

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



ЛЛЛ

A-651

P15 - 10661

2930/4-27

К.Андерт, В.С.Евсеев, Х.-Г.Ортлепп,
В.С.Роганов, Б.М.Сабиров, Х.Хаупт

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
СТРУКТУРЫ МЮ-МЕЗОРЕНТГЕНОВСКИХ СПЕКТРОВ
В ХИМИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ,
СОДЕРЖАЩИХ АТОМЫ АЗОТА, СЕРЫ И УГЛЕРОДА

1977

P15 - 10661

К.Андерт, В.С.Евсеев, Х.-Г.Ортлепп,
В.С.Роганов, Б.М.Сабиров, Х.Хаупт

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
СТРУКТУРЫ МЮ-МЕЗОРЕНТГЕНОВСКИХ СПЕКТРОВ
В ХИМИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ,
СОДЕРЖАЩИХ АТОМЫ АЗОТА, СЕРЫ И УГЛЕРОДА**

*Направлено в ЖЭТФ и на Международный симпозиум
по проблемам мезонной химии и мезомолекулярных
процессов в веществе, Дубна, 1977.*

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

Экспериментальное исследование структуры мю-мезорентгеновских спектров в химических соединениях, содержащих атомы азота, серы и углерода

Представлены результаты измерений мезорентгеновских спектров при захвате отрицательных мюонов в химических соединениях серы и азота, куда эти элементы входят с различной валентностью, а также в углеводородах. В соединениях азота обнаружена зависимость структуры мезорентгеновских линий от валентности, но нет зависимости от ее знака. Для серы и углерода никакой зависимости нет. Структура спектров из углеродов не объясняется моделью больших мезомолекул, а из азота и серы - не согласуется со следствиями этой модели.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1977

Experimental Study of the Structure of Mu-Mesic X-Ray Radiation Spectra in Chemical Compounds Containing N, S and C Atoms

The results of measurements of mesic X-ray spectra at the capture of negative muons in chemical compounds of S and N, containing these elements with various valency, and hydrocarbons are presented. In N compounds there is observed the dependence of the mesic X-ray structure on the valency, but not any dependence on the valency sign. Such a dependence was not observed for S. The structure of spectra from carbons cannot be explained by "large mesic molecule" model, and ones from N and S are in a contradiction with the consequences of this model.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Problem, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1977

Обнаруженная в ^{1/1} зависимость структуры мю-мезорентгеновских спектров от характера химической связи исследуемого атома до настоящего времени не имеет объяснения ^{2/2}. Поскольку до последнего времени экспериментально этот эффект изучался в основном на металлах и их соединениях ^{3/3}, представляется целесообразным распространить эксперименты на другие классы химических соединений с целью выявления новых закономерностей.

Нами были измерены энергетические спектры мю-мезорентгеновского излучения группы соединений, содержащих атомы C, N и S.

Для N- и S-содержащих соединений исследовалась возможная корреляция /как это следует из модели больших мезомолекул ^{3/3}/ структуры спектров с валентностью атомов азота и серы. Предварительные результаты для этих соединений опубликованы в ^{4/4}. В органических соединениях /углеводородах/ изучался вопрос зависимости структуры спектров от характера химической связи атомов углерода.

Измерения проводились на мюонном пучке мезонного канала синхроциклотрона Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ. Методика измерений описана в работе ^{2/2}. Все мишени были марки "Ч" или "ЧДА". Толщины их выбирались таким образом, чтобы разность поправок на поглощение для крайних линий K-серии мезорентгеновского излучения исследуемого атома не превышала 1%. Для измерения спектров в соединениях, содержащих Si и N, использовался планарный, объемом 2,4 см³ Ge(Li) -

детектор /энергетическое разрешение 660 эВ при $E_x = 100$ кэВ/, для измерения на S-содержащих мишенях - детектор объемом 41 см³ с энергетическим разрешением 2 кэВ при $E_x = 100$ кэВ.

Для определения интенсивности линий, получаемых в измеренных мезорентгеновских спектрах, проводилось фитирование формы этих линий к гауссовским распределениям с учетом асимметрии экспериментальных распределений.

Для определения относительных изменений в спектрах мю-мезорентгеновского излучения атома, входящего в различные химические соединения, использовалась следующая процедура. Сначала для всех полученных спектров определялась относительная интенсивность /по отношению к суммарной интенсивности всех линий К-серии/ каждой линии. При этом не вносилась поправка на энергетическую зависимость эффективности детектора.

Полученные таким образом интенсивности $\frac{I_i}{\sum I}$ относились к соответствующим интенсивностям реперного соединения $(\frac{I_i}{\sum I})_0$. При таком представлении экспериментальных данных практически нет необходимости учитывать ошибку определения эффективности детектора, поэтому в ошибку результата входили лишь статистические ошибки.

Для азотсодержащих соединений в качестве репера был выбран молекулярный /жидкий/ азот /формальная валентность $V = 0$ /, для серосодержащих - элементарная сера, где также $V = 0$. Для углеводов оказалось удобным рассматривать изменения спектров насыщенных соединений по отношению к спектрам ароматических соединений и этих двух классов соединений - к графиту.

Экспериментальные результаты представлены в табл. 1, 2 и на рис. 1-3. Из данных табл. 1 и рис. 1 следует, что интенсивность линий существенно увеличивается вблизи видимой границы К-серии для соединений азота с валентностью $V = 3^-$ и 5^+ по сравнению с N_2 . Для соединений серы /табл. 1 и рис. 2/ эффект /если он вообще существует/ имеет противоположный знак.

Таблица 1.
Интенсивность мезорентгеновских спектров из химических соединений по отношению к спектру из молекулярного азота или из элементарной серы ($V = 0$)

Соединение	Исследуемый атом	Формальная валентность в соединении	$(\frac{I_i}{\sum I}) / (\frac{I_i}{\sum I})_0$							
			2p - I	3p - I	4p - I	5p - I	6p - I	7p - I	8p - I	
N_2, NO_3	:N	5^+	0,813±0,017	1,220±0,055	1,752±0,090	1,79±0,30	-	-	-	-
NH_4Cl		3^-	0,797±0,015	1,133±0,039	1,859±0,084	2,31±0,17	-	-	-	-
N_2, SO_4	:S	6^+	1,011±0,010	0,980±0,068	0,962±0,054	0,901±0,063	0,943±0,077	0,952±0,106	0,77±0,10	0,74±0,11
Al_2S_3		2^-	1,010±0,015	1,136±0,075	0,926±0,059	0,935±0,064	1,100±0,107	0,741±0,105	0,74±0,11	0,74±0,11

Таблица 2
Относительные интенсивности мезорентгеновских спектров углерода в углеводородах и графите

Отношение	Переход	2р - I	3р - I	4р - I	5р - I	6р - I	7р - I
Насыщенные углеводороды	Графит	0,8765±0,0072	1,167±0,011	1,396±0,017	1,600±0,031	1,88±0,11	3,9 ± 1,1
	ароматические углеводороды	0,9117±0,0084	1,123±0,011	1,271±0,017	1,409±0,031	1,71±0,09	3,0 ± 0,6
Насыщ. углеводороды аромат. углеводороды		0,9613±0,0059	1,040±0,008	1,099±0,010	1,136±0,017	1,16±0,05	1,29 ± 0,12

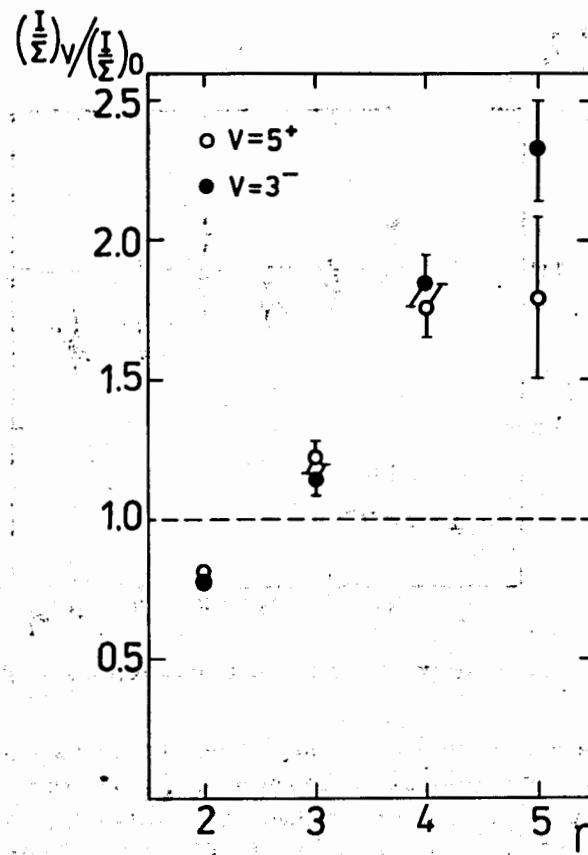


Рис. 1. Химический эффект $((\frac{I}{\Sigma})_v / (\frac{I}{\Sigma})_{v=0})$ как функция n в соединениях азота.

Данные для углеводородов /см. табл. 2/ сгруппированы по признаку, связанному с наличием или отсутствием двойных связей углеродных атомов: в группу насыщенных углеводородов входят парафины C_5H_{12} , C_8H_{18} , $C_{24}H_{50}$, технический циклогексан и полиэтилен, а в группу ароматических — бензол, нафталин, полистирол, дифенил и толан. Внутри каждой из этих двух групп спектры из разных углеводородов одинаковы, но имеется существенное различие в структуре спектров ароматических углеводородов и соединений с насыщенными связями. Это

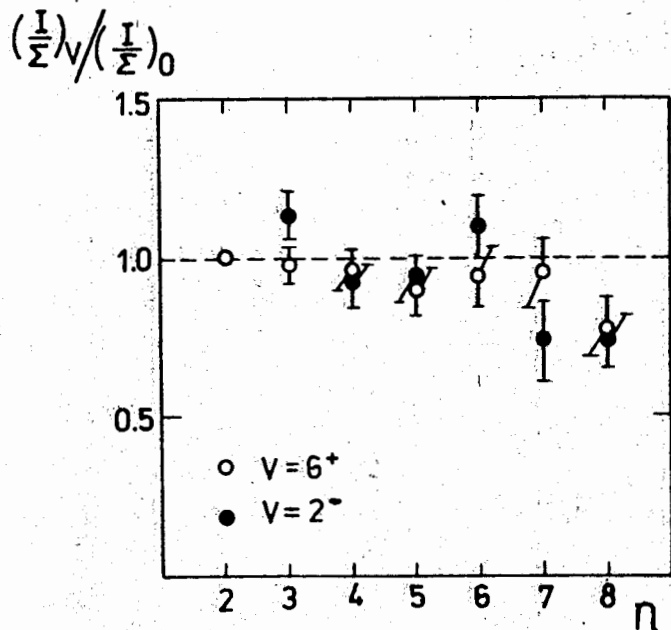


Рис. 2. Химический эффект в соединениях серы.

различия иллюстрируется рис. 3, на котором показано отношение усредненных спектров из этих двух групп.

Обращает на себя внимание характер зависимости эффекта от величины главного квантового числа n состояния, переход с которого формирует линии К-серии, для всех исследованных атомов.

Полученные нами результаты можно сравнить со следствиями из модели больших мезомолекул^{1/3}. Если считать, что переход мюона в связанное состояние происходит с одинаковой вероятностью путем Оже-процесса на валентных и остовных электронах химических соединений /только в случае участия как валентных, так и остовных электронов можно в рамках модели больших мезомолекул рассчитывать на наличие химических эффектов в структуре мезорентгеновского излучения/, то следует ожидать вполне определенных изменений в спектрах мезорентгеновского излучения в зависимости от знака и величины V .

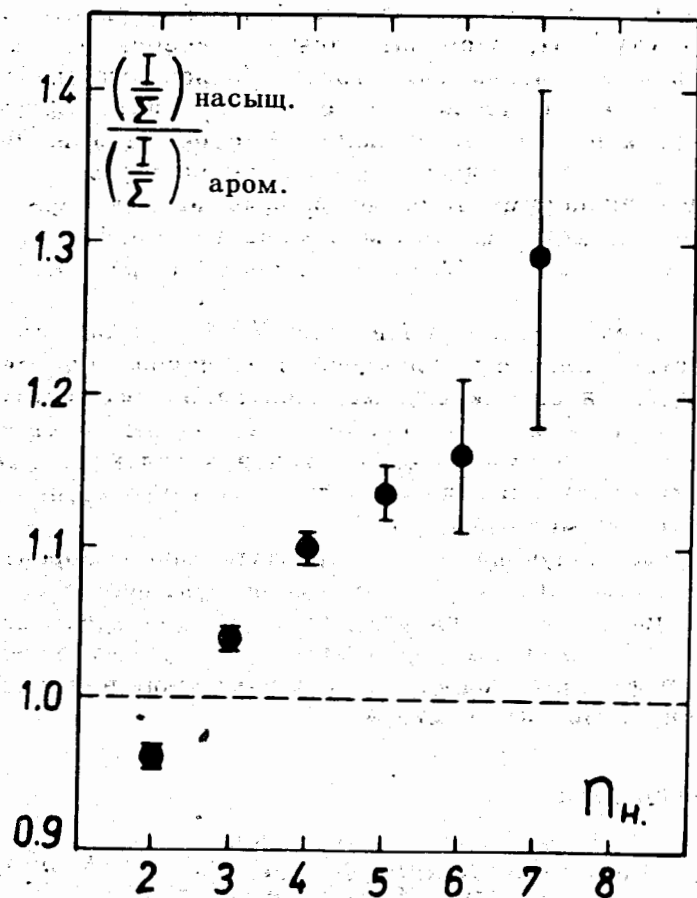


Рис. 3. Относительное изменение в спектре мезорентгеновского излучения углерода для насыщенных углеводородов и ароматических углеводородов.

Действительно, поскольку вероятность перехода мюона из мезомолекулярного состояния на разделенные уровни какого-либо атома в химическом соединении должна зависеть от вероятности нахождения мезона вблизи этого атома, то, например, увеличение интенсивности линий, соответствующих переходу из мезомолекулярного состояния, должно иметь место в том случае, когда облако валентных электронов смещено

в сторону исследуемого атома /случай отрицательной валентности/. И, наоборот, для соединений, где атом имеет положительную валентность /валентные электроны оттянуты от исследуемого атома/, интенсивность линий вблизи видимой границы К-серии должна быть уменьшена по сравнению с нулевой валентностью.

Наши экспериментальные данные не подтверждают следствий модели больших мезомолекул: в действительности /см. рис. 1/ эффект не зависит от знака валентности.

Для всех углеводородов, где $V=0$ и относительное количество валентных электронов одинаково, следовало бы ожидать и одинаковых мезорентгеновских спектров, однако /см. табл. 2 и рис. 3/ здесь наблюдается различие между ароматическими углеводородами и насыщенными соединениями, непонятное с точки зрения модели больших мезомолекул.

Данные, полученные по структуре мю-мезорентгеновского излучения С, N и S -атомов в различных соединениях, противоречат следствиям модели больших мезомолекул. Необходимы дальнейшие исследования для установления факторов, определяющих изменения в структуре мезорентгеновских спектров.

Литература

1. Зинов В.Г. ЯФ, 1967, 5, вып. 3, 591.
2. Andert K. e.a. Abstracts of VI Int. Conf. High Energy Phys. and Nucl. Instr. (Los Alamos), p. 155 (1975). ОИЯИ, Р15-10373, Дубна, 1977.
3. Пономарев Л.И. ОИЯИ, Р4-7269, Дубна, 1973.
4. Andert K. e.a. Abstracts of VI Int. Conf. High Energy Phys. and Nucl. Instr. (Los Alamos), p. 156 (1975).

Рукопись поступила в издательский отдел
13 мая 1977 года.