

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



E-25

1/8-77

P15 - 10662

2931 / 2-77

В.С.Евсеев, Х.-Г.Ортлепп, В.С.Роганов,
В.Н.Рыбаков, Б.М.Сабиров

ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРЫ СПЕКТРОВ
МЮ-МЕЗОРЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
УГЛЕРОДА И ФОСФОРА
В РАЗЛИЧНЫХ СОЕДИНЕНИЯХ

1977

P15 - 10662

В.С.Евсеев, Х.-Г.Ортлепп, В.С.Роганов,
В.Н.Рыбаков, Б.М.Сабиров

ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРЫ СПЕКТРОВ
МЮ-МЕЗОРЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
УГЛЕРОДА И ФОСФОРА
В РАЗЛИЧНЫХ СОЕДИНЕНИЯХ

Направлено на Международный симпозиум по проблемам
мезонной химии и мезомолекулярных процессов
в веществе (Дубна, 1977)

Исследование структуры спектров мю-мезорентгеновского излучения углерода и фосфора в различных соединениях

В работе излагаются результаты исследования влияния химической связи на структуру мю-мезорентгеновского излучения. Измерения проведены на различных углеродсодержащих органических соединениях и соединениях фосфора, в которые он входит с различной валентностью. Зависимости от валентности фосфора не обнаружено. Предлагается интерпретировать результаты с точки зрения изменения длин связи и наличия "временной ямы" для мюона в процессе его каскадирования.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1977

Investigation of the Structure of Mu-Mesic X-Ray Radiation Spectra of C and P in Various Compounds

The results are presented on investigation of the influence of chemical bond on the structure of μ -mesic X-ray radiation. The measurements were performed for various carbogeneous organic compounds and for P compounds containing P with various valency. The dependence on the P valency was not observed. The results are suggested to be interpreted from the point of view of changing the bond length and the presence of the "time pit" for a muon in the process of its cascade.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1977

Целью данного эксперимента было накопление эмпирического материала в продолжение наших прежних экспериментов /1/ по исследованию химических эффектов в мюмезорентгеновских спектрах атомов углерода, азота и серы, а также поиски новых путей объяснения этих эффектов.

Методика эксперимента описана ранее /2/. Спектры в углеродсодержащих соединениях измерялись с помощью Ge(Li) -детектора объемом 2,4 см³ (разрешение ≈ 700 эВ при $E_x = 100$ кэВ), а в соединениях фосфора - с помощью Ge(Li) -детектора 41 см³ с энергетическим разрешением ≈ 2 кэВ при $E_x = 100$ кэВ.

Как и в работе /1/ эксперимент с соединениями фосфора был предпринят с целью поисков зависимости структуры X_μ от величины и знака формальной валентности (V). В качестве фосфорсодержащих мишеней использовались красный и аморфный фосфор (O), $AlP(3^-)$, $H_3PO_3(3^+)$ и $P_2O_5(5^+)$.

Для выяснения характера зависимости структуры X_μ в углеродсодержащих соединениях от кратности химической связи углерода измерялся мезорентгеновский спектр в карбиде лития Li_2C_2 . Возможное влияние атомов, отдаленных от исследуемого, изучалось в эксперименте с алифатическими спиртами, содержащими углеводородные цепи различной длины. Реперной мишенью для углеродсодержащих соединений, как и в работе /1/, был графит.

Все мишени выбирались такой толщины, чтобы не было необходимости вносить поправку на поглощение X_μ .

Результаты для фосфорсодержащих соединений приведены в таблице 1. Видно, что в пределах ошибок для

Таблица 1

отношение переход	Р красный	AsP	H ₃ PO ₄	P ₂ O ₅
	Ф аморфн.	Р аморфн.	Р аморфн.	Р аморфн.
2p → 1s	0,997 ± 0,022	1,040 ± 0,029	0,993 ± 0,028	1,010 ± 0,027
3p → 1s	0,879 ± 0,047	0,894 ± 0,054	1,025 ± 0,044	1,012 ± 0,041
4p → 1s	1,03 ± 0,07	0,95 ± 0,07	1,14 ± 0,07	0,93 ± 0,06
5p → 1s	0,98 ± 0,08	0,97 ± 0,07	0,98 ± 0,06	0,92 ± 0,06
6p → 1s	1,1 ± 0,1	0,9 ± 0,1	0,9 ± 0,1	1,1 ± 0,1
7p → 1s	1,3 ± 0,2	1,1 ± 0,2	1,1 ± 0,2	1,0 ± 0,1
8p → 1s	-	-	1,0 ± 0,2	0,4 ± 0,2

всех исследованных соединений структура X_{μ} практически одинакова. Данные для углеродсодержащих соединений (спектры X_{μ} для углерода) приведены в таблице 2. Из рассмотрения этих данных следует, что во всех исследованных алифатических спиртах с числом n_c углеродных атомов в цепи от 1 до 16 спектры X_{μ} имеют практически одинаковый вид. Имеет место различие в структуре X_{μ} для спиртов и графита. Спектр X_{μ} в углероде карбида лития существенно отличается от спектров для спиртов.

Полученные в данной работе результаты, так же как и наши данные ^{/1/}, не могут быть поняты в рамках модели больших мезомолекул ^{/3/}.

Ввиду того что химические эффекты в структуре спектров мезорентгеновского излучения до настоящего времени не имеют объяснения, представляет интерес установление различного рода корреляций между особенностями химической структуры соединения и характером мезорентгеновского спектра. Например, в работе ^{/4/} установлено, что интенсивность линий вблизи границы К-серии кислорода окислов тем выше, чем меньше степень ионности связи Me-O. В работе ^{/5/} также показано, что

Таблица 2

отношение переход	CH_3OH	$\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$	$\text{C}_3\text{H}_7\text{OH}$	$\text{C}_4\text{H}_9\text{OH}$	$\text{C}_5\text{H}_{11}\text{OH}$	$\text{C}_{12}\text{H}_{25}\text{OH}$	$\text{C}_{16}\text{H}_{33}\text{OH}$	Li_2C_2
	графит	графит	графит	графит	графит	графит	графит	графит
2p → 1s	0,92±0,01	0,90±0,01	0,88±0,01	0,88±0,01	0,91±0,02	0,89±0,01	0,91±0,02	0,98±0,01
3p → 1s	1,02±0,02	1,12±0,01	1,17±0,02	1,21±0,01	1,10±0,02	1,16±0,02	1,12±0,05	1,01±0,02
4p → 1s	1,28±0,04	1,35±0,02	1,39±0,02	1,33±0,02	1,34±0,03	1,37±0,03	1,34±0,03	1,11±0,04
5p → 1s	1,56±0,70	1,56±0,08	1,53±0,05	1,56±0,05	1,67±0,06	1,56±0,05	1,57±0,05	1,4±0,4
6p → 1s	—	1,80±0,26	1,41±0,21	1,52±0,18	2,32±0,22	1,48±0,14	1,96±0,15	—
7p → 1s	—	7,7 ± 2,3	3,0 ± 1,1	4,0 ± 1,2	4,6 ± 1,4	2,4 ± 0,7	2,3 ± 0,7	—

увеличение интенсивности этих линий характерно для соединений с преимущественно ковалентными связями исследуемого атома, а в ионных соединениях такого же атома относительная интенсивность линий на границе К-серии падает. Попытки объяснить эти корреляции различиями в распределении по орбитальному моменту ℓ на стадии образования мезоатома пока не дали результата.

Не отрицая влияния этого фактора на структуру X_{μ} , мы хотим предложить еще одну гипотезу для объяснения химических эффектов в мю-мезорентгеновском излучении.

Мы допускаем, что окружающие мезоатом другие атомы в веществе могут изменять структуру X_{μ} , влияя на процесс мезоатомного каскада в том его участке, который характеризуется наибольшим временем пребывания мюона на уровне ("временная яма"): при переходах мюона с высокорасположенных уровней он обязательно достигнет такого, где вероятность Оже-переходов уже мала, а вероятность радиационных переходов еще мала.

Предполагается также, что к моменту достижения мюоном такого уровня электронная оболочка мезоатома настолько разрушена предшествующими Оже-переходами, что для продолжения каскада существенную роль начинают играть электроны, принадлежащие соседним атомам. Чем больше возможность получить электроны у соседнего атома, тем больше вероятность Оже-переходов и тем меньше интенсивность линий в спектре К-серии вблизи ее верхней границы (будем в дальнейшем обозначать их $K_{\text{вид.}}$).

Вероятность получения электронов от соседних атомов может зависеть от многих факторов, например от длины химических связей исследуемого атома, определяемой их характером, от возможности использования проводимости, от степени ионности элемента и т.д.

С точки зрения предлагаемой гипотезы уменьшение интенсивности $K_{\text{вид.}}$ в молекулярном азоте по отношению к NH_4Cl или $\text{NaNO}_3^{1/}$ может быть связано с увеличением перекрытия волновых функций электронов одного атома N с другим в N_2 из-за характера химической связи ($\text{N}=\text{N}$) в этой молекуле. В NH_4Cl и NaNO_3 связи N с со-

седними атомами преимущественно одинарные. Аналогичным образом можно попытаться объяснить и химические эффекты в следующих парах, где связи исследуемого атома преимущественно ковалентны: насыщенные углеводороды - ароматические углеводороды^{/1/}, Li_2C_2 - насыщенные углеводороды (настоящая работа), NaNO_3 - NaNO_2 ^{/6/}. Во всех этих случаях относительный химический эффект коррелирует с изменением расстояния от исследуемого атома до его соседей (чем больше расстояние, тем больше интенсивность $K_{\text{вид.}}$).

Влияние электронов проводимости на структуру X_μ должно сказываться лишь для легких элементов, поскольку время жизни мюона во "временной яме" $t_{\text{я}}$ в этом случае должно быть не меньше времени поступления электрона в мезоисн (время релаксации τ). Так как для всех металлов (проводников) время $\tau \approx 10^{-13} + 10^{-14}$ с, то следует ожидать влияния электронов проводимости на структуру X_μ лишь для $Z \leq 6$, где $t_{\text{я}} \geq 10^{-13}$ с. С этой точки зрения можно понять, почему в графите интенсивность $K_{\text{вид.}}$ ниже, чем, например, в насыщенных углеводородах, хотя расстояния C-C практически одинаковы для обоих веществ.

Вероятно, аналогичным образом можно объяснить и одинаковость мезорентгеновских спектров азота и бора в BN с графитоподобным и алмазоподобным типом решетки^{/4/}, а также уменьшение интенсивности K_∞ в BN (графитового типа) по сравнению с NaNO_2 или NaNO_3 ^{/6/}. Для металлов тяжелее графита характерно повышенное значение интенсивности $K_{\text{вид.}}$ по сравнению с их окислами или другими соединениями^{/4,5,8-10/}. Этот факт можно понять, приняв во внимание, что расстояние Me-O всегда меньше, чем расстояние Me-Me в чистом металле.

С точки зрения обсуждаемой гипотезы отмеченная ранее корреляция между степенью ионности связи Me-O в окислах и интенсивностью $K_{\text{вид.}}$ мезоатома кислорода получает следующую интерпретацию. Оказывается, что интенсивность $K_{\text{вид.}}$ окислорода увеличивается (с насыщением) при уменьшении расстояния Me-O (данные по межатомным расстояниям как в окислах, так и в других соединениях взяты из^{/11/}). В этом же направлении

уменьшается степень ионности окисла. Поскольку ион кислорода O^{2-} обладает избытком электронов, то приближение его к металлу приводит к перераспределению лишних электронов кислорода в пользу атомов металла, к уменьшению роли Оже-процесса на мезоатоме кислорода и, следовательно, к увеличению вклада $K_{\text{вид}}$.

Аналогично можно объяснить, почему в ионных соединениях серы и хлора интенсивность $K_{\text{вид}}$ вдвое ниже, чем в соединениях, где связи S и Cl преимущественно ковалентны. Дело в том, что в ионных соединениях сера и хлор существуют в виде отрицательных ионов (с избытком электронов), а в ковалентных (SO_4^{2-} и ClO_4^{1-}), где они окружены атомами кислорода, для них характерным является скорее недостаток электронов.

Вероятно, отсутствие различий в структуре X_{μ} для аморфного, красного кристаллического фосфора, H_3PO_4 и P_2O_5 также может быть объяснено одинаковым характером связей атома фосфора с его соседями. Отсутствие зависимости структуры в алифатических спиртах от длины цепи (настоящая работа) свидетельствует о том, что на интенсивность X_{μ} влияют лишь ближайшие атомы.

Для дальнейшей разработки предлагаемой нами гипотезы необходимо провести новые экспериментальные и теоретические исследования, которые позволят оценить ее вклад наряду с другими механизмами, и в первую очередь с влиянием различий в первоначальной заселенности по ℓ , в структуру X_{μ} .

ЛИТЕРАТУРА

1. Андерт К. и др. ОИЯИ, Р15-10661, Дубна, 1977.
2. Андерт К. и др. ОИЯИ, Р15-10373, Дубна, 1977.
3. Герштейн С.С. и др. УФН, 1969, 97, с.3;
Пономарев Л.И. ОИЯИ, Р4-7269, Дубна, 1973.
4. Knight J.D. e.a. Phys.Rev., 1976, 13A, p.43.
5. Mausner L.F. e.a. LBL-5544, 1976.
6. Dubler T. e.a. Phys.Lett., 1976, 57A, p.325.

7. Mausner L. F. e.a. LA-UR-76-2753, 1976.
8. Зинов В.Г. и др. ЯФ, 1967, 5, с.591.
9. Kessler D. e.a. Phys.Rev.Lett., 1967, 18, p.1179.
10. Daniel H. e.a. Phys.Lett., 1967, 26B, p.281.
11. Ормонт Б.Ф. Структуры неорганических веществ. ГИТТЛ, М.-Л., 1950.
12. Уэрт Г., Томсон Р. Физика твердого тела. "Мир", М., 1966.

Рукопись поступила в издательский отдел
13 мая 1977 года.