

Ф - 918

1-81-418

**ФРОНТАСЬЕВА  
Марина Владимировна**

**ИССЛЕДОВАНИЕ  
ДЕПОЛЯРИЗАЦИИ ОТРИЦАТЕЛЬНЫХ МЮОНОВ  
В ОРГАНИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ**

**Специальность 01.04.16 - физика атомного ядра  
и элементарных частиц**

**Автореферат диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук**

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований.

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук В.С.Евсеев.

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук В.П.Шантарович,

кандидат физико-математических наук Э.В.Таммет.

Ведущее научно-исследовательское учреждение: Научно-исследовательский институт ядерной физики МГУ, Москва.

Защита диссертации состоится " " \_\_\_\_\_ 1981 г.  
в \_\_\_\_\_ часов на заседании Специализированного совета Д-047.01.03 при Лаборатории ядерных проблем Объединенного института ядерных исследований, г.Дубна Московской области.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан " " \_\_\_\_\_ 1981 г.

Ученый секретарь Специализированного совета  
доктор физико-математических наук

Д.А.Батусов

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы. При остановке отрицательных мюонов в различных средах образуются экзотические атомы, электронная оболочка которых сходна с оболочкой атомов, обладающих зарядом ядра, на единицу меньшим, чем атомы среды. В процессе образования мезоатома мюон сохраняет часть первоначальной поляризации и в связанном состоянии распадается с определенной вероятностью. Таким образом, в среде имеется "меченый" атом, о взаимодействии которого со средой можно судить по остаточной поляризации мюона в момент его распада. Благодаря этому обстоятельству (а также некоторым специфическим свойствам других элементарных частиц) возникло новое научное направление - мезонная химия.

В настоящее время теоретические и экспериментальные исследования деполяризации отрицательных мюонов посвящены изучению деполяризации в изолированных мезоатомах, а также изучению различных механизмов взаимодействия мезоатомов со средой.

Исследование деполяризации отрицательных мюонов при взаимодействии мезоатомов со средой представляет интерес с точки зрения как понимания процесса деполяризации, так и возможности разработки принципиально новых методов для изучения быстрых химических и физических процессов, недоступных другим методам исследования.

В работе описываются эксперименты, выполненные за период с 1971 по 1979 год на синхротронной установке ЛЯП ОИЯИ, по исследованию деполяризации отрицательных мюонов при их остановке в веществе.

Цель работы. Настоящая диссертация посвящена экспериментальной проверке некоторых положений теории деполяризации отрицательных мюонов в мезоатомах, определению абсолютных скоростей вступления мезоазота и мезобора в химические реакции в различных средах, а также изучению деполяризации в широком классе органических соединений и выявлению зависимости остаточной поляризации мюонов от макроскопических характеристик вещества, в котором происходит остановка мюонов.

Научная новизна и практическая ценность. Получен целый ряд новых научных результатов. К основным из них относятся наблюдение эффекта Пашена-Бака, установление вклада надтепловых реакций мезоатомов и трековых эффектов в химию мезоатомов и мюония, измерение предельно большого значения скорости химических реакций мезоатомов с молекулами стабильного нитроксильного радикала, изучение зависимости степени деполаризации от длины цепи алифатических спиртов, хлоралкилов и парафинов, установление корреляции между остаточной поляризацией и индукционной константой Гаммета-Тафта замещенных ароматических соединений. Интересным представляется эксперимент, содержащий попытку обнаружения стабильных радикалов в живом организме. Это исследование должно быть продолжено с использованием других, более чувствительных методов измерения остаточной поляризации мюонов ввиду его большой важности для экспериментальной и клинической медицины.

Апробация работы. Результаты настоящей диссертации докладывались и обсуждались на семинарах Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ, а также докладывались на Международной конференции по физике высоких энергий и структуре ядра в Санта-Фе в США в 1975 году и на Международном симпозиуме по проблемам мезонной химии и мезомолекулярных процессов в Дубне в 1977 году.

Публикации. Результаты, вошедшие в диссертацию, опубликованы в восьми работах.

Объем работы. Диссертация состоит из введения, пяти глав и заключения; она содержит 106 страниц, 21 рисунок, 11 таблиц и библиографический список из 98 названий.

#### СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении кратко описано современное состояние экспериментальных и теоретических исследований процесса деполаризации отрицательных мюонов при их остановке в различных средах и сформулирована задача диссертации.

В первой главе диссертации рассматривается процесс деполаризации отрицательных мюонов как в изолированном мезоатоме, так и в мезоатоме, взаимодействующем со средой.

По современным представлениям мюон захватывается на высоковозбужденные уровни атома, затем совершает электрические дипольные переходы на более глубокие уровни, вплоть до К-оболочки мезоатома. Эти переходы сопровождаются испусканием оже-электронов или радиационных (мезорентгеновских)  $\gamma$ -квантов. Мюон в IS-состоянии находится примерно в 200 раз ближе к ядру атома, чем его электронная К-оболочка, по-

скольку масса мю-мезона больше массы электрона примерно в 200 раз. Таким образом, мюон экранирует заряд ядра атома, уменьшая его на единицу, и конфигурация электронной оболочки получающегося атома, именуемого мезоатомом, соответствует элементу с  $Z - 1$ . Так, например, при захвате мезона кислородом образуется мезоазот  ${}^{\mu}N$ , а при захвате углеродом - мезоуглерод  ${}^{\mu}C$ .

Поскольку мезон является нестабильной частицей, он распадается по схеме  $\mu^{\pm} \rightarrow e^{\pm} + \bar{\nu}_{\mu} (\nu_{\mu}) + \nu_e (\bar{\nu}_e)$  и о поляризации мюонов в момент распада в IS-состоянии можно судить по асимметрии углового распределения электронов распада, которая обусловлена нарушением пространственной четности в слабых взаимодействиях. Образующиеся мюоны полностью поляризованы - их спины ориентированы вдоль направления движения мюонов. При торможении до скоростей, при которых происходит захват мюонов атомами, потеря ими поляризации незначительна. Поскольку оператор дипольных переходов не действует на спиновую переменную мю-мезона, на первый взгляд, мезон должен достигать IS-состояния полностью поляризованным. И если нет причин для потери поляризации в IS-состоянии до момента распада мюона, коэффициент асимметрии углового распределения электронов  $\mu^- \rightarrow e^-$ -распада, согласно теории слабых взаимодействий Ферми-Теллера, должен быть равен  $a = 1/3 P_0$ , где  $P_0$  - начальная поляризация пучка. Такая ситуация имеет место для положительных мюонов, но уже первые эксперименты с отрицательными мюонами показали, что для них коэффициент асимметрии значительно меньше ожидаемого.

Это обстоятельство в настоящее время объясняется следующим образом. При достижении мюоном уровня, характеризующегося квантовыми числами  $n_0, l_0, j_0$ , ширина которого меньше, чем расстояние между уровнями тонкого расщепления  $\Gamma \ll \Delta$ , происходит потеря поляризации, обусловленная спин-орбитальным взаимодействием мюона  $1/I$ . Деполаризация при каскадных переходах из возбужденного состояния с  $n_0, l_0, j_0$  в основное состояние происходит по той же причине - из-за спин-орбитального взаимодействия мюона. Потери поляризации в основном IS-состоянии обусловлены сверхтонким взаимодействием: взаимодействием спина отрицательного мюона в IS-состоянии с моментом электронной оболочки атома, а в атомах, ядра которых обладают магнитным моментом, - и с магнитным моментом ядра. Гамильтониан такого взаимодействия имеет вид

$$\mathcal{H} = A \vec{I} \vec{I} + B \vec{J} \vec{J} + G \vec{I} \vec{J} \quad (1)$$

здесь A, B, G - константы сверхтонкого взаимодействия,  $\vec{I}, \vec{J}, \vec{S}$  - соответственно спины ядра, электронной оболочки и мюона. (Далее будут рассматриваться случаи, когда  $I=0$ ).

При захвате мюона атомами любых элементов (за исключением щелочных металлов) электронная оболочка образующихся мезоатомов парамагнитна, поэтому если спин мезона в  $1S$ -состоянии взаимодействует с моментом электронной оболочки, асимметрия на частоте прецессии свободного спина в поперечном магнитном поле должна быть равна нулю. Поскольку спин мюона в поперечном магнитном поле будет прецессировать вместе с полным моментом электронной оболочки, частота прецессии полного момента будет в сто раз больше, чем частота прецессии свободного спина мюона. Какова же причина наблюдения асимметрии на частоте прецессии свободного спина мюона? Это возможно только в том случае, если мезоатом за время  $\leq t = 1/\nu$  ( $\nu$  - частота сверхтонкого взаимодействия) компенсирует парамагнетизм электронной оболочки, что возможно при вступлении мезоатома в быструю химическую реакцию. В этом случае наблюдаемая остаточная поляризация будет зависеть от скорости вступления мезоатома в химическую реакцию с образованием диамагнитного соединения.

Кроме того, имеет место "кажущаяся" деполяризация в  $1S$ -состоянии, которая является следствием использования метода прецессии спина мюона в слабых магнитных полях. Из-за того, что мезоатом может компенсировать парамагнетизм электронной оболочки в разные моменты времени, вступая в химические реакции, прецессия на частоте свободного спина имеет различные фазы, а это приводит к уменьшению наблюдаемой асимметрии.

К потере поляризации мюона приводит также "медленная" деполяризация, происходящая в результате релаксации спина мюона, которая обусловлена неоднородностью магнитных полей среды.

Во второй главе описана экспериментальная установка, процедура измерений и обработки экспериментальных данных.

На рис. 1 представлена схема установки для измерения коэффициента асимметрии углового распределения электронов  $\mu^- - e^-$ -распада.

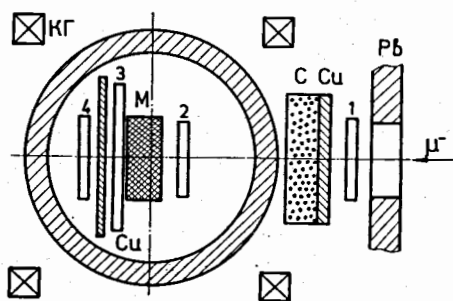


Рис. 1. Схема установки для измерения коэффициента асимметрии углового распределения электронов  $\mu^- - e^-$ -распада. 1, 2, 3, 4 - сцинтилляционные счетчики; КГ - кольца Гельмгольца; С и Cu - углеродный и медный фильтры-замедлители.

Мюоны проходят сцинтилляционные счетчики 1 и 2 и останавливаются в мишени. Регистрация события счетчиками 1 и 2 при отсутствии совпадений в счетчиках 2 и 3 вызывает импульс, запускающий время-амплитудный конвертор ("мю-пуск"). Электроны при распаде мюона в мишени проходят счетчики 3 и 4, вызывая при отсутствии совпадений в счетчиках 2 и 3 сигнал "е-стоп". Медный фильтр между счетчиками 3 и 4 необходим для исключения регистрации электронным телескопом  $\gamma$ -квантов от ядерного мю-захвата.

Использование поперечных магнитных полей (в экспериментах применялись поля порядка 50 - 100 Э) приводит к модулированию экспоненциальной кривой распада ларморовой прецессией спина мюона. Характерная прецессионная кривая, полученная с учетом поправки аппаратного спектра на экспоненту, представлена на рис. 2.

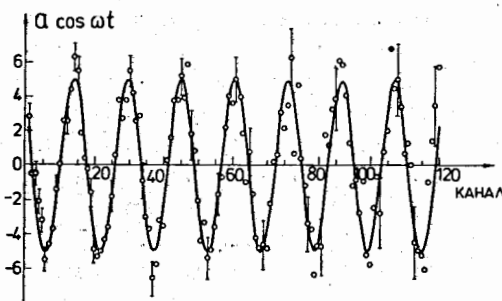


Рис. 2. Кривая прецессии спина мюона при измерениях на графите.

$H_1 = 120$  Э, ширина канала - 39нс. Число остановок мюонов  $\sim 10^7$ .

В методической части работы подробно описана схема электроники, процедура компенсации магнитных полей зала синхротронного ускорителя, процедура компенсации магнитных полей зала синхротронного ускорителя в объеме расположения мишени, мишени и вещества, которые использовались в экспериментах, методика работы при низких температурах: температуре жидкого азота 77 °К и температуре жидкого гелия 4 °К с использованием гелиевого криостата, специально сконструированного для наших экспериментов.

Обработка экспериментальных данных проводилась по формуле

$$N_e(t) = N_1(0) \exp(-t/\tau) [1 + Q \exp(-t/\tau_{\text{рел}}) \cos(\omega t + \theta)] + C, \quad (2)$$

$Q$  - экспериментально определяемое значение коэффициента асимметрии электронов распада;  $N_e(t)$  - число зарегистрированных электронов в момент времени  $t = n \cdot \Delta t$  ( $n$  - номер канала, отсчитываемый от нуля времени,  $\Delta t$  - ширина канала);  $N_1(0)$  - число электронов в нулевом канале анализатора (при  $Q=0$ );  $\omega$  - частота прецессии;  $\theta$  - начальная фаза, определяемая геометрией установки;  $\tau$  - время жизни мюона в мезоатоме;  $\tau_{\text{рел}}$  - время "медленной" релаксации спина мюона;  $C$  - фон случайных

совпадений. Расчет параметров проводился на ЭВМ СДС-6500 методом наименьших квадратов с использованием стандартной библиотечной программы ОИЯИ FUMILI /3/.

В экспериментально определяемое значение коэффициента асимметрии вводились поправки, учитывающие неэквивалентность энергетического спектра электронов  $\mu^- - e^-$ -распада, вылетающих из мишеней различной

толщины (относительно толщины эталонной графитовой мишени), и вклад электронов  $\mu^- - e^-$ -распада, вылетающих из счетчика 2. Для определения зависимости вклада электронов распада, вылетающих из счетчика, от толщины мишени для разных  $Z$  были проведены специальные калибровочные измерения (рис.3).

В диссертации приводятся результаты анализа экспериментальных ошибок и обсуждается статистическая достоверность результатов. Для исследуемых нами мишеней разной толщины при стандартной экспозиции  $10^7$  остатков мюонов ошибка в определении коэффициента асимметрии, получаемая при обработке на ЭВМ, составляла  $\Delta Q = (0,14 \pm 0,35)\%$ . (Интервал ошибок определяется вкладом посадок мюонов на соответствующую компоненту мишени).

Проверка вероятностного характера расхождений значений параметров от сеанса к сеансу измерений осуществлялась по критерию  $\chi^2$ . Анализ полученных значений  $\chi^2$  всей совокупности спектров показывает, что максимум распределения соответствует числу степеней свободы  $\mathcal{X}$ , а дисперсия

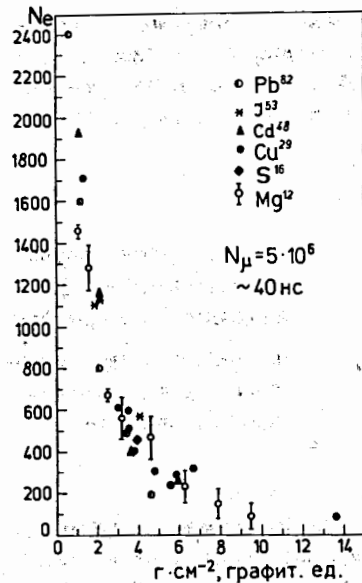


Рис.3. Зависимость вклада электронов  $\mu^- - e^-$ -распада, вылетающих из счетчика 2, от толщины мишени для разных  $Z$ .

Толщина мишеней выражена в единицах эквивалентной тормозной способности толщины графита.

близка к теоретическому значению  $\sqrt{2\mathcal{X}}$  для нормального распределения.

В третьей главе представлены результаты экспериментальных исследований, посвященных проверке некоторых современных представлений о деполяризации отрицательных мюонов в IS-состоянии мезоатомов и при взаимодействии мезоатомов со средой.

Исследована температурная зависимость остаточной поляризации в воде в широком интервале температур: от температуры жидкого гелия до температуры кипения воды. Как уже отмечалось, наблюдение асимметрии углового распределения электронов  $\mu^- - e^-$ -распада на частоте свободного спина мюона возможно благодаря вступлению мезоатома в химическую реакцию с образованием диамагнитных продуктов. Так как скорость вступления в химическую реакцию зависит от температуры среды, то наблюдение температурной зависимости однозначно свидетельствует в пользу справедливости того положения, что потери поляризации в основном IS-состоянии обусловлены сверхтонким взаимодействием - взаимодействием спина мюона в IS-состоянии с моментом электронной оболочки атома.

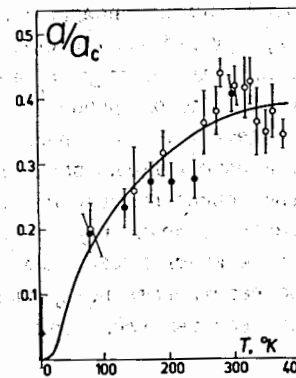


Рис.4. Температурная зависимость остаточной поляризации (относительно остаточной поляризации в графите) от температуры  $T$ . Как видно из рисунка, температурная зависимость имеет насыщающийся характер и достаточно хорошо описывается формулой, которая следует из феноменологической теории деполяризации отрицательных мюонов:

$$\frac{a}{a_c} = \frac{a_0 \lambda}{a_c \lambda_0} \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{Q}{\nu_0}\right)^2}} \left[ Q + (1 - Q) \operatorname{th} \frac{\lambda_0}{2\nu} \right], \quad (3)$$

здесь  $Q_0$  - значение коэффициента асимметрии к концу мезоатомного каскада до начала действия механизма парамагнитной деполяризации;  $1 - Q$  - доля поляризации, теряемая из-за сверхтонкого взаимодействия в IS-состоянии мезоатома при отсутствии причин, прекращающих действие этого механизма за время  $\approx 1/\nu$ ;  $\lambda_0$  - скорость химической реакции мезоатома с окружающей средой, которая связана с температурой соотношением (закон Аррениуса)

$$\lambda_0 = \Lambda \left(\frac{T}{300}\right)^m \exp(-E_{\text{акт}}/kT), \quad (4)$$

где  $E_{\text{акт}}$  - энергия активации и  $k$  - постоянная Больцмана,  $\Lambda$  - предэкспоненциальный множитель, показатель степени  $m$  равен единице, так

как предполагается, что реакции мезоатома описываются теорией химических реакций в конденсированной фазе, лимитируемых диффузией<sup>5/</sup>.

На основе полученных экспериментальных данных определена скорость вступления мезоазота в химическую реакцию в воде:  $\lambda_0 = (1,9 \pm 0,7) 10^{10} \text{ с}^{-1}$ .

Следует отметить, что мы имеем 30%-ную ошибку, в то время как другие методы определения скоростей дают значительно большую величину ошибки.

Впервые наблюден эффект Пашена-Бака - восстановление поляризации в мезоатомах кислорода (вода) и углерода (стирол и дифенил) в сильных продольных магнитных полях. Этот эксперимент проводился на установке<sup>6/</sup> с использованием сильноточных магнитов. Из оценок работ<sup>7/</sup> следует, что при полях  $10^2 \div 10^4$  Э может наблюдаться разрыв связи спина мюона с моментом электронной оболочки, и потери поляризации в IS-состоянии из-за сверхтонкого взаимодействия спина мюона с моментом электронной оболочки атома (если электронная оболочка парамагнитна), а также "кажущаяся" деполяризация не должны иметь места. Асимметрия, измеряемая в этих условиях, будет соответствовать поляризации мюона к моменту перехода в IS-состояние после восстановления электронной оболочки.

В таблице I приведены значения величины остаточной поляризации (по отношению к величине остаточной поляризации в графите), полученные в измерениях при различных значениях продольного по отношению к спину мюона магнитного поля.

Таблица I

Значения  $a/a_c$  при различных значениях H для воды, стирола и дифенила

Мишень	$a/a_c$			
	$H_{  } = 0$	$H_{  } = 0,12 \text{ кЭ}$	$H_{  } = 1 \text{ кЭ}$	$H_{  } = 5,45 \text{ кЭ}$
Вода	$0,40 \pm 0,02$	-	$0,37 \pm 0,05$ / II /	$0,80 \pm 0,07$
Стирол	$0,47 \pm 0,02$	$0,57 \pm 0,03$	-	$0,92 \pm 0,13$
Дифенил	$0,14 \pm 0,015$	$0,22 \pm 0,07$	-	$0,76 \pm 0,14$

Как видно из таблицы I, имеет место существенное увеличение  $a/a_c$  с ростом продольного магнитного поля.

На основе полученных результатов сделано заключение, что, действительно, деполяризация мюона после попадания в IS-состояние обусловлена сверхтонким взаимодействием спина мюона с магнитным моментом электронной оболочки мезоатома, которая имеет неспаренный электрон.

Определено локальное внутреннее магнитное поле, создаваемое моментом электронной оболочки в области мюона, находящегося в IS-состоянии. Полученное нами значение  $H_0$  для воды ( $3,0 \pm 1,2 \text{ кЭ}$ ) не противоре-

чит тому, которое можно было бы ожидать по теоретическим расчетам для парамагнитных соединений, в которых неспаренные электроны локализованы вблизи мезоатома.

Впервые сделана экспериментальная оценка вклада горячих реакций мезоатомов и мюония и обсуждается роль трековых эффектов. Показано, что вклад надтепловых реакций мезоатомов незначителен, а в случае положительных мюонов вклад взаимодействий с треком не превышает  $10^{-4}$  от всех реакций мюония.

В четвертой главе описаны эксперименты, в которых определяются абсолютные скорости химических реакций мезоазота и мезобора в различных средах. Из формулы (3) следует, что имеется соответствие между скоростью химической реакции мезоатома и экспериментально измеряемым коэффициентом асимметрии углового распределения электронов  $\mu^- - e^-$  распада. Скорость взаимодействий (приводящих к образованию диамагнитных и парамагнитных продуктов) может быть определена по изменению поляризации при варьировании концентрации конкурирующих веществ - так называемым методом конкурирующих акцепторов.

В настоящих и ранее выполненных экспериментах было установлено, что скорости реакций мезоазота и мезобора отличаются примерно на порядок. Для детального исследования различий в химии атомарного азота и бора необходимо было измерить скорости реакций  $\mu^- N$  и  $\mu^- B$  с одной и той же молекулой (или группой атомов) в условиях, когда другие факторы, определяющие протекание реакций, являются одинаковыми. Такая возможность реализуется, если изучать взаимодействие  $\mu^- N$ , возникающего при остановке мюона в водном растворе стабильного нитроксильного радикала R, и взаимодействие с этим же радикалом мезобора, образующегося в бензольном растворе радикала (рис.5).

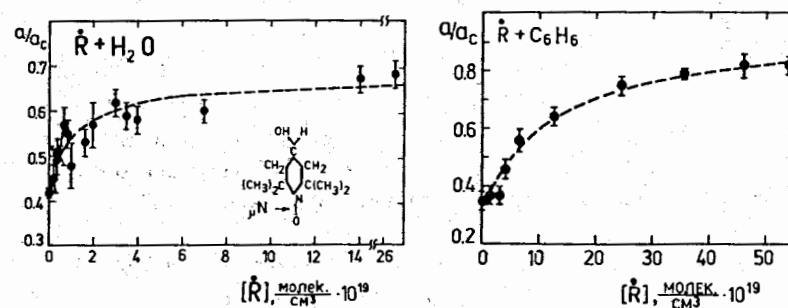


Рис.5. Зависимость остаточной поляризации  $a/a_c$  отрицательных мюонов от концентрации стабильного нитроксильного радикала ( $\dot{R}$ ) в воде и бензоле. (Кривые соответствуют минимуму  $\chi^2$ ).

Нелинейный рост величины остаточной поляризации с увеличением молярной концентрации растворимого вещества означает, что мезоатом вступает в быструю химическую реакцию с образованием диамагнитного соединения, конкурирующую с реакциями, протекающими в растворителе, где реакции мезоатомов с молекулами энергетически подавлены. В водном растворе радикала наблюдается уже заметное увеличение  $a/a_c$  при относительной молярной концентрации  $10^{-4}$ . Это может быть связано с протеканием быстрой химической реакции  $\mu N + \cdot N - O \rightarrow \mu N - N - O$ . В бензольном растворе, где образуется мезобор, аналогичное увеличение  $a/a_c$  имеет место при существенно больших концентрациях стабильного радикала. На основе этих двух экспериментов получено отношение скоростей мезоазота и мезобора, которое  $\geq 12$ .

Совокупность данных по деполаризации отрицательных мюонов позволяет предположить, что исследуемая реакция мезоатома углерода с молекулой нитроксильного стабильного радикала представляет собой результат взаимодействия  $\mu B$  с радикальным центром  $\cdot N - O$  с образованием диамагнитного соединения  $\mu N - \mu B = 0$ ; а взаимодействием с остальными группами молекулы стабильного радикала H, CH<sub>3</sub>, OH можно пренебречь.

С целью проверки последнего допущения были выполнены эксперименты на бензольных растворах триацетонамина и метилциклогексанола (рис.6.), являющихся в известном смысле аналогами стабильного нитроксильного радикала. Было показано, что мезоазот и мезобор взаимодействуют в основном с радикальным центром.

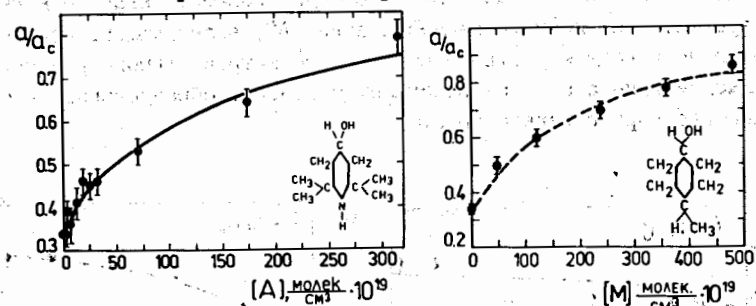


Рис.6. Зависимость остаточной поляризации  $a/a_c$  отрицательных мюонов от концентрации триацетонамина (А) и метилциклогексанола (М) в бензоле. (Кривые соответствуют минимуму  $\chi^2$ ).

Обработка концентрационных зависимостей проводилась по формуле

$$\frac{a}{a_c} = \frac{a_0 \lambda_1}{a_c \lambda_{01}} \frac{1 + \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \frac{N_1}{N_2} - 1 \right) [K]}{1 + \left( \frac{\lambda_{02}}{\lambda_{01}} \frac{N_1}{N_2} - 1 \right) [K]}, \quad (5)$$

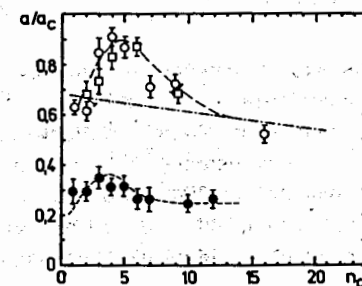
где  $a_0$  - коэффициент асимметрии электронов распада мюонов после завершения мезоатомного каскада;  $N_1$  и  $N_2$  - количество молекул в литре растворителя и исходного растворимого вещества;  $\lambda_1$  и  $\lambda_2$  - скорости реакций мезоатома с образованием диамагнитных продуктов при 100%-ных концентрациях растворителя и растворимого вещества;  $\lambda_{01}$  и  $\lambda_{02}$  - скорости всех реакций мезоатома;  $[K]$  - относительная молярная концентрация растворимого вещества.

Изучена концентрационная зависимость остаточной поляризации отрицательных мюонов в смеси четыреххлористого углерода и бензола. В радиационной химии исследованию этой модельной системы посвящено много работ с точки зрения воздействия ионизирующих излучений на смеси ароматических соединений с другими веществами<sup>8/</sup>. Более быстрый (по сравнению с рассчитанным в предположении отсутствия химических реакций) рост  $a/a_c$  с концентрацией  $CCl_4$  в растворе бензола позволяет считать, что имеет место вступление мезобора в химические реакции и что электронная оболочка мезобора к моменту его вступления в химическую реакцию в основном парамагнитна<sup>9/</sup>. Анализ концентрационной зависимости проводился при двух крайних предположениях о роли радикалов, образующихся при передаче энергии между компонентами смеси.

Пятая глава посвящена выявлению закономерностей деполаризации в зависимости от особенностей строения молекул.

Нами исследовался вопрос о связи деполаризации отрицательных мюонов с процессом внутримолекулярной миграции энергии<sup>10/</sup>. Измерена величина  $a/a_c$  в насыщенных углеводородах: алифатических спиртах ( $C_n H_{2n+1} OH$ ), хлоралкилах ( $C_n H_{2n+1} Cl$ ) и парафинах ( $C_n H_{2n+2}$ ) при комнатной температуре, а для ряда соединений и при температуре жидкого азота (рис.7).

Рис.7. Зависимость относительной остаточной поляризации в спиртах и хлоралкилах от длины цепи  $n_C$ .  $\square$  - спирты и  $\square$  - хлоралкилы при комнатной температуре;  $\circ$  - спирты при температуре жидкого азота. Штрих-пунктирная линия соответствует ходу зависимости  $a/a_c$  от длины цепи  $n_C$  в парафинах.



Зависимость  $a/a_c$  от длины цепи углеродных атомов в спиртах и хлоралкилах объясняется с помощью структурных  $^{11}$ , а не кинетических факторов. Если такой подход верен, то следовало бы ожидать подобного хода зависимости  $a/a_c$  от длины цепи углеродных атомов и при температуре жидкого азота. Полученные нами данные для спиртов (рис.7, нижняя кривая) не противоречат такому объяснению.

На основании совокупности экспериментальных результатов и развитых нами представлений о поведении мезоатомов в среде оценено значение радиуса зоны химического взаимодействия мезобора:  $5 \text{ \AA} \leq r_{\text{х.р.}} \leq 30 \text{ \AA}$ .

Ранее была установлена  $^{12}$  зависимость  $a/a_c$  от выхода радикалов  $G_R$  на 100 эВ поглощенной энергии для некоторых производных бензола. Мы продолжили эти исследования и установили, что всю совокупность данных по  $a/a_c$  для этих соединений невозможно описать только зависимостью от  $G_R$ . Поэтому нами были предприняты поиски других молекулярных параметров, от которых зависят измеренные нами величины  $a/a_c$ . Наиболее просто интерпретируемой представляется корреляция  $a/a_c$  с индукционными константами Гаммета-Тафта  $\sigma_I$  (рис.8).

Хорошо известно, что целый ряд молекулярных параметров, в том числе и реакционная способность молекулы, зависит от индукционных констант Гаммета-Тафта заместителей  $\sigma_I$  (в нашем случае заместителя атома водорода в бензоле), что отражает характер перераспределения плотности электронов связи С-Н при введении в молекулу электроноакцепторных или электронодонорных заместителей.

Впервые обнаружена заметная релаксация спина положительных и отрицательных мюонов в стабильном нитроксильном радикале и триацетонамине (таблица 2).

На рис.9 в качестве примера приведены экспериментальные данные, полученные при измерении коэффициента асимметрии электронов  $\mu^- - e^-$ -распада при остановке положительных мюонов в стабильном нитроксильном радикале (77 °К).

Полученные результаты интерпретируются на основе представлений о влиянии на спин мюона, стабилизированного в пространстве в результате вхождения мезоатома в диамагнитное состояние, колебательных движений окружающих мезоатом радикалов.

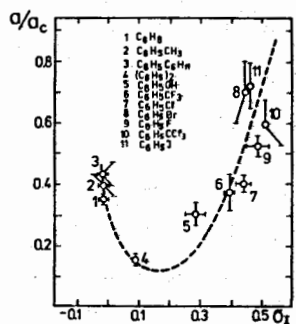


Рис.8. Зависимость  $a/a_c$  от индукционной константы Гаммета-Тафта  $\sigma_I$  для производных бензола. Кривая проведена по экспериментальным точкам с учётом их ошибки.

Таблица 2.

Время релаксации спинов положительного и отрицательного мюонов в стабильном нитроксильном радикале и триацетонамине при температуре 300 и 77 °К. Нижний предел для триацетонамина определен на уровне достоверности 66%

Мюон	Мишень	300 °К	$T_p$ , мкс	77 °К
$\mu^+$	Радикал	$10,5^{+7,0}_{-1,7}$		$6,4 \pm 0,5$
	Триацетонамин	9		$4,2 \pm 0,5$
$\mu^-$	Радикал	$6,3 \pm 0,7$		$2,2 \pm 0,2$
	Триацетонамин	$3,6 \pm 0,4$		$1,2 \pm 0,2$

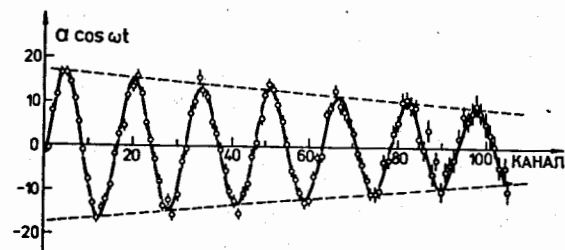


Рис.9. Кривая прецессии спина положительных мюонов в стабильном нитроксильном радикале при температуре жидкого азота.  $H_I = 120 \text{ Э}$ , ширина канала - 39 нс,  $Q = a \exp(-t/\tau_{\text{рел.}})$ .

Следует отметить, что во всех других органических соединениях, радиолиз которых не сопровождается образованием относительно долгоживущих радикалов, при обработке прецессионных кривых уменьшения амплитуды прецессии спина мюона не наблюдалось.

И, наконец, последний эксперимент: поиск метастабильных радикалов в живых организмах.

Известна роль свободных радикалов в злокачественных новообразованиях  $^{13}$ . Для онкологии представляет большой интерес метод измерения количества радикалов в различных тканях и органах, не требующий выделения образцов тканей и к тому же не представляющий опасности переоблучения живого организма. Эксперименты по изучению зависимости  $a/a_c$  от концентрации стабильного нитроксильного радикала в воде, где заметное увеличение асимметрии углового распределения наблюдалось уже при  $10^{18}$  радикалов/грамм, послужили основанием для проведения экспериментов по обнаружению свободных метастабильных радикалов в организме белой крысы линии Вистар путем сравнения остаточной поляризации мю-



нов при их остановке в живой и мёртвой крысе. Метастабильные радикалы в живых организмах ассоциируются с семихинонами  $\cdot O \rightleftharpoons O \cdot$  /14/, которые по структуре близки к использованному нами ранее нитроксильному радикалу. В этом эксперименте использовались как отрицательные, так и положительные мюоны. В результате был определен верхний предел количества стабильных радикалов, который составил  $\leq 10^{18}$  радикалов/грамм. По литературных данным, полученным при измерениях методом ЭПР, в метаболизирующих тканях содержится не менее  $10^{17}$  радикалов/грамм. Однако эти данные получены в выделенных образцах тканей (in vitro) и не исключено, что в процессе изготовления и замораживания образцов часть радикалов теряется. По существующей методике измерений in vivo можно подойти к пределу  $3 \cdot 10^{17}$  радикалов/грамм при увеличении времени набора статистики в 10 раз. Можно полагать, что совершенствование методики экспериментов позволит продолжить эти исследования.

#### ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Измерена температурная зависимость коэффициента асимметрии электронов  $\mu^- - e^-$ -распада в воде в интервале температур от 4 °К до 373 °К и определена скорость вступления мезоазота в химическую реакцию в воде точнее, чем это было сделано ранее.
2. На основе анализа процесса захвата отрицательных мюонов сделано заключение, что вклад надтепловых реакций мезоатомов несуществен. Результаты, относящиеся к конкретным соединениям (вода, стабильный нитроксильный радикал), подтверждают данное заключение. В случае положительных мюонов показано, что вклад взаимодействий мюония с треком не превышает  $10^{-4}$  от всех реакций мюония.
3. Впервые наблюдалось восстановление поляризации отрицательных мюонов в сильных продольных магнитных полях при их остановке в дифениле, стироле и воде. На основании полученных результатов сделано заключение, что, действительно, дальнейшая деполяризация мюона после попадания в IS-состояние обусловлена сверхтонким взаимодействием спина мюона с магнитным моментом электронной оболочки мезоатома. Оценено значение поля, создаваемого электронной оболочкой в области мюона, находящегося в IS-состоянии.
4. Определены скорости вступления в химическую реакцию мезоазота и мезобора со стабильным нитроксильным радикалом. Показано, что скорость вступления в химическую реакцию мезоазота в 12 раз больше скорости химических реакций мезобора. Из сравнения скоростей химических реакций мезоазота в воде и стабильном нитроксильном радикале оценена концентрация нестабильных радикалов в воде ( $\leq 0,1\%$ ), образующихся в результате радиолитического распада среды при торможении мюона

и образовании мезоатома, к моменту вступления в химическую реакцию мезоазота.

5. Определены предельные значения скорости вступления мезобора в химическую реакцию с молекулами четыреххлористого углерода из концентрационной зависимости  $a/a_c$  в смеси четыреххлористого углерода и бензола.
6. Изучена зависимость степени деполяризации от длины углеводородной цепи алифатических спиртов, хлоралкилов и парафинов при комнатной температуре, а также спиртов и парафинов при температуре жидкого азота.
7. Установлена корреляция между остаточной поляризацией и индукционной константой Гаммета-Тафта  $\sigma_I$  замещенных ароматических соединений.
8. Обнаружена "медленная" релаксация спина как отрицательного, так и положительного мюонов в стабильном нитроксильном радикале и триацетонамине при комнатной температуре и температуре жидкого азота.
9. Определен верхний предел числа метастабильных радикалов в живых организмах (исследования на белых крысах линии Вистар), который составляет по данным для отрицательных мюонов  $\leq 1 \cdot 10^{18}$  радикалов/грамм и по данным для положительных мюонов  $\leq 7,5 \cdot 10^{18}$  радикалов/грамм.

Материалы диссертации опубликованы в работах:

1. Джураев А.А., Евсеев В.С., Обухов Д.В., Роганов В.С., Фронтасьева М.В., Холодов Н.И. Зависимость асимметрии электронов распада отрицательных мюонов от длины углеводородной цепи спиртов и хлоралкилов. ОИЯИ, Р6-6822, Дубна, 1972; ЖЭТФ, 1973, т.64, вып.6, с.1930.
2. Евсеев В.С., Мамедов Т.Н., Роганов В.С., Фронтасьева М.В. Деполяризация отрицательных мюонов в смеси бензола и четыреххлористого углерода. ОИЯИ, Р6-10170, Дубна, 1976; Goldansky V.I., Evseev V.S., Roganov V.S., Frontasyeva M.V., Kholodov N.I. Negative Muon Depolarization in Benzene and Carbon Tetrachloride Mixtures. Труды Межд. конф. по физике высоких энергий и структуре ядра. США, Санта-Фе, 1975.
3. Евсеев В.С., Мамедов Т.Н., Роганов В.С., Ткачева О.П., Фронтасьева М.В. Деполяризация отрицательных мюонов в водном и бензольном растворах азотокислого стабильного радикала. В сб. "Мезоны в веществе", Дубна, 1977, с.319.
4. Баландин М.П., Бучаченко А.Л., Евсеев В.С., Кудинов В.И., Мамедов Т.Н., Обухов Д.В., Роганов В.С., Ткачева О.П., Фронтасьева М.В. Взаимодействие мю-мезоатомов углерода и кислорода с молекулами нитроксильного стабильного монорадикала и триацетонамина. ОИЯИ, Р1-12082, Дубна, 1978; Химия высоких энергий, 1979, т.14, вып.1, с.71.

5. Евсеев В.С., Мамедов Т.Н., Роганов В.С., Фронтасьева М.В. Наблюдение эффекта Пашена-Бака в мюонных атомах. Сообщение ОИЯИ, Р1-12647, Дубна, 1979.
6. Евсеев В.С., Мамедов Т.Н., Роганов В.С., Фронтасьева М.В. Исследование температурной зависимости деполяризации отрицательных мюонов в воде. Сообщение ОИЯИ, Р1-12784, Дубна, 1979.
7. Баландин М.П., Бучаченко А.Л., Евсеев В.С., Мамедов Т.Н., Роганов В.С., Ткачева О.П., Фронтасьева М.В. Исследование деполяризации отрицательных и положительных мюонов в нитроксильном стабильном радикале, триацетонамине и метилциклогексаноле. ОИЯИ, Р1-80-380, Дубна, 1980.
8. Евсеев В.С., Мамедов Т.Н., Роганов В.С., Фронтасьева М.В. Исследование деполяризации отрицательных мюонов в углеводородах и их производных. ОИЯИ, Р1-80-562, Дубна, 1980.

#### ЛИТЕРАТУРА

- I. Джрбашян В.А. ЖЭТФ, 1959, т.36, вып.1, с.277; Shmushkevich J.M. Nucl.Phys., 1959, 11, p.419.
2. Бабаев А.И. и др. ЖЭТФ, 1966, т.50, вып.4, с.877.
3. Соколов С.Н. и др. ОИЯИ, Д-810, Дубна, 1961.
4. Бабаев А.И. и др. ЯФ, 1969, т.10, вып.5, с.964.
5. Колдин Е. Быстрые реакции в растворе. "Мир", М., 1970.
6. Мелешко Е.А. и др. Препринт ИАЭ-2320, Москва, 1973.
7. Таммет Э.В. ЯФ, 1976, т.23, вып.5, с.1042; Изв.АН Эст.ССР, сер. физ.-мат., 1973, 22, с.425.
8. Корицкий А.Т. и др. ДАН СССР, 1962, т.142, вып.1, с.120; Magat M. et al. Electrochem., 1958, 62, p.307; Klein J. et al. J.Chim.Phys., 1970, 67, p.310; Schweiner Z. et al. Int.J.Rad.Phys.Chem.1971,3,p.187.
9. Evseev V.S. Muon Physics. Acad.Press, 1975, v.III, p.235.
10. Теренин А.Н. УФН, 1951, т.43, вып.3, с.347.
11. Бичиашвили А.Д. и др. Химия высоких энергий, 1969, т.3, вып.2, с.182.
12. Джурбаев А.А., и др. ЖЭТФ, 1972, т.62, вып.3, с.1166; ЖЭТФ, 1974, т.66, вып.2, с.433.
13. Эмануэль Н.М. Кинетика экспериментальных опухолевых процессов. "Наука", М., 1977.
14. Блюменфельд Л.А. Проблемы биологической физики. "Наука", М., 1977.

Рукопись поступила в издательский отдел  
18 июня 1981 года.