

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



СЗ42Г2
Т-19

24/11-75

P14 - 8436

665/2-75

Ю.В.Таран, Ф.Л.Шапиро

О КОРРЕЛЯЦИИ ПРОТОННЫХ СПИНОВ
В МОЛЕКУЛАХ КРИСТАЛЛИЗАЦИОННОЙ ВОДЫ
ЛАНТАН-МАГНИЕВОГО НИТРАТА

1974

ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

P14 - 8436

Ю.В.Таран, Ф.Л.Шапиро

О КОРРЕЛЯЦИИ ПРОТОННЫХ СПИНОВ
В МОЛЕКУЛАХ КРИСТАЛЛИЗАЦИОННОЙ ВОДЫ
ЛАНТАН-МАГНИЕВОГО НИТРАТА

**Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА**

При теоретическом рассмотрении механизмов динамической поляризации протонов в водородосодержащих веществах обычно пренебрегают корреляцией протонных спинов, возникающей как следствие квантово-механической неразличимости одинаковых частиц. Законность такого пренебрежения можно проверить с помощью поляризованной протонной мишени, например, на основе монокристалла $\text{La}_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$. В нем возможна корреляция между спинами двух протонов, входящих в молекулу кристаллизационной воды.

В случае с лантан-магниевым нитратом /ЛМН/ при рассмотрении процесса динамической поляризации с учетом спиновой корреляции двух протонов в молекуле воды возможны два подхода: 1/ в динамической поляризации непосредственно участвуют только ортомолекулы воды /полный спин равен $J = 1$ /, а парамолекулы остаются в замороженном состоянии; так как при термическом равновесии соотношение орто- и парамолекул равно 3 : 1, то максимально возможная в этом случае поляризация протонов равна 75%; 2/ если же в процессе динамической накачки разрешены переходы из пара- в ортосостояния /например, через уровень с $J = 1$, $J_z = 0$ /, то достижима полная поляризация протонов. С помощью нейтронов достаточно низкой энергии можно сделать экспериментальный выбор между этими вариантами.

Дифференциальное сечение рассеяния нейтронов на кристалле согласно ^{1/} можно записать в следующем виде:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{r} \sum_j^r \sum_j^r \langle b_j b_{j'} \rangle \exp[-(W_j + W_{j'})] \exp[i\vec{k}(\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_{j'})] \times$$

$$\times \frac{1}{N_1} \sum_n^{N_1} \sum_{n'}^{N_1} \exp[i\vec{k}(\vec{n} - \vec{n}')] \quad /1/$$

где b_j - оператор амплитуды рассеяния j -ядра:

$$b_j = b_{j,coh} + 2 [I_j(I_j + 1)]^{-1/2} b_{j,inc} (\vec{I}_j \cdot \vec{S}), \quad /2/$$

$b_{j,coh}$ и $b_{j,inc}$ - когерентная и некогерентная длины рассеяния j -ядра, \vec{I}_j - оператор спина j -ядра, \vec{S} - оператор спина нейтрона, r - число ядер в элементарной ячейке, N_1 - число ячеек в единице объема кристалла, \vec{n} - радиус-вектор n -ячейки, $\vec{\rho}_j$ - радиус-вектор j -ядра в n -ячейке относительно "начального" узла ячейки, W_j - фактор Дебая-Валера, $\vec{k} = \vec{K} - \vec{k}_0$, \vec{k}_0 и \vec{k} - волновые векторы нейтрона до и после столкновения. Скобки $\langle \dots \rangle$ означают спин-изотопное усреднение.

Выделяя из выражения /1/ некогерентную составляющую сечения, получим:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{inc} = \frac{1}{r} \sum_j^r \sum_j^r (\langle b_j b_{j'} \rangle - \langle b_j \rangle \langle b_{j'} \rangle) \exp[-(W_j + W_{j'})] \times$$

$$\times \exp[i\vec{k}(\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_{j'})]. \quad /3/$$

Это выражение легко преобразовать к следующему виду:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{inc} = \frac{1}{r} \sum_j^r (\langle b_j^2 \rangle - \langle b_j \rangle^2) e^{-2W_j} +$$

$$+ \frac{1}{r} \sum_{j>j'}^r (\langle b_j b_{j'} \rangle - \langle b_j \rangle \langle b_{j'} \rangle) \exp[-(W_j + W_{j'})] \cos[\vec{k}(\vec{\rho}_j - \vec{\rho}_{j'})]. \quad /4/$$

Используем выражение /4/ при рассмотрении влияния спиновой корреляции протонов в молекуле воды на рассеяние холодных нейтронов. Если спины двух протонов в молекуле не коррелированы, т.е. оба протона рассеивают независимо друг от друга, то $\langle b_j b_{j'} \rangle = \langle b_j \rangle \langle b_{j'} \rangle$ и второй член в формуле /4/ исчезает. Рассеяние в этом случае изотропно, и часть сечения, относящаяся к протонам, равна:

$$\sigma'_{inc} = \sigma_{inc}^o \left(1 - \frac{1}{I+1} f_N^2 - \frac{1}{I+1} f_n f_N\right), \quad /5/$$

где $\sigma_{inc}^o = 4\pi b_{inc}^2$ - некогерентное сечение для неполяризованных частиц, f_n и f_N - поляризации нейтронов и ядер соответственно.

Если спины протонов коррелированы, но возможны переходы из пара- в ортосостояния через уровень $J=1$, $J_z=0$, т.е. эти уровни находятся в равновесии, то можно показать, что и в этом случае $\langle b_j b_{j'} \rangle = \langle b_j \rangle \langle b_{j'} \rangle$.

Наконец, если парасостояние остается "замороженным" при динамической поляризации, то $\langle b_j b_{j'} \rangle \neq \langle b_j \rangle \langle b_{j'} \rangle$. С помощью несложных, но громоздких вычислений получим для интегрального сечения:

$$\sigma_{inc} = \sigma'_{inc} - \frac{1}{I+1} f_N^2 \sigma_{inc}^o \overline{\frac{\sin k\rho}{k\rho} \cos(\vec{k}\vec{\rho})}, \quad /6/$$

где ρ - расстояние между протонами в молекуле воды. Черта над косинусом означает усреднение по всем молекулам воды, входящим в элементарную ячейку. Используя расшифровку структуры ЛМН, данную в /2/,

получим $\overline{\cos(\vec{k}\vec{\rho})} \cong \cos \frac{1}{2} k\rho$. Полагая $\rho = 1,52 \text{ \AA}$, получим $k\rho = 1,05 E^{1/2}$, где E - энергия нейтронов в миллиэлектрон-вольтах.

Определим эффект однократного пропускания через поляризованную протонную мишень следующим образом:

$$\epsilon_1 = \frac{T - T_0}{T_0}, \quad /7/$$

где T - пропускание поляризованной мишени /3/:

$$T = T_0 \cdot \exp \left[\frac{1}{I+1} f_N^2 \sigma_{inc}^0 t(1+X) \right] \cdot \text{ch} \left[f_N n \left(\frac{1}{I+1} \sigma_{inc}^0 + \sigma_c \right) t \right], \quad /8/$$

T_0 - пропускание неполяризованной мишени, n - число протонов в 1 см^3 , t - толщина мишени. $X = 0$, если справедлива формула /5/, и $X = (k\rho)^{-1} \sin k\rho \cos \frac{1}{2}k\rho$, если верна формула /6/.

Нами был измерен эффект однократного пропускания через поляризованную протонную мишень на неполяризованном пучке холодных нейтронов от импульсного быстрого реактора Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Пучок нейтронов, вышедший из охлаждаемого до азотной температуры замедлителя, последовательно проходил через бериллиевый фильтр /толщина 16 см, температура 77° К /, протонную мишень, графитовый фильтр /толщина 8 см, комнатная температура/ и регистрировался детектором из стандартных борных счетчиков, установленным на расстоянии 19 м от активной зоны реактора. Энергетический анализ проводился по времени пролета. В качестве мишени использовался монокристалл ЛМН толщиной 0,915 см. Динамическая поляризация производилась на длине волны 4,7 мм при температуре кристалла $0,95^\circ \text{ К}$. СВЧ мощность, подводимая к резонатору, была около 0,3 Вт. Типичное значение степени поляризации протонов было 65-70%.

На рис. 1 представлены экспериментальные результаты измерения ϵ_1 в области энергий нейтронов 0,5 - 6 мэВ. Кривые 1 и 2 получены расчетным путем по формулам /5/ и /6/ с использованием значения поляризации протонов $f_N = 68,5\%$, определенного из величины ϵ_1 по тем же формулам в интервале энергий протонов 6-10 мэВ, где не ожидается проявления спиновой корреляции протонов.

Сечение некогерентного рассеяния, использованное в расчетах, было определено экспериментально по пропусканию неполяризованных кристаллов ЛМН толщиной 0,375 и 0,53 см при температурах 1-77° К. Для этого из экспериментально найденного сечения взаимодействия в области энергий нейтронов 0,5 - 10 мэВ вычитались сечения захвата и некогерентного рассеяния всех

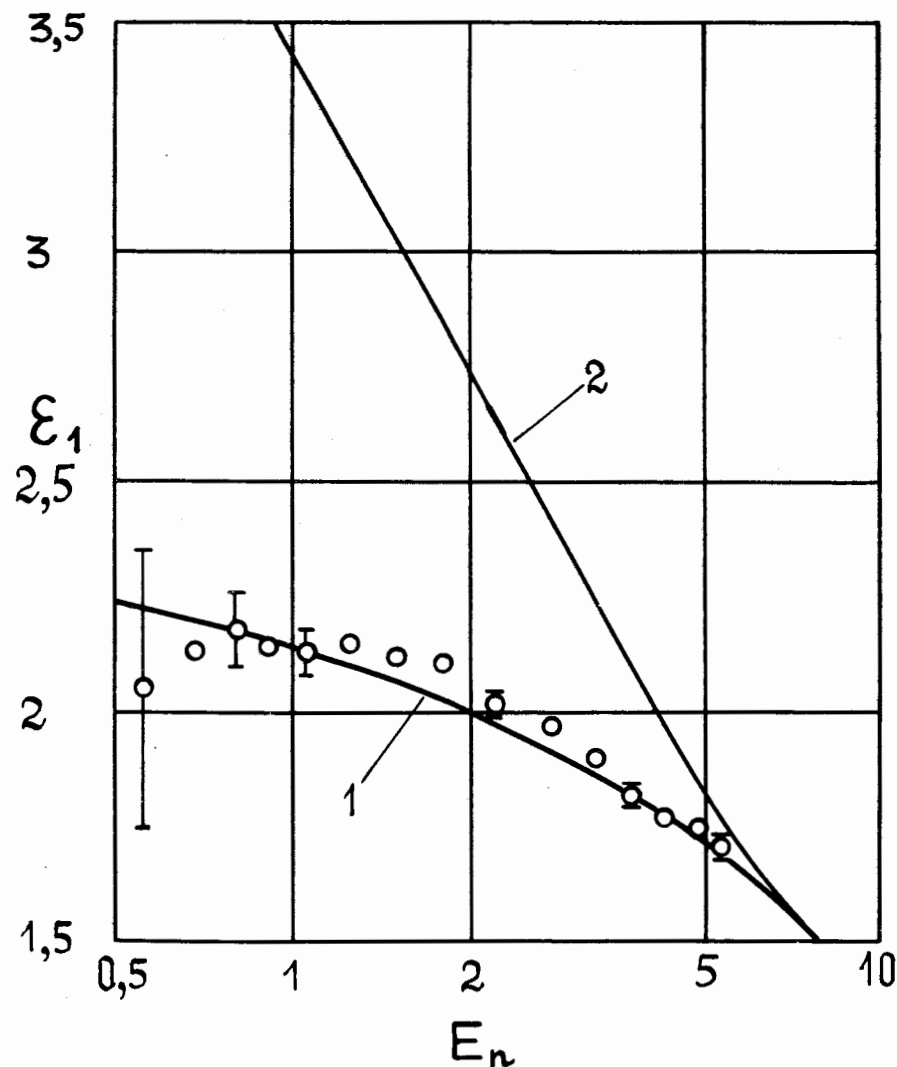


Рис. 1. Эффект однократного пропускания ϵ_1 через поляризованную протонную мишень в функции энергии падающих нейтронов E_n /мэВ/. Светлые кружки - экспериментальные точки. Кривые 1 и 2 рассчитаны в предположении отсутствия и наличия "замороженной" термически равновесной концентрации парамолекул воды.

других элементов, входящих в ЛМН /использовались данные из /4/ /. Оставшаяся после вычитания часть экспериментального сечения приписывалась водороду и использовалась в расчетах в качестве σ_{inc}^0 . Такая процедура представляется вполне надежной, так как когерентные эффекты на ЛМН весьма слабы /3/.

Экспериментальные результаты довольно хорошо описываются кривой 1, рассчитанной по формулам /5,6 и 7/ при $f_n = 0$.

Таким образом, полученные данные говорят об отсутствии "замороженной" термически равновесной концентрации парамолекул воды в динамически поляризованной протонной мишени. По-видимому, в процессе динамической поляризации происходит эффективная перекачка молекул воды из пара- в ортосостояние.

Работа была выполнена в 1968 г. В экспериментах принимал участие А.И.Иваненко. В теоретических дискуссиях и обсуждениях результатов участвовал В.И.Луциков. Статья написана после кончины Ф.Л.Шапиро.

Литература

1. И.И.Гуревич, Л.В.Тарасов. Физика нейтронов низких энергий. Изд. "Наука", М., 1965.
2. A.Zalkin et al. J.Chem. Phys., 39, 2881 (1963).
3. В.И.Луциков и др. ЯФ, 10, 1178 /1969/.
4. Neutron Cross Section, 2 ed., BNL-325, 1958; Suppl. No. 2, v.1,2,3, 1964-67.

Рукопись поступила в издательский отдел
11 декабря 1974 года.