z drganiami sieci.

Potencjał deformacji  $\Xi_{\alpha\beta}^{ij}$  jest elementem macierzy rzeczywistego operatora, który zależy od pochodzenia potencjału periodycznego. Aby  $H_{EL}$  był niezmienniczy względem obrotów kryształu, potencjał deformacji musi mieć własność symetrii:

$$\Xi_{\alpha\beta}^{ij} = \Xi_{\alpha\beta}^{ji}. \quad (6)$$

Rys. 1 pokazuje trzy różne typy procesu rozproszenia Ramana uwzględniające elementarne oddziaływanie pomiędzy promieniowaniem, elektronami i siecią.  $H_{EL}$ ,  $H_{RL}^I$ ,  $H_{ER}$  przedstawiają oddziaływania pierwszego rzędu między

tymi trzema układami. Trzyfononowe anharmoniczne oddziaływanie  $H_A$  oraz oddziaływanie promieniowanie-sieć drugiego rzędu  $H_{RL}^I$  są oddziaływaniami wyższych rzędów.



Rys. 1. Trzy typy elementarnego procesu rozpraszania Ramana

W każdym etapie procesu mamy fonon  $\omega_i$  w stanie początkowym oraz foton  $\omega_s$  i fonon  $\omega$  w stanie końcowym. Można przedstawić bardziej złożone procesy prowadzące do takiego samego stanu początkowego i końcowego, ale są to procesy wyższych rzędów dające małe przyczynki do rozpraszania. Proces 1b i 1c zachodzi wtedy, gdy są obecne fonony aktywne w podczerwieni i dlatego mogą zachodzić w kryształach homopolarnych, np. w diamencie. Oszacowania numeryczne wskazują, że proces 1a dominuje nad procesami 1b i 1c pod względem natężenia rozpraszania i z wielu prac nad rozproszeniem Ramana wynika, że w zjawisku tym promieniowanie oddziałuje z siecią za pośrednictwem elektronów w kryształach.

Proces 1a uwzględnia trzy wirtualne przejścia elektronowe:

1. absorpcję fotonu
2. kreację fononu optycznego
3. emisję fotonu.

Kryształ rozpraszający znajduje się w swym stanie podstawowym ze wszystkimi pasmami walencyjnymi pełnymi i pustymi pasmami przewodnictwa przed i po każdym akcie rozproszenia. Wirtualne stany pośrednie zawierają wzbudzenie pary elektron-dziura. Te trzy przejścia mogą zachodzić w dowolnym porządku prowadząc do sześciu procesów, które mogą być zilustrowane przez zamianę kolejności przejść na rys. 1a.

### 3. Tensor Ramana

Przyjmijmy mechanizm rozpraszania jak na rys. 1a i założmy, że  $\omega_i$  i  $\omega_s$  są zbyt małe, aby wywołać międzypasmowe przejścia elektronowe.

W chwili  $T_0$  kryształ znajduje się w swym stanie podstawowym i pada

na niego foton  $\omega_i$ . Prawdopodobieństwo, że w czasie  $T$  zostanie zaabsorbowany jeden foton  $\omega_i$  i wytworzony jeden foton  $\omega_s$  i jeden fonon  $\omega$  jest:

$$W(T) = \sum_{q, k_2} |(n_i - 1; n_s + 1; n + 1; 0 | e^{\frac{iHT}{\hbar}} | n_i; n_s; n; 0 |)^2, \quad (7)$$

gdzie  $H$  jest całkowitym hamiltonianem; końcowe zera w nawiasach wskazują na stan podstawowy,  $\vec{q}$  — wektor falowy wytworzonego fononu;  $n_i, n_s, n$  — ilość fotonów padających, rozproszonych oraz fononów optycznych, odpowiednio. Sumowanie po  $k_2$  ograniczone jest do kierunku wektora falowego, rozproszonego fotonu w małym kącie bryłowym  $\Omega$ , zdeterminowanym rozmiarami detektora. Rachunki odnoszą się do spontanicznego rozproszenia Ramana i dlatego liczbę  $n_s$  fotonów  $\omega_s$  w stanie początkowym przyjmujemy za równą zero. Dla długiego czasu  $W(T)$  jest liniowe z  $T$  i prawdopodobieństwo rozproszenia na fononach optycznych jest:

$$W^\circ(T) = \frac{2\pi T}{\hbar^6} \sum_{q, k_2} \sum_{\alpha, \beta} \left| \frac{(n_i - 1; 1; n + 1; 0 | H_J | a \rangle \langle a | H_J | b \rangle \langle b | H_J | n_i; 0; n; 0 \rangle}{(\omega_\alpha - \omega_i)(\omega_\beta - \omega_i)} \right|^2 \times \\ \times \delta(\omega_i - \omega - \omega_s), \quad (8)$$

gdzie  $a$  i  $b$  przebiega cały układ stanów pośrednich oraz

$$H_J = H_{ER} + H_{EL}.$$

Uwzględniając poprzednie zależności

$$W^\circ(T) = \frac{4\pi T e^4}{\hbar^3 m^4 \eta^2 a^2 M N} \sum_{q, k_2} \frac{n_i(n+1)}{\omega_i \omega_s \omega} |\hat{\xi}_{ok}^i R_{12}^i(-\omega_i, \omega_s, \omega)|^2 \frac{2\pi^3}{V} \times \\ \times \delta(\vec{k}_i - \vec{q} - \vec{k}_s) \delta(\omega_i - \omega - \omega_s), \quad (9)$$

gdzie

$$\frac{1}{M} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}$$

oraz

$$R_{12}^i(-\omega_i, \omega_s, \omega) = \frac{1}{V} \sum_{\alpha, \beta} \left\{ \frac{p_{\alpha\beta}^2 p_{\beta\alpha}^1 \Xi_{\alpha\omega}^i}{(\omega_\beta + \omega + \omega_i)(\omega_\alpha + \omega)} + \begin{array}{l} \text{cykliczne} \\ \text{permutacje} \end{array} \right\} \quad (10)$$

Wskaźniki 1 i 2 w elementach macierzowych  $p$  oznaczają, że bierze się ich składowe w kierunku polaryzacji  $\epsilon_i$  i  $\epsilon_s$  fotonów  $\omega_i$  i  $\omega_s$ .  $R_{12}^i$  nazywa się tensorem Ramana,  $i$  wskazuje kierunek polaryzacji fotonu. Tych sześć członów pochodzi od sześciu typów procesu rozpraszania. Znak ujemny (dodatni) przy częstościach z lewej strony równania (10) odpowiada anihilacji (kreacji) fotonu lub fononu. Tensor Ramana ma symetrię:

$$R_{12}^i(-\omega_i, \omega_s, \omega) = R_{21}^i(\omega_s, -\omega_i, \omega) \quad \omega_i = \omega + \omega_s \quad (11)$$

wskazującą na to, że nie ma znaczenia kolejność, w jakiej zmienne fotonowe zapisane są w tensorze Ramana. Jako wynik symetrii inwersji czasu, elektronowe funkcje falowe można wziąć rzeczywiste i będziemy dalej zakładać, że  $\alpha$  i  $\beta$  określają rzeczywiste funkcje falowe. Jeśli  $\vec{p}_{\alpha\beta}$  jest elementem macierzyowym operatora urojonego ( $-i\hbar\nabla$ ),  $\Xi_{\alpha\beta}^{ij}$  elementem macierzyowym operatora rzeczywistego, to mają one symetrię:

$$\vec{p}_{\alpha\beta} = -\vec{p}_{\beta\alpha} \quad (12)$$

$$\Xi_{\alpha\beta}^i = \Xi_{\beta\alpha}^i. \quad (13)$$

Korzystając z powyższych warunków oraz z tego, że  $\omega_i = \omega + \omega_s$  można pokazać:

$$R_{12}^i(-\omega_i, \omega_s, \omega) = R_{12}^i(\omega_i, -\omega_s - \omega). \quad (14)$$

Tensor Ramana dla przypadku, gdy foton  $\omega_i$  jest absorbowany, a foton  $\omega_s$  i fonon  $\omega$  wytworzony, jest identyczny z tensorem Ramana dla przypadku odwrotnego (wytworzony  $\omega_i$ , pochłonięty  $\omega_s, \omega$ ). Złożenie (11) i (14) daje ważny wynik:

$$R_{12}^i(-\omega_i, \omega_s, \omega) = R_{21}^i(-\omega_i + \omega, \omega_s + \omega, -\omega). \quad (15)$$

Równanie to wskazuje, że rozproszenie Ramana nie jest w ogólności symetryczne względem zmiany polaryzacji fotonów padających i rozproszonych. Jednakże, jeśli  $\omega$  jest małe w porównaniu z  $(\omega_\alpha - \omega_i)$  i  $(\omega_\alpha - \omega_s)$  dla każdego  $\alpha$ , jak to zwykle ma miejsce w tym przypadku ( $\omega/(\omega_\alpha - \omega_{i,s})$  jest rzędu  $10^{-2}$ ), to człon dominujący w tensorze Ramana jest symetryczny z polaryzacją fotonu.

#### 4. Wydajność rozproszenia Ramana

W celu oszacowania prawdopodobieństwa rozproszenia Ramana, ustalmy kierunek promieniowania padającego wzdłuż osi  $x$ , polaryzację w kierunku osi  $z$  i obserwację w kierunku osi  $y$ . Jeśli w równaniu (9) sumy zastąpimy całkami i obliczymy je, równanie to zredukuje się do postaci:

$$W^\circ(T) = \frac{Te^4 n_i (n+1) (\omega_i - \omega) \Omega V}{2\hbar^3 m^4 \eta^{1/2} a^2 M N c^3 \omega \omega_i} |R_{zx}^y(-\omega_i, \omega_i - \omega, \omega)|^2. \quad (16)$$

Wydajność rozproszenia Ramana definiujemy jako stosunek liczby obserwowanych fotonów  $N_s$ , wytworzonych przez jednostkowy przekrój poprzeczny kryształu w jednostce czasu, do liczby fotonów padających  $N_i$  na jednostkę przekroju poprzecznego w jednostce czasu. Dla kryształu o grubości  $L$ , w przypadku reakcji (składowa Stokesa) wydajność rozproszenia Ramana wyraża się wzorem:

$$\frac{N_s}{N_i} = \frac{W^\circ(T) L \eta^{1/2}}{T n_i c} = \frac{e^4 \Omega L V (n+1) (\omega_i - \omega)}{2\hbar^3 m^4 a^2 M N c \omega \omega_i} |R_{zx}^y(-\omega_i, \omega_i - \omega, \omega)|^2. \quad (17)$$

Gdy mamy do czynienia z anihilacją fononu (składowa antystokesowska), w ostatnim wzorze czynnik  $(n+1)$  należy zastąpić przez  $n$  i zmienić znak  $\omega$  wszędzie, z wyjątkiem mianownika.

Dla typowych wartości parametrów kryształu:  $\hbar\omega_a \sim 1-2$  eV;  $E_{ap} \sim 5$  eV;  $p_{ap} \sim \frac{\hbar}{a} \sim 3 \cdot 10^{-20}$  jedn. egs.;  $\omega \sim 5 \cdot 10^{13} \text{s}^{-1}$ ;  $a \sim 5 \cdot 10^{-8}$  cm; gęstość  $\sim 5$  g/cm<sup>3</sup> oraz przyjmując kryształ o grubości 1 cm i detektor zbierający fotony z jednostkowego kąta bryłowego, ramanowska wydajność rozproszenia jest rzędu  $10^{-6} \div 10^{-7}$ , co potwierdza doświadczenie.

## 5. Szerokość linii Ramana

Przy wyprowadzaniu wzorów na prawdopodobieństwo rozproszenia  $W^\circ(T)$  nie uwzględnialiśmy skończonego czasu życia elektronów i fononów. Wprowadzenie czasu relaksacji fononu i elektronu do tych równań nie jest trudne, ale prowadzi do długich, żmudnych obliczeń, które można nieco uprościć uwzględniając np. fakt, że częstotliwości w mianowniku wyrażenia (8) są dużo większe niż odwrotność czasu relaksacji i ten skończony czas życia ma nieznaczny wpływ na tensor Ramana i dlatego może być zaniedbany. To i inne założenia prowadzą do wzoru na  $W^\circ(T)$  zależnego od szerokości połówkowej linii  $\Gamma$  oraz od przesunięcia  $\Delta$ :

$$W^\circ(T) = \frac{4\pi^2 T e^4}{\hbar^3 m^4 \eta^2 a^2 M N} \sum_{q,k} \frac{n_i(n+1)}{\omega \omega_i \omega_s} |\hat{\xi}_{oq}^i R_{12}^i(-\omega_i, \omega_s, \omega)|^2 \frac{(2\pi)^3}{V} \times \\ \times \delta(k_1 - q - k_2) \frac{\Gamma}{(\omega_i - \omega - \omega_s - \Delta)^2 + \Gamma^2}, \quad (18)$$

gdzie

$$\Gamma = \frac{\pi}{\hbar^2} \frac{V}{(2\pi)^3} \int dq \sum_{s,s'} |(n_{sq}+1, n_{s'q}+1, n=0 | H_A | n_{sq}, n_{s'q}, n=1)|^2 \times \\ \times \delta(\omega - \omega_{sq} - \omega_{s'q}), \quad (19)$$

$$\Delta = \frac{1}{\hbar^2} \frac{V}{(2\pi)^3} p \int dq \sum_{s,s'} \frac{|(n_{sq}+1, n_{s'q}+1, n=0 | H_A | n_{sq}, n_{s'q}, n=1)|^2}{\omega_0 - \omega_{sq} - \omega_{s'q}}. \quad (20)$$

Symbol  $p$  oznacza, że należy brać wartość główną. Równanie (18) wskazuje, że promieniowanie rozproszone Ramana ma rozkład Lorenza wokół częstości  $\omega_i - \omega - \Delta$  z szerokością połówkową  $\Gamma$ . Szerokość  $2\Gamma$  i przesunięcie natężenia rozproszenia  $|\Delta|$  rosną z obsadzeniem fononów  $n_{sq}$  i  $n_{s'q}$ . W większości półprzewodników stany dwufononowe mają energię  $\hbar(\omega_{sq} + \omega_{s'q})$ , która jest większa od energii  $\hbar\omega$  fononu Ramana. Wówczas  $\Delta$  ma wartość ujemną. Z tego wynika, że ze wzrostem temperatury, składowe Stokesa linii Ramana powinny



się poszerzyć i przesunąć w stronę wyższych częstotliwości. Przesunięcie to jest różne dla różnych linii Ramana i jest w ogólności większe dla linii o wyższej częstotliwości, ponieważ częstotliwości fononów maleją ze wzrostem temperatury.

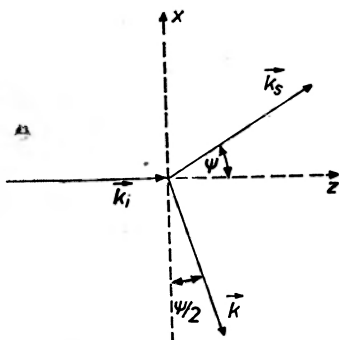
## 6. Rozproszenie Brillouina

Dotychczas omawialiśmy rozproszenie Ramana od drgań optycznych sieci. Drgania akustyczne mogą również dawać rozproszenie Ramana, zwane rozproszeniem Brillouina. Dla geometrii rozproszenia (jak na rys. 2) zachodzą związki:

$$\begin{aligned}\omega_i &= \omega_s + \omega \\ \vec{k}_i &= \vec{k}_s + \vec{k}\end{aligned}\quad (21)$$

Jeśli różnica między  $\omega_i$  i  $\omega_s$  jest mała,  $|\vec{k}_i|$  i  $|\vec{k}_s|$  można przyjąć za równe i wówczas:

$$k = 2k_1 \sin \frac{\psi}{2}. \quad (22)$$



Rys. 2. Schemat geometrii rozpraszania Brillouina

Względne przesunięcie składowej Stokesa w rozproszeniu Brillouina jest:

$$\frac{\omega_i - \omega_s}{\omega_i} = \frac{2\varepsilon^{1/2}v}{c} \sin \frac{\psi}{2} \quad (23)$$

gdzie  $v$  jest prędkością fononu akustycznego.

Dla składowej antystokesowskiej znak po prawej stronie równania należy zmienić na przeciwny.  $v/c$  jest zwykle rzędu  $10^{-5}$ , przesunięcie Brillouina jest więc bardzo małe, rzędu  $2 \div 3 \text{ cm}^{-1}$ . Każda z trzech gałęzi akustycznych ma różne wartości  $v$ , co daje trzy stokesowskie i trzy antystokesowskie składowe w widmie Brillouina. Piki od tych dwu różnych składowych mają w przybliżeniu równe natężenie, ze względu na małą częstotliwość fononów akustycznych.

Wyrażenie na prawdopodobieństwo rozproszenia na fononach akustycznych może być wyprowadzone w ten sam sposób co dla rozproszenia na fononach optycznych, z uwzględnieniem zamiany  $\omega$  na częstość  $\omega_{sq}$  fononów akustycznych zależną od  $q$  oraz we wzorze na  $R_{12}^{ij}$  ( $R_{12}^i$  dla rozpraszania Ramana) potencjał deformacji  $\Xi^i$  należy zastąpić przez  $\Xi^{ij}$ .

Energie długofalowych fononów akustycznych są tak małe, że mogą być zaniebane w porównaniu z energiami międzypasmowymi, tak że  $R_{21}^{ij}(-\omega_i, \omega_s, \omega_{sq})$  może być zastąpione przez  $R_{12}^{ij}(-\omega_i, \omega_s, 0)$ , co upraszcza wzór (10) na tensor Ramana. Born i Huang [22] podali teorię rozproszenia Brillouina w oparciu o współczynniki elastoptyczne. W przybliżeniu jednoelektronowym, tensor stałej dielektrycznej kryształu w częstości  $\omega_1$  jest:

$$\eta_{\lambda\mu} = \left(1 - \frac{4\pi e^2 n}{m\omega_1^2}\right) \quad (24)$$

gdzie  $n$  jest gęstością elektronów.

Współczynniki elastoptyczne opisują zmianę pierwszego rzędu  $\Delta\eta_{\lambda\mu}$  w  $\eta_{\lambda\mu}$ , gdy do kryształu przyłożone jest jednorodne naprężenie. Po pewnych modyfikacjach, zmiana pierwszego rzędu w  $\eta_{\lambda\mu}$  jest:

$$\Delta\eta_{\lambda\mu} = -\frac{4\pi e^2}{m^2\omega_1^2\hbar^2} \frac{\partial u_i}{\partial R_j} R_{\lambda\mu}^{ij}(-\omega_i, \omega_i, 0). \quad (25)$$

Dla kryształu o symetrii kubicznej, gdy stała dielektryczna jest skalarem ( $\eta_{\lambda\mu} = \eta\delta_{\lambda\mu}$ ), współczynniki elastoptyczne  $p_{\lambda\mu ij}$  są związane z  $\Delta\eta_{\lambda\mu}$  związkiem:

$$\Delta\eta_{\lambda\mu} = -\eta^2 p_{\lambda\mu ij} \frac{\partial u_i}{\partial R_j} \quad (26)$$

Porównując (25) i (26) otrzymujemy:

$$p_{\lambda\mu ij} = \frac{4\pi e^2}{m^2\omega_1\hbar^2\eta^2} R_{\lambda\mu}^{ij}(-\omega_i, \omega_i, 0). \quad (27)$$

Ostatnie równanie wyraża zależność między współczynnikami elastoptycznymi i potencjałem deformacji w kryształach kubicznych. Dla typowych parametrów kryształu podanych w cz. 4 i  $\eta \sim 12$ , współczynniki elastoptyczne są rzędu  $10^{-1} \div 1$ .

## 7. Współczynniki elektroptyczne

Effekt elektroptyczny omówimy na przykładzie półprzewodników polarnych, przy czym wyniki mogą być, po pewnych modyfikacjach, zastosowane do półprzewodników homopolarnych, ponieważ dla obu typów półprzewodników potencjał deformacji oddziaływania elektron-sieć ma bardzo podobną postać. Fonony podłużne i poprzeczne mają teraz różne częstości i wektory falowe,

co powoduje powstawanie odrębnych pików Ramana. Całkowite prawdopodobieństwo rozproszenia Ramana na fononach podłużnych, policzone z uwzględnieniem całkowitego hamiltonianu oddziaływania elektron-sieć  $H_{EL} + H'_{EL}$ , zależy od polarnego tensora rozpraszania  $P_{12}^a$ , który zależy od współczynników elektrooptycznych, podobnie jak tensor Brillouina od elastooptycznych. Pierwszy współczynnik elektrooptyczny opisuje zmianę pierwszego rzędu stałej dielektrycznej  $\eta_{\lambda\mu}$ , danej przez (24). Gdy przyłożone jest jednorodne pole elektryczne  $E$ , rachunek zaburzeń daje wyrażenie na  $\delta\eta_{\lambda\mu}$  postaci:

$$\delta\eta_{\lambda\mu} = i \frac{4\pi e^3}{m^3 \omega_i^2 \hbar^2} E_q P_{\mu\lambda}^a(-\omega_i, \omega_i, 0). \quad (28)$$

Dla kryształów należących do klasy kubicznej, współczynniki elektrooptyczne  $z_{\lambda\mu k}$  związane są z  $\delta\eta_{\lambda\mu}$  poprzez składowe  $E_q$  przyłożonego pola zależnością:

$$\delta\eta_{\lambda\mu} = -\eta^2 z_{\lambda\mu q} E_q. \quad (29)$$

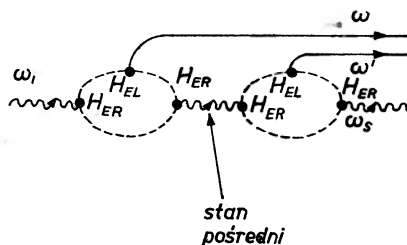
Porównując (28) i (29) otrzymujemy:

$$z_{\lambda\mu q} = -i \frac{4\pi e^3}{m^3 \omega_i^2 \hbar^2 \eta^2} P_{\mu\lambda}^a(-\omega_i, \omega_i, 0). \quad (30)$$

Jest to mikroskopowe wyrażenie na współczynniki elektrooptyczne. Prawa strona równania (30) jest rzeczywista, gdy każdy element macierzowy  $p$  jest urojony. Dla typowych wartości parametrów kryształu podanych w cz. 4  $z_{\lambda\mu q}$  jest rzędu  $10^{-6} \div 10^{-7}$  cm/esu.

## 8. Efekt Ramana drugiego rzędu

Efekt Ramana pierwszego rzędu jest procesem związanym z kreacją lub anihilacją pojedynczego fononu. W efekcie Ramana drugiego rzędu w procesie rozproszenia biorą udział dwa fonony. Przy kreacji dwu fononów dostajemy

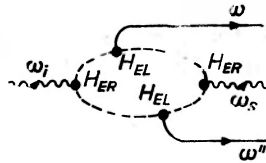


Rys. 3. Elementarny proces rozproszenia dla widma liniowego drugiego rzędu

składową stokesowską; kreacja jednego i anihilacja drugiego fononu daje składową stokesowską lub antystokesowską; gdy obydwa fonony są anihilowane, dostajemy składową antystokesowską. W rozproszeniu Ramana drugiego rzędu obserwujemy widmo liniowe lub ciągłe.

Na widmo liniowe drugiego rzędu składają się dwa kolejne rozproszenia Ramana pierwszego rzędu, co pokazuje rys. 3 w przypadku składowej stokesowskiej (wytworzenie dwu fononów o częstościach  $\omega$  i  $\omega'$ ). Ponieważ proces ten zależy od dwu kolejnych aktów rozpraszania, które muszą zachodzić wewnątrz kryształu, wydajność rozproszenia dla widma liniowego drugiego rzędu rośnie wraz z rozmiarami kryształu.

Widmo ciągłe rozproszenia Ramana drugiego rzędu jest wynikiem procesu, w którym światło oddziaływa z parą fononów w pojedynczym akcie rozproszenia, jak na rys. 4.



Rys. 4. Elementarny proces rozpraszania dla widma ciągłego drugiego rzędu

Rozważmy przypadek kreacji dwu fononów (składowa stokesowska). Od wektorów falowych fononów wymaga się teraz, aby ich suma równoważyła zmianę wektora falowego fotonu rozproszonego, ponieważ wektory falowe fononów muszą być z zakresu wewnątrz strefy Brillouina. Jeśli wektory falowe fotonu są zaniedbywalne w porównaniu z rozmiarami strefy Brillouina, z zachowania wektora falowego wynika, że wektory falowe dwu fononów muszą być równe i przeciwne.

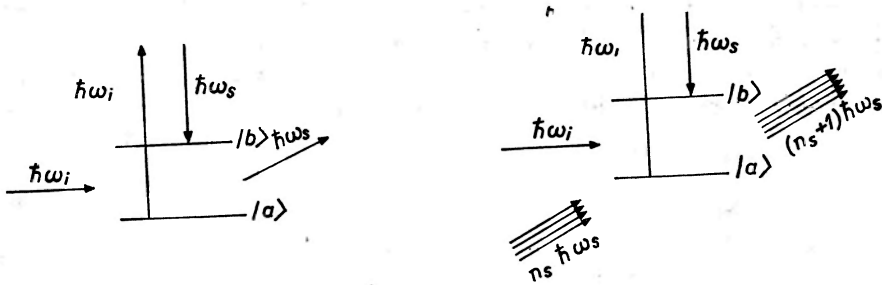
Wyrażenie teoretyczne na wydajność efektu Ramana drugiego rzędu może być znalezione za pomocą tej samej metody co dla pierwszego rzędu. Natężenie rozproszenia wiąże się z elektronowym tensorem polaryzowalności, który musi być teraz rozszerzony o człony proporcjonalne do kwadratu względnego przesuńnięcia dwu podsieci (dla sieci dwuatomowej). W rozproszeniu Ramana pierwszego rzędu, w wyniku istnienia oddziaływania elektron-sieć, tensor polaryzowalności był liniowy z przemieszczeniem dwu podsieci.

## 9. Wymuszony efekt Ramana

W zwykłym efekcie Ramana promieniowanie rozproszone jest emitowane spontanicznie, po całym kącie bryłowym  $4\pi$ . W obliczeniach liczbę fotonów rozproszonych w stanie początkowym przyjmowaliśmy za równą zero. Gdy strumień światła padającego jest dostatecznie silny, fotony rozproszone wytwarzane są bardzo szybko i mogą oddziaływać z fotonami padającymi. W tym przypadku liczba fotonów rozproszonych w stanie początkowym jest różna od zera i równa  $n_s$ . W celu znalezienia prawdopodobieństwa rozproszenia Ramana należy prawą stronę równania (8) pomnożyć przez czynnik  $(n_s+1)$ .

Człon z jedynką odpowiada spontanicznemu rozproszeniu Ramana, człon z  $n_s$  — wymuszonemu.

Fotony rozproszone w przypadku wymuszonego zjawiska Ramana są emitowane w określonych kierunkach wzdłuż poboczniczy stożka. Doświadczalne badanie zależności kątowej na przykładzie kalcytu podaje praca Chiao i Stoiceff [17]. Rys. 5 przedstawia schematycznie mechanizm spontanicznego



Rys. 5. Mechanizm spontanicznego (a) i wymuszonego (b) rozpraszania Ramana

i wymuszonego rozproszenia Ramana. W przypadku wymuszonego, fala o częstotliwości  $\omega_s$  pada na układ jednocześnie z falą o częstotliwości  $\omega_i$ , która w konsekwencji zostaje wzmocniona, podczas gdy promieniowanie padające traci kwant  $\hbar\omega_i$  i układ zostaje wzbudzony o kwant  $\hbar(\omega_i - \omega_s)$ . Obserwacje wymuszonego efektu Ramana przeprowadza się dwiema metodami: umieszczając próbkę wewnątrz lasera lub ogniskując promień lasera na próbce umieszczonej na zewnątrz lasera. Gdy próbka umieszczona jest wewnątrz lasera, wyróżniony kierunek  $k_s$  będzie prostopadły do zwierciadeł, wobec tego promieniowanie rozproszone będzie sukcesywnie wzmocniane dzięki efektom sprzężenia zwrotnego. Używając zogniskowanego promienia lasera, wymuszone fotony ramanowskie mogą być w zasadzie emitowane we wszystkich kierunkach, jednakże tylko część oświetlona próbki wytwarza i wzmocnia promieniowanie o częstotliwości  $\omega_s$ . Zogniskowany promień lasera pada na bardzo małą powierzchnię próbki i dlatego długość jego drogi w próbce trzeba zrobić możliwie dużą. Największe natężenie promieniowania rozproszonego jest w tym kierunku, w którym długość drogi rozproszonych fotonów jest największa.

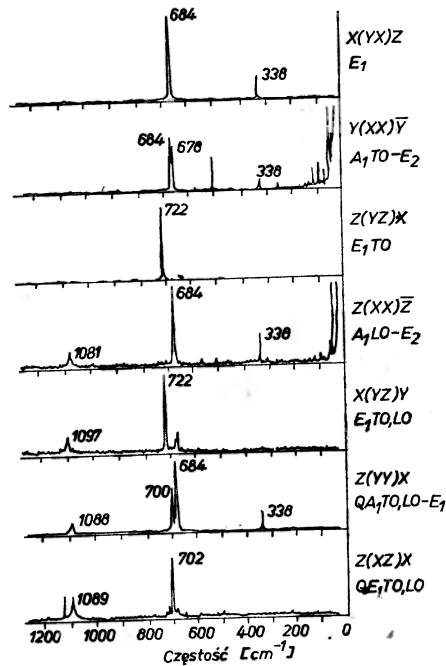
Wydajność rozproszenia w wymuszonego efekcie Ramana wynosi ok.  $10^{-1}$ , a więc jest dużo większa niż w rozproszeniu spontanicznym, gdzie była rzędu  $10^{-6} \div 10^{-7}$ .

## 10. Doświadczalne wyznaczanie częstości modów fononów optycznych

Bezpośrednią metodą badania widma drgań sieci w półprzewodnikach jest pomiar absorpcji promieniowania podczerwonego. Rozproszenie Ramana pierwszego rzędu daje w zasadzie te same informacje, jako absorpcja promieniowania,

które wytwarza pojedynczy długofalowy fonon optyczny. Jednakże w przypadku fononu optycznego w półprzewodnikach homopolarnych i podłużnego fononu optycznego w półprzewodnikach polarnych, prosta absorpcja jest procesem wzbronionym, podczas gdy zachodzi rozproszenie Ramana na tych fononach. Dla poprzecznych fononów optycznych w półprzewodnikach polarnych, prosta absorpcja jest dozwolona, ale jej pomiary są trudne ze względu na ekstremalnie wysoki współczynnik absorpcji kryształu w tym obszarze. Efekt Ramana jest więc silniejszym narzędziem określającym długofalowe częstotliwości drgań niż prosta absorpcja w podzerwieni.

Od momentu zastosowania laserów do badań fizycznych, wielu autorów zajmowało się obserwacją zjawiska Ramana w półprzewodnikach (prace [5-21]).



Rys. 6. Widmo Ramana dla tlenku berylu przy różnych kierunkach i polaryzacji światła padającego i rozproszonego

Typowy układ doświadczalny składa się z: lasera, polaryzatora, próbki, analizatora, monochromatora, fotopowielacza i układu elektronicznego z rejestratorem.

W pierwszych badaniach z tego zakresu, gdy moc dostępnych laserów była niewielka (rzędu kilkunastu miliwatów), widma obserwowano metodą fotograficzną lub stosowano złożone układy elektroniczne w celu wyodrębnienia sygnału spośród szumów [23].

Przy spontanicznym efekcie Ramana, gdy światło rozproszone rozchodzi się anizotropowo po całym kącie  $4\pi$ , obserwację widma prowadzi się pod kątem

prostym do strumienia padającego, w celu wyeliminowania promieniowania o częstości światła padającego.

Półprzewodnik powinien być przezroczysty dla danej długości fali światła padającego i, wobec tego, wybór lasera zależy od szerokości przerwy wzbudzonej badanego półprzewodnika. Spontaniczne zjawisko Ramana ma małą wydajność, w związku z tym wymagane są lasery o mocy rzędu  $0,5 \div 2$  W.

Obserwacje widma Ramana przeprowadzone dla wielu materiałów półprzewodnikowych pozwoliły na wyznaczenie różnych modów fononów optycznych oraz stałych elektrooptycznych w tych materiałach. Dotychczas najlepiej zostały zbadane kryształy o strukturze wurreytu i blendy cynkowej. Arguello, Rousseau, Porto [5] obserwowali rozproszenie Ramana od tlenków berylu i cynku oraz siarczków cynku i kadmu, przy różnej polaryzacji i kierunku światła padającego i rozproszonego w temperaturze ciekłego helu  $4^\circ\text{K}$ ,  $25^\circ\text{K}$  i  $298^\circ\text{K}$ . Źródłem światła był laser na zjonizowanym argonie o mocy wyjściowej 1 W. Rys. 6 przedstawia widmo Ramana dla BeO. Litera w nawiasach po prawej stronie wykresu wskazują odpowiednio polaryzację promieniowania padającego i rozproszonego. Litera przed nawiasem oznacza kierunek promieniowania padającego, za nawiasem — rozproszonego. Kreska nad literą wskazuje, że kąt pomiędzy promieniem padającym i rozproszonym jest bliski  $180^\circ$ . Linia falistą oznaczono rozproszenie pod kątem bliskim  $0^\circ$  do promienia padającego. Oś optyczna kryształu pokrywa się z osią  $z$ .

Jak widać, kierunek i polaryzacja światła rozproszonego zależy od kierunku i polaryzacji światła padającego, co odpowiada oddziaływaniu fotonów z drganiami sieci różnego typu. I tak np. dla kryształów o strukturze wurreytu teoria grup przewiduje następującą sieć fononów raman-aktywnych: gałąź  $A_1$ , w której fonony są spolaryzowane w kierunku osi  $z$ ; gałąź  $E_1$  z polaryzacją fononów w płaszczyźnie  $xy$ ; dwie gałęzie  $E_2$  i dwie  $B_1$ . Nieznikające składowe tensora polaryzowalności dla tych modów są:

$$A_1(z) = \begin{bmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & b \end{bmatrix} \quad E_1(x) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & c \\ 0 & 0 & 0 \\ c & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad E_1(y) = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & c \\ 0 & c & 0 \end{bmatrix} \quad E_2 = \begin{bmatrix} d & d & 0 \\ d & d & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Jeśli np. fonony rozchodzą się wzdłuż osi  $z$ , to obserwujemy mody:

TO spolaryzowane w kierunku  $x$

TO spolaryzowane w kierunku  $y$

LO spolaryzowane w kierunku  $z$

Weźmy pod uwagę rozchodzenie się fononów  $E_1$  w płaszczyźnie  $xy$  i obserwujemy rozproszenie Ramana w płaszczyźnie  $xz$ . Gdy kierunek rozchodzenia się jest wzdłuż osi  $x$ , obserwujemy tylko składową podłużną, ponieważ składowa  $xz$  tensora odpowiada fononowi spolaryzowanemu w kierunku  $x$ ; gdy kierunek rozchodzenia się jest wzdłuż osi  $y$ , obserwowana jest tylko składowa poprzeczna. Gdy kierunek rozchodzenia się jest między osiami  $x$  i  $z$ , zachodzi mieszanie modów  $A_1$  i  $E_1$ .

Z otrzymanych widm Ramana można określić częstotliwości wszystkich Raman-aktywnych modów fononowych, a więc oba gałęzi  $E_2$ ; poprzeczny i quasi-poprzeczny mod  $E_1(E_1^\perp, qE_1^\perp)$ ; poprzeczny i quasi-poprzeczny mod  $A_1^\perp(A_1^\perp, qA_1^\perp)$ ; podłużny i quasi-podłużny mod  $A_1(A_1^\parallel, qA_1^\parallel)$ ; podłużny i quasi-podłużny mod  $E_1(E_1^\parallel, qE_1^\parallel)$ .

Mody fononowe znalezione przez różnych autorów (prace [5, 7, 8, 20 i 21]) dla półprzewodników o strukturze wureytu i blendy cynkowej przedstawia tabela I.

Tabela I

Związek	Autor	Temperatura	$E_2$ cm <sup>-1</sup>	$E_2$ cm <sup>-1</sup>	$A_1^\perp$ cm <sup>-1</sup>	$qA_1^\perp$ cm <sup>-1</sup>	$qE_1^\perp$ cm <sup>-1</sup>	$E_1^\perp$ cm <sup>-1</sup>	$A_1''$ cm <sup>-1</sup>	$qA_1''$ cm <sup>-1</sup>	$qE_1''$ cm <sup>-1</sup>	$E_1''$ cm <sup>-1</sup>
BeO	[5]	4° K	338	684	678	700	702	722	1081	1088	1089	1097
ZnO	[5]	4° K	101	444	380	395	398	413	579	585	585	591
ZnO	[21]	?	101	437	381	—	—	407	574	—	—	583
CdS	[5]	25° K	43	256	234	240	239	243	305	306	306	307
CdS	[8]	77° K	—	—	—	—	—	—	305	—	—	—
CdS	[20]	77° K	44	252	228	—	—	235	305	—	—	305
ZnS	[5]	25° K	—	280	280	280	280	356	356	356	356	356
ZnS	[5]	298° K	55	724	274	274	274	274	352	352	352	352
ZnS	[7]	298° K	72	286	273	—	—	273	351	—	—	351
heksagonalny												
ZnS	[7]	298° K	—	—	276	—	—	—	351	—	—	—
ZnS	[15]	298° K	—	—	271	—	—	—	352	—	—	—

Leite i Porto [8] otrzymali jedno-, dwu-, trzy- i czterofononowe widmo Ramana dla CdS, odpowiadające rozproszeniu na podłużnych fononach optycznych o częstotliwościach odpowiednio 305, 604, 909, 1200 cm<sup>-1</sup>.

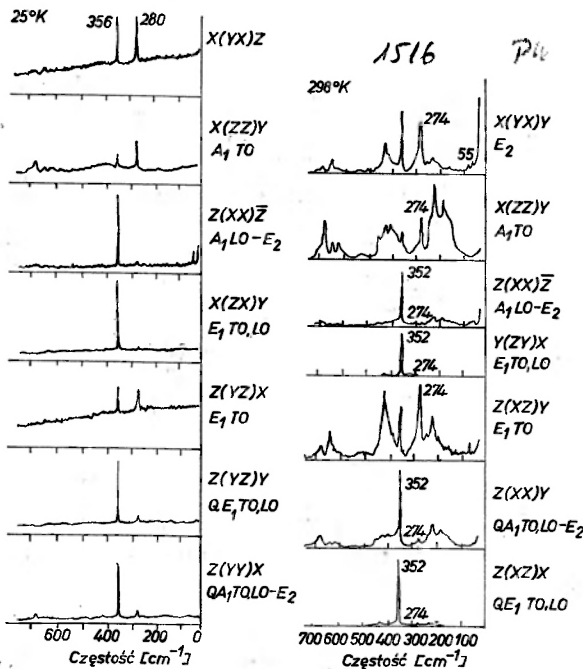
Zależność temperaturową rozproszenia Ramana przedstawia rys. 7, na którym pokazane jest widmo Ramana od ZnS otrzymane w dwu różnych temperaturach: 25° K i 298° K.

Rozproszenie Ramana od związków półprzewodnikowych  $A^{III}B^V$  o strukturze blendy cynkowej badali Mooradian i Wright [9] w temperaturze pokojowej i ciekłego helu. Badane związki GaAs, InP, AlSb i GaP są nieprzezroczyste dla zakresu widzialnego widma, w związku z tym jako źródła światła używali lasera neodymowego o mocy 1 W emitującego promieniowanie o długości fali 1,06  $\mu$ , dla której materiały te są przezroczyste i rozproszenie zachodzi w dużej objętości kryształu. W pracy tej zostały wyznaczone mody fononów Raman—aktywnych podłużnych i poprzecznych ( $A_1^\parallel, A_1^\perp$ ) i porównane z wynikami otrzymanymi ze zjawiska rozpraszania neutronów oraz z pomiarów odbicia i transmisji. Widmo Ramana dla GaP zostało również zbadane przez Hobden i Russel [10]. Częstotliwości modów fononowych podane w tych dwu pracach dla związków półprzewodnikowych  $A^{III}B^V$  zebrane są w tabeli II.



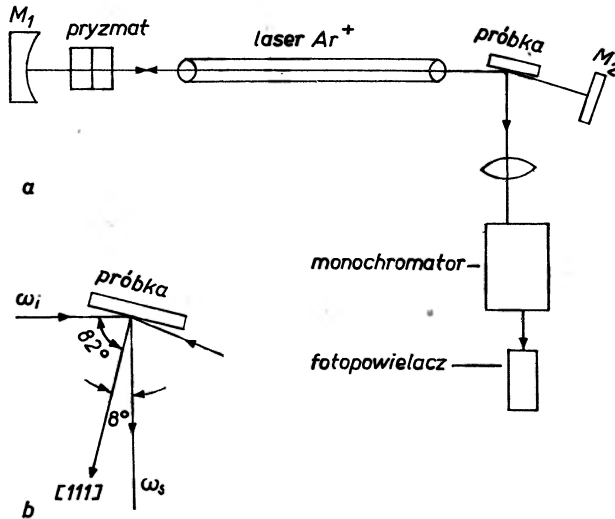
Tabela II

Związek	Autor	Temp. °K	Rodzaj omiaru	$A_1^\perp$ [cm <sup>-1</sup> ]	$A_1^\parallel$ [cm <sup>-1</sup> ]
1	2	3	4	5	6
GaAs	[9]	300	Raman	268,6 ± 0,3	291,9 ± 0,3
GaAs	[9]	4	Raman	273,1	296,4
GaAs	[9]	4	transm.	272,4 ± 0,5	294,2 ± 0,5
GaAs	[9]	4	odbicie	273,4 ± 0,3	297,3 ± 2
GaAs	[9]	300	transm.	268,2 ± 0,5	290,5 ± 0,5
GaAs	[9]	300	odbicie	268,2 ± 0,5	291,5 ± 0,5
GaAs	[9]	300	neutr.	267 ± 3	285 ± 6
GaAs	[18]	300	Raman	268	291
InP	[9]	300	Raman	303,7 ± 0,3	345,0 ± 0,3
InP	[9]	4	Raman	308,2 ± 0,3	349,5 ± 0,3
InP	[9]	300	odbicie	307 ± 8	351 ± 5
AlSb	[9]	300	Raman	318,9 ± 0,5	339,9 ± 0,5
AlSb	[9]	4	Raman	323,4 ± 0,5	344,4 ± 0,5
AlSb	[9]	300	odbicie	318,8 ± 0,5	339,6 ± 0,5
AlSb	[9]	300	odbicie	318 ± 8	345 ± 5
GaP	[9]	300	Raman	367,3 ± 1	403,0 ± 0,5
GaP	[9]	200	Raman	359,3 ± 1	397,0 ± 0,5
GaP	[9]	4	Raman	365,6 ± 1	403,0 ± 0,5
GaP	[9]	300	odbicie	366,3 ± 0,6	—
GaP	[10]	300	Raman	366,5 ± 1	403,8 ± 1



Rys. 7. Widmo Ramana dla siarczku cynku w temperaturze 298°K i 25°K

Pierwiastki półprzewodnikowe o strukturze diamentu — krzem i german badali Parker, Feldman, Ashkin [11]. Próbką aktywowana dodatkowym zwierciadłem umieszczona była w rezonatorze lasera na zjonizowanym argonie o mocy 2 W. Krzem i german są nieprzeźroczyste dla długości fali emitowanych z tego lasera — 4880 Å i 5145 Å, tak że pomiary przeprowadzano w świetle odbitym, gdy objętość rozpraszająca kryształu jest bardzo mała. Schemat układu doświadczalnego pokazany jest na rys. 8.



Rys. 8. a. Schemat układu doświadczalnego do pomiaru efektu Ramana w świetle odbitym, b. orientacja próbki

Russel [14] obserwował rozproszenie Ramana pierwszego rzędu w krzemie, również w świetle odbitym lasera He—Ne. Feldman i Ashkin [13] badali efekt Ramana dla krzemu i germanu oraz ich stopów. Wszystkie pomiary przeprowadzono w temperaturze pokojowej. Uzyskano następujące wyniki na częstości fononów optycznych w krzemie:

$$v_{\text{Si}} = 520,2 \pm 0,5^{11}; \quad 523 \pm 1^{14}; \quad 520^{13} [\text{cm}^{-1}]$$

i w germanie

$$v_{\text{Ge}} = 300,7^{11}; \quad 310^{13} [\text{cm}^{-1}].$$

Częstości fononów optycznych poprzecznych i podłużnych dla związków półprzewodnikowych ZnSe, ZnTe, InSb wyznaczone przez Krauzmana z pomiaru rozproszenia Ramana są następujące:

ZnSe:	$v_t = 204 \pm 1$	$v_l = 251 \pm 1$
ZnTe:	$v_t = 177 \pm 1$	$v_l = 206 \pm 1$
InSb:	$v_t = 179 \pm 1$	$v_l = 200 \pm 1$

## 11. Wyznaczanie stałych elektrooptycznych

Współczynniki elektrooptyczne mogą być określone z pomiaru bezwzględnego natężenia promieniowania rozproszonego na fononach optycznych ze związku:

$$S_l = \frac{\hbar\omega_l(n_l+1)L\Omega}{4\pi c^4} \left[ \frac{1}{\omega_l} \left( \frac{S_l}{A} \right)^{1/2} - \frac{\omega^2 \varepsilon^2}{2} \left( \frac{1}{\varepsilon} - \frac{1}{\varepsilon_0} \right) \right]^{1/2} z_{ij}, \quad (31)$$

$$\text{gdzie } A = \hbar \frac{(n_l+1)L\Omega}{4\pi\omega_l c^4}$$

$\omega_l$ ,  $\omega_t$  — częstość fononów odpowiednio podłużnych i poprzecznych,  $\varepsilon$ ,  $\varepsilon_0$  — stała dielektryczna odpowiednio statyczna i optyczna.

Ze wzoru (32) można wyznaczyć współczynniki elektrooptyczne  $z_{ij}$ . Dla kryształów o strukturze wurecytu współczynniki te zostały wyznaczone przez Arguello, Rousseau, Porto [5]. Tabela III podaje współczynniki elektrooptyczne i wydajność rozpraszania na fononach podłużnych i poprzecznych dla BeO, ZnO i CdS.

Tabela III

	BeO 4°K			ZnO 4°K			CdS 25°K		
	$a_{xx}$	$a_{zz}$	$a_{xz}$	$a_{xx}$	$a_{zz}$	$a_{xz}$	$a_{xx}$	$a_{zz}$	$a_{xz}$
Wydajność rozpraszania $TO \quad 10^{-8}$	1,42	5,14	0,59	3,25	3,18	1,28	12,9	1,78	1,55
$LO \quad \text{cm sr}$	0,703	1,75	0,22	0,00	5,17	0,42	31,2	15,8	8,04
Współcz. elektroopt. z pracy [5] $10^{-12} \text{ m}$	$Z_{31}$	$Z_{33}$	$Z_{15}$	$Z_{31}$	$Z_{33}$	$Z_{15}$	$Z_{31}$	$Z_{33}$	$Z_{15}$
	1,5	2,6	1,3	—	3,1	1,3	7,0	4,1	4,8
$\bar{V}$	0,075	0,38	0,18	1,2	0,83	0,19	2,0	2,2	2,2
Dane literaturowe	—	—	—	1,4	2,6	—	1,1	2,4	—

W pracy Krauzmana [19] podane są statyczne i optyczne stałe dielektryczne dla związków półprzewodnikowych ZnSe, ZnTe i InSb. Wynoszą one:

$$\begin{aligned} \text{ZnSe:} & \quad \varepsilon = 8,1 \pm 0,3 & \varepsilon_0 = 5,75 \pm 0,1 \\ \text{ZnTe:} & \quad \varepsilon = 10,1 \pm 0,2 & \varepsilon_0 = 7,26 \pm 0,03 \\ \text{InSb:} & \quad \varepsilon = 18,7 \pm 0,1 & \varepsilon_0 = 15,65 \pm 0,1 \end{aligned}$$

Jak łatwo sprawdzić, wartości te potwierdzają słuszność prawa Lyddane-Sachs-Tellera [24]:

$$\frac{\nu_l}{\nu_t} = \left( \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} \right)^{1/2}. \quad (32)$$

- [1] C. V. Raman, *Indian J. Phys.*, **2**, 387 (1928).
- [2] R. Loudon, *Advan. Phys.*, **13**, 423 (1964).
- [3] R. Loudon, *Proc. Roy. Soc. London*, **A 275**, 218 (1963).
- [4] W. Heitler, *The Quantum Theory of Radiation*, Oxford, Clarendon Press.
- [5] C. A. Agruello, D. L. Rousseau, S. P. S. Porto, *Phys. Rev.*, **181**, 1351 (1969).
- [6] J. F. Scott, *Phys. Rev.*, **183**, 823 (1969).
- [7] O. Brafman, S. S. Mitra, *Phys. Rev.*, **171**, 931 (1968).
- [8] R. C. C. Leite, S. P. S. Porto, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 10 (1966).
- [9] A. Moradian, G. B. Wright, *Solid State Comm.*, **4**, 431 (1966).
- [10] M. B. Hobdell, J. P. Russell, *Phys. Letters*, **13**, 39 (1964).
- [11] H. J. Parker, D. W. Feldman, H. Ashkin, *Phys. Rev.*, **155**, 712 (1967).
- [12] J. Brandmüller, K. Burchardi, H. Hackér, H. W. Schrötter, *Z. Angew. Phys.*, **22**, 177 (1967).
- [13] D. W. Feldman, M. Ashkin, J. H. Parker, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1209 (1966).
- [14] J. P. Russell, *Appl. Phys. Letter*, **6**, 223 (1965).
- [15] W. G. Nilsen, *Phys. Rev.*, **182**, 838 (1969).
- [16] G. P. Vella-Colleiro, *Phys. Rev. Letters*, **23**, 697 (1969).
- [17] R. Chiao, B. P. Stoicheff, *Phys. Rev. Letters*, **12**, 290 (1964).
- [18] A. Moordian, G. B. Wright, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 999 (1966).
- [19] M. Krauzman, *CR Acad. Sci. Paris*, t. **264**, 1117 (1967).
- [20] B. Tell, T. C. Damen, S. P. S. Porto, *Phys. Rev.*, **144**, 771 (1966).
- [21] T. C. Daman, S. P. Porto, *Phys. Rev.*, **142**, 570 (1966).
- [22] M. Born, K. Huang, *Dynamical Theory of Crystal Lattices*, Oxford, Clarendon Press.
- [23] Yoh-Han Pao, J. Griffiths, *J. Chem. Phys.*, **46**, 1671 (1967).
- [24] R. H. Lyddane, R. G. Sachs, E. Teller, *Phys. Rev.*, **59**, 673 (1941).
- [25] A. Piekara, *Nowe Oblicze Optyki*, PWN, Warszawa, 1968.
- [26] J. L. Klimontowicz, *Lasery i optyka nieliniowa*, PWN, Warszawa, 1969.

*Leszek Kowalczyk*

Instytut Fizyki PAN  
Zakład Spektroskopii Ciała Stałego  
Warszawa

## Zastosowanie techniki laserowej do badań półprzewodników

### Application of the laser Technics to the Investigation of Semiconductors

*Abstract:* The experimental results connected with the optical mixing and higher harmonics generation by free carriers in semiconductors, using a CO<sub>2</sub> laser, are presented.

The large enhancement of the nonlinear optical effects due to the resonance in strong magnetic fields is observed. The effect of inelastic scattering of the laser radiation due to the electrons in magnetic Landau levels in semiconductors is discussed.

### 1. Wstęp

Zbudowanie w ostatnich latach lasera molekularnego na CO<sub>2</sub>, wysyłającego spójne i monochromatyczne promieniowanie (10,6  $\mu$  i 9,6  $\mu$ ) o dużym strumieniu mocy, pozwoliło na rozpoczęcie szeregu badań eksperymentalnych z zakresu nieliniowej optyki półprzewodników. Badania te obejmują efekty generacji trzeciej harmonicznej oraz optycznego mieszania częstości, wynikające z nieliniowego wzbudzenia wolnych nośników prądu silnym polem elektrycznym, jakie niesie ze sobą wiązka promieniowania laserowego, a także efekty oddziaływania promieniowania laserowego z elektronami związanymi takie, jak generacja drugiej harmonicznej lub zjawisko wielofotonowego tworzenia par elektron-dziura. W półprzewodnikach istnieje znacznie więcej przyczyn nieliniowości optycznej niż w materiałach dielektrycznych. Podstawowe z nich związane są ze swobodnymi nośnikami prądu w pasmach energetycznych (elektrony i dziury). Lax i współpracownicy [1] przewidzieli, że efekt nieliniowego wzbudzenia swobodnych elektronów w półprzewodnikach jest wynikiem tzw. nieparaboliczności pasma przewodnictwa. Zostało to wykazane eksperymentalnie przez Patela i innych [2] i wyjaśnione teoretycznie przez Wolffa i Pearsona [3]. Lax, Zawadzki i Weiler [4] oraz niezależnie na innej drodze Kołodziejczak [10] przewidzieli wzrost efektów nieliniowych na swobodnych nośnikach spowodowany rezonansem w silnych polach magnetycznych.

Prace teoretyczne [3], [4] przyjmowały za punkt wyjścia klasyczne równanie ruchu elektronu pod wpływem oscylacyjnego pola elektrycznego. Warunek nieparaboliczności pasma przewodnictwa dający zależność masy efektywnej od energii prowadzi do nieliniowej zależności prędkości elektronu od pędu. Wobec tego, przy rozłożeniu prędkości na szereg potęgowy, występują wyrazy wyższych rzędów (nieparzystych) odpowiedzialne za generację wyższych harmonicznych.

W przypadku gdy padające promieniowanie laserowe jest superpozycją dwóch fal monochromatycznych powstają, prócz częstości harmonicznych, odpowiednie częstości mieszane.

W powyższych rozważaniach nie został uwzględniony rozkład elektronów w pasmie przewodnictwa oraz czas relaksacji był przyjmowany jako stały parametr [3].

Kołodziejczak [5, 6, 7, 10] wyjaśnił zjawisko nieliniowego wzbudzenia wolnych nośników w sposób ogólniejszy, wychodząc z nieliniowego równania Boltzmana i licząc gęstość prądu elektronowego w obecności silnych pól elektrycznych.

Przy oddziaływaniu tych pól ze swobodnymi nośnikami w półprzewodnikach mogą pojawiać się odstępstwa od liniowego prawa Ohma, dające w gęstości prądu oscylacje o częstościach będących wielokrotnościami częstości podstawowej. Oscylacje te powodują generację odpowiednich fal elektromagnetycznych będących wyższymi harmonicznymi fali padającej.

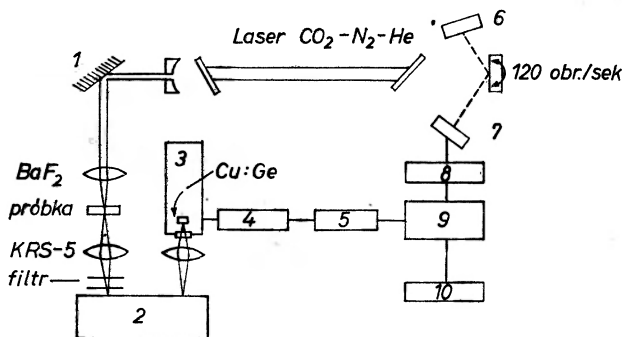
W pracach [5], [6] zostało wykazane, że nieliniowe odstępstwa od prawa Ohma są wynikiem dwóch niezależnych przyczyn: zależności czasu relaksacji od energii oraz nieparaboliczności pasma przewodzenia. Zjawisko wielofotonowego wytwarzania par elektron-dziura polegające na jednoczesnym przekazywaniu energii przez kilka fotonów wymaga dużej gęstości fotonów, którą tylko promieniowanie laserowe może zapewnić. Dlatego też do chwili wynalezienia laserów zjawisko wielofonowej absorpcji nie było obserwowane. Plazma wytworzona na drodze wielofotonowej absorpcji może być badana przez obserwacje promieniowania rekombinacyjnego [8].

## 2. Optyczne mieszanie częstości

Zjawisko mieszania częstości trzeciego rzędu wywołane nieliniowym wzbudzeniem wolnych nośników zostało zaobserwowane w monokryształach InAs, InSb, GaAs, PbTe przez Patela i współpracowników [2]. Do badań użyto, jako źródła światła, lasera molekularnego CO<sub>2</sub> pracującego impulsowo [9] i dającego promieniowanie o częstościach  $\omega_1$  i  $\omega_2$ , którym odpowiadają długości fali odpowiednio  $\lambda_1 = 10,6 \mu$ ,  $\lambda_2 = 9,6 \mu$ . Obserwowane częstości, powstałe skutkiem mieszania optycznego częstości podstawowych, wynosiły:  $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$  ( $\lambda_3 = 11,8 \mu$ ) i  $\omega_4 = 2\omega_2 - \omega_1$  ( $\lambda_4 = 8,7 \mu$ ). Prócz tego zaobserwowano w InAs i GaAs częstotliwość harmoniczną  $3\omega_1$  ( $\lambda = 3,53 \mu$ ). Schemat aparatury użytej

do detekcji i pomiaru mocy generowanych fal o częstotliwościach mierzonych przedstawia rys. 1.

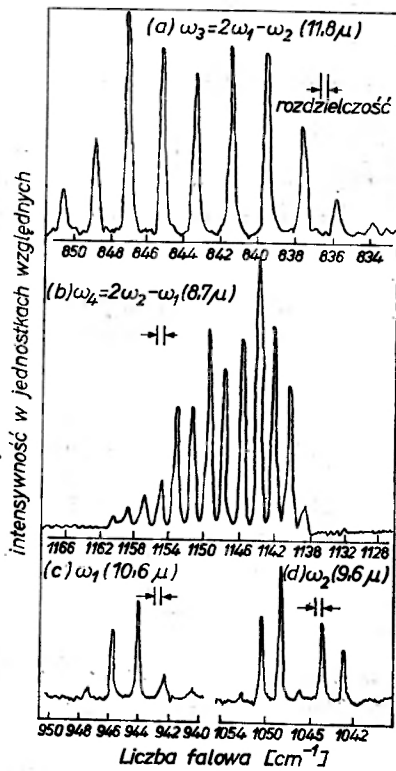
Impulsową pracę lasera  $\text{CO}_2$  uzyskiwano przez obrót zwierciadła płaskiego z częstotliwością 120 imp/sek. Synchroniczne sterowanie integratora z impulsem laserowym jest osiągnięte przez detekcję impulsu światła ze źródła 6 odbitego



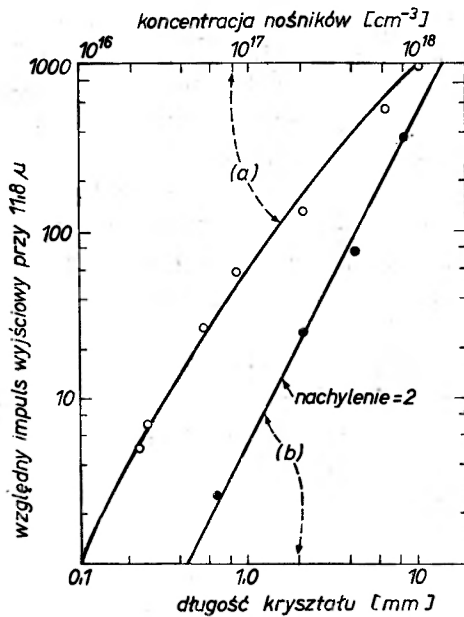
Rys. 1. Schemat aparatury do badań efektu mieszania optycznego częstotliwości. 1. zwierciadło 2. monochromator, 3. kriostat helowy, 4. przedwzmacniacz, 5. wzmacniacz, 6. źródło światła, 7. fotokomórka, 8. synchronizator, 9. rejestrator

od obracającego się zwierciadła lasera. Czas trwania impulsu laserowego wynosił około 300 nsek. Jako detektora promieniowania użyto kryształu germanu domieszkowanego miedzią, pracującego w temperaturze 4,2°K. Moc w impulsie promieniowania laserowego padającego na próbkę była równa odpowiednio:  $P_{\omega_1} = 1$  kW,  $P_{\omega_2} = 0,1$  kW. Impulsy laserowe pokazano na rysunku 2c, 2d. Rysunek 2a i 2b przedstawia impulsy promieniowania o częstotliwościach  $\omega_3$  i  $\omega_4$  generowane w próbce InSb typu  $n$  ( $n = 10^{17}$  cm<sup>-3</sup>) w temperaturze 80°K. Otrzymane promieniowanie 11,8  $\mu$  i 8,7  $\mu$  miało moc równą 1-2 mW.

Rys. 3 (krzywa a) przedstawia zależność całkowitej intensywności generowanego promieniowania o długości fali 11,8  $\mu$  w próbce InAs typu  $n$  w funkcji koncentracji elektronów. Jak widać, intensywność promieniowania zwiększa się wraz ze wzrostem koncentracji swobodnych elektronów. Stanowi to argument słuszności tezy, że za efekty mieszania optycznego odpowiedzialne są swobodne nośniki. Gdyby elektrony związane powodowały obserwowane mieszanie częstotliwości, wtedy intensywność generowanego promieniowania nie powinna zależeć od koncentracji. Krzywa b na rys. 3 obrazuje zależność intensywności generowanego promieniowania przy 11,8  $\mu$  od wymiaru próbki wzdłuż kierunku padającego promieniowania. Zaobserwowano kwadratową zależność mocy generowanego promieniowania od długości próbki. Pomiaru te pozostają w zgodności z teoretycznymi wyliczeniami wykonanymi przez Wolffa i Pearsona [3] dla InAs typu  $n$ . Autorzy ci przyjęli, że wolne nośniki są odpowiedzialne za powstanie nieliniowości trzeciego rzędu poprzez zwiększenie swej efektywnej masy w trakcie przyspieszenia przez pole elektryczne padającej fali elektromagnetycznej.



Rys. 2. Impulsy promieniowania wychodzącego z próbki InSb — typu *n*. a) impulsy o częstotliwości  $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ , b) impulsy o częstotliwości  $\omega_4 = 2\omega_2 - \omega_1$ , c) impulsy lasera CO<sub>2</sub>  $\omega_1$ , d) impulsy lasera CO<sub>2</sub>  $\omega_2$



Rys. 3. Zależność impulsu o częstotliwości  $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$  powstałego w InAs typu *n* od: a) koncentracji nośników, b) długości kryształu



Rozwiązując równanie ruchu łącznie z równaniami Maxwella dostali następujące wyrażenie na wartość pola dla częstości  $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$ .

$$E_{\omega_3} = E_{\omega_1}^2 \cdot E_{\omega_2} \cdot \frac{3\pi N q^4}{2(m^*)^2 c \cdot n_{\omega_3}} \cdot \frac{L}{\omega_1^2 \cdot \omega_2 \cdot \varepsilon_g} \cdot \frac{1 + \frac{8\varepsilon_F}{5\varepsilon_g}}{\left(1 + \frac{4\varepsilon_F}{\varepsilon_g}\right)^{5/2}}, \quad (1)$$

gdzie:  $E_{\omega_1}$ ,  $E_{\omega_2}$  — pola elektryczne dla częstości  $\omega_1$ ,  $\omega_2$ ,  $L$  — długość próbki,  $N$  — koncentracja elektronów,  $n_{\omega_3}$  — współczynnik załamania dla częstości  $\omega_3$ ,  $\varepsilon_F$  — energia na poziomie Fermiego,  $\varepsilon_g$  — energia przerwy wzbronionej.

Wyrażenie (1) wskazuje, że moc promieniowania o częstości  $\omega_3$  jest proporcjonalna do  $L^2$ . Zależność mocy od koncentracji nośników nie jest dokładnie kwadratowa, ponieważ dla większych koncentracji efekt jest zmniejszony przez drugi człon równania (1).

### 3. Rezonansowy wzrost trzeciej harmonicznej w kwantującym polu magnetycznym

Zostało wykazane [10], [4], że efekty nieliniowe mogą zostać zwiększone w obecności pola magnetycznego na skutek rezonansowych przejść pomiędzy poziomami Landaua. Rozpatrując równanie ruchu dla związanych oscylatorów w dwupasowym, nieparabolicznym modelu (przy założeniu braku degeneracji pasma walencyjnego, co nie jest spełnione w InSb). Lax, Zawadzki i Weiler [4] pokazali, że wzrost generacji trzeciej harmonicznej zachodzi, gdy:

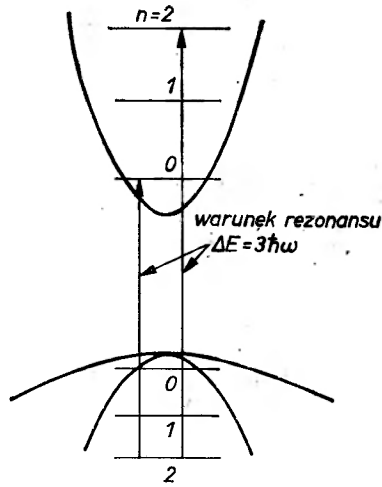
$$3\hbar\omega = [\varepsilon_g^2 + 4\varepsilon_g \hbar\omega_c(n + \frac{1}{2})]^{1/2}, \quad (2)$$

gdzie:  $3\hbar\omega$  — jest energią trzeciej harmonicznej,  $\omega_c$  — częstość cyklotronowa elektronu na dnie pasma przewodnictwa,  $\varepsilon_g$  — wartość przerwy energetycznej,  $n$  — liczba kwantowa poziomu Landaua.

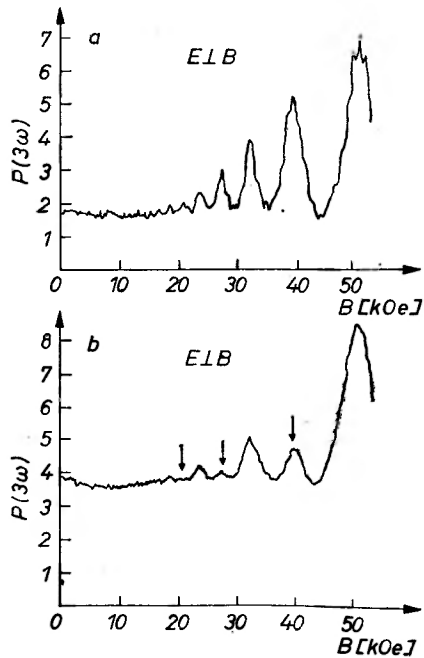
Rysunek 4 przedstawia schematycznie warunki rezonansu opisane równaniem (2).

Maksymalny wzrost generacji trzeciej harmonicznej zachodzi, gdy  $3\hbar\omega$  jest równe energii separacji pomiędzy poziomem Landaua w pasmie przewodzenia a poziomem Landaua w pasmie walencyjnym. Równanie (2) stosuje się tylko do przypadku, kiedy w przejściu biorą udział poziomy Landaua o tej samej liczbie kwantowej  $n$ .

Zwiększenie mocy trzeciej harmonicznej w obecności pola magnetycznego było obserwowane przez Van Trau, McFee i Patela [11]. Do otrzymania impulsów promieniowania częstości podstawowej użyto lasera molekularnego  $\text{CO}_2$  dającego promieniowanie  $\lambda = 10,6 \mu$  o mocy w piku 1-5 kW (czas trwania impulsu 250 nsek, repetycje 120 imp/sek). Badana próbka o wymiarach  $4 \times 4 \times 0,0015 \text{ mm}^3$  umieszczona była w temperaturze  $15^\circ \text{K}$ . Pole magnetyczne w zakresie do 54 kOe wytworzone było przez nadprzewodzący solenoid. Wektor



Rys. 4. Schemat poziomów Landaua w InSb z zaznaczonym warunkiem rezonansu



Rys. 5. Oscylacje mocy trzeciej harmonicznej w funkcji pola magnetycznego

propagacji promieniowania padającego i wektor pola magnetycznego skierowane były wzdłuż małego wymiaru próbki, który miał kierunek krystalograficzny a)  $\langle 100 \rangle$ , b)  $\langle 110 \rangle$ . Koncentracja nośników w próbce była zbliżona do  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$ .

Rys. 5 (a, b) przedstawia obserwowany wzrost względnej wartości mocy trzeciej harmonicznej dla pewnych wartości pola magnetycznego, przy których energia separacji pomiędzy poziomami Landaua była równa energii kwantu trzeciej harmonicznej. Zmierzone wartości pola magnetycznego ( $B$ ) odpowiadające ekstremalnej wartości trzeciej harmonicznej są podane w kolumnie pierwszej tabeli. Wartości te są niezależne od intensywności promieniowania laserowego.

Interesujące jest porównanie tych rezultatów z badaniami magneto-absorpcji międzypasmowej dla InSb wykonanymi przez Pidgeona i Browna [12]. Dla absorpcji międzypasmowej minima transmisji promieniowania występują przy tych wartościach pola magnetycznego, dla których energia separacji pomiędzy odpowiednimi poziomami Landaua jest równa energii fotonu promieniowania padającego. Wartość pola magnetycznego, przy których wystąpiły minima transmisji obserwowane przez Pidgeona i Browna, są podane w kolumnie drugiej tabeli. Widać, że maksima trzeciej harmonicznej występują przy wartościach pola magnetycznego, które są około 60% niższe niż wartości pola magnetycznego dla maksimów magneto-absorpcji. Podobne rozbieżności zaobserwowano badając położenie maksymalnych wartości trzeciej harmonicznej promieniowania 9,6  $\mu$ .

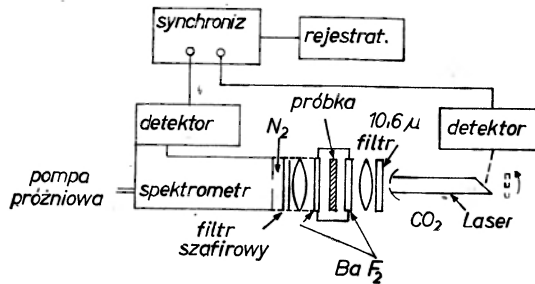
(1) Maksima trzeciej harmonicznej kOe	(2) Minima transmisji dla magnetoab- sorpcji kOe	(3) Procentowa rozbieżność $\frac{(2)-(1)}{(2)} \times 100\%$
51,6	54,8	5,5
39,9	42,0	5,0
32,6	34,8	6,3
27,4	29,2	6,2
23,6	25,3	6,7
20,8	22,0	5,8
18,5	20,0	7,5

#### 4. Wielofotonowe tworzenie plazmy i promieniowanie rekombinacyjne w półprzewodnikach

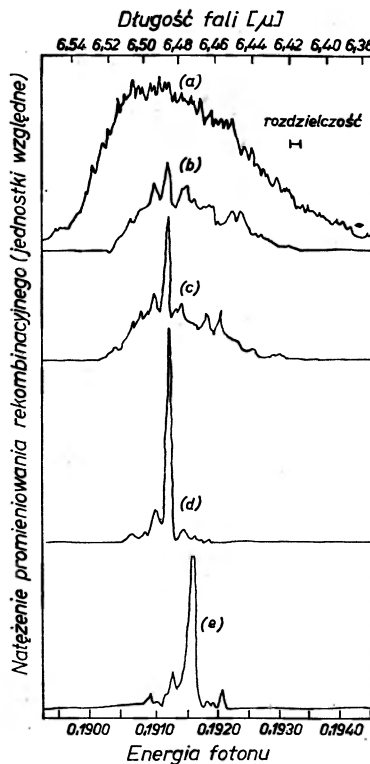
Promieniowanie dużej mocy impulsowego lasera molekularnego CO<sub>2</sub> powoduje dwufotonową absorpcję, co w półprzewodnikach z niską przerwą energetyczną takich jak: GaAs, CdA, InSb, PbTe prowadzi do powstawania par elektron-dziura, jak zostało wykazane w pracy [8].

O ile w GaAs, CdS lub InSb mechanizm odpowiedzialny za wytworzenie par dziura-elektron może być zaciemniony przez istnienie możliwości generacji drugiej harmonicznej padającego promieniowania i wytwarzanie par elektron-

dziura przez drugą harmoniczną, o tyle eksperymenty z PbTe dostarczają przykładów istnienia czystej dwufotonowej absorpcji (ze względu na istnienie środka inwersji w kryształach PbTe druga harmoniczna praktycznie nie jest



Rys. 6. Schemat aparatury do pomiaru promieniowania rekombinacyjnego



Rys. 7. Rozkład widmowy promieniowania rekombinacyjnego w PbTe typu *n*

generowana). Obserwowano promieniowanie rekombinacyjne par elektron-dziura w PbTe, używając aparatury przedstawionej na rys. 6. Promieniowanie lasera CO<sub>2</sub> (10,6 μ) o mocy około 10 kW w impulsie o czasie trwania 200 nsek i repetycji 120 imp./sek ogniskowano na średnicy 200 μ. Droga promieniowania rekombinacyjnego przebiegała w atmosferze azotu dla uniknięcia ab-

sorpcji przez parę wodną. Rozkład widmowy promieniowania rekombinacyjnego otrzymanego z PbTe typu  $n$  ( $n = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) przedstawia rys. 7a.

Obserwowana linia promieniowania rekombinacyjnego miała moc około  $3 \times 10^{-4} \text{ W}$  i szerokość spektralną  $0,002 \text{ eV}$ . Mała szerokość spektralna świadczy o niskiej temperaturze wytworzonej plazmy, porównywalnej z temperaturą sieci krystalicznej. Względna moc promieniowania rekombinacyjnego wzrastała kwadratowo w stosunku do mocy promieniowania lasera, co pozostaje w zgodności z założeniem dwufotonowej absorpcji. Oszacowana szybkość tworzenia par elektron-dziura przy dwufotonowej absorpcji, na podstawie wyliczeń Braunsteina [13] dla PbTe, wynosi  $W = 10^{25} \text{ cm}^{-3} \text{ sek}^{-1}$ . Przyjmując, że czas trwania promieniowania rekombinacyjnego  $\tau_r$  jest porównywalny z czasem trwania impulsu laserowego, a więc wynosi  $10^{-8} \text{ sek}$ , gęstość wytworzonych par liczona z wyrażenia:

$$N = W \cdot \tau_r \quad (3)$$

wynosi  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . Zmniejszając rozmiary ogniska promieniowania laserowego do  $50 \mu$  otrzymano oscylację laserową (wymuszone promieniowanie rekombinacyjne) w PbTe.

Rys. 7b, c, d przedstawia widmo wymuszonego promieniowania rekombinacyjnego dla kolejnego wzrostu o 10% mocy promieniowania lasera  $\text{CO}_2$ . Widoczne jest, że promieniowanie przy  $6,486 \mu$  niesie znacznie większą moc od promieniowania rekombinacyjnego przy innych długościach fal, co świadczy o istnieniu oscylacji laserowej. Rys. 7e pokazuje widmo promieniowania rekombinacyjnego dla wyższej temperatury próbki ( $120^\circ \text{K}$ ). Oscylacja laserowa jest przesunięta w stronę krótszych fal. Współczynnik dwufotonowej absorpcji dla PbTe jest wyrażony równaniem

$$\alpha [\text{cm}^{-1}] \approx 10^{-20} \cdot E^4, \quad (4)$$

gdzie:  $E \left[ \frac{\text{V}}{\text{cm}} \right]$  jest polem elektrycznym zogniskowanej wiązki laserowej równym najczęściej  $10^4 \frac{\text{V}}{\text{cm}}$ .

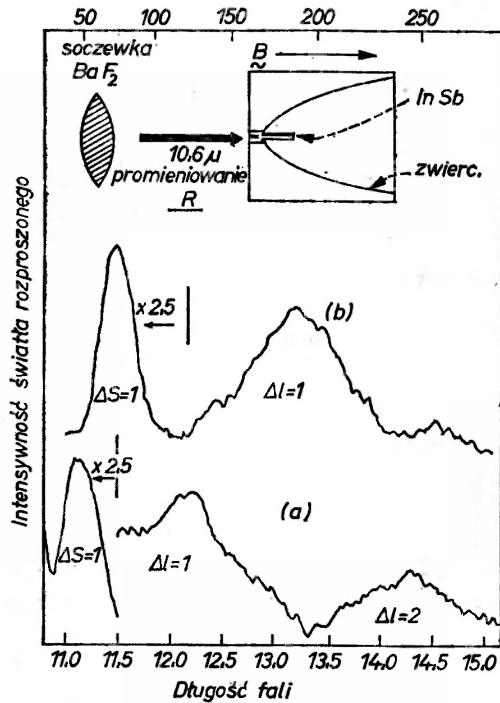
Ze względu na małą wartość współczynnika dwufotonowej absorpcji promieniowanie padające jest słabo pochłaniane, co powoduje, że wytwarzanie par elektron-dziura nie jest ograniczone do obszaru blisko powierzchni półprzewodnika. Przy zastosowaniu odpowiedniego pompowania optycznego może to prowadzić do oscylacji laserowej z całej objętości kryształu.

## 5. Nieelastyczne rozpraszanie światła laserowego na elektronach z poziomów Landaua

Badania nieelastycznego rozpraszania światła na elektronach z poziomów Landaua i podpoziomów spinowych mogą stać się źródłem informacji o strukturze pasmowej półprzewodnika dostarczając wiadomości o zależności masy

efektywnej oraz czynnika rozszczepienia spektralnego ( $g$ ) od energii. Obserwowano rozproszenie promieniowania o długości fali  $10,6 \mu$  w InSb typu  $n$  w polu magnetycznym do 53 kOe [14]. Widmo rozproszonego promieniowania wykazuje trzy wyraźne linie przy częstościach:  $\omega_0 - \mu_B g \cdot B$ ;  $\omega_0 - 2\omega_c$ ;  $\omega_0 - \omega_c$ , gdzie:  $\omega_0$  — jest częstością padającego promieniowania laserowego,  $B$  — wartość pola magnetycznego,  $g$  — efektywny czynnik rozszczepienia spektroskopowego podpoziomów spinowych,  $\omega_c = \frac{eB}{m^*c}$  — częstość cyklotronowa,  $\mu_B$  — magneton Bohra.

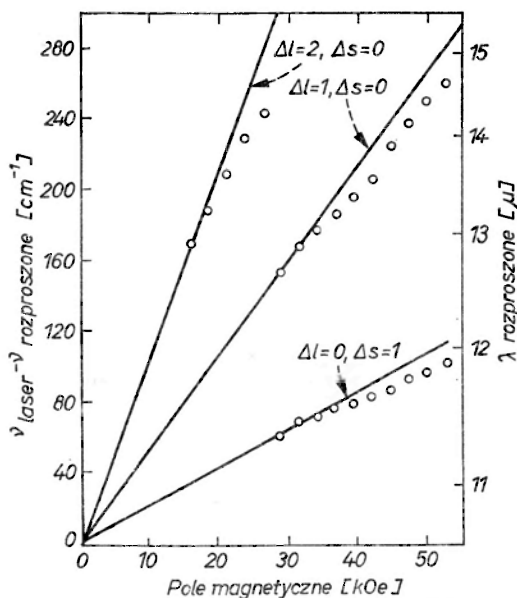
Rys. 8 pokazuje typowe zależności spektralne światła rozproszonego w InSb typu  $n$  ( $n = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) przy  $T = 30^\circ \text{K}$  dla pól magnetycznych: a) 26,2 kOe i b) 36,7 kOe.



Rys. 8. Rozkład widmowy światła rozproszonego w InSb typu  $n$

Na krzywej (a) widoczne są trzy piki odpowiadające procesom:  $\Delta l = 0$ ,  $\Delta s = 1$ ;  $\Delta l = 1$ ,  $\Delta s = 0$ ;  $\Delta l = 2$ ,  $\Delta s = 0$  ( $l$  — liczba kwantowa poziomu Landaua,  $s$  — liczba kwantowa spinu elektronu). Krzywa (b) posiada maksima odpowiadające przejściom: spinowemu  $\Delta s = 1$  oraz przejściu  $\Delta l = 1$  przesunięte w stronę większych długości fal ze względu na wzrost pola magnetycznego. Słaba linia przy  $14,5 \mu$  nie obserwowana we wszystkich próbkach, odpowiada przejściu  $\Delta l = 1$ ,  $\Delta s = 1$ .

Rys. 9 pokazuje położenie linii spektralnych związanych z omawianymi przejściami w funkcji pola magnetycznego. Przy założeniu stałej masy efektywnej w funkcji energii,  $\Delta\nu$  rozumiane jako różnica pomiędzy częstotliwością padającego promieniowania laserowego a częstotliwością promieniowania rozpro-



Rys. 9. Zależność długości fali światła rozproszonego od wartości pola magnetycznego dla InSb typu  $n$

szzonego powinna wzrastać liniowo z polem magnetycznym. Odstępstwo od liniowości dla wykresu  $\Delta\nu$  w funkcji pola magnetycznego przy  $\Delta l = 1$  i  $\Delta l = 2$  jest miarą zależności masy efektywnej od energii, tzn. miarą nieparaboliczności pasma przewodnictwa. Dla obu tych procesów ( $\Delta l = 1$  i  $\Delta l = 2$ ) wartość masy efektywnej zmienia się od  $0,017m$  przy  $\Delta\nu = 160 \text{ cm}^{-1}$  do  $0,02m$  przy  $\Delta\nu = 250 \text{ cm}^{-1}$  ( $m$  — masa swobodnego elektronu). Dla przejść związanych z odwróceniem spinu ( $\Delta s = 1$ ) odstępstwo od liniowej zależności  $\Delta\nu$  od pola magnetycznego jest miarą zależności czynnika spektroskopowego  $g$  od energii.

Obserwowane wartości  $g$  zmieniają się od 45,8 przy 26 kOe do 41,9 przy 52 kOe. Są one porównywalne z odpowiednimi wartościami otrzymanymi przez Bemskiego [15] dla słabszego pola magnetycznego i niższej koncentracji. Używając wyrażenia Zawadzkiego [16], wiążącego wartość czynnika  $g$  z wartością masy efektywnej, otrzymuje się  $m^* = 0,0165m$  przy 26 kOe i  $m^* = 0,018m$  przy 52 kOe. Ta zmiana masy efektywnej pozostaje w dobrej zgodności z wcześniejszymi pomiarami [12].

Obserwowana zależność intensywności promieniowania rozproszonego od pola magnetycznego nie zgadza się z teoretycznymi przewidywaniami. Rozpraszanie dla przejść związanych z odwróceniem spinu ( $\Delta s = 1$ ) wzrasta wraz

z polem magnetycznym, podczas gdy Yafet [17] wykazał, że przekrój czynny dla tego rodzaju rozpraszania jest prawie niezależny od pola. Kwadratowa zależność przekroju czynnego dla procesu  $\Delta l = 2$  od pola magnetycznego, przewidziana przez Wolffa [18], nie była obserwowana, stwierdzono natomiast prawie trzykrotny spadek intensywności promieniowania rozproszonego przy zmianie pola od wartości 15 kOe do 26 kOe. Takie zachowanie nie może być spowodowane wyłącznie zwiększeniem absorpcji na wolnych nośnikach dla większych długości fali. Przy interpretacji powyższych rezultatów należy uwzględnić zmianę położenia poziomów Landaua, przy wzroście pola magnetycznego w stosunku do poziomu Fermiego. W procesach rozpraszania bierze udział kilka par poziomów Landaua i względne ich obsadzenie zmienia się wraz ze zmianą pola magnetycznego.

Obserwowany efekt rozpraszania światła laserowego na wolnych elektronach z poziomów Landaua stanowi wygodną metodę badania takich parametrów półprzewodnika, jak masa efektywna lub czynnik spektroskopowy  $g$ . W odróżnieniu od eksperymentów rezonansowych lub absorpcyjnych, z których podobne informacje mogą być uzyskane, nie jest tutaj wymagany dobór częstości padającego promieniowania do interesującego przejścia i z tego względu możliwe jest badanie przejść o różniących się znacznie częstościach.

#### Literatura

- [1] B. Lax, A. L. McWhorter, J. S. Mavroides, *Quantum Electronics*, Proc. Internat. Congr. Paris 1964, t. II, str. 1521.
- [2] C. K. N. Patel, R. E. Slusher, P. A. Fleury, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1011 (1966).
- [3] P. A. Wolff, G. A. Pearson, *Phys. Rev. Letters*, **17**, 1015 (1966).
- [4] B. Lax, W. Zawadzki, M. H. Weiler, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 462 (1967).
- [5] J. Kołodziejczak, *Acta Phys. Polon.*, **33**, 183 (1968).
- [6] J. Kołodziejczak, *Acta Phys. Polon.*, **33**, 583 (1968).
- [7] J. Kołodziejczak, *Phys. Status Solidi*, **23**, K 57 (1967).
- [8] C. K. N. Patel, P. A. Fleury, R. E. Slusher, H. L. Frisch, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 971 (1966).
- [9] C. K. N. Patel, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 613 (1966).
- [10] J. Kołodziejczak, *Phys. Status Solidi*, **24**, 323 (1967).
- [11] N. Van Trau, J. H. McFee, C. K. N. Patel, *Phys. Rev. Letters*, **21**, 735 (1968).
- [12] C. R. Pidgeon, R. N. Brown, *Phys. Rev.*, **146**, 576 (1966).
- [13] R. Braunstein, *Phys. Rev.*, **125**, 475 (1962).
- [14] R. E. Slusher, C. K. N. Patel, Fleury, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 77 (1967).
- [15] G. Bemski, *Phys. Rev. Letters*, **4**, 62 (1960).
- [16] W. Zawadzki, *Phys. Letters*, **4**, 190 (1963).
- [17] Y. Yafet, *Phys. Rev.*, **152**, 858 (1966).
- [18] P. A. Wolff, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 225 (1966).



*Alfons Kawski*

Instytut Fizyki  
Uniwersytet Gdański

## Niektóre aktualne zagadnienia związane z relaksacją stanów wzbudzonych drobin organicznych w roztworach

Some Problems Associated with the Relaxation of Excited States of Organic Molecules in Solutions

*Abstract:* This review paper discusses some problems associated with the relaxation of excited states of organic molecules in solutions.

### 1. Wstęp

Pomiędzy sytuacją drobin luminezujących w roztworze a sytuacją drobin w stanie pary zachodzą istotne różnice [1-5]. W roztworze absorbująca lub emitująca światło drobina luminezująca nie jest nigdy całkowicie swobodna, gdyż doznaje ona stale wzajemnego oddziaływania ze strony otaczających ją drobin rozpuszczalnika. To wzajemne międzydrobinowe oddziaływanie powoduje zmianę jej elektrycznych i optycznych własności. W parach, zwłaszcza przy niezbyt wysokich ciśnieniach, drobin y rzadko zderzają się wzajemnie i dlatego można uważać je na ogół jako swobodne. Drobin y o trwałym elektrycznym momencie dipolowym w roztworze znajdują się w elektrycznym polu, w polu reakcji rozpuszczonej drobin y. Pole reakcji działa na rozpuszczoną drobinę podobnie, jak zewnętrzne pole elektryczne, jest więc w stanie wywołać przesunięcie pasma elektronowego, jak również zmianę momentu przejścia i tym samym natężenie pasma.

Bardzo często powyższym procesom towarzyszy wygaszanie fluorescencji roztworu. Wygaszanie fluorescencji może być spowodowane procesami fizycznymi (jak np. spontanicznymi bezpromienistymi przejściami do niższego stanu elektronowego, zderzeniami drugiego rodzaju lub migracją energii wzbudzenia) lub chemicznymi (np. fotolizą, procesami redoksy polegającymi na przyłączeniu lub oddawaniu elektronów, itp.). W wyniku działania tych mechanizmów wygaszania, energia wzbudzenia zostaje zamieniona na inny rodzaj energii. Podczas gdy różne procesy wygaszania powodują zamianę całkowitej energii wzbudzenia niektórych wzbudzonych drobin w inną postać energii, to tzw. me-

chanizmy relaksacyjne charakteryzują się tym, że są one przyczyną zamiany tylko części (ułamka) energii wzbudzenia każdej drobiną wzbudzonej. One nie zmieniają wydajności kwantowej fluorescencji, obniżają jednakże wydajność energetyczną.

Procesy relaksacyjne spowodowane są głównie tym, że podstawowy i wzbudzone stany elektronowe różnią się rozkładem gęstości ładunku elektronowego. To powoduje zmianę położenia równowagi jąder atomów, stałej dysocjacji, momentu dipolowego i innych własności drobin [6]. W rezultacie zmieniają się oddziaływania międzdrobinowe i ostatecznie stan orientacji drobin rozpuszczalnika wokół drobin luminezujących.

Celem dokładniejszego rozpatrzenia pewnych aktualnych zagadnień związanych z procesami relaksacyjnymi stanów wzbudzonych drobin, przytoczymy niektóre dane [6, 7], które będą nam niżej potrzebne.

1. W przypadku stosowanych w zakresie widzialnym i ultrafioletowym natężeń światła wzbudzającego, stężenie drobin wzbudzonych jest rzędu  $10^{-13}$  mol/l, tymczasem stężenie drobin niewzbudzonych jest około  $10^8$  razy większe.

2. Przeskok elektronowy w bliższym ultrafiolecie zachodzi w czasie  $10^{-15}$  sek.

3. Czas trwania oscylacji w średnim obszarze podczerwieni, jak również konwersji z wyższych elektronowo wzbudzonych stanów do wzbudzonego stanu fluorescencyjnego wynosi około  $10^{-18}$  sek.

4. Czas relaksacji dielektrycznej w wielu organicznych rozpuszczalnikach w temperaturze pokojowej zawarty jest w przedziale  $10^{-12}$ - $10^{-10}$  sek.

5. Naturalny czas życia  $\tau_0$  wzbudzonego stanu fluorescencyjnego uwarunkowany całością wszelkich spontanicznych procesów dezaktywacji jest  $10^{-9}$  sek lub dłuższy.

## 2. Rozkład natężenia w pasmie fotoluminescencji

Zgodnie z regułą Stokesa widmo fluorescencji przesunięte jest batochromowo (w stronę fal dłuższych) względem widma absorpcji na skutek udziału drgań atomowych. Przejścia emisyjne nie odbywają się bezpośrednio z osiągniętego podczas wzbudzenia poziomu oscylacyjnego, lecz z najniższego poziomu oscylacyjnego stanu wzbudzonego, dzięki ustaleniu się termicznej równowagi między poziomami oscylacyjnymi, wskutek odprowadzenia nadmiaru energii oscylacyjnej  $Q_1$  podczas zderzeń z innymi drobinami. Wskutek tego energia kwantu fluorescencji będzie mniejsza od energii kwantu absorpcji. W przypadku bardzo rozrzedzonych gazów (par), w których oddanie energii oscylacyjnej  $Q_1$  w stanie wzbudzonym jest utrudnione wskutek małego prawdopodobieństwa zderzeń między drobinami, obserwuje się zależność rozkładu natężeń w pasmie fluorescencji od częstości światła wzbudzającego. Dla roztworów przyjmuje się ogólnie, na podstawie badań doświadczalnych Nicholisa i Meritta [8], Jabłoń-

skiego [9] oraz innych [10-13], że rozkład natężeń  $I(\nu)$  w obszarze pasma emisji, jak również jego spektralne położenie nie zależy od częstości  $\nu'$  światła wzbudzającego. W ostatnich latach stwierdzono jednakże pewną mierzalną (subtelną) zależność  $I(\nu)$  od  $\nu'$  [14-16]. Próbę teoretycznego wy tłumaczenia zaobserwowanej subtelnej zależności  $I(\nu)$  od  $\nu'$  podał niedawno Jabłoński [17-18].

W wyniku przejścia elektronowego w drobinie luminezującej, wywołanego absorpcją fotonu o energii  $h\nu'$ , którego częstość różni się od częstości  $\nu_{00}$  przejścia czysto elektronowego, naruszona zostaje równowaga termiczna centrum luminezującego z otaczającym środowiskiem. Drobiną jest nie tylko wzbudzona elektronowo, lecz jest także „gorętsza“ od swego otoczenia. Taki proces wzbudzenia będziemy zgodnie z terminologią Jabłońskiego nazywać „wstrząsem początkowym“. Wstrząs początkowy może więc wywołać nagłą zmianę „lokalnej temperatury“ centrum luminescencji. Od lokalnej temperatury centrum luminescencji zależy zarówno subtelna zależność rozkładu natężeń w pasmie emisji od częstości światła wzbudzającego, jak również efekt depolaryzacyjny drgań torsyjnych i obrotów drobin luminezujących<sup>1</sup>.

Zgodnie z zasadą Francka-Condon rozkład natężeń w pasmie emisji będzie niezależny od częstości światła wzbudzającego, jeżeli przyjmie się, że termiczna równowaga centrum luminescencji z otaczającym środowiskiem, naruszona przez wstrząs początkowy, zostanie całkowicie przywrócona zanim zajdzie emisja światła [1], [19]. Jednakże okazuje się, że równowaga może w rzeczywistości nie być natychmiastowo całkowicie przywrócona. Zmieniona przez wstrząs początkowy temperatura lokalna jest funkcją czasu  $t$ , upływającego od chwili wzbudzenia drobin, i może być opisana następującym równaniem [17]:

$$\Delta T(t) = \Delta T(0) \exp\left(-\frac{t}{\Theta}\right), \quad (1)$$

gdzie  $\Theta$  jest czasem relaksacji temperatury lokalnej, a  $\Delta T(0)$  zmianą temperatury osiągniętą w chwili wzbudzenia  $t = 0$ .  $\Delta T(0)$  jest miarą lokalnej temperatury zależną od częstości światła wzbudzającego ( $\nu' - \nu_{00}$ ). Tak więc rozkład natężeń w pasmie fluorescencji  $I(\nu)$  nie może być zasadniczo całkowicie niezależny od częstości wzbudzającego światła.

### 3. Uniwersalny związek Stiepanowa

Powyższe zagadnienie rozkładu natężeń w pasmie emisji od częstości światła wzbudzającego wiąże się ściśle z badaniami zależności dotyczącej związku między widmami absorpcji  $\varepsilon(\nu)$  i emisji  $f_e(\nu)$  złożonych drobin [20]:

$$\frac{f_e(\nu)}{\varepsilon(\nu)} = D(T) \eta(\nu) \cdot n^2(\nu) \cdot \nu^3 \cdot \exp\left(-\frac{h\nu}{kT}\right), \quad (2)$$

<sup>1</sup> Efekt depolaryzacyjny wywołany wstrząsem początkowym został omówiony w artykule A. Jabłońskiego: *Postępy Fizyki*, 21, 581 (1970).

gdzie  $D(T)$  jest stałą niezależną od częstości  $\nu$ ,  $n(\nu)$  — współczynnikiem załamania roztworu,  $\eta(\nu)$  — względną wydajnością kwantową fluorescencji roztworu oraz  $h$  i  $k$  są stałymi Plancka i Boltzmanna. W przypadku gdy  $\eta(\nu) = \text{const.}$  i  $n(\nu) = \text{const.}$ , tzn. w tej części pokrywania widm, w której antystokesowski spadek wydajności kwantowej jest nieznaczący, związek (2) przechodzi w uproszczoną postać otrzymaną wcześniej przez Stiepanowa [21-22]:

$$F(\nu) = \ln \frac{f_e(\nu)}{\nu^3 \varepsilon(\nu)} = - \frac{h\nu}{kT} + \text{const.} \quad (3)$$

Aby otrzymać równanie (3) Stiepanow założył, że a) w czasie życia wzbudzonego stanu ustala się równomierny rozkład wzbudzonych drobin luminezujących na oscylacyjnych poziomach energetycznych, określony temperaturą układu, i b) prawdopodobieństwo optycznych przejść między oscylacyjnymi poziomami podstawowego stanu jest do zaniedbania w porównaniu z prawdopodobieństwem przejść pomiędzy oscylacyjnymi poziomami wzbudzonego i podstawowego stanu. Liczne badania<sup>2</sup> wykazały liniowy przebieg funkcji  $F(\nu)$  w obszarze nakładania się widm absorpcji i fluorescencji. Jednakże przy mniejszych częstościach funkcja  $F(\nu)$  dana wzorem (3) odchyła się od liniowego przebiegu, co tłumaczy się spadkiem wydajności. Stwierdzono, że wzór (2) wypełniony jest w bardziej szerokim przedziale częstości aniżeli (3), a wartości wyznaczonych (z nachylenia prostych) temperatur  $T^*$  na podstawie obu wzorów są jednakowe. Zatem dla określenia efektywnej temperatury  $T^*$  centrum luminezującego nie jest konieczne stosowanie zmodyfikowanego wzoru (2) [23]. Poprawność związku Stiepanowa (3) była również wielokrotnie badana w przypadku fluorescencji gazów [24]. Już znacznie wcześniej Nieporent [25-26] wykazał, że w zależności od częstości wzbudzających kwantów, wzbudzone drobinę w fazie gazowej rozkładają się na oscylacyjnych poziomach stanu wzbudzonego odpowiednio do temperatury  $T^*$  większej od  $T$ . W tym przypadku obserwuje się zależność widma fluorescencji, wydajności kwantowej i trwania życia wzbudzonego stanu od częstości wzbudzającego światła. Liczne sprawdzenia doświadczalne uniwersalnego związku Stiepanowa, zapisywanego zwykle w postaci logarytmicznej (3), dla ciekłych roztworów fluoryzujących świadczą o jego spełnieniu, co przejawia się tym, że bardzo często temperatura lokalna  $T^*$  wyznaczona z równania (3) jest zbliżona do temperatury doświadczenia  $T$  [27-30]. Jednakże w przypadku bardzo lepkich [15], [31], zamrożonych [32-35] i sztywnych (pleksiglasowych) [29], [30] roztworów luminezujących otrzymano temperatury lokalne  $T^*$  znacznie większe od temperatury  $T$ .

Ciekawe wyniki otrzymano także dla przypadku, gdy badana drobina znajduje się w mieszaninie niepolarnego i polarnego rozpuszczalnika. W rozpuszczalniku mieszanym wokół polarnej drobinę luminezującej gromadzą się

<sup>2</sup> Prace dotyczące doświadczalnego sprawdzenia wzorów (2) i (3) zostały omówione w artykułach: A. Kawski, M. Korba, *Postępy Fizyki*, **14**, 101 (1963); L. Szalay, J. Hevesi, L. Kozma, *Magyar Fizikai Folyóirat*, **13**, 157 (1965).

drobiny tylko jednego ze składników mieszaniny (polarne). Wskutek tego otoczona jest ona warstwą rozpuszczalnika o wyższej przenikalności dielektrycznej  $\epsilon$  niż przeciętna wartość  $\epsilon$  rozpuszczalnika. Dla tego przypadku doświadczalne badania [36-38] związku Stiepanowa (3) wykazały, że dla mieszaniny niepolarnego z nieznacznym dodatkiem polarnego rozpuszczalnika  $T^* > T$ .

Wiadomo, że jednym z najważniejszych założeń, na którym opiera się związek Stiepanowa (równ. (3)), jest założenie o równomiernym rozkładzie absorbujących i emitujących drobin na poziomach oscylacyjnych kombinujących ze sobą stanów elektronowych. Ten rodzaj równowagi „oscylacyjnej“ przewiduje więc, że celem spełnienia związku (3) lub (2), prawdopodobieństwo wymiany energii oscylacyjnej między drobinami luminezującymi i drobinami rozpuszczalnika powinno być znacznie większe od prawdopodobieństwa optycznego przejścia ze stanu wzbudzonego do stanu podstawowego. Zgodnie z Bachszijewem [33], [35], założenie o równomiernym rozkładzie drobin na oscylacyjnych poziomach podstawowego i wzbudzonego stanu elektronowego jest konieczne, lecz niewystarczające dla spełnienia uniwersalnego związku Stiepanowa. Przyjęto, że dla spełnienia związku (3) musi ustalić się ponadto równowaga „konfiguracyjna“ (w znacznym stopniu orientacyjna) badanej drobin znajdującej się w stanie wzbudzonej z otaczającym środowiskiem. Właśnie brakiem tego rodzaju równowagi Bachszijew tłumaczy przyczynę naruszenia w lepkich ( $\tau_H \approx \tau_R$ ) a zwłaszcza w zamrożonych ( $\tau_H \ll \tau_R$ ) roztworach szklistych uniwersalnego związku między widmami absorpcji i fluorescencji ( $\tau_H$  — średni czas życia w stanie wzbudzonej,  $\tau_R$  — czas orientacyjnej relaksacji drobin rozpuszczalnika).

Zachodzi więc pytanie dlaczego w ciekłych roztworach różnica  $\Delta T = T^* - T$  jest w przybliżeniu równa zero, natomiast w lepkich, sztywnych i w rozpuszczalniku mieszanym wartości temperatur lokalnych  $T^*$  są znacznie większe od temperatury otoczenia  $T$ , gdy  $\nu' > \nu_{00}$ . W tym celu wyznaczono na podstawie (3) temperatury lokalne  $T^*$  dla szeregu drobin luminezujących niepolarnych (np. 9,10-dwufenyloantracen, 9,10-dwuchloroantracen) i polarnych (2,5-dwu(4-dwufenylo)oksazol [BBO]) w różnych ciekłych polarnych i niepolarnych rozpuszczalnikach oraz w sztywnym roztworze polimetakrylanu metylu [29], [30]. W przypadku niepolarnych drobin występują tylko międzydrobinowe oddziaływania dyspersyjne pomiędzy rozpuszczoną i otaczającymi drobinami rozpuszczalnika. W roztworach tych nie występuje efekt orientacyjny. Podczas gdy dla niepolarnych drobin luminezujących nie stwierdzono nadwyżki temperatury w ciekłych roztworach, to dla tych samych drobin otrzymano znaczną różnicę  $\Delta T$  w roztworach sztywnych. Podobne wyniki otrzymano także dla polarnej drobin luminezującej BBO ( $\mu_g = 3,6$  D,  $\mu_e = 8$  D [39],  $\mu_g$  — moment dipolowy w stanie podstawowym,  $\mu_e$  — moment dipolowy w stanie wzbudzonej) w różnych rozpuszczalnikach. Dla BBO w różnych ciekłych rozpuszczalnikach występuje w przeważającej części, tzw. efekt orientacyjny. Tak więc doświadczalne badania [29-30] wykazały, że zarówno polarność drobin luminezujących,

jak i drobin rozpuszczalnika nie ma zasadniczo wpływu na efektywną temperaturę centrum luminezującego. Nadmiar energii oscylacyjnej w stanie wzbudzonym w ciekłych rozpuszczalnikach, w średnim czasie życia, zostaje w wyniku zderzeń międzydrobinowych przekazany otaczającym drobinom rozpuszczalnika [40]. W rozpuszczalniku mieszanym temperatura lokalna  $T^*$  odpowiada drobinie luminezującej wraz z otoczką solwatacyjną. Otrzymany wynik świadczy więc o tym, że w mieszaninie dwóch rozpuszczalników energia oscylacyjna nie zdąży się rozproszyć w otoczeniu przed aktem emisji światła. Zagadnienie to wymaga dalszych badań.

#### 4. Anomalne stokesowskie przesunięcie widm

Jak już wyżej wspomniano, nadmiar energii oscylacyjnej  $Q_1$  drobin w stanie singletowym  $S_1$ , jaki powstaje, gdy wzbudza się w długofalowym pasmie absorpcji ( $\nu' > \nu_{00}$ ), zamienia się wskutek międzydrobinowych zderzeń na ciepło i zostaje oddany otoczeniu. Podobnie po akcie emisji, zanim ustali się w stanie podstawowym  $S_0$  nowa równowaga, nadwyżka energii oscylacyjnej  $Q_0$  wskutek zderzeń z drobinami rozpuszczalnika zostaje odprowadzona do otoczenia ( $Q_1 \approx Q_0$ ). Tak więc energia pozostająca do dyspozycji emisji jest zmniejszona o  $Q_0 + Q_1$  w porównaniu z energią zaabsorbowaną i widmo fluorescencji jest przesunięte w stronę fal dłuższych (przesunięcie stokesowskie).

Obok tych wewnątrzdrobinowych procesów relaksacyjnych występują także międzydrobinowe procesy relaksacyjne, które szczególnie w polarnych roztworach są przyczyną przekształcenia znacznej części energii wzbudzenia (w przypadku silnie polarnych drobin luminezujących aż do około 50% [2], [41]). Międzydrobinowe procesy relaksacyjne, będące wynikiem oddziaływania sił elektrostatycznych pomiędzy rozpuszczoną drobiną i otaczającymi ją drobinami rozpuszczalnika, powodują anomalne stokesowskie przesunięcie widm. Elektrostatyczne siły wywierają szczególnie silny wpływ na widma elektronowe wtedy, gdy rozkład ładunku stanów elektronowych (podstawowego i wzbudzonego) znacznie się różni.

Na drobinę luminezującą, o trwałym elektrycznym momencie dipolowym, umieszczoną w rozpuszczalniku działa zgodnie z teorią Osagera-Böttchera [42] elektryczne pole reakcji. Pole reakcji  $E_g$  rozpuszczonej drobin w podstawowym stanie elektronowym  $S_0$  dane jest następującym wzorem

$$\vec{E}_g = f \cdot \vec{\mu}'_g, \quad (4)$$

gdzie  $f = \frac{2}{a^3} \frac{\epsilon - 1}{2\epsilon + 1}$ ,  $\epsilon$  jest przenikalnością dielektryczną rozpuszczalnika,  $a$  — promieniem oddziaływania Onsagera i  $\mu'$  — całkowitym momentem dipolowym (trwały plus zaindukowany moment) rozpuszczonej drobin.

Na podstawie wzoru (4) można łatwo przekonać się, że wpływ wewnętrznego pola reakcji na położenie i natężenie pasm elektronowych drobin w roztworze

jest znacznie silniejszy aniżeli wpływ zewnętrznego pola elektrycznego [43]. Pole reakcji jest zawsze równoległe skierowane do rozważanego dipola rozpuszczonej drobin. Na położenie i natężenie pasma elektronowego ma nie tylko wpływ pole reakcji w stanie podstawowym (zgodnie ze wzorem (4)), lecz także pole reakcji w elektronowym stanie wzbudzonym. Ponieważ zgodnie z zasadą Francka-Condon w czasie aktu absorpcji (lub emisji) drobin rozpuszczalnika nie zmieniają swoich pozycji i orientacji, występują we wzorze na pole reakcji w stanie wzbudzonym, obok wyrażeń zależnych od przenikalności dielektrycznej  $\epsilon$ , jeszcze dalsze podobne wyrazy zależne od współczynnika załamania  $n$  roztworu.

Energia oddziaływania między rozpuszczoną drobiną i otaczającym dielektrykiem (a tym samym obniżenie poziomu energetycznego) jest tym większa im większy jest moment dipolowy odpowiedniego stanu elektronowego. Zgodnie z uwagami podanymi w wstępnej części niniejszego artykułu łatwo stwierdzić, że absorpcja prowadzi układ do stanu wzbudzonego Francka-Condon, w którym polaryzacja orientacji rozpuszczalnika jest taka sama jak w stanie podstawowym. W czasie życia stanu wzbudzonego drobin luminescującej, reorientują się drobin rozpuszczalnika. Energia układu obniża się do energii stanu równowagi drobin rozpuszczonej o momencie dipolowym  $\mu_e$  z otoczeniem. W roztworze następuje więc częściowe przekazywanie energii wzbudzenia. Fluorescencja następuje ze stanu równowagi i prowadzi do podstawowego stanu Francka-Condon, z którego układ powraca do pierwotnego stanu wyjściowego. Energia ponownego uporządkowania dipoli w stanie wzbudzonym i podstawowym, co do wielkości, jest jednakowego rzędu [44]. Jej suma, a tym samym dodatkowe czerwone przesunięcie pasma fluorescencji w porównaniu z przesunięciem pasma absorpcji, jest tym większa im większa jest polaryzacja orientacji rozpuszczalnika. W przypadku, gdy  $\mu_e \gg \mu_g$ , obserwuje się, zgodnie z powyższymi rozważaniami, silne przesunięcie pasma fluorescencji w stronę fal długich (przesunięcie czerwone). Gdy  $\mu_e \ll \mu_g$ , polaryzacja orientacji rozpuszczalnika powoduje czerwone przesunięcie fluorescencji tylko względem absorpcji, zaś samo pasmo absorpcji przesunęwa się silnie w kierunku fal krótkich (przesunięcie niebieskie). Ponieważ oba efekty kompensują się częściowo, dlatego też w tym przypadku istnieje znikomy wpływ rozpuszczalnika na położenie maksimum pasma fluorescencji.

Prace teoretyczne, dotyczące wpływu elektrostatycznych oddziaływań między drobiną rozpuszczoną i drobinami rozpuszczalnika na położenie elektronowych pasm absorpcji i fluorescencji, można podzielić na dwie grupy. Do pierwszej grupy zaliczamy te prace [45], [46], [4], [5], w których stosuje się kwantowo-mechaniczny rachunek zaburzeń; do drugiej, prace [2], [3], [5], które rozpatrują powyższy problem w sposób klasyczny.

Ponieważ w ciekłych roztworach w temperaturze pokojowej czas relaksacji orientacji drobin rozpuszczalnika  $\tau_R$  jest przeważnie znacznie krótszy od średniego czasu życia drobin rozpuszczonej w stanie wzbudzonym  $\tau_f$  ( $\tau_R \ll \tau_f$ ), dlatego też zanim nastąpi emisja światła ustala się ponownie równowaga drobin

rozpuszczonej z otoczeniem. Ten warunek został uwzględniony w wyżej wspomnianych teoriach wpływu rozpuszczalnika na widma elektronowe drobin. Jeżeli natomiast  $\tau_R$  jest co do rzędu wielkości równy  $\tau_{fl}$ , wtedy położenie maksimum pasma fluorescencji będzie zawarte między położeniami tegoż pasma odpowiadającymi granicznym przypadkom  $\tau_R \gg \tau_{fl}$  i  $\tau_R \ll \tau_{fl}$ . Wystarczy wspomnieć, że warunkowi  $\tau_R \approx \tau_{fl}$  odpowiadają wszystkie roztwory w przedziale temperatur, w których zachodzi zestalenie rozpuszczalnika.  $\tau_R$  wzrasta bardzo silnie z obniżeniem temperatury, zaś  $\tau_{fl}$  tylko w małym stopniu jest zależny od temperatury. Ze zmniejszeniem temperatury następuje dlatego przejście od jednego przypadku granicznego  $\tau_R \ll \tau_{fl}$ , poprzez  $\tau_R \approx \tau_{fl}$ , do drugiego  $\tau_R \gg \tau_{fl}$  i wreszcie dla sztywnych (zestalonych) roztworów spełniony jest zawsze warunek  $\tau_R \gg \tau_{fl}$  [47-49]. Jedynie teoria Bachszijewa [50], opisująca wpływ rozpuszczalnika na widma elektronowe drobin w roztworze, została opracowana dla dowolnych zależności pomiędzy  $\tau_R$  i  $\tau_{fl}$ . Doświadczalne sprawdzenie teorii [50] w zakresie ujemnych temperatur (od  $-200^\circ\text{C}$  do  $+20^\circ\text{C}$ ) przeprowadzili Bachszijew i Piterskaja [51]. Prace Bachszijewa i współpracowników [50-52] zapoczątkowały ważne i ciekawe badania [53]. Ware, Chow i Lee [54] po raz pierwszy prześledzili przy pomocy techniki nanosekundowej spektralne przesunięcie widm emisji drobin luminezujących spowodowane relaksacją dielektryczną drobin rozpuszczalnika.

Na podstawie teorii [2-5] i doświadczalnych badań przesunięcia pasm absorpcji i fluorescencji w różnych rozpuszczalnikach można wyznaczyć momenty dipolowe  $\mu_e$  drobin luminezujących w stanie wzbudzonym. Otóż na podstawie znajomości  $\mu_e$  można między innymi określić centrum reaktywnego stanu wzbudzonego drobin w reakcjach fotochemicznych, oraz poznać związek pomiędzy charakterem migracji ładunku i redystrybucją energii wzbudzenia elektronowego, co z kolei pozwala wnioskować o procesach bezpromienistej dezaktywacji wzbudzonego stanu. Sposoby wyznaczania momentów dipolowych w stanie wzbudzonym zostały omówione w artykułach przeglądowych [55-58] oraz w monografii [59].

#### Literatura

- [1] A. Jabłoński, *Z. Phys.*, **73**, 460 (1931).
- [2] E. Lippert, *Z. Elektrochem.*, **61**, 962 (1957).
- [3] N. G. Bachszijew, *Optika i Spektrosk.*, **10**, 717 (1961).
- [4] L. Bilot, A. Kawski, *Z. Naturforsch.*, **17a**, 621 (1962).
- [5] W. Liptay, *Z. Naturforsch.*, **20a**, 1441 (1965).
- [6] E. Lippert, *Optische Anregung organischer Systeme* (2. Internat. Farbensymposium), Verlag Chemie 1966, str. 342.
- [7] A. Weller, *Z. Phys. Chem. N. F.*, **15**, 438 (1958).
- [8] E. L. Nichols, E. Merritt, *Phys. Rev.*, **18**, 483 (1904).
- [9] A. Jabłoński, *CR Soc. Polon. Phys.*, **7**, 1 (1926).
- [10] A. Kawski, H. Wardziński, *Z. Naturforsch.*, **20a**, 1354 (1965).



- [11] A. N. Sewczenko, E. K. Kruglik, *Internat. Conf. Lum.*, Budapest 1966, str. 254.
- [12] A. Kawski, B. Pasztor, H. Wardziński, *Acta Phys. Polon.*, **29**, 71 (1966).
- [13] A. Kawski, B. Bartoszewicz, C. Strzałkowska, *Acta Phys. Polon.*, **A 37**, 321 (1970).
- [14] A. Kawski, *Bull. Acad. Polon. Sci. Ser. Sci. Math. Astron. Phys.*, **11**, 567 (1963).
- [15] L. Kozma, L. Szalay, J. Hevesi, *Acta Phys. Chem. Szeged*, **10**, 67 (1964).
- [16] A. Kawski, H. Wardziński, *Bull. Acad. Polon. Sci. Ser. Sci. Math. Astron. Phys.*, **13**, 745 (1965).
- [17] A. Jabłoński, *Bull. Acad. Polon. Sci. Ser. Sci. Math. Astron. Phys.*, **15**, 885 (1967).
- [18] A. Jabłoński, *Bull. Acad. Polon. Sci. Ser. Sci. Math. Astron. Phys.*, **16**, 835 (1968).
- [19] A. Jabłoński, *Phys. Z. Sow.*, **8**, 105 (1935).
- [20] I. Ketskéméty, J. Dombi, R. Horvai, *Ann. Phys. (Leipzig)*, **8**, 342 (1961).
- [21] B. I. Stiepanow, *Doklady Akad. Nauk SSSR*, **112**, 839 (1957).
- [22] B. I. Stiepanow, *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.*, **22**, 1034, 1367 (1958).
- [23] L. Kozma, J. Hevesi, R. Horvai, *Acta Phys. Chem. Szeged*, **10**, 79 (1964).
- [24] N. A. Borysewicz, *Wozbuzdennyje sostojanija zložnych molekul w gazowej fazie*, Izd. „Nauka i Technika“, Mińsk 1967.
- [25] B. S. Nieporent, *Žur. Fiz. Chimii*, **13**, 965 (1939); **21**, 1111 (1947); **24**, 1214 (1950).
- [26] B. S. Nieporent, *Žur. Eksper. Teor. Fiz.*, **21**, 172 (1951).
- [27] B. S. Nieporent, N. G. Bachszyjew, J. T. Mazurenko, *Elementarnyje fotoprocesy w molekulach*, Izd. „Nauka“, Moskwa—Leningrad 1966, str. 80.
- [28] E. A. Andrejewszzczew, W. S. Wiktorowa, S. F. Kilin, J. P. Kuszakewicz, I. M. Rozman, *Optika i Spektrosk.*, **24**, 723 (1968).
- [29] A. Kawski, J. Kukielski, *Z. Naturforsch.* **25a**, 653 (1970), (tu dalsza literatura).
- [30] A. Kawski, B. Bartoszewicz, J. Kukielski, *Acta Phys. Polon.*, **A 38**, 127 (1970).
- [31] J. Hevesi, L. Kozma, L. Szalay, *Acta Phys. Polon.*, **29**, 57 (1966).
- [32] W. P. Kloczkow, S. M. Korotow, *Optika i Spektrosk.*, **22**, 345 (1967).
- [33] N. G. Bachszyjew, I. W. Piterskaja, W. I. Studentow, A. W. Altajskaja, *Optika i Spektrosk.*, **37**, 349 (1969).
- [34] J. Hevesi, G. S. Singhal, *Spectrochim. Acta*, **25A**, 1751 (1969).
- [35] N. G. Bachszyjew, I. W. Piterskaja, A. W. Altajskaja, *Optika i Spektrosk.*, **38**, 897 (1970).
- [36] A. W. Altajskaja, N. G. Bachszyjew, I. W. Piterskaja, *Optika i Spektrosk.*, **27**, 1013 (1969).
- [37] A. Kawski, *Acta Phys. Polon.*, **A 38**, 749 (1970).
- [38] A. Kawski, J. Kukielski, *Z. Naturforsch.*, **25a**, 1380 (1970).
- [39] B. Bartoszewicz, P. Bałuk, A. Chamma, A. Kawski, *Bull. Acad. Polon. Sci. Sér. Sci. Math. Astronom. Phys.*, **19**, 175 (1971).
- [40] A. Kawski, *Acta Phys. Polon.*, **A 37**, 651 (1970).
- [41] E. Lippert, W. Lüder, F. Moll, W. Nägele, H. Boos, H. Prigge, I. Seibold-Blankenstein, *Angew. Chem.*, **73**, 695 (1961).
- [42] C. J. F. Böttcher, *Theory of Electric Polarization*, Elsevier, Amsterdam 1952.
- [43] W. Liptay, *Angew. Chem.*, **81**, 195 (1969).
- [44] L. Pauling, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*, **25**, 577 (1939).
- [45] Y. Oshika, *J. Phys. Soc. Japan*, **9**, 594 (1954).
- [46] E. G. McRae, *J. Phys. Chem.*, **61**, 562 (1957).
- [47] E. Lippert, W. Lüder, F. Moll, *Spectrochim. Acta*, **10**, 858 (1959).
- [48] E. Lippert, W. Lüder, H. Boos, *Advan. Molecul. Spectroscopy*, New York 1962, str. 443.
- [49] G. Löber, *Z. Chem.*, **3**, 399 (1963).
- [50] N. G. Bachszyjew, *Optika i Spektrosk.*, **16**, 821 (1964).
- [51] N. G. Bachszyjew, I. V. Piterskaja, *Proc. Intern. Conf. Lum.* 1966, str. 305.
- [52] N. G. Bachszyjew, I. V. Piterskaja, *Optika i Spektrosk.*, **20**, 783 (1966).
- [53] Z. R. Grabowski, *Proc. Intern. Conf. Lum.*, 1966, str. 315.

- [54] W. R. Ware, P. Chow, S. K. Lee, *Chem. Phys. Letters*, **2**, 356 (1968).
- [55] A. Kawski, *Postępy Fizyki*, **12**, 699 (1961).
- [56] A. Kawski, *Postępy Fizyki*, **16**, 579 (1965).
- [57] H. Labhart, *Experientia*, **22**, 65 (1966).
- [58] N. G. Bachszyjew, M. I. Knjażanski, W. I. Minkin, O. A. Osipow, G. W. Sajdow, *Uspechi Chimii*, **38**, 1644 (1969).
- [59] W. I. Minkin, O. A. Osipow, J. A. Żdanow, *Momenty dipolowe w chemii organicznej* (tłumaczenie z jęz. rosyjskiego), PWN, Warszawa 1970.

*Kazimierz Brudzewski*

Institut Fizyki  
Politechnika Warszawska

## Piezoodbicie

### Piezorefectance

*Abstract:* In this review a short theory of piezorefectance and the basic experimental methods of its determination in cubic crystals are presented. The application of these methods in semiconductor's investigations is presented as well.

### 1. Wstęp

Piezoodbicie jest to nowa, obiecująca technika eksperymentalna szczególnie użyteczna w badaniach struktury pasmowej ciał stałych. Technika ta bazuje na znanym fakcie, że odbicie fali elektromagnetycznej (światła) od granicy ośrodka materialnego (dielektryka, półprzewodnika, metalu) zależy od stanu naprężeń panujących w badanym ośrodku. Dokładniej, zmiany odbicia zależą od typu naprężenia, struktury pasmowej materiału, długości fali świetlnej i jej stanu polaryzacji oraz stanu powierzchni badanej próbki<sup>1</sup>. Te zmiany są najbardziej wyraźne w obszarze długości fali leżącym w pobliżu początku prostych przejść międzypasmowych i przeto stanowią informację o tych przejściach. Ponieważ naprężenie i odkształcenie są tensorami symetrycznymi drugiego rzędu, to z pomiarów piezoodbicia wykonanych na monokrystalicznych próbkach możliwe jest otrzymanie nie tylko wartości energii odpowiadającej tym przejściom, ale także informacji o ich lokalizacji w strefie Brillouin'a.

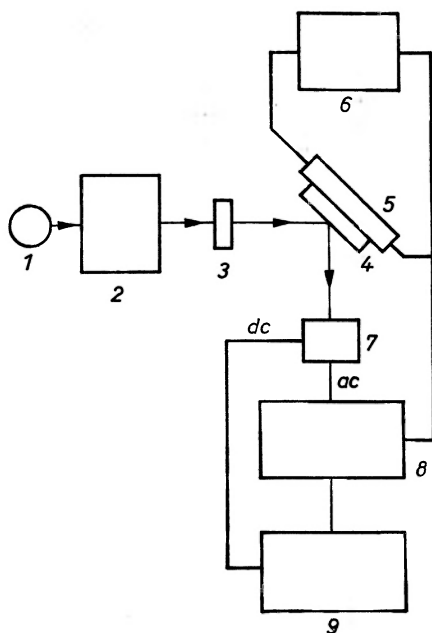
Jeśli uwzględni się zmianę wartości energii odpowiadającej danym przejściom międzypasmowym spowodowaną naprężeniem o znanej wielkości, to z pomiaru piezoodbicia można uzyskać informację o stałych potencjału deformacyjnego pasm, między którymi zachodzą przejścia optyczne.

Celem tego artykułu jest krótkie przedstawienie metod pomiarowych i elementów teorii odbicia światła od ośrodka, w którym działają osydlujące naprężenia.

<sup>1</sup> Przez stan powierzchni rozumiemy tutaj wszelkie defekty powierzchniowe, jak np. adsorbowane warstwy powierzchniowe, warstwy tlenków, naprężenia powierzchniowe wprowadzone mechaniczną obróbką.

## 2. Metody pomiarowe

Statyczne pomiary piezoodbicia wymagają dużych odkształceń próbki  $\frac{\Delta l}{l} \approx 10^{-2}$ . Tylko nieliczne materiały mogą być odkształcone sprężysto w tak dużym stopniu. Dlatego też, o wiele bardziej korzystne jest stosowanie oscylującego odkształcenia i synchronicznej detekcji przy częstotliwościach, które są dużo wyższe w porównaniu z fluktuacjami prądów fotodetektorów czy niestabilnością źródła światła. Dzięki zwiększeniu stabilności i czułości układu pomiarowego możliwe są do wykrycia zmiany odbicia  $\frac{\Delta R}{R} = 5 \cdot 10^{-6}$ , co oczywiście w pomiarach statycznych jest niemożliwe [1]. Schemat układu pomiarowego przedstawiono na rys. 1. Monokrystaliczne próbki po uprzednim

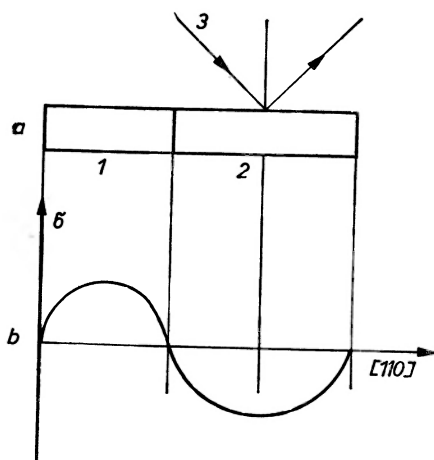


Rys. 1. 1 — źródło światła, 2 — monochromator, 3 — polaryzator, 4 — badana próbka, 5 — element kwarcowy (oscylator), 6 — generator sterujący, 7 — fotopowielacz, 8 — detektor fazowy, 9 — rejestrator

wypolerowaniu i wytrawieniu po prostu nakleja się na element kwarcowy, bądź też można napylić na ten element cienką warstwę badanego materiału. W pracy [2] oscylator kwarcowy (+5° X cięcie) był przyklejony do monokrystalicznej próbki krzemu wyciętej w postaci długiego pręta (rys. 2). Podłużne drgania swobodne oscylatora kwarcowego zachodziły przy częstotliwości  $f_0 = 130$  kHz, a długość pręta krzemu była tak dobrana, że cały układ (oscylator i próbka) miał częstotliwość rezonansową  $f_0 \pm 0,5$  Hz. Przy założeniu, że kwarc i próbka są

dostrojone do częstości  $f_0$ , rozkład naprężeń w próbce ma przebieg taki jak to przedstawiono na rys. 2b [2]. Amplitudy drgań są ograniczone jedynie granicami sprężystości dwóch składowych układu kwarc-próbka. W tym przypadku amplitudy są ograniczone granicą sprężystości kwarcu  $\frac{\Delta l}{l} = 5 \cdot 10^{-4}$ .

Monochromatyczne, liniowo spolaryzowane światło jest odbijane przez środkowy punkt próbki (rys. 2a) i pada na fotopowielacz. Sygnał  $dc$  z fotopowielacza



Rys. 2. a) 1 — oscylator kwarcowy, 2 — pręt kwarcowy (próbka), 3 — promień świetlny  
b) rozkład naprężeń w układzie oscylator-próbka

jest mierzony poprzez pomiar prądu. Ten prąd jest proporcjonalny do natężenia światła odbitego od powierzchni próbki. Natężenie światła odbitego określa współczynnik odbicia  $R$ . Sygnał  $ac$  (130 kHz) jest kierowany do fazowego detektora, następnie zostaje wyprostowany (demodulacja) i zarejestrowany przez rejestrator jako wielkość proporcjonalna do  $\Delta R$ .

Pomiary wykonuje się dla polaryzacji równoległej i prostopadłej do kierunku jednoosiowego naprężenia. Dla próbek monokrystalicznych pomiary należy wykonywać na różnych powierzchniach krystalograficznych.

### 3. Elementy teorii

Dla małych odkształceń zmiany odbicia mogą być związane prosto ze zmianą tensora stałej dielektrycznej  $\varepsilon_{ij}$

$$\Delta \varepsilon_{ij} = W_{ijkl} U_{kl}, \quad (1)$$

gdzie:  $W_{ijkl}$  — składowe tensora czwartego rzędu (w ogólności tensor  $\hat{W}$  jest tensorem zespolonym),  $U_{kl}$  — składowe tensora odkształcenia.

Dla kryształów o symetrii kubicznej (krzem) liczba niezależnych składowych tensora  $\hat{W}$  redukuje się do trzech zespolonych stałych  $W_{11}$ ,  $W_{12}$ ,  $W_{44}$  [3]. Z wyrażenia (1) wynika, że piezoodbicie zależy od wzajemnej orientacji kierunku polaryzacji światła padającego, kierunku naprężenia i kierunków krystalograficznych.

Zmiana odbicia,  $\Delta R$ , może być wyrażona dla materiału o symetrii kubicznej następującym związkiem [2]

$$\Delta R = \frac{2}{[(n+1)^2 + k^2](n^2 + k^2)} \operatorname{Re} \{[(n-ik)^3 - (n-ik)]\Delta\varepsilon_{ii}\}, \quad (2)$$

gdzie:  $\Delta\varepsilon_{ii}$  — diagonalna składowa tensora stałej dielektrycznej w kierunku polaryzacji światła,  $n$ ,  $k$  — stałe optyczne (wolnego od naprężeń) materiału o symetrii kubicznej.

Jeśli naprężenie przykłada się w kierunku [110], to z pomiarów przeprowadzonych na powierzchniach krystalograficznych (001), (1 $\bar{1}$ 0), (1 $\bar{1}$ 1) dla polaryzacji światła równoległej i prostopadłej do kierunku naprężenia można wyznaczyć trzy podstawowe stałe  $W_{11}$ ,  $W_{12}$ ,  $W_{14}$ , które mogą być użyte do scharakteryzowania typu przejść optycznych.

Stosując związki dyspersyjne Kramersa-Kroniga można powiązać względną zmianę odbicia  $\frac{\Delta R}{R}$  ze zmianą współczynnika absorpcji  $\Delta\alpha(\omega)$  [1].

$$\frac{\Delta R}{R} = A \frac{c}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\Delta\alpha(\omega')}{[\omega'^2 - \omega^2]} d\omega' + B \frac{c}{\pi} \Delta\alpha(\omega), \quad (3)$$

gdzie:

$$A = \frac{4(n^2 - k^2 - 1)}{[(n+1)^2 + k^2][(n-1)^2 + k^2]}$$

$$B = \frac{8nk}{[(n+1)^2 + k^2][(n-1)^2 + k^2]}$$

Zgodnie z teorią potencjału deformacyjnego obydwa pasma, pomiędzy którymi zachodzi przejście optyczne, przesuwają się o wielkości proporcjonalne do naprężenia, co powoduje przesunięcie się krawędzi absorpcji o wielkość proporcjonalną do różnicy potencjałów deformacyjnych tych dwóch pasm. Jeśli uwzględnimy przesunięcie krawędzi absorpcji, to można ze wzoru (3) obliczyć względną zmianę odbicia  $\frac{\Delta R}{R}$ . Porównanie tak obliczonych wartości  $\frac{\Delta R}{R}$  z wynikami pomiarów piezoodbicia daje informację o stałych potencjału deformacyjnego [1]. W ogólności kształt obserwowanej zależności  $\frac{\Delta R}{R}$  związanej z pewnym przejściem optycznym zależy od typu przejścia i od względnych wartości stałych  $A$  i  $B$  w wyrażeniu (3).

#### 4. Zakończenie

Artykuł ten nie wyczerpuje wszystkich zagadnień związanych ze zjawiskiem piezoodbicia. Ograniczono się jedynie do kryształów o symetrii kubicznej. Pominęto zagadnienia związane z badaniami cienkich warstw metalicznych metodami piezoodbicia. Celem tego artykułu było pokazanie szczególnej przydatności tej nowej techniki eksperymentalnej w badaniach struktury pasmowej ciał stałych, a w szczególności półprzewodników.

#### Literatura

- [1] W. E. Engeler, H. Fritzsche, M. Garfinkel, J. J. Tiemann, *Phys. Rev. Letters*, **14**, No 26, 1069 (1965).
- [2] G. O. Gobeli, E. O. Kane, *Phys. Rev. Letters*, **15**, No 4, 142 (1965).
- [3] J. F. Nye, *Własności fizyczne kryształów*, Warszawa, PWN.

*Volker Weidemann*

Instytut Fizyki Teoretycznej  
i Obserwatorium Uniwersytetu Kilońskiego

## Piąte Sympozjum Astrofizyki Relatywistycznej w Austin

### Fifth Texas Symposium on Relativistic Astrophysics

*Abstract:* The Fifth Symposium on Relativistic Astrophysics, held in Austin (USA) in December 1970, is here reported briefly, with the attention concentrated on three topics: pulsars and neutron matter, black holes and white holes, gravitational radiation and tests for various theories of gravitation.

Zacząło się od kwazarów. Odkrycie tych zagadkowych obiektów kosmicznych legło u podstaw zorganizowania w 1963 roku w Dallas pierwszego z serii sympozjów astrofizyki relatywistycznej. Już od pierwszej chwili nie były one spotkaniami wąskiej grupy specjalistów, a przeciwnie, stały się poważnym, międzynarodowym forum wymiany poglądów wszystkich tych, których fascynuje ta niewątpliwie dziś przodująca dyscyplina z pogranicza fizyki i astronomii. Kolejne sympozja odbywały się w 1964 roku (w Austin), w 1967 roku (w Nowym Jorku), w 1968 roku (znów w Dallas), ostatnie wreszcie, piąte już z kolei, odbyło się w Austin, w dniach od 14 do 18 grudnia ub. roku.

Podczas gdy na pierwszych trzech sympozjach dominowała tematyka związana z odkryciem kwazarów, ostatnie dwa sympozja odbywały się, jeśli można użyć tego wyrażenia, pod „znakiem pulsarów“. Sformułowanie to nie ma wcale oznaczać, że uczeni, po rozwiązaniu zagadki kwazarów, zaczęli się zastanawiać nad następnym problemem. Mówiąc skrótowo, sytuacja ma się dziś tak, jak gdyby astronomowie i fizycy, zniechęceni do kwazarów tym, że nie sposób ich istoty i pochodzenia w jakiś jeden, oparty na solidnych podstawach i możliwy dla wszystkich do przyjęcia sposób objaśnić, przeszli do problematyki pulsarów. Nadmiar hipotez wyjaśniających kwazary wydawał się wskazywać, że mimo wieloletniego wysiłku obserwatorów i teoretyków jest może jeszcze za wcześnie na syntezę. Tymczasem pulsary, znane zaledwie od trzech lat, znacznie łatwiej niż kwazary pozwoliły na wydarcie sobie tajemnicy. Wprawdzie i w dziedzinie problematyki pulsarów mamy do czynienia z ogromną mnogością najrozmaitszych hipotez, jednakże wszystkie te teorie, które są dziś poważnie brane pod uwagę, dadzą się sprowadzić do wspólnego mianownika: do tezy, że pulsary są obiektami niezwykle małymi i gęstymi, że są to gwiazdy neutronowe. W chwili obecnej można spotkać nawet teoretyków, którzy sądzą, że można wytłumaczyć istotę kwazarów, odwołując się do pulsarów. I tak np. zdaniem Piddingtona [1] w wyniku implozji grawitacyjnej chmury plazmowej o masie ok.  $10^{12}$  mas słonecznych powstaje w jej obszarach centralnych gigantyczny pulsar z wmróźonym polem magnetycznym, obracający się wokół osi z okresem rzędu paru lat. Tego rodzaju model wydaje się tłumaczyć pewne właściwości obserwacyjne kwazarów, np. występowanie linii emisyjnych.



Problematyka pulsarowa i związana z nią problematyka materii jądrowej w gwiazdach neutronowych nie wyeliminowała z programu sympozjum w Austin innych działów współczesnej astrofizyki. Specjalne sesje poświęcono problematyce mgławicy Krab (temu "typowemu królikowi doświadczalnemu astronomów!), nowym wynikiem obserwacji w obszarach podczerwieni, ultrafioletu i promieniowania rentgenowskiego, aktywności jąder galaktyk, wreszcie i zagadnieniu obserwacji złożonych molekuł w przestrzeni kosmicznej (choć to ostatnie niewiele ma z pewnością wspólnego z astrofizyką relatywistyczną). Jeden dzień był poświęcony tematyce związanej z ogólną teorią względności i promieniowaniem grawitacyjnym, a ponadto na specjalnej sesji zajęto się kwestią osobliwości w ogólnej teorii względności.

Na sesjach przedstawiano w zasadzie referaty przeglądowe, stanowiące autorytatywne podsumowanie wiedzy w określonej dziedzinie; obok tego istniała możliwość organizowania improwizowanych seminariów w czasie wolnym. Referentami byli tacy wybitni uczeni, jak laureaci Nagrody Nobla H. A. Bethe (*Równanie stanu materii neutronowej przy wszystkich gęstościach*) i C. Townes (*Problematyka widm molekularnych z przestrzeni kosmicznej*), G. Burbidge, J. Weber i inni.

W dalszym ciągu sprawozdania przedstawione będą niektóre tylko z zagadnień, omawianych na konferencji w Austin; w wyborze kierować się będziemy raczej zainteresowaniami fizyków niż astronomów.

### Pulsary i gwiazdy neutronowe

Dla wstępnego zaznajomienia się z tematyką można polskiemu czytelnikowi polecić artykuł przeglądowy Grzędzielskiego [2]; został on jednak napisany przed dwoma laty i wiele z przytoczonych w nim modeli teoretycznych straciło na aktualności w świetle dalszych faktów obserwacyjnych. Nadal największym wzięciem cieszy się omówiony w tymże artykule model Golda, z różnymi wprowadzonymi w międzyczasie modyfikacjami. W chwili obecnej nie ulega już wątpliwości, że pulsary muszą być gwiazdami neutronowymi. Od kilkudziesięciu już lat postulowali teoretycy powstawanie gwiazd neutronowych w końcowej fazie ewolucji gwiazd, podczas wybuchów gwiazd supernowych. Wykrycie pulsara w mgławicy Krab, charakteryzującego się nadzwyczaj krótkim okresem — zaledwie 33 ms — wydaje się wskazywać na słuszność interpretacji teoretycznej pulsarów jako wirujących gwiazd neutronowych. Gwiazdy neutronowe bowiem, mając średnią gęstość równą około  $10^{14}$  g/cm<sup>3</sup> i promień ok. 10 km, mogą wirować z okresem obrotu rzędu sekundy i krótszym, nie ulegając rozerwaniu w wyniku działania potężnych sił odśrodkowych.

Początkowo sygnały pulsarów odbierano wyłącznie w zakresie fal radiowych. Z początkiem 1969 roku zarejestrowano w zakresie optycznym impulsy o tym samym okresie, co i impulsy radiowe jednego z pulsarów w mgławicy Krab [3]; dzięki użyciu rakiet i balonów ustalono również występowanie impulsów w obszarze widma rentgenowskiego i gamma [4]. Pojawianie się impulsów w całym obszarze widma fal elektromagnetycznych, jak również kształt tego widma, dadzą się wytłumaczyć jedynie przy założeniu emisji cząstek relatywistycznych, przyspieszanych w silnych polach magnetycznych. Proces emisji przebiegać musi z najwyższym stopniem koherencji, przy czym podstawową rolę musi odgrywać przy tym pole magnetyczne.

Wiele wysiłku włożono w uchwycenie nadzwyczaj słabych zmian czasowych okresu pulsarów. Szybkość zmian okresu w czasie  $dT/dt$  wraz z okresem  $T$  determinuje wartość „okresu podwojenia okresu“ ( $T/(dT/dt)$ ). Dla pulsara w mgławicy Krab, mającego okres  $T = 33$  s i  $dT/dt = 3,7 \cdot 10^{-8}$  s/doba otrzymujemy podwojenie okresu po upływie ok. 2,5 tys. lat. Obok tych powolnych zmian okresu zaobserwowano i gwałtowne zmiany, idące jednak w kierunku przeciwnym. I tak np. pulsar w gwiazdozbiornie Żagle skrócił swój okres w lutym 1969 o 200 ns, pulsar zaś w mgławicy Krab — we wrześniu 1969 o 77 ps. Na to skokowe skrócenie okresu nakładało się jednak nadal systematyczne wydłużanie, tak że po pewnym czasie okresy obu pulsarów powróciły do „starej“ wartości. Dążenia do wytłumaczenia owych zagadkowych

skoków wartości okresu przyczyniły się do powstania dwu-, a później i trójwarstwowych modeli budowy pulsarów, których autorzy [5-8] wykorzystali w umiejętny sposób podobieństwa pomiędzy powierzchniowymi warstwami pulsara a ciałem stałym.

Problematyka struktury wewnętrznej pulsara sprowadza się w poważnym stopniu do problematyki materii jądrowej, do zagadnień związanych z równaniem stanu w warunkach ekstremalnej gęstości. Ze względu na to, że gwiazda neutronowa, tworząca się w rezultacie kolapsu grawitacyjnego, ulega nader szybko ochłodzeniu poprzez szybką emisję neutrin, można traktować materię jądrową z dość dobrym przybliżeniem jako gaz fermionowy o temperaturze zera bezwzględnej, w którym najważniejszą rolę odgrywa energia Fermiego. Przegląd właściwości takiej materii przedstawił na sympozjum jeden ze współtwórców teorii materii jądrowej — Bethe.

W przeglądzie swym Bethe rozróżnił cztery istotnie odmienne zakresy gęstości materii nadgęstej:

I. pomiędzy  $10^6$  i  $3 \cdot 10^{11}$  g/cm<sup>3</sup>, kiedy to materia ta składa się ze zdegenerowanych elektronów i jąder atomowych;

II. pomiędzy  $3 \cdot 10^{11}$  a  $3 \cdot 10^{14}$  g/cm<sup>3</sup>, kiedy to wkracza proces neutronizacji i jądra atomowe, mające w tych warunkach i tak znaczny nadmiar neutronów, ulegają stopniowo dysocjacji;

III. od  $3 \cdot 10^{14}$  do  $10^{15}$  g/cm<sup>3</sup>, kiedy to odgrywać rolę zaczyna odpychająca część potencjału jądrowego;

IV. powyżej  $10^{15}$  g/cm<sup>3</sup>, kiedy to możliwe staje się tworzenie przeróżnych hiperonów.

Przedstawmy krótko, w ślad za Bethem, właściwości materii, znajdującej się w jednym z czterech omówionych stanów. I tak, gdy w zakresie I rośnie gęstość, jądra atomowe stają się w coraz to większym stopniu neutrono-nadmiarowe, wreszcie stosunek  $N/Z$  dojdzie może do wartości rzędu czterech; mimo to nie występują jeszcze swobodne neutrony. Istotne jest przy tym to, że jądra atomowe tworzą przy tak wysokiej gęstości sieć krystaliczną, znacznie gęściej wypełnioną niż znana nam z warunków ziemskich sieć. Średnie odległości między jądrami będą rzędu  $5 \cdot 10^{-12}$  cm. Taka „skryształizowana“ materia tworzy warstwę powierzchniową gwiazd neutronowych.

Gdy w zakresie II w wyniku neutronizacji powstają swobodne neutrony, dochodzi do tworzenia par neutronów o przeciwnie skierowanym spinie (zjawisko nadciekłości). Właściwości stanu  $^1S$  takich par sprawiają, że w tym zakresie gęstości niemożliwe jest powstanie stabilnych gwiazd, których ciśnienie wewnętrzne mogłoby skompensować grawitację. To ostatnie zjawisko możliwe jest dopiero w zakresie III, kiedy do głosu dochodzi rdzeń odpychający sił między nukleonowych. W miarę dalszego zagęszczania materii, gęstość neutronów swobodnych staje się równa gęstości neutronów związanych w jądrach; jądra przestają istnieć, całe wnętrze gwiazdy staje się jednym jądrem. W mieszaninie, składającej się w ok. 80% z neutronów i po 10% z protonów i elektronów tworzą się miony i piony, gdy energia Fermiego elektronów przekroczy odpowiednio wartości 105 względnie 140 MeV. Dla bozonów nie działa zakaz Pauliego, wobec czego może się tworzyć dowolnie wielka liczba pionów; tak więc nawet przy dalszym zagęszczaniu materii energia Fermiego cząstek ujemnie naładowanych nie przewyższy wartości 140 MeV.

Analogiczne zjawiska zachodzą w zakresie IV. Gdy energia Fermiego neutronów stanie się większa od wartości 120 MeV, zaczynają się tworzyć hiperony  $\Sigma^-$  i inne. Rdzeń gwiazdy neutronowej może być więc rajem dla fizyka cząstek elementarnych.

Całkowanie równań Einsteina dla pola grawitacyjnego oraz równań hydrostatycznych dla struktury gwiazdy przy użyciu równania stanu odpowiadającego materii jądrowej prowadzi do wniosku, stanowiącego współczesną wersję wyniku, uzyskanego jeszcze przez Oppenheimera ze współpracownikami przed drugą wojną światową:

Konfiguracje stabilne istnieją dla mas z przedziału od 0,1 do 1,7 mas słonecznych; promienie gwiazd neutronowych wahają się przy tym od 9 do 12 km. Górna granica dopuszczalnych mas nie jest zbyt pewna; wartość jej zależy od obranego potencjału sił jądrowych. Przy przekroczeniu górnej wartości krytycznej masy grawitacja staje się tak silna, że żadne równanie

stanu, niesprzeczne z uznanymi zasadami fizyki (skończona szybkość rozchodzenia się oddziaływań, szybkość dźwięku mniejsza od szybkości światła itp.) nie jest w stanie zagwarantować stabilności układu. Kolaps staje się nieuchronny.

Szczególną rolę w modelach gwiazd neutronowych odgrywa pole magnetyczne. Sądzi się, że gdy z materii „normalnej“ dochodzi podczas implozji grawitacyjnej do wytworzenia gwiazdy neutronowej, linie sił „wzmrożone“ w dobrze przewodzącą materię ulegają tak silnemu zagęszczeniu, że powstaje pole ok.  $10^{12}$  Gs. Zdaniem Rudermana, który w swym referacie zajął się przede wszystkim właściwościami warstw powierzchniowych gwiazd neutronowych, przewodnictwo elektryczne materii jądrowej w zakresie gęstości I przewyższa ok. 100 tys. razy przewodnictwo miedzi, tak że pole magnetyczne, nawet gdy oś jego nachylona jest poważnie względem osi obrotu gwiazdy (jak to ma miejsce istotnie w pulsarach), zachowuje się przez dziesiątki milionów lat.

### Czarne doły i białe doły

Ogólna teoria względności przewiduje przy przekroczeniu górnej masy krytycznej dla trwałych konfiguracji neutronowych zjawisko nieustającej implozji grawitacyjnej — „kolapsu“. W najprostszym matematycznie przypadku symetrii sferycznej powstaje w efekcie końcowym tzw. „czarny dół“ czy też „czarna dziura“, charakteryzujące się tym, że materia implodująca do objętości zawartej w obszarze ograniczonym przez promień Schwarzschilda zostaje w pewnym sensie odcięta od reszty Wszechświata: żaden sygnał nie może wydostać się z wnętrza. Kierunek ruchu zarówno materii korpuskularnej, jak i fotonów może być tylko jeden — do środka, stąd też dziwna nazwa obiektu. Kula o promieniu równym promieniowi Schwarzschilda stanowi horyzont zdarzeń, poza którym nic nie da się dostrzec. Podczas kolapsu o doskonałej symetrii sferycznej wyzwalamąca się energia grawitacyjna ulega przemianom w energię kinetyczną implozji. Tak więc oddalony obserwator nie zauważy żadnego wydzielania energii w gigantycznej skali, całość jej zostanie pochłonięta przez „czarny dół“. Tego typu kolaps nie może na przykład, jak to przed kilku laty sądzono, stanowić wytłumaczenia dla ogromnej produkcji energii w kwazarach. W świetle tego zrozumiałe się staje zainteresowanie fizyków problematyką tzw. realistycznych modeli kolapsu, uwzględniających odchylenia od symetrii sferycznej, uwzględnienie rotacji, niezerowego ładunku elektrycznego i pola magnetycznego. Pozostawało bowiem do rozstrzygnięcia, czy wprowadzenie tych wszystkich dodatkowych efektów nie przyczyni się do tego, że implodująca bryła materii zacznie wypromieniowywać energię, może nawet i przez dłuższy czas. Oznaczałoby to, że udało się przekształcić „czarny dół“ w tzw. „biały dół“. Równie istotne było pytanie, czy jakiś czynnik dodatkowy, np. rotacja implodującej bryły, jest w stanie powstrzymać kolaps. Nad zagadnieniami tymi pracowano wiele w minionych latach. Niektóre wyniki przedstawili w Austin R. Penrose i K. Thorne.

Problematyka kolapsu grawitacyjnego wiąże się z zagadnieniem osobliwości w rozwiązaniach równań ogólnej teorii względności. Różne stwierdzenia na temat osobliwości, uzyskane ze znajomości ścisłych rozwiązań w przypadku symetrii sferycznej, udało się dzięki wyprowadzonym przez Hawkinga i Penrose'a warunkom (patrz np. w [9]) przenieść na przypadek ogólniejszy.

Uwzględnienie wpływu rotacji i ładunku elektrycznego na proces kolapsu stało się możliwe dzięki istnieniu rozwiązania Kerr'a [10] i jego uogólnienia [11]. Rozwiązanie Kerr'a dla obiektu rotującego (nienaladowanego) zawiera dwa parametry: masę  $m$  i moment pędu  $a$ . Gdy rotacja odbywa się dostatecznie szybko, tzn. w odpowiednio dobranych jednostkach mamy  $a > m$ , dochodzi do jakościowo nowego zjawiska: w efekcie „wleczenia“ układów inercjalnych w otoczeniu kolapsującej masy w bezpośrednim jej sąsiedztwie zniesiony zostaje występujący w przypadku schwarzschildowskim ruch „jednokierunkowy“. W objętości zawartej wewnątrz „horyzontu zdarzeń“ tworzy się tzw. „antyhoryzont zdarzeń“. Wraz ze wzrostem wartości momentu pędu  $a$  antyhoryzont rozszerza się, wreszcie pokrywa się z horyzontem i odtąd już

ruch „jednokierunkowy“ zostaje zniesiony wszędzie wokół rotującej i kolapsującej masy. Sygnały z wnętrza kolapsującego obiektu mogą do nas docierać.

Christodoulou wykazał, że całkowitą energię „czarnego dołu“ da się rozdzielić na trzy części, z których tylko jednej nie da się w żaden sposób „wydobyć“ z owego dołu. Jak zaś z czarnego dołu wydobyć energię, tzn. przekształcić czarny dół w „biały“? Mówiąc obrazowo, wystarczy w odpowiedni sposób wpuścić do takiego dołu cząstkę, by spodziewać się, że wyleci po pewnym czasie cząstka (inna) o większej energii. Owa dodatkowa energia została „wydobyta“ z czarnego dołu kosztem jego rotacji. W rezultacie tego obiekt będzie obracał się wolniej. Jeśli zatem wydobyć z niego tyle energii rotacyjnej we wspomniany wyżej sposób, ile tylko jest możliwe, wtedy koniec końców pozostaje zwykła, schwarzschildowska „czarna dziura“. Można więc przekształcić „czarny dół“ na pewien okres w „biały dół“, ale los jego jest i tak przesadzony.

Zauważmy, że już w miesiąc po sympozjum ukazały się w *Nature* pierwsze doniesienia, sugerujące istnienie „czarnego dołu“ w rzekomym układzie podwójnym  $\epsilon$  Aurigae [12, 13]. Ciekawe, czy nie znajdujemy się na etapie przejściowym od zainteresowania problematyką pulsarową do problematyki czarnych dołów (czy też kolapsarów, jak je nazywa Cameron [12]) — kolejnej klasy relatywistycznych obiektów astrofizycznych <sup>1</sup>.

Kwestia energii wypromieniowanej podczas kolapsu grawitacyjnego wiąże się z wynikami obserwacji Webera [14, 15]. Wprawdzie brak jeszcze ostatecznej pewności, czy istotnie chodzi tu o detekcję fal grawitacyjnych, nasuwa się jednak możliwość interpretacji wyników Webera jako pomiaru krótkotrwałego „impulsu promieniowania grawitacyjnego“, wysłanego podczas kolapsu. Na rzecz takiej interpretacji wydaje się wskazywać stwierdzenie Webera [15], że impulsy wydają się nadchodzić z centrum Galaktyki. Tymczasem warunki w obszarach centralnych galaktyk są tak odmienne od warunków w otoczeniu naszego układu słonecznego [16], że wytworzenie się koncentracji masy, prowadzących do kolapsu, może być dość prawdopodobne.

Jeśli przeprowadzić oszacowania energetyczne, to jeden impuls promieniowania grawitacyjnego, zarejestrowany przez Webera, związany jest z wypromieniowaniem masy od 0,2 do 2 mas słonecznych pod postacią promieniowania grawitacyjnego. Niedokładność podana wyżej wynika z dowolności naszych założeń na temat szerokości pasma emisyjnego: 1000 bądź 10000 Hz. Wartość wypromieniowanej masy wydaje się dość rozsądna; odpowiada ona np. kolapsowi masy o symetrii znacznie odległej od symetrii kulistej, może także pochodzić ze zderzenia dwóch czarnych dołów.

Trudności powstają dopiero wtedy, gdy się zastanowimy nad częstością rejestracji impulsów promieniowania grawitacyjnego przez Webera (kilkaset razy w ciągu roku, co z uwagi na niekorzystny stosunek sygnałów do szumów należałoby co najmniej podwoić). Wymagałoby to przyjęcia, że centrum galaktyczne traci na tej drodze masę od 200 do 2000 mas słonecznych w ciągu roku. Przy takim tempie straty masy cała masa Galaktyki uległaby zużyciu po ok. 100 milionach lat. Tymczasem efekty dynamiczne w Galaktyce są zauważalne już przy szybkości utraty masy ok. 100 mas słonecznych rocznie. Nad różnymi możliwościami wyjaśnienia wyników Webera zastanawiał się Kafka [17, 18], który doszedł do wniosku, że tylko hipoteza zderzeń pomiędzy czarnymi dołami w gromadach obiektów relatywistycznych może zadowalająco wytłumaczyć dane Webera (choć sama jest nader mało prawdopodobna). Zastanawiające jest przy tym, że pierwsze wyniki pomiarów radiowych, prowadzonych przy użyciu sieci anten na terenie Wielkiej Bratynii, dały wynik ujemny, choć należałoby się spodziewać, że podczas kolapsu grawitacyjnego przynajmniej część energii zostaje wypromieniowana pod postacią fal elektromagnetycznych [19].

<sup>1</sup> Sprawa nie jest ostatecznie rozstrzygnięta, przeciw hipotezie czarnego dołu wystąpili bowiem Demarque i Morris (20), którzy tłumaczą właściwości układu  $\epsilon$  Aur za pomocą prostego modelu układu podwójnego, w którym jedna ze składowych traci masę. Zdaniem Kopala (21) natomiast jesteśmy świadkami powstawania układu planetarnego (przy czym planety mają się wytworzyć ze składowej o mniejszej masie, która nie osiągnęła jeszcze fazy gwiazdnej).

## Sprawdzanie ogólnej teorii względności

Jak Kip Thorne przedstawił w swym referacie, efekty powstające przy niewielkich odchyleniach od granicznego przypadku teorii newtonowskiej najdogodniej jest obliczać przy użyciu parametrów, które przybierają różne wartości w rozmaitych teoriach grawitacji i redukują się do jedności w ogólnej teorii względności. Parametry te mogą charakteryzować np. zakrzywienie przestrzeni, spowodowane przez jednostkową masę, nieliniowość przy superpozycji kilku pól, efekty „wleczenia“ układu inercyjnego podczas rotacji itp. Pozanewtonowskie przedstawienie parametryczne pozwala łatwo się zorientować w tym, jaką informację zawierają nowe wyniki pomiarowe, i okazuje się także przydatne dla projektowania nowych testów.

Dla parametru  $\gamma$  związanego z odchyleniem światła przechodzącego blisko Słońca ogólna teoria względności przewiduje wartość 1, podczas gdy teoria Bransa-Dickego daje wartość 0,87. Warto te przewidywania porównać z ostatnimi wynikami obserwacyjnymi. Pomiar odchylenia promieniowania radiowego z kwazara 3C 279 dały wyniki dla parametru  $\gamma$ :  $\gamma = 1,08 \pm 0,20$  i  $\gamma = 1,02 \pm 0,24$ . Pomiar przy użyciu metody Shapiry dla sygnałów odbitych od Wenus względnie wysłanych przez sondy Mariner 6 i 7 dały wartości  $\gamma = 1,03 \pm 0,10$  i  $\gamma = 1,04 \pm 0,08$ . Stwierdzono zgodność ruchu perihelionowego Marsa z przewidywaniami ogólnej teorii względności do 7%, w przypadku Merkurego zgodność ta wzrasta do 2%. Wszystkie te wyniki empiryczne wydają się świadczyć przeciw teorii Bransa-Dickego. Warto jednak podkreślić, że istnieją jeszcze i takie teorie grawitacji (jak np. teorie Nordströma, Whiteheada i in.), których przewidywania różnią się w znacznie mniejszym stopniu od teorii Einsteina niż przewidywania teorii Bransa-Dickego. Ostatecznych testów mogą tu dostarczyć dość złożone eksperymenty w rodzaju badania precesji bąka umieszczonego w okrążającym Ziemię satelicie.

Na podstawie wykładu prof. V. Weidemanna, wygłoszonego w Kilonii, przełożył i opracował za zezwoleniem Autora

Bronisław Kuchowicz

## Literatura

- [1] J. Piddington, *Monthly Not. Roy. Astron. Soc.* (GB), **148**, 131 (1970).
- [2] S. Grzędzielski, *Postępy Astronomii*, **17**, 179 (1969).
- [3] R. Lynds, S. P. Maran, D. E. Trumbo, *Astrophys. J.*, **155**, L 121 (1969).
- [4] F. W. Floyd, I. S. Glass, H. W. Schnopper, *Nature*, **224**, 50 (1969).
- [5] M. Ruderman, *Nature*, **223**, 597 (1969); **225**, 838 (1970).
- [6] F. Dyson, *Nature*, **223**, 486 (1969).
- [7] R. Smoluchowski, *Phys. Rev. Letters*, **24**, 923 (1970).
- [8] R. Smoluchowski, D. O. Welch, *Phys. Rev. Letters*, **24**, 1191 (1970).
- [9] R. Penrose, str. 545 i dalsze w *Contemporary Physics. Trieste Symposium 1968*. Vol. I IAEA, Vienna 1969.
- [10] R. P. Kerr, *Phys. Rev. Letters*, **11**, 237 (1963).
- [11] E. T. Newman *et al.*, *J. Math. Phys.*, **6**, 918 (1965).
- [12] A. G. W. Cameron, *Nature*, **229**, 178 (1971).
- [13] R. Stothers, *Nature*, **229**, 180 (1971).
- [14] J. Weber, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 1320 (1969).
- [15] J. Weber, *Phys. Rev. Letters*, **25**, 180 (1970).
- [16] G. R. Burbidge, *Ann. Rev. Astron. Astrophys.*, **8**, 369 (1970).
- [17] P. Kafka, *Mitt. Astron. Gesellsch.*, **27**, 134 (1969).
- [18] P. Kafka, *Nature*, **226**, 436 (1970).
- [19] W. N. Charman *et al.*, *Nature*, **228**, 346 (1970).
- [20] P. Damarque, S. C. Morris, *Nature*, **230**, 516, (1971).
- [21] Z. Kopal *Astrophys. and Space Sci.*, **10**, 332 (1971).

I. Adamczewski: *Ionization, conductivity and breakdown in dielectric liquids*, Taylor and Francis LTD, London 1969, stron 439, cena 8,5 £

Nieczęsto zdarza się, aby książka autora polskiego z dziedziny fizyki była tłumaczona na trzy języki obce [1, 2, 3, 4]. Z tym większą uwagą należy zanotować fakt ukazania się monografii Profesora Adamczewskiego na angielskim i amerykańskim rynku wydawniczym [3].

Otrzymałem od wydawcy angielskiego jeden egzemplarz tej monografii [3], jak również kilka recenzji zagranicznych, które już się o tej książce ukazały [8-11] w jej różnych wydaniach.

Książka ukazała się na rynku anglosaskim w wydaniu luksusowym, ale niestety i w luksusowej cenie około 20 dolarów za egzemplarz, co nawet na stosunki zachodnie jest ceną wysoką.

Autor, prof. dr I. Adamczewski, uczeń i współpracownik prof. Czesława Białobrzeskiego, od którego przejął tematykę tej dziedziny fizyki w Uniwersytecie Warszawskim w latach 1932-1939, jest obecnie znanym specjalistą w tym zakresie, cytowanym w bardzo wielu pracach zagranicznych i propagującym ten dział fizyki na wielu konferencjach i sympozjach krajowych i zagranicznych.

Omawiana tutaj monografia jest dobitnym wyrazem usiłowania prof. dr I. Adamczewskiego szerokiego spopularyzowania tej dziedziny fizyki w świecie naukowym i wyrazem jego przekonania o konieczności wykazania jej znaczenia w fizyce współczesnej, jak zresztą i w wielu innych dziedzinach nauki takich, jak np. chemii radiacyjnej, radiobiologii, techniki izolatorów ciekłych, techniki wysokich napięć, detekcji i dozymetrii promieniowania jonizującego itd.

Monografia opracowywana stopniowo co najmniej przez kilkanaście lat zawiera materiały naukowe z około 700 prac oryginalnych obcych i około 100 prac polskich, w tym w przeważającej części prac własnych autora i jego współpracowników.

Ponieważ brałem czynny udział w niektórych osiągnięciach z tej dziedziny fizyki i miałem okazję przez wiele lat śledzenia powstawania i rozwoju tej monografii, chciałbym przedstawić pokrótce jej historię.

Po szeregu monograficznych artykułów w „Postęпах Fizyki“ [5], w wydawnictwach zagranicznych PAN [6] i w naukowym czasopiśmie angielskim [7] została opracowana w roku 1963 przez prof. dr I. Adamczewskiego obszerna książka w objętości około 450 stron, wydana przez PWN w roku 1965 [1]. W rok później ukazała się w ZSRR bardzo pozytywna recenzja o tej książce napisana przez kand. nauk Wizela [8].

W roku 1968 ukazało się we Francji tłumaczenie tej książki, opracowane i adoptowane przez wybitnych specjalistów francuskich z tej dziedziny, profesorów Blanca i Mathieu (tłumaczką była p. Faucher) [2].

Wydanie francuskie zostało znacznie rozszerzone i uaktualnione przez autora i przez profesorów francuskich.

W roku 1969 ukazało się omawiane tu szczegółowo wydanie angielskie [3], również uaktualnione przez autora.

Wreszcie w roku bieżącym (1971) ukaże się wydanie rosyjskie w rozszerzonej formie. Tłumaczenie zostało już dokonane w ZSRR, książka znajduje się w druku w wydawnictwie „Energia“ [4] i została zaanonsonowana w katalogach tego wydawnictwa na rok 1971.

Książka składa się ze wstępu i czterech części. Część pierwsza dotyczy właściwości fizycznych i chemicznych ciekłych dielektryków. Autor omawia głównie właściwości ciekłych węglowodorów nasyconych, prezentując podstawowe teorie stanu ciekłego. Część druga jest po-

święcona oddziaływaniu promieniowania jonizującego na materię ze szczególnym uwzględnieniem efektów radiacyjnych w ciekłach. Część trzecia dotyczy przewodnictwa naturalnego i wzbudzonego w ciekłych dielektrykach w niskich polach elektrycznych. Znajdujemy tutaj omówienie fundamentalnych prac autora dotyczących pomiarów ruchliwości jonów w ciekłych węglowodorach nasyconych i związku ruchliwości z lepkością cieczy.

W rozdziale 12 *Ruchliwość jonów* i 13 *Rekombinacja jonów* na tle dorobku światowego, autor prezentuje liczne prace swoich współpracowników. Obok teorii przewodnictwa elektrycznego i ruchliwości jonów Jaffego, Kramersa, Plumle'a, Stacey'a, Lea i Fowlera, autor przytacza własną koncepcję mechanizmu przewodnictwa elektrycznego w ciekłych węglowodorach. W rozdziale 17 poruszane są tematy, które w ostatnich latach stały się bardzo aktualne. Są to zagadnienia związane z dozymetrią promieniowania jonizującego przy użyciu komór ciekzowych.

I znów na tle osiągnięć światowych autor przedstawił tu fundamentalne prace polskie, na bazie których rozwinęła się ta dziedzina badań również we Francji i w innych krajach. Liczne rysunki ciekzowych komór jonizacyjnych wraz z prostymi układami elektronowymi do dozymetrów przenośnych zamykają ten interesujący rozdział.

Część czwarta książki jest poświęcona przewodnictwu elektrycznemu ciekłych dielektryków w wysokich polach elektrycznych i przebiciu elektrycznym. Autor omawia nie tylko przewodnictwo samoistne, ale również doświadczenia związane z elektroluminescencją w wysokich polach elektrycznych.

Rozdział 18 został potraktowany jako wstęp do następnego rozdziału, w którym omawiane jest zjawisko przebicia elektrycznego. Zagadnienia poruszone tutaj niewątpliwie zainteresują techników ze względu na duże znaczenie praktyczne omawianych wyników.

Teoria zjawisk w wysokich polach elektrycznych została przedstawiona w rozdziale 20. Autor rozważa zagadnienia emisji elektronów z metalu do ciekłego dielektryka, możliwości pobudzenia i jonizacji cząstek prezentując dwie teorie przebicia elektrycznego Lewisa i własną, które wiąże bezpośrednio właściwości cząstek z natężeniem przebicia elektrycznego. Otrzymanie prostych teoretycznych zależności bardzo dobrze zgadzających się z danymi doświadczalnymi jest dużym sukcesem autora.

Obok powyższej teorii omówiono inne teorie przebicia elektrycznego pozostawiając krytyczną ocenę czytelnikowi.

W części czwartej autor powołuje się na 312 pozycji literaturowych, które obejmują wszystkie ważniejsze prace z tej dziedziny do roku 1968.

Ukazało się już szereg recenzji specjalistów zagranicznych o tej książce.

Po mniej czy więcej obszernym streszczeniu poszczególnych rozdziałów autorzy recenzji wydają bardzo pozytywną opinię zakończoną przeważnie poleceniem jej specjalistom z tej dziedziny fizyki i dziedzin pokrewnych.

Z recenzji tych zacytuję tu najważniejsze wyjątki dotyczące oceny monografii i dorobku fizyki polskiej w tej dziedzinie przez autorów obcych.

J. Mahenc w „Bulletin de la Société Chimique de France“ [9] pisze:

„Ta obszerna monografia, szczegółowo udokumentowana, będzie z pożytkiem wykorzystywana przez wszystkich tych, którzy przystępując do badania ciekłych dielektryków chcą sobie mieć do dyspozycji dzieło stanowiące podstawę ich informacji w tej dziedzinie“.

Analogiczną opinię wyraża angielski recenzent w „Physics in Medicine and Biology“ [10].

Najobszerniejsze i najciekawsze uwagi o tej dziedzinie fizyki w ogóle, a o pracach polskich i o samej książce w szczególności pisze w swojej recenzji Bright w „Contemporary Physics“ [11].

Ze względu na pewne charakterystyczne wypowiedzi autora angielskiego o fizyce polskiej zacytuję tu parę obszerniejszych fragmentów z tej dziedziny.

„Zdarzają się w fizyce emocjonujące okresy, kiedy wśród badaczy rośnie świadomość szybkiego zbliżania się do rozwiązania trudnego i frapującego problemu. Być może obserwujemy taką sytuację w badaniach stanu ciekłego. Ciekłe dielektryki badano w przeciągu co najmniej 30 lat i wykonano wiele eleganckich doświadczeń, ale zadowalające teoretyczne podstawy tej

dziedziny wciąż jeszcze czekają na opracowanie. Otrzymano wystarczająco wiele danych eksperymentalnych, by stworzyć „tło informacji“, w oparciu o które technicy mogą konstruować aparaty wykorzystujące ciekłe dielektryki. Mimo to jest charakterystyczne dla tej dziedziny, że aby coś znaleźć na jakiś określony temat, trzeba przeszukać całą literaturę. Jest bardzo mało dzieł, które poruszają najważniejsze problemy w krytyczny i metodyczny sposób. Istnieją 2 główne szkoły, które pracują nad ciekłymi dielektrykami, mianowicie grupa T. J. Lewisa i H. Troppera — pionierów tej dziedziny w W. Brytanii od 1945 i polska szkoła kierowana przez prof. I. Adamczewskiego, który pracuje na tym polu już od 30 lat. Do niedawna niewielu ludzi w W. Brytanii zdawało sobie sprawę z wielkiego dorobku Adamczewskiego, ze względu na trudność uzyskania angielskich przekładów polskich prac.

Można z zadowoleniem stwierdzić, że mamy obecnie wzorową pracę w języku angielskim, która zawiera przystępny przegląd opublikowanych prac i stanowi autorytatywny wykład obecnego stanu wiedzy. W tak szybko rozwijającej się dziedzinie każdy autor nieuchronnie naraża się na ryzyko, że będzie świadkiem dezaktualizacji swego dzieła. Profesorowi Adamczewskiemu udało się tak przedstawić temat, że problemy będące jeszcze w trakcie badań są wyraźnie wskazane. Książka opiera się na polskim wydaniu z roku 1963. Wersja angielska świetnie przełożona, zawiera wiele dodatkowych informacji i obejmuje nawet znaczną część materiału przedstawionego na Międzynarodowej Konferencji Cieczowej w Grenoble we Wrześniu 1968 r. ...

Niewątpliwie książka Adamczewskiego wypełnia poważną lukę w literaturze. Jest to właściwa książka we właściwym czasie i bardzo dobrze się ją czyta. Dalsze dzieła będą konieczne w miarę rozwoju wiedzy o procesach przewodzenia w cieczach, ale ta książka długo będzie służyła jako podstawowe źródło“.

Może na zakończenie warto jeszcze zaznaczyć, że opiniodawcami i recenzentami tej monografii dla PWN byli w 1962 roku profesorowie: dr Marian Jeżewski, dr Cezary Pawłowski dr J. L. Maksiejewski.

#### Literatura

- [1] I. Adamczewski, *Jonizacja i przewodnictwo ciekłych dielektryków*, PWN, Warszawa 1965, str. 459.
- [2] I. Adamczewski, *Les phénomènes d'ionisation et de conduction dans les diélectriques liquides*. Adaptation française par A. Faucher, D. Blanc et J. Mathieu. Masson et Cie, Paryż, str. 408.
- [3] I. Adamczewski, *Ionization, Conductivity and Breakdown in Dielectric Liquids*, Taylor and Francis LTD, London 1969, str. 439; Barnes and Noble Inc., Nowy York 1969, str. 439.
- [4] I. Adamczewski, *Jonizacja i przewodność ciekłych dielektryków*, Energia, Leningrad 1971.
- [5] I. Adamczewski, *Postępy Fizyki*, **9**, 49, 261 (1958); **13**, 253 (1962).
- [6] I. Adamczewski, *Acad. Polon. Sci.*, Centre Sci. Paris **3-56** (1964).
- [7] I. Adamczewski, *Brit. J. Appl. Phys.*, **16**, 759 (1965).
- [8] A. A. Wizel, *Nowyje knigi za rubieżom*, 1966, seria B. 2. 47.
- [9] J. Mahenc, *Bulletin de la Société Chimique de France*, Juin 1969, Nr 9<sup>b</sup>, str. 15.
- [10] A. B. Bright, *Contemporary Physics*, **10**, 634 (1969).
- [11] G. S. Innes, *Physics in Medicine and Biology*, **15**, 128 (1970).

Olgiard Gzowski

G. Schmidt: *Kernenergie, Fakten und Prognosen für Industrie und Wirtschaft, Medizin, Technik und Forschung*, Safari Verlag, Berlin 1970, s. 248

Ostatnio dotarła do mnie z Zürichu książka dra Gerharda Schmidta, wydana w serii „Współczesna nauka i technika“, poświęcona zagadnieniom wytwarzania energii elektrycznej w zachodnio-niemieckich elektrowniach jądrowych. Autor, który z wykształcenia jest fizykiem



i byłym współpracownikiem O. Hahna i L. Meitner w berlińskim Instytucie Chemii w Dahlem (Kaiser Wilhelm-Institut für Chemie) kieruje obecnie referatem energii jądrowej w zachodnioberlińskiej spółce akcyjnej (Berliner Kraft- und Licht A. G.) i jednocześnie jako specjalista jest doradcą w zakresie planowania i budowania nowych niemieckich elektrowni jądrowych. Już krótki rzut oka na spis treści recenzowanej książki wskazuje, że Autor skoncentrował swoją uwagę na gospodarczych i technicznych problemach związanych z otrzymywaniem prądu elektrycznego w elektrowniach jądrowych oraz na najrozmaitszych aspektach praktycznego zastosowania energii jądrowej.

Rozdział I *Elektrownie jądrowe z gospodarczego punktu widzenia* obejmuje problem otrzymania energii cieplnej i elektrycznej, kosztów ich wytwarzania oraz zagadnienia tzw. szybkich i wysokotemperaturowych reaktorów jądrowych. Omówienie czynników wpływających na ekonomikę procesów produkcji energii elektrycznej oraz niektórych problemów konstrukcyjnych łącznie z obiegiem materiałów i przeróbką elementów paliwowych kończy rozdział pierwszy.

W rozdziale II poświęconym elektrowniom jądrowym z technicznego punktu widzenia, po krótkim przedstawieniu tzw. reaktorów pierwszej generacji, Autor opisuje kilka elektrowni jądrowych (m. in. w Kahl, Niederaichbach, Grundremingen, Lingen, Obringheim) oraz statek badawczy „Otto Hahn“ z napędem jądrowym. W tymże rozdziale został także scharakteryzowany projekt elektrowni w Würgassen, reaktory tzw. drugiej generacji jak też elektrownia jądrowa w Niemieckiej Republice Demokratycznej, znajdująca się niedaleko Berlina. Rozdział ten bogato wyposażony w rysunki reaktorów w poszczególnych elektrowniach stanowi najcenniejszą część książki.

Bardzo krótko w rozdziale III omówiono zagadnienia źródeł promieniowania jonizującego, baterii izotopowych stosowanych w pojazdach kosmicznych oraz syntezy i zastosowania pierwiastków transuranowych.

Następny IV rozdział jest poświęcony zagadnieniom pomiarowym i technice sterowania reaktorami. Tutaj znalazły się również problemy biologicznego działania promieniowania jonizującego, ochrony przed nim, a także sprawy pomiarów dozymetrycznych. Piękne kolorowe zdjęcie przedstawia komory gorące ze zdalnymi manipulatorami.

W kolejnych rozdziałach (V-IX) Autor mówi o sprawach prawnych organizacji międzynarodowych i umowie o nierozpowszechnianiu broni jądrowej oraz charakteryzuje bilans energetyczny i surowcowy w Niemieckiej Republice Federalnej (NRF). Książkę kończy krótkie spojrzenie na historię odkrycia reakcji rozszczepienia uranu-235 i perspektywy, jakie otwiera przed energetyką opanowanie na skalę techniczną reakcji syntezy jąder helu z lekkich jąder atomowych. Owe cztery końcowe rozdziały zajmują tylko około 1/5 objętości książki.

Na podkreślenie zasługuje wszechstronne ujęcie w książce zagadnienia energii jądrowej, która w nadchodzących latach w krajach gospodarczo i przemysłowo rozwiniętych będzie odgrywała coraz większą rolę. Interesujące są rozważania Autora na temat kosztów produkcji 1 kWh prądu elektrycznego za pomocą reaktorów jądrowych oraz kosztów 1 kWh uzyskiwanego w elektrowniach opalanych węglem czy ropą, przy czym w przypadku NRF możliwości eksportowe elektrowni jądrowych razem z obsługą w zakresie materiałów rozszczepialnych wyniosą w najbliższych 15 latach przeszło 100 miliardów marek niemieckich.

Zarówno II jak i III rozdział rozpoczyna się elementarnym wykładem fizyki reakcji rozszczepienia, struktury jądra atomowego i właściwości promieniowania jądrowego. Owe nazwane przez Autora „Kleine Physikstunde“ nr 1 i 2, wydają się zbyteczne, ponieważ potencjalny czytelnik recenzowanej książki powinien znać zasady fizyki jądrowej.

W spisie literatury przedmiotu, Autor wymienił wyłącznie źródła zachodniemieckie z wyjątkiem jednego raportu wydanego w Paryżu. Spis pierwiastków chemicznych, objaśnienia niektórych pojęć oraz skorowidz rzeczowy kończą tę książkę, z którą winni zapoznać się nie tylko inżynierowie zainteresowani współczesną produkcją energii elektrycznej, ale również ekonomiści i ci wszyscy, którzy pragną zorientować się w całokształcie aktualnych problemów związanych z praktycznymi zastosowaniami energii jądrowej. Dzieło G. Schmidta świadczy

także o wielkim rozmachu zachodnoniemieckiego przemysłu jądrowego, który obecnie dysponuje 13 elektrowniami jądrowymi.

Autorowi i wydawnictwu należą się słowa uznania za wyczerpujące przedstawienie obecnych i perspektywicznych zastosowań energii jądrowej, szczególnie w NRF. Jeśli dodać, że książka zawiera 92 rysunki, 23 czarno-białe i 3 kolorowe fotografie znacznie ułatwiające śledzenie wywodów Autora oraz że została wydrukowana na świetnym papierze i wydana nadzwyczaj starannie, otrzymamy pełny obraz walorów tej na wskroś oryginalnej pozycji bibliograficznej. Powinna ona znaleźć się nie tylko na półkach bibliotek instytucji technicznych i naukowych, ale przede wszystkim w rękach wyżej wspomnianych czytelników.

*Ignacy Stroński*

I. W. Rakobolskaja, *Jadernaja fizika*. Pod redakcją profesora Pietuchowa, 1971, stron 296 (język rosyjski).

Książka Rakobolskiej *Fizyka jądrowa* ma spełniać rolę skryptu dla studentów radzieckich, uczących się fizyki jądrowej, ale nie specjalizujących się w tym przedmiocie. Książka została napisana na podstawie wykładów z fizyki jądrowej, które autorka prowadziła dla studentów Uniwersytetu Moskiewskiego. Materiał zawarty w książce odpowiada programowi nauczania fizyki jądrowej studentów tych wydziałów Uniwersytetu Moskiewskiego, na których nie ma specjalizacji z fizyki jądrowej. Dlatego materiał przedstawiony w książce ma w zasadzie charakter opisowy bez stosowania formalizmu mechaniki kwantowej.

W części pierwszej skryptu, zawierającej dwa rozdziały, w dostępnej formie opisano podstawowe wiadomości o jądrach stabilnych i siłach jądrowych. W opisie tych zagadnień nie stosuje się aparatu matematycznego, jak również nie przeprowadza analizy danych doświadczalnych.

Część druga zatytułowana *Jądra niestabilne* zawiera rozdziały poświęcone opisowi rozpadu promieniotwórczego oraz oddziaływaniu promieniowania jądrowego z materią. Część tę można uważać za wprowadzenie do w. w. przedmiotu. Ostatni paragraf tego rozdziału, dotyczący detekcji promieniowania jądrowego, jest przestarzały, potraktowany bardzo pobieżnie i w ogóle nie zawiera danych o detektorach półprzewodnikowych.

Część trzecia zatytułowana *Reakcje jądrowe* oprócz jakościowego opisu reakcji jądrowych zawiera rozdziały poświęcone wybranym zagadnieniom fizyki neutronów oraz zagadnieniom dzielenia i syntezy jąder atomowych.

Ostatnia, czwarta część poświęcona jest fizyce cząstek elementarnych i promieniowaniu kosmicznemu. Rozdziały te, zdaniem profesora Pietuchowa, posiadają dla studentów specjalności niefizycznych znaczenie ogólnokształcące, dlatego przedstawione są najbardziej pobieżnie ze wszystkich opisywanych zagadnień i posiadają charakter czysto opisowy.

Książka składająca się z czterech niezależnych części stanowi w zasadzie konspekt wykładów, który po minimalnym przygotowaniu redakcyjnym został opublikowany. Związana jest z tym pewna niestaranność w przedstawianiu materiału. W niczym to jednak nie ujmuje wartości książki jako skryptu. Książka może służyć jako wstęp do fizyki jądrowej, można ją polecić nie tylko studentom lecz również czytelnikowi zapoznanemu z kursem fizyki ogólnej, ale nie znającemu mechaniki kwantowej. Dla fizyka może wydać się zbyt prosta.

Książka zawiera 15 pozycji literatury monograficznej i podręcznikowej, brak jest natomiast odnośników literatury do prac oryginalnych.

*Henryk I. Lizurej*

### Z życia Oddziału Gdańskiego Polskiego Towarzystwa Fizycznego

W dniu 20. 2. 1971 r. odbyło się Walne Zebranie Oddziału Gdańskiego PTF skupiającego 122 członków. Z przedstawionego sprawozdania przez ustępujący Zarząd wynikało, że działalność Oddziału koncentrowała się wokół popularyzacji zagadnień naukowych w środowisku fizyków Wybrzeża (odbyło się 8 zebrań naukowych, na których wygłosili referaty m. in. Prof. dr A. Jabłoński, dr N. Siergiejewa-Moroz z ZIBJ w Dubnej, doc. dr Gheorghita-Oancea Candida z Bukaresztu) oraz popularyzacji zagadnień dydaktycznych w środowisku nauczycieli szkół średnich przy współpracy z Ośrodkiem Metodycznym i Kuratorium Okręgu Szkolnego (wygłoszono 8 referatów dydaktycznych). Poza tym Oddział organizował w każdą sobotę wykłady wraz z pokazami dla młodzieży szkół średnich, które ze względu na dużą popularność wygłaszane były dwukrotnie. Także Komitet Okręgowy Olimpiady Fizycznej przeprowadził eliminacje pośród 104 osób w stopniu wstępnym, z których w II stopniu wzięło udział 22 osoby. Udzielono absolutorium ustępującemu Zarządowi i na jego wniosek wybrano nowy Zarząd, który ukonstytuował się następująco: Przewodniczący — doc. dr hab. Jerzy Dera. Wiceprzewodniczący — doc. dr Kazimierz Badziąg, doc. dr inż. Sylwester Bernasik. Sekretarz — mgr Bogdan Woźniak. Skarbnik — mgr Marian Bastrzyk. Członkowie — prof. dr Ignacy Adamczewski, doc. dr hab. Jan Fiutak, dr inż. Władysław Weisło, mgr Stefania Stipal, mgr Jolanta Kilarska.

W celu realizacji zadań, jakie stawia sobie nowy Zarząd, powołano 3 sekcje i nakreślono program ich działalności.

1. Sekcja naukowa — zebrania naukowe z referatami typu monograficznego połączone z pokazami i zwiedzaniem laboratoriów trzech głównych Instytutów Fizyki Wybrzeża (Politechniki, Uniwersytetu i Akademii Medycznej), organizacja obchodów 500-lecia urodzin Mikołaja Kopernika.

2. Sekcja dydaktyczna — referaty z zakresu dydaktyki fizyki, spotkania pracowników naukowych z nauczycielami, odczyty dla młodzieży, popularyzacja zagadnień związanych z Rokiem Kopernikowskim.

3. Sekcja kooperacji naukowej fizyków Wybrzeża — sprawy informacji o pracach i badaniach prowadzonych w poszczególnych zespołach naukowych.

M. Chybiecki

### XXV-lecie fizyki na UMK

W dniu 17 lutego 1946 roku odbył się pierwszy wykład z fizyki dla studentów nowo utworzonego wówczas Uniwersytetu Mikołaja Kopernika w Toruniu. Był to wykład z fizyki doświadczalnej prof. dr A. Jabłońskiego. W 25 rocznicę tego wydarzenia, które można uważać za początek istnienia fizyki na Uniwersytecie Toruńskim, odbyło się uroczyste posiedzenie Oddziału Toruńskiego PTF. W czasie posiedzenia wygłoszone zostały dwa referaty. Profesor A. Jabłoński podzielił się wspomnieniami z pierwszych lat istnienia toruńskiego ośrodka fizyki oraz omówił najważniejsze kierunki badań z fizyki doświadczalnej, uprawiane w ciągu minionego okresu na UMK. Z kolei dyrektor Instytutu Fizyki UMK prof. dr R. S. Ingarden przedstawił osiągnięcia fizyków toruńskich na tle osiągnięć fizyki polskiej.

J. Szudy

### Sekcja dydaktyczna przy Oddziale Toruńskim PTF

Staraniem Zarządu Oddziału Toruńskiego PTF odbyło się w dniu 16. 1. 1971 r. spotkanie Zarządu z nauczycielami fizyki szkół średnich woj. bydgoskiego. W czasie spotkania oficjalnie utworzona została Sekcja dydaktyczna Oddziału Toruńskiego PTF. Przewodniczącą Sekcji została wybrana mgr Maria Przybylska, kierowniczką Ośrodka Metodycznego Fizyki przy Kuratorium Okręgu Szkolnego Bydgoskiego. Jednocześnie powołano 3-osobowe kolegium mające za zadanie organizowanie pracy Sekcji. W skład kolegium oprócz przewodniczącej Sekcji weszli mgr Mirosława Żurawska z Zakładu Metodyki Nauczania Fizyki Instytutu Fizyki UMK oraz mgr Juliusz Domański z Ośrodka Metodycznego Fizyki w Bydgoszczy. W chwili obecnej Sekcja liczy 17 osób, przy czym przewiduje się, że liczba ta zwiększy się w ciągu najbliższych tygodni.

J. Szudy

### Raman nie żyje

21 listopada 1970 r. zmarł w Bangalore (Indie) w wieku 82 lat sir Chandrasekhara Venkata Raman. Raman urodził się 7 listopada 1888 r. w Trichinopoly na południu Indii i kształcił się najpierw w Hindu College w Vishakapatam, gdzie jego ojciec był profesorem matematyki i fizyki, a następnie w Presidency College w Madrasie. Już w czasie studiów w Madrasie podjął oryginalne badania naukowe z akustyki i optyki i ogłosił swą pierwszą pracę naukową w roku 1906 w „Philosophical Magazine” mając lat 18. Po ukończeniu studiów przez 10 lat pracował jako urzędnik skarbowy, jednocześnie w czasie wolnym kontynuował badania naukowe ogłaszając w tym okresie około 30 prac w „Nature”, „Philosophical Magazine” i „Physical Review”. W roku 1916 Raman założył czasopismo „Indian Journal of Physics”, którego redaktorem naczelnym został w r. 1921. W latach 1917-1933 był profesorem fizyki na uniwersytecie w Kalkucie; ośrodek, który tam stworzył, zdobył szybko międzynarodowe uznanie. W r. 1921 Raman rozpoczął prace nad rozpraszaniem światła. W trzy lata później wziął udział w sympozjum na temat

rozpraszania światła w Toronto, po czym na zaproszenie Roberta A. Milikana przez 4 miesiące przebywał jako *Visiting Professor* w California Institute of Technology. W tym okresie zafascynowało go odkrycie efektu Comptona. Szukając analogicznych zmian długości fali przy rozpraszaniu w dziedzinie optycznej w roku 1928 Raman odkrył efekt rozproszenia światła znany powszechnie pod jego nazwiskiem. W roku 1930 za odkrycie tego zjawiska Raman otrzymał nagrodę Nobla w dziedzinie fizyki. Zjawisko to odegrało i w dalszym ciągu odgrywa olbrzymią rolę w spektroskopii molekularnej. Ostatnio efekt Ramana znalazł zastosowanie w technice laserowej. Od r. 1933 Raman pracował w Indian Institute of Science w Bangalore, gdzie rozpoczął badania nad dyfrakcją światła na falach ultradźwiękowych (teoria Ramana-Natha), rozpraszaniem w kolloidach (efekt Krishnana) i in. Raman zajmował się również badaniami optycznymi diamentów (pomiar rotacji Faradaya, luminescencja diamentów itd.). Od r. 1943 rozpoczął budowę wielkiego centrum naukowego w Bangalore (Raman Research Institute), którego dyrektorem został w r. 1947. Z ośrodkiem tym wiązał wielkie nadzieje mówiąc, że „*it would become an international cultural center that would show India's greatness in the field of exact sciences*”. Raman był członkiem Royal Society of London (1924), prezydentem Indian Academy of Sciences (1934) i doktorem honorowym wielu uniwersytetów. W r. 1958 otrzymał Międzynarodową Nagrodę Lenińską.

J. Szudy

### IX Zimowa Szkoła Fizyki w Zakopanem

W dniach od 5 do 15 lutego 1971 r. odbyła się w Zakopanem IX Zimowa Szkoła Fizyki zorganizowana przez Instytut Fizyki Jądrowej w Krakowie przy współpracy Instytutu Fizyki Uniwersytetu Jagiellońskiego. W Szkole uczestniczyło 90 osób.

Temat Szkoły brzmiał: *Efekty strukturalne fazy skondensowanej a procesy jądrowe*. W jego ramach omówiono następujące zagadnienia:

1. Efekty struktury nadształtnej,
2. Anihilacja pozytonów,
3. Hamowanie cząstek naładowanych i efekt channelingu,
4. Wpływ

wiązań chemicznych na przemiany jądrowe.

Wygłoszono 14 różnych referatów oraz przeprowadzono kilka seminariów. Poniżej podajemy tytuły wykładów: E. Bożek, *Spowalnianie cząstek naładowanych (teoria Linharda, pomiar czasów życia)*; J. Golczewski, *Badanie oddziaływań magnetycznych w pomiarach korelacji kierunkowych promieniowania jądrowego*; A. Hryniewicz, *Metody badania efektów nadsubtelnej struktury*; J. Pietruszka, *Beam foil spectroscopy*; Br. Rozenfeld, *Badanie struktury elektronowej metali, a w szczególności topografii powierzchni Fermiego metodą korelacji kierunkowej kwantów anihilacyjnych*; *Anihilacja pozytonów w ciałach stałych*; J. Sawicki, *Elektryczne oddziaływanie jądra z powłoką elektronową atomu i polem sieci krystalicznej*; W. Soszka, *Efekt channelingu*; J. Styczeń, *Badanie oddziaływań kwadrupolowych w pomiarach korelacji katowych promieniowania jądrowego*; Z. Sujkowski, *Wpływ wiązań chemicznych na widma mezoatomów*; *Wpływ struktur chemicznych na prawdopodobieństwo przemian jądrowych*; K. Tomala, *Magnetyczne oddziaływanie jądra z powłoką elektronową atomu*; *Badanie oddziaływań magnetycznych jądra z powłoką elektronową metodą efektu Mössbauera*; A. Wanic, *Magnetyki a neutronowe metody badawcze*.

#### Nowe wydawnictwa

Wydana w 1965 r. przez PWN, Warszawa, monografia Prof. dr Ignacego Adamczewskiego pt. *Jonizacja i przewodnictwo ciekłych dielektryków* została przetłumaczona na język angielski i francuski i wydana przez wydawnictwa: Taylor and Francis LTD, London oraz Masson et Cie, Paryż. W tym roku ma się ukazać jej tłumaczenie na język rosyjski w wydawnictwie Energia, Leningrad. Recenzję o tych wydaniach drukujemy na str. 441.

M. Chybiński

#### 50-lecie warszawskiej fizyki

30 stycznia 1971 r. w gmachu głównym Wydziału Fizyki UW odbyła się jubileuszowa sesja z okazji 50 rocznicy działalności Instytutu Fizyki Uniwersytetu Warszawskiego. Obecni byli na niej przedstawiciele Rządu i Partii, PAN, KNiT, profesorowie i pra-

cownicy wyższych uczelni z Warszawy i całego kraju, studenci. Na sesji, której przewodniczył prof. dr A. Wróblewski, wygłoszono 3 referaty: dziekan Wydziału Fizyki UW prof. dr L. Sosnowski omówił działalność ośrodka warszawskiego przed wojną, dyrektor Instytutu Fizyki Doświadczałnej UW prof. dr J. Pniewski podsumował badania prowadzone w okresie 25-lecia powojennego, a dyrektor Instytutu Fizyki Teoretycznej UW prof. dr J. Werle poświęcił swoje wystąpienie przyszłości fizyki i jej roli w społeczeństwie. (Pełne teksty przemówień zostaną opublikowane w zeszycie „Postępów Fizyki“, tom 22, nr 5 (1971).) Po zamknięciu posiedzenia zaproszono gości na lampkę wina oraz zwiedzanie bardzo ciekawej wystawy obrazującej 50-letni dorobek warszawskiej szkoły fizycznej.

W. Majewski

#### Nowe przeglądowe czasopismo fizyczne

Od marca 1971 r. ukazuje się raz na miesiąc czasopismo „Physics Reports“ jako dział przeglądowy (C) „Physics Letters“. W skład redakcji wchodzi G. E. Brown (Copenhagen), P. M. Endt (Utrecht), D. ter Haar (Oxford), M. Jacob (Geneva), H. J. Lipkin (Rehovoth), B. Mühlischlegel (Santa Barbara), C. Rubbia (Cambridge, USA), J. Volger (Endhoven), R. Wienecke (Stuttgart). Redakcja zamierza publikować stosunkowo krótkie prace przeglądowe na temat aktualnych i ważnych zagadnień fizyki, ujęte w kontekście najnowszych badań w taki sposób, by fizyk niespecjalista mógł zorientować się w tym, co już zrobiono i w jakim kierunku zmierza dalszy rozwój badań nad omawianym problemem. Celem tych publikacji jest złagodzenie ujemnych skutków nadmiernej specjalizacji fizyków przez ułatwienie im śledzenia postępu w różnych dziedzinach fizyki i dotarcia w razie potrzeby do prac oryginalnych, a w przypadkach zagadnień, gdzie badania rozwijają się bardzo szybko, a prace źródłowe krążą jeszcze głównie w formie preprintów, publikacje te mogą posłużyć nawet dla specjalisty jako wprowadzenie umożliwiające podjęcie samodzielnych badań w tym kierunku. Do tej właśnie kategorii przeglądów należy pierwsza pozycja z „Physics Reports“ (Vol. 1C, nr 1, marzec 1971) — praca P. Caruthersa *Naruszona niezmienniczość względem*

transformacji zmiany skali w fizyce cząstek. Następne zeszyty przynoszą prace D. ter Haara i H. Wergelanda *Termodynamika i mechanika statystyczna w specjalnej teorii względności*, J. Zinn-Justina *Dynamika silnych oddziaływań w metodzie aproksymanty Padého*; zapowiedziany jest druk pracy P. D. B. Collinsa *Teoria Reggego a fizyka cząstek*.

W. Majewski

### Pomiar czasu życia jonów helo-podobnych w stanie metatrwałym $2^3S$

Stan  $2^3S$  helu stanowi klasyczny przykład stanu metatrwałego. Przejście z tego stanu do stanu podstawowego  $1^1S$  może nastąpić jedynie albo wskutek zderzeń z innymi atomami lub ściankami, albo też w wyniku przełamania zakazu interkombinacji, czemu towarzyszy emisja „linii wzbronionej”. Podobna sytuacja istnieje dla wszystkich jonów helo-podobnych. Ostatnio dokonano kilku obserwacji przejść wzbronionych  $2^3S \rightarrow 1^1S$  zarówno w warunkach laboratoryjnych, jak również w promieniowaniu korony słonecznej.

Badania laboratoryjne przeprowadzili R. Schmieder i R. Marmus z Lawrence Radiation Laboratory w Berkeley (*Phys. Rev. Letters*, **25**, 1245 (1970)). Obliczenia teoretyczne wskazują, że czas życia dowolnego atomu dwuelektronowego w stanie  $2^3S$  maleje z dziesiątą potęgą ładunku jądra  $Z$ . W związku z tym Schmieder i Marmus badali nie hel, lecz jon argonu A XVII ( $Z = 18$ ). W celu otrzymania jonów A XVII przyspieszali oni w liniowym akceleratorze jonowym (HILAC) jony A XV, które padały następnie na ekran z folii berylu. Część spośród jonów A XV traciła wówczas dwa elektrony stając się jonami A XVII. Jednocześnie część wytworzonych jonów A XVII została wzbudzona do stanu  $2^3S$ , którego energia względem stanu podstawowego  $1^1S$  wynosi 3,1 keV (dla atomu helu energia ta wynosi około 20 eV). Specjalny detektor rentgenowski rejestrował fotony emitowane w czasie przelotu wiązki jonów A XVII. Uzyskano wyraźne maksimum emisji promieniowania X przy energii 3,1 keV. Odległość pomiędzy ekranem z folii berylu a detektorem można było zmieniać w zakresie od 70 do 200 cm, co pozwalało na wyznaczenie krzywej zaniku promieniowania, a tym

samym czasie życia atomu A XVII w stanie  $2^3S$ . Otrzymano wartość czasu życia równą  $172 \pm 30$  nanosekund. Stwierdzono, że wartość ta jest niezależna ani od materiału folii, ani od wartości prądu jonowego.

W okresie wcześniejszym A. Gabrieli i C. Jordan (*Nature*, **221**, 947 (1969)) zidentyfikowali w widmie korony słonecznej szereg linii jako przejścia interkombinacyjne  $2^3S \rightarrow 1^1S$  atomów helo-podobnych w grupie jonów CV—SiXIII. Jednocześnie ich obserwacje zdawały się wskazywać, że przejścia te należy interpretować jako promieniowanie magnetyczne dipolowe. Według dotychczasowych poglądów, przejścia te interpretowano jako dwufotonową emisję promieniowania elektrycznego dipolowego.

Najnowsze obliczenia G. W. F. Drake'a (University of Windsor, Ontario, Canada) wykazały, że dla stanu  $2^3S$  atomów helo-podobnych główny wpływ na wartość czasu życia ma promieniowanie magnetyczne dipolowe. Dla atomu helu obliczona wartość czasu życia w stanie  $2^3S$  wynosi 7870 sec, natomiast dla A XVII czas życia w stanie  $2^3S$  jest równy 212,7 nanosec. Podobnie obliczenia wykonane przez Schwartza (z innymi funkcjami falowymi) dały dla czasu życia A XVII w tym stanie wartość 208 nanosec. Wartości te są bardzo bliskie doświadczalnej wartości czasu życia  $172 \pm 30$  nanosec wyznaczonej przez Schmiedera i Marmusa.

J. Szudy

### Pierwsze obserwacje zderzeń protonów w wiązkach przeciwbieżnych

27 stycznia 1971 r. uruchomiono po raz pierwszy obydwie pierścienie akumulujące protony przyspieszane w synchrotronie protonowym CERN (Genewa). Jak wynika ze sprawozdania personelu wydziału przecinających się pierścieni akumulujących (The Intersecting Storage Ring Staff, *Phys. Letters*, **34B**, 425 (1971)), energia protonów w każdym pierścieniu wynosiła 15,3 GeV, co w układzie środka mas zderzających się protonów daje energię, dla uzyskania której przy nieruchomej tarczy należałoby mieć wiązkę protonową rozpędzoną do energii 500 GeV. Pierścienie akumulujące mają kształt lekko zdeformowanych okręgów, przecinających się ze sobą w 8 punktach pod kątem  $15^\circ$ ; w dwu spośród

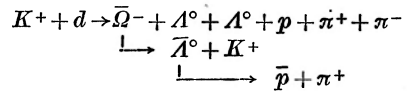
nich pionowe położenia obu wiązek dobrano w ten sposób, by uzyskać ich maksymalne nałożenie, a zachodzące w tych obszarach zderzenia biegnących naprzeciw siebie protonów rejestrowano za pomocą teleskopów scyntylicyjnych przylegających do komór próżniowych obu pierścieni. Ponieważ średnia liczba cząstek naładowanych powstających przy zderzeniu dwu protonów o energii 15,3 GeV powinna być rzędu 8, a większość powstających cząstek wylatuje pod niewielkimi kątami w stosunku do linii zderzenia, zatem wydajność rejestracji zderzeń przeciwbieżnych protonów określono w tym układzie na 50%. Największa osiągnięta ilość zliczeń wyniosła 110 na sekundę, w sytuacji, gdy natężenie prądu protonów w jednym pierścieniu wynosiło 2,19 A, a w drugim 0,33 A. Tło zdarzeń przypadkowych w układzie koincydencyjnym oszacowano na 10%. Jak wiadomo, natężenie każdej wiązki planuje się doprowadzić do 20 A, ich maksymalną energię — do 28 GeV, a oczekiwaną liczbę zderzeń protonów ocenia się na  $1,6 \cdot 10^6$  na sekundę. W rezultacie w ślad za trzema czynnymi już urządzeniami posiadającymi zderzające się wiązki elektronów i pozytronów (w Nowosybirsku (ZSRR), Orsay (Francja) i Stanford (USA)) fizyka wielkich energii uzyskuje obecnie pierwsze urządzenie z przeciwbieżnymi wiązkami hadronów, pozwalające badać silne oddziaływania przy energii zderzenia w układzie środka mas, która przy nieruchomej tarczy wymagałaby uzyskania wiązki o energii laboratoryjnej rzędu 1500 GeV.

W. Majewski

### Obserwacja $\bar{\Omega}^-$

Jak wiadomo, odkrycie hiperonu  $\Omega^-$  przypieczętowało triumf oktetowej wersji symetrii SU(3) zaproponowanej w 1961 r. przez M. Gell-Manna i Y. Ne'emana. Gell-Mann przewidział w 1962 r. (podczas konferencji w CERN-ie) istnienie  $\Omega^-$  jako brakującej cząstki dekapletu barionów  $\Delta(1236)$ ,  $\Sigma(1385)$  i  $\Xi(1530)$  o spinie i parzystości  $J^P = 3/2^+$ . Już na następnej konferencji fizyki wielkich energii (w 1964 r. w Dubnej) N. P. Samios i 24 innych autorów z Brookhaven donieśli o znalezieniu dwu przypadków produkcji

i rozpadu cząstki  $\Omega^-$  (o masie ściśle takiej, jaką przewidywał dla niej wzór masowy Gell-Manna — Okubo), rozpadającej się na  $\Xi^0 + \pi^-$  i  $\Lambda^0 + K^-$ . Dotychczas znaleziono w sumie 28 przypadków hiperonu  $\Omega^-$  rozpadającego się, oprócz powyższych dwu kanałów, również na  $\Xi^- + \pi^0$ . Ostatnio grupa pracująca w SLAC (Stanford) doniosła (A. Firestone, G. Goldhaber, D. Lissauer, B. M. Sheldon, G. H. Trilling, *Phys. Rev. Letters*, **26**, 410 (1971)) o zaobserwowaniu pierwszego przypadku antyomegi  $\bar{\Omega}$  (antybarionu o dziwności +3). W doświadczeniach nad oddziaływaniem wiązki mezonów  $K^+$  o pędzie 12 GeV/c z deuterem, wykonywanych przy pomocy 82-calowej komory pęcherzykowej, zaobserwowano reakcję



Masę antyhiperonu  $\bar{\Omega}^-$  określono na  $1673,1 \pm \pm 1,0$  MeV, w doskonałej zgodzie z masą  $\Omega^-$  ( $1672,5 \rightarrow 0,5$  MeV). W ten sposób odkryto już wszystkie antycząstki znanych cząstek trwałych i półtrwałych (tzn. rozpadających się poprzez oddziaływania słabe lub elektromagnetyczne): mamy 3 cząstki istotnie obojętne (identyczne ze swoimi antycząstkami), 16 cząstek i 16 odpowiednich antycząstek.

W. Majewski

### Zastosowanie nadprzewodników do wyłączenia prądów

O. K. Mawardi w Stanach Zjednoczonych opatentował zastosowanie przejścia nadprzewodnika do stanu normalnego dla wyłączenia dużych prądów. W Los Alamos H. L. Laquer i David B. Montgomery w przemysłowo wytwarzanym nadprzewodniku Nb—Ti obserwowali czasy wyłączenia 200 nanosekund przy gęstościach prądu ponad  $10^6$  A/cm<sup>2</sup> w próbkach długości 10 cm. Czas wyłączenia jest ograniczony przez dyfuzję prądu, tzn. efekt naskórkowy.

M. Suffczyński

### Relatywistyczny wzór Bohra

Częstość  $\nu$  fotonu emitowanego w wyniku przeskoku elektronu w atomie ze stanu wzbudzonego  $S'$  o energii  $E'$  do innego stanu  $S$

o energii  $E$  wyraża się wzorem Bohra:  $h\nu = E' - E$ . Teoretyczne obliczenia energii  $E'$  i  $E$  przeprowadza się w układzie spoczynkowym atomu, skąd wynika, że  $\nu$  wyrażone tym wzorem jest częstością obserwowaną w układzie spoczynkowym atomu. Jednakże z zasady zachowania pędu wynika, że podczas emisji fotonu atom doznaje odrzutu. Niedawno J. L. Synge (*Nature*, **228**, 271 (1970)) rozważył wpływ tego odrzutu na częstość emitowanego fotonu. Zwrócił on uwagę na fakt, że w grę wchodzi tu dwa układy spoczynkowe atomu:  $S'$  i  $S$ , odpowiednio dla atomu znajdującego się w stanie  $S'$  i  $S$ . Traktując problem relatywistycznie Synge pokazał, że w przypadku emisji ( $S' \rightarrow S$ ) częstość  $\nu_r$  fotonu wyraża się wzorem

$$h\nu_r = \frac{m'^2 - m^2}{2m'} c^2, \quad (1)$$

gdzie  $m'$  i  $m$  oznaczają masy spoczynkowe atomu, odpowiednio, dla stanu  $S'$  i  $S$ . Różnica pomiędzy częstością  $\nu_r$  a częstością  $\nu$  obliczona z wzoru Bohra jest co prawda bardzo niewielka, ale może być zauważalna w przypadku, gdy w grę wchodzi bardzo duże dokładności. Według Synge'a względny błąd, jaki się popelnia przy zastosowaniu konwencjonalnego wzoru Bohra zamiast wzoru relatywistycznego (1), jest równy

$$\frac{\nu - \nu_r}{\nu} = \frac{h\nu}{2Mc^2} + O\left(\left(\frac{h\nu}{2Mc^2}\right)^2\right), \quad (2)$$

gdzie  $M$  jest sumą mas spoczynkowych cząstek tworzących dany atom w układzie  $S$ . Dla atomu wodoru (linia  $\lambda = 6560 \text{ \AA}$ ) błąd ten wynosi

$$\frac{\nu - \nu_r}{\nu} = 1,01 \times 10^{-9}.$$

Tak więc (dla wodoru) efekt odrzutu nie ma praktycznie znaczenia, jeśli dane spektroskopowe są z dokładnością do 8 znaków (jego wpływ może się objawić dopiero na 9 miejscu). Dyskusja Synge'a jest czysto kinematyczna. Rozważania dynamiczne przeprowadził ostatnio A. O. Barut (*Nature*, **230**, No 16, 180 (1971)) wskazując, że chociaż dla atomu wodoru efekt odrzutu jest praktycznie bez znaczenia, to może on mieć duże znaczenie dla innych układów (jądra, hadrony i in.).

J. Szudy

## Oddzielanie izotopów za pomocą lasera

W laboratoriach Aerospace Corp. w El Segundo w Kalifornii zastosowano z powodzeniem laser do rozdzielania izotopów. S. W. Mayer, R. W. F. Gross i D. J. Spencer użyli lasera fluorowodorowego (HF) wysokiej mocy (*Appl. Phys. Letters*, **16**, 384 (1970)) do oddzielenia metanolu ( $\text{H}_2\text{COH}$ ) od deuterometanolu ( $\text{D}_2\text{COD}$ ). Rozdzielanie obu izotopów następowało za pomocą selektywnego wzbudzania metanolu wiązką laserową, w wyniku czego metanol reagował z bromem (chodzi tu o reakcję:  $\text{H}_2\text{COH} + \text{Br}_2 \rightarrow 2\text{HBr} + \text{H}_2\text{CO}$ ). Duży stosunek mas obu izotopów powoduje znaczne różnice energii oscylacyjnych drobin metanolu i deuterometanolu. Wskutek tego monochromatyczna wiązka promieniowania laserowego o odpowiednio dobranej częstości może wywołać reakcję metanolu z bromem, natomiast pozostaje bez wpływu na deuterometanol. Metoda ta, chociaż na razie niezbyt ekonomiczna (otrzymanie miligrama deuterometanolu wymaga zużycia znacznie większej mocy niż metody konwencjonalne), prowadzi jednak do bardzo zachęcających wyników. Mianowicie, w wyniku wzbudzania laserem otrzymuje się mieszaninę zawierającą około 95% deuterometanolu i poniżej 5% metanolu (w mieszaninie pierwotnej oba składniki występowały w równych stosunkach) (*Appl. Phys. Letters*, **17**, 516 (1970)).

Koncepcja użycia lasera do oddzielania izotopów nie jest zresztą zupełnie nowa. Już na początku lat sześćdziesiątych A. L. Schawlow, H. W. Moos i W. B. Tiffuny zastosowali laser rubinowy do oddzielania izotopów bromu. Przeprowadzali oni selektywne wzbudzanie w mieszaninie  $\text{Br}^{79}$  i  $\text{Br}^{81}$ . Próba ta zakończyła się jednakże niepowodzeniem, prawdopodobnie dlatego, że po zakończeniu selektywnego wzbudzania izotopy z powrotem ulegały wymieszaniu.

J. Szudy

## Efekty nieliniowe dla promieni X

Badania zjawisk nieliniowych w optyce datują się od chwili wykrycia lasera i były dotychczas prowadzone dla światła widzial-



nego. Ostatnio P. Eisenberger i S. McCall z Bell Telephone Laboratories (*Phys. Rev. Letters*, 26, 684 (1971)) zaobserwowali efekty nieliniowe w zakresie częstości rentgenowskich. Na możliwość wykrycia tych efektów wskazywały ogłoszone wcześniej rozważania teoretyczne I. Freunda i B. F. Levine'a (*Phys. Rev. Letters*, 23, 854 (1969)). Eisenberger i McCall wykryli w zakresie rentgenowskim zjawisko analogiczne do optycznej konwersji parametrycznej. Przeprowadzili oni doświadczenie, w którym wykazali, że pojedynczy foton promieniowania X o częstości  $\omega_0$  padając na kryształ może wywołać jednoczesną emisję dwu fotonów X o częstościach  $\omega_1$  i  $\omega_2$  takich, że  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_0$ , przy czym kryształ jako całość doznaje odrzutu, tak że energia i pęd są zachowane. W doświadczeniu Eisenbergera i McCalla wiązka promieni X o energii 17 keV padała pod odpowiednim kątem na kryształ berylu. Analizowano w koincydencji emitowane promieniowanie dwu fotonów, każdy o energii 8,5 keV, w kierunku zgodnym z zachowaniem pędu; stwierdzono wydajność konwersji równą około  $10^{-8}$  (optyczne oscylatory parametryczne w zakresie widzialnym mają wydajność rzędu  $10^{-1}$ ). Największe trudności techniczne w tym doświadczeniu związane były z kwestią eliminacji tła wywołanego przez rozproszenie Comptonowskie. Eliminacja ta jest bezwzględnie konieczna w celu rozróżnienia fotonów konwersyjnych (8,5 keV) będących w koincydencji od przypadkowych fotonów tła o tej samej energii.

J. Szudy

#### Zmarł profesor I. E. Tamm

Igor Jewgieniewicz Tamm urodził się 8. VII. 1895 r.; dzieciństwo spędził w Jelisawietgradzie (obecnie Kirowograd), gdzie ukończył gimnazjum. Studiował w Edynburgu i Moskwie, następnie wykładał na prowincjonalnych uczelniach, a w latach 1924-1941 na Uniwersytecie Moskiewskim, gdzie kierował katedrą fizyki teoretycznej. Od 1934 r. był również kierownikiem Zakładu Fizyki Teoretycznej w Instytucie Fizyki im. Lebediewa Akademii Nauk ZSRR (FIAN).

W 1934 r. I. E. Tamm podał pierwszą teorię sił jądrowych, opartą na hipotezie wymiany między nukleonami par elektron-

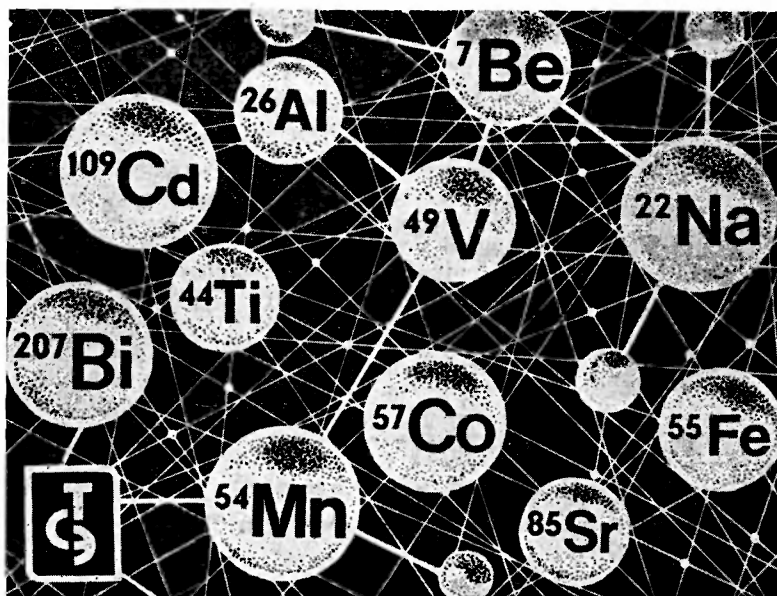
neutrino i wywodzącą się z teorii rozpadu  $\beta$  Fermiego. Oczywiście, siły te okazały się zbyt słabe, by mogły wytłumaczyć silne wiązanie nukleonów w jądrze, jednakże praca ta posłużyła pierwowzorem dla wielu późniejszych teorii oddziaływań jądrowych (już w rok później Yukawa wysunął swoją teorię z mezonem jako nośnikiem sił o właściwym zasięgu i wielkości). W latach 1936-1937 Tamm wspólnie z Frankiem wyjaśnił teoretycznie paradoksalne na pozór wyniki doświadczeń Czerenkowa nad świeceniem szybkich elektronów podczas ich przejścia przez ośrodki materialne. Praca ta przyniosła Tammowi największą sławę oraz nagrody: najpierw nagrodę państwową ZSRR, a w 1958 r. nagrodę Nobla, wspólnie z Czerenkowem i Frankiem. (Znalazł się on więc w zespole pierwszych fizyków radzieckich — laureatów nagrody Nobla; przypomnijmy, że jako następni otrzymali ją L. D. Landau w 1962 r. oraz N. G. Basow i A. M. Prochorow w 1963 r.). W latach powojennych I. E. Tamm zapoczątkował radzieckie prace teoretyczne nad reakcjami termojądrowymi, w szczególności nad reakcjami syntezy jąder w silnym polu magnetycznym; uznaniem Jego zasług w tej dziedzinie było m. in. przyznanie tytułu Bohatera Pracy Socjalistycznej. W tymże okresie prof. Tamm stał się autorem stosowanej potem w setkach publikacji przybliżonej metody opisu oddziaływań cząstek relatywistycznych, zwanej metodą Tamm-Dancoffa (Dancoff w USA zaproponował tę metodę niezależnie w 5 lat później). Kierowany przez niego zespół fizyków FIAN-u wydał w 1947 r. jedną z pierwszych w świecie monografii poświęconych cząstkom elementarnym, pt. *Mezon*. W ostatnich latach prof. Tamm pracował nad usunięciem rozbieżności występujących w kwantowej teorii pola na drodze kwantowania czasoprzestrzeni.

Członek Akademii Nauk ZSRR, prof. I. E. Tamm wychował dziesiątki fizyków odgrywających samodzielnie rolę w nauce radzieckiej; znany był ze swojego zaangażowania w sprawy społeczne. Już jako student był w 1917 r. delegatem I Zjazdu Rad w Piotrogradzie, u schyłku życia brał czynny udział w ruchu Pugwash. Zmarł 12 kwietnia 1971 r.

W. Majewski

V/K „TECHSNABEXPORT“

eksportuje izotopy, otrzymywane w cyklotronie:  
Be-7, Na-22, Al-26, Ti-44, V-48, V-49, Cr-51, Mn-52,  
Mn-54, Fe-55, Co-56, Co-57, Co-58, Sr-5, Cd-109,  
Bi-207 i inne.



# Techsnabexport

Izotopy dostarczane są w postaci wodnych roz-  
tworów soli bez nośnika o wysokiej czystości radio-  
chemicznej.

Katalogi wysyłane są na każde żądanie.

Nasz adres:

ZSRR, Moskwa, T-200

V/K „Techsnabexport“

Telefon: 244-32-85

Dalekopis: 239

POSTĘPY FIZYKI  
(dwumiesięcznik)

*Warunki prenumeraty czasopisma*

Prenumeratę na kraj przyjmują urzędy pocztowe, listonosze oraz Oddziały i Delegatura „Ruch“.

Można również dokonywać wpłat na konto PKO nr 4-6-777, Przedsiębiorstwo Upowszechnienia Prasy i Książki „Ruch“ w Krakowie, Al. Pokoju 5.

Prenumeraty przyjmowane są do 15 dnia miesiąca poprzedzającego okres prenumeraty.

Cena prenumeraty: półrocznie zł 45.—

rocznie zł 90.—

Prenumeratę na zagranicę, która jest o 40% droższa, przyjmuje Biuro Kolportażu Wydawnictw Zagranicznych „Ruch“, Warszawa, ul. Wronia 23, tel. 20-46-88, konto PKO nr 1-6-100024.

Egzemplarze numerów zdezaktualizowanych można nabywać w Przedsiębiorstwie Upowszechnienia Prasy i Książki „Ruch“ w Krakowie, Al. Pokoju 5, konto PKO nr 4-6-777.

Bieżące numery można nabywać lub zamówić w księgarniach „Domu Książki“ oraz w Ośrodku Rozpowszechniania Wydawnictw Naukowych Polskiej Akademii Nauk — Wzorcownia Wydawnictw Naukowych PAN — Ossolineum — PWN, Warszawa. Pałac Kultury i Nauki (wysoki parter).

Tylko prenumerata zapewnia regularne otrzymywanie czasopisma

## TREŚĆ

V. F. Weisskopf — Trzy stadia badania struktury materii ( <i>tłum. A. Buras</i> )	303
J. Jastrzębski — Separacja izotopów na wiązce . . . . .	315
S. Kielich — Wytwarzanie harmonicznych światła i mieszanie częstości wiązek laserowych . . . . .	349
M. Święcička — Ramanowska spektroskopia półprzewodników . . . . .	387
L. Kowalczyk — Zastosowanie techniki laserowej do badań półprzewodników	407
A. Kawski — Niektóre aktualne zagadnienia związane z relaksacją stanów wzbudzonych drobin organicznych w roztworach . . . . .	419
K. Brudzewski — Piezoodbicie . . . . .	429

## ZE ZJAZDÓW I KONFERENCJI

V. Weidemann — Piąte Sympozjum Astrofizyki Relatywistycznej w Austin ( <i>tłum. B. Kuchowicz</i> ) . . . . .	435
--	-----

## RECENZJE

I. Adamczewski — Ionization, conductivity and breakdown in dielectric liquids ( <i>O. Gzowski</i> ) . . . . .	441
G. Schmidt — Kerneenergie, Fakten und Prognosen für Industrie und Wirtschaft, Medizin, Technik und Forschung ( <i>I. Stronński</i> ) . . . . .	443

## KRONIKA

## CONTENTS

V. F. Weisskopf — Three Steps in the Structure of Matter . . . . .	303
J. Jastrzębski — On-Line Isotope Separation . . . . .	315
S. Kielich — Optical Harmonics Generation and Laser Light Frequency Mixing	349
M. Święcička — Raman Scattering in Semiconductors . . . . .	387
L. Kowalczyk — Application of the Laser Technics to the Investigation of Semiconductors . . . . .	407
A. Kawski — Some Problems Associated with the Relaxation of Excited States of Organic Molecules in Solutions . . . . .	419
K. Brudzewski — Piezoreflectance . . . . .	429

## REVIEWS OF BOOKS

## CHRONICLE