

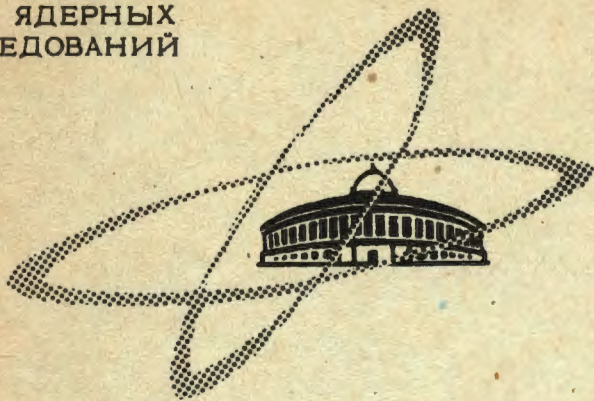
К-844

ЖЭТФ, 1968, т. 55, в. 5, с. 1640-1644

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P13 - 3870



З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев,

Ю.Д.Прокошкин

НЕКОТОРЫЕ ОСОБЕННОСТИ ЗАХВАТА Π^- -МЕЗОНОВ
ВОДОРОДОМ В ХИМИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

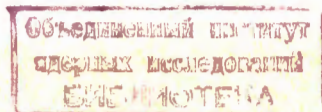
1968

P13 - 3870

З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев,
Ю.Д.Прокошкин

4359/3 mp
НЕКОТОРЫЕ ОСОБЕННОСТИ ЗАХВАТА Π^- -МЕЗОНОВ
ВОДОРОДОМ В ХИМИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ

Направлено в ЖЭТФ



1. Введение

В наших предыдущих работах^{1-3/} было показано, что захват π^- -мезонов водородом в соединениях типа $Z_m H_n$ и других водородосодержащих веществах существенным образом определяется предшествующей захвату стадией образования большой мезомолекулы, когда π^- -мезон переходит из непрерывного спектра в дискретный на общие уровни системы $Z_m \pi^- H_n$. Учёт этой стадии позволяет объяснить резкое уменьшение вероятности захвата π^- -мезонов водородом с ростом Z в веществах типа $Z_m H_n$ и $Z'_k Z_m H_n$ и другие особенности процесса захвата.

В настоящей работе приведены результаты дальнейших исследований захвата π^- -мезонов химически связанным водородом для различных классов соединений: оснований, солей и гидридов переходных металлов (псевдогидридов). При этом обнаружены новые особенности механизма захвата для соединений, в состав которых входит несколько тождественных групп, содержащих водород. Эксперименты были выполнены на синхроциклотроне Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ при помощи методики, описанной ранее^{4-7/}.

2. Результаты измерений

Измерения вероятностей W захвата π^- -мезонов водородом в водородосодержащих веществах были проведены относительным методом - путем сравнения выходов пар γ -квантов от реакции



из исследуемой мишени и мишени из гидрида лития LiH. Полученные отношения затем нормировались на величину $W_{LiH} = (35 \pm 4) \cdot 10^{-3}/1$. Интенсивность реакции (1) для исследованных веществ оказалась весьма малой ($W = 10^{-3} + 10^{-4}$), и вклад от фонового процесса перезарядки π^- -мезонов на лету на сложных ядрах, входящих в состав мишени^{5/}, достигал в некоторых случаях 50%. Точность измерений определялась в основном погрешностью в оценке этого вклада. Найденные значения W представлены в табл. 1-3.

3. Обсуждение

В табл. 1 измеренные вероятности W для оснований $Z'(OH)_q$ сравниваются с величинами, вычисленными по формуле

$$W_{Z'(Zn_n)_q} = a_L \frac{q n Z^{-2}}{Z' + q(Z + n)}, \quad (2)$$

которая следует из модели больших мезомолекул^{2/}. В предыдущей работе^{1/} показано, что эта формула хорошо выполняется для широкого класса соединений. В нашем случае $Z = 8$, номер периода таблицы Менделеева $L = 2$, $a_{II} = 1,28 \pm 0,15/1$, $n = 1$. Как видно из таблицы, для веществ типа $Z'(OH)_q$, которые содержат q тождественных водородо-содержащих групп, формула (2) дает значения, завышенные по сравнению с экспериментальными в q раз, то есть процесс захвата π^- -мезона происходит так, как если бы в "отбирании" π^- -мезона у атома водорода участвовал не только атом кислорода, непосредственно связанный с ним в гидроксильной группе OH, но и атомы кислорода из других $(q-1)$ гидроксильных групп.

Такое объяснение является естественным в рамках квантово-механической теории резонанса. Действительно, все q гидроксильных групп в щелочах $Z'(OH)_q$ тождественны, и потому мезон, захваченный внача-

Таблица 1

Вероятности w для оснований $Z'(OH)_q$

Вещество	$w_{\text{эксп.}} \cdot 10^{-4}$	q	$w_{\text{выч. по (2)}}$	
			$w_{\text{эксп}}$	$w_{\text{выч. по (3)}} \cdot 10^{-4}$
KOH	$6,7 \pm 2,1$	1	$1,1 \pm 0,3$	$7,2 \pm 0,8$
Ca(OH) ₂	$5,7 \pm 1,4$	2	$1,9 \pm 0,4$	$5,3 \pm 0,6$
Ca(OH) ₂	$3,3 \pm 1,2$	2	$1,8 \pm 0,6$	$3,1 \pm 0,4$
Ba(OH) ₂	$2,5 \pm 0,7$	2	$2,2 \pm 0,6$	$2,7 \pm 0,3$
Ba(OH) ₂ ·8H ₂ O	18 ± 3 $0 \pm 3^*$	2	-	$1,3 \pm 0,2$
Al(OH) ₃	$6,3 \pm 1,8$	3	$2,4 \pm 0,6$	$5,0 \pm 0,6$

ж) За вычетом вклада от кристаллизационной воды /СМ.(5)/.

Таблица 2

Вероятности w для солей $R(Z'_k Z''_n H_n)_q$

Вещество	$w_{\text{эксп}} \cdot 10^{-4}$	$w^*_{\text{эксп}} \cdot 10^{-4}$	q	$w_{\text{выч. по (2)}}$	
				$w^*_{\text{эксп}}$	$w_{\text{выч. по (4)}} \cdot 10^{-4}$
(NH ₄) ₂ Cr ₂ O ₇	$6,0 \pm 1,1$	$6,0 \pm 1,1$	2	$2,2 \pm 0,4$	$6,5 \pm 0,7$
(NH ₄) ₂ TiF ₆	$7,0 \pm 1,4$	$7,0 \pm 1,4$	2	$2,4 \pm 0,5$	$8,3 \pm 0,9$
Ca(CH ₃ COO) ₂	$8,7 \pm 1,3$	$8,7 \pm 1,3$	2	$2,2 \pm 0,3$	$9,7 \pm 1,1$
Ba(CH ₃ COO) ₂	$10,5 \pm 1,4$	$10,5 \pm 1,4$	2	$1,71 \pm 0,25$	$9,0 \pm 1,0$
Pb(CH ₃ COO) ₂ ·3H ₂ O	12 ± 2	6 ± 2	2	$2,0 \pm 0,6$	$6,1 \pm 0,8$
Ca(CH ₃ COO) ₂ ·H ₂ O	$9,3 \pm 1,4$	$5,5 \pm 1,6$	2	$4,2 \pm 1,3$	$11,5 \pm 1,8$
Zn(CH ₃ COO) ₂ ·2H ₂ O	$7,5 \pm 1,2$	$1,3 \pm 1,4$	2	15 ± 8	$9,5 \pm 1,2$
C ₂ H ₄ Cl ₂	13 ± 2	13 ± 2	2	$2,2 \pm 0,3$	14 ± 1
CH ₃ J	10 ± 2	10 ± 2	1	$1,7 \pm 0,4$	17 ± 3
C ₄ H ₉ J	33 ± 4	33 ± 4	1	$1,1 \pm 0,3$	37 ± 4

При вычислении w в соединениях $R(NH_4)_q$ принято $a_{II} = 1,0 \pm 0,1$ согласно измерениям π для солей аммония. Для всех остальных соединений принято $a_{II} = 1,28 \pm 0,15 \pi$. w^* - вероятность w за вычетом кристаллизационной воды (5).

Таблица 3

Вероятности w для гидридов $Z_m H_n$

Вещество	$w_{\text{эксп}} \cdot 10^{-4}$	$w_{\text{выч. по (3)}} \cdot 10^{-4}$
$T1 H_2$	$2,5 \pm 1,2$	19 ± 3
$T1 H_{1,7}$	$6,5 \pm 1,4$	16 ± 2
$Zr H_2$	$6,2 \pm 1,4$	$6,1$

ле одной из них, в дальнейшем распределяется по всем группам за счёт квантовомеханических обменных эффектов (аналогично π^- -электронам в молекуле бензола). Следовательно, вероятность найти π^- -мезон в каждой из гидроксильных групп равна $1/q$. Однако группа OH , в которую первоначально был захвачен мезон, является выделенной, так как при захвате мезона водород утратил свой электрон. Утрата группой OH водородного электрона не нарушает условия тождественности групп, поскольку форма потенциальных ям определяется в основном атомом кислорода. Поэтому в захвате π^- -мезона, первоначально попавшего в одну из групп, равномерно участвуют атомы кислорода из всех q групп. Захват же атомом водорода может происходить только в первоначальной группе, поскольку в остальных группах OH этому препятствует оставшийся в атоме водорода электрон. Таким образом, в системах с q тождественными группами эффект квантово-механического резонанса должен приводить к подавлению вероятности захвата π^- -мезона связанным водородом в q раз по сравнению с формулой (2)^{x/}, которая для симметричных систем типа $R(Z H_n)_q$ принимает вид

^{x/} Для наглядности мы упростили схему рассуждений. В действительности предположение о выделенном характере первоначальной гидроксильной группы является излишним, поскольку в обменном взаимодействии между всеми группами участвует не только π^- -мезон, но и все $(q-1)$ электронов от атомов водорода других групп. Эти электроны будут препятствовать захвату мезонов водородом, и в результате полная вероятность найти мезон вблизи всех атомов водорода равна $\rho_{\pi} / (\rho_{\pi} + \rho_e) = 1/q$, так как в подсистеме $(Z H_n)_q$ один мезон ($\rho_{\pi} = 1$) и $(q-1)$ электронов, препятствующих захвату ($\rho_e = q-1$). Таким образом, вероятность w будет подавлена в этих соединениях в q раз по сравнению с формулой (2).

$$W_{R(ZH_n)_q} = a L \frac{n Z^{-2}}{Z'' + q(Z+n)} \quad (3)$$

Здесь R — группа атомов с суммарным зарядом ядер Z'' . Как видно из таблицы 1, вычисленные по последней формуле величины W , хорошо согласуются с экспериментально найденными значениями.

Для случая сложных солей, которые имеют структуру $R(Z'_k Z'_m H_n)$, формула (3) обобщается следующим образом:

$$W_{R(Z'_k Z'_m H_n)_q} = a L \frac{n Z^{-2}}{Z'' + q(kZ' + mZ + n)} \quad (4)$$

Здесь Z — заряд ядра атома, связанного с водородом. Вычисленные по этой формуле величины W , приведены в таблице 2.

Как видно из таблиц 1 и 2, отмеченная закономерность носит общий характер и не зависит от вида тождественных групп, а формула (4) хорошо описывает экспериментальные результаты для широкого класса веществ, оснований, кислых и основных солей и даже для органических галоидов.

Некоторые из исследованных веществ содержали кристаллизационную воду, т.е. имели структуру $R(Z'_k Z'_m H_n)_q \cdot Q(H_2O)$. При определении вероятности $W^* = W_{R(Z'_k Z'_m H_n)_q}$ в этом случае необходимо вычесть вклад от захвата π -мезонов водородом в молекулах кристаллизационной воды:

$$W^* = W_{R(Z'_k Z'_m H_n)_q} Q_{H_2O} \frac{W_{H_2O}}{Z'' + Q_{H_2O} + q(kZ' + mZ + n)} \quad (5)$$

Здесь $W_{H_2O} = (35 \pm 6) \cdot 10^{-4} / 1$, $Z_{H_2O} = 10$. Использование формулы (5) оправдано, так как Z -закон при первоначальной посадке π -мезонов выполняется/1/. Для проверки правильности процедуры (5) был проведен контрольный эксперимент: измерены вероятности W для $Ba(OH)_2 \cdot 8H_2O$ и $Ba(OH)_2$ (после удаления кристаллизационной воды). Как видно из табл. 1, результат этого эксперимента не противоречит формуле (5).

Эффект, обнаруженный при исследовании оснований, наблюдается, как видно из таблицы 2, и в случае солей: вероятность захвата π^- -мезона атомами водорода зависит не от общего их числа в соединении, а только от их числа в группе, если все группы тождественны. Подчеркнем, что этот эффект имеет место как для основных $(\text{NH}_4)^+$, так и для кислотных (CH_3COO) остатков. По-видимому, он проявляется всегда, когда в соединении имеются тождественные группы. Например, соединение $\text{C}_2\text{H}_4\text{Cl}_2$ также попадает под эту закономерность: вероятность захвата в нем вдвое меньше величины, предсказываемой формулой (2). Из общей закономерности выпадают результаты измерений для $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ и $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$. Причина этих отклонений пока не ясна^{х/}. Для остальных веществ, если учесть неопределенность в величине коэффициента $a_{\text{г}}$, ^{хх/}, измеренные и вычисленные величины согласуются.

Как было отмечено ранее^{1/}, измеренные величины $1/W$ для соединений типа $Z''(\text{Z H}_n)$, различающихся только атомами Z'' следуют линейной зависимости от Z'' . Аналогичная зависимость

$$1/W_{R(\text{Z H}_n)_q} \approx Z'' + \text{const}, \quad (6)$$

вытекающая из формулы (4), выполняется и для сложных солей аммония $R(\text{NH}_4)_q$, исследованных в настоящей работе (рис. 1).

В случае гидридов титана и циркония формула (3) переходит в следующую^{2/}:

^{х/} Возможно, использованные в измерениях, уксуснокислые соли C_m и Z_n утратили кристаллизационную воду. В этом случае величины $W_{\text{экс}}$ согласуются с расчетными (см. табл. 2).

^{хх/} Для гидридов $\text{Z}_m \text{H}_n$ второго периода $a_{\text{г}} = a_{\text{II}} = 1,28$, в то время как для солей $(\text{NH}_4)Z$ и $Z(\text{BH}_4)_{a_{\text{II}}} = 1/1$.

$$10^{-3}/W_{R(ZH_n)q}$$

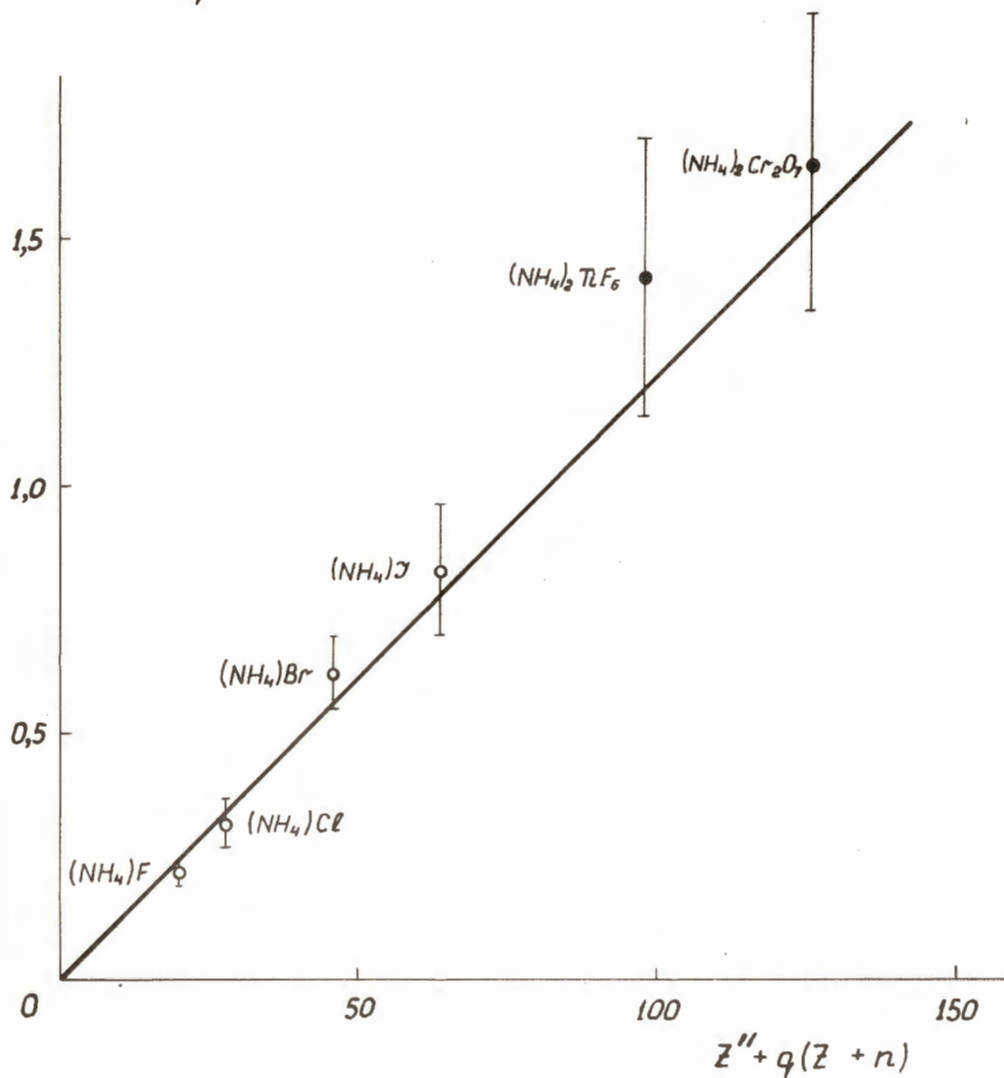


Рис. 1. Сравнение измеренных вероятностей $W_{R(NH_4)q}$ с зависимостью (4). Z'' - суммарный заряд ядер группы атомов R. Прямая - функция (4), вычисленная при $a_{II} = 1$. Черные кружки - данные настоящей работы, светлые кружки - полученные ранее данные^{1/}.

$$W_{Z_m H_n} = a_L \frac{n Z^{-2}}{m Z + n} \quad (6)$$

Сравнение измеренных вероятностей $W_{Z_m H_n}$ с вычисленными по формуле (6) проведено в табл. 3. При вычислении W для гидридов Ti было использовано значение $a_{IV} = 11,0 \pm 1,4 / 1/$.

Коэффициент a_V в предыдущих работах не измерялся. Если для его определения воспользоваться эмпирической зависимостью $a_{L+1} / a_L \approx 3 / 1/$, то получаемое значение $a_V = 32$ оказывается большим, чем максимально допустимое $a_V = 21$, которое следует из условия $a(z) = a_L \frac{n}{m Z + n} = 1 / 2/$. При вычислении W для $Zr H_2$ принято последнее значение a_V .

Как видно из таблицы 3, измеренные величины W для гидридов титана существенно меньше полученных по формуле (6). Весьма вероятно, что это расхождение обусловлено иным характером химической связи в гидридах Ti, чем в нормальных гидридах. Эти соединения в отличие от истинных гидридов (LiH, CaH_2 и др.), исследованных нами ранее $/5, 1/$, являются псевдогидридами $/8/$. Характер связи водорода с металлом в таких соединениях до сих пор неясен. Согласно качественным представлениям $/8/$, водород в псевдогидридах частично связан химически, а частично ионизован и существует в виде протонного газа. Поскольку π^- -мезон не может быть захвачен свободным протоном, то в захвате π^- -мезонов участвует только та часть водорода в псевдогидридах, которая химически связана, что приводит к уменьшению вероятности W . По оценкам, которые можно сделать в рамках изложенной схемы на основе наших измерений, примерно половина водорода в этих соединениях ионизована.

В заключение пользуемся случаем поблагодарить С.С.Герштейна за полезные обсуждения и помощь в работе.

Л и т е р а т у р а

1. З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев, Ю.Д.Прокошкин. Препринт ОИЯИ, Р13-3653, Дубна, 1968; ЖЭТФ 54, 1690 (1968). Здесь же приведена литература.
2. Л.И.Пономарев. ЯФ, 2, 223 (1965); 6, 389 (1967).
3. В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев, Ю.Д.Прокошкин. ХВЭ, 1, 283 (1967).
4. А.Ф.Дунайцев, В.И.Петрухин, Ю.Д.Прокошкин, В.И.Рыкалин. ЖЭТФ, 42, 1680 (1962).
5. V.I.Petrukhin, Yu.D.Prokoshkin. Nuovo Cim., 28, 99 (1962).
6. A.F.Dunaitsev, V.I.Petrukhin, Yu.D.Prokoshkin, V.L.Rykalin. Nuovo Cim., 34, 521 (1964).
7. В.И.Петрухин, Ю.Д.Прокошкин, ДАН, 160, 71 (1965).
8. Л.С.Мороз, Б.Б.Чечулин. Водородная хрупкость металлов, стр. 18-27, М., 1967.

Рукопись поступила в издательский отдел
12 мая 1968 года.