

7269

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



С 346.36  
П-563

ЛЯП

P4 - 7269

3319/У-73

Л.И.Пономарев

ВЛИЯНИЕ МОЛЕКУЛЯРНОЙ СТРУКТУРЫ  
НА АТОМНЫЙ И ЯДЕРНЫЙ ЗАХВАТ МЕЗОНОВ

**1973**

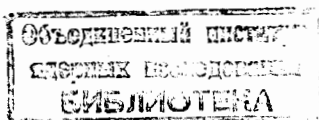
ЛАБОРАТОРИЯ  
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

P4 - 7269

Л.И.Пономарев

**ВЛИЯНИЕ МОЛЕКУЛЯРНОЙ СТРУКТУРЫ  
НА АТОМНЫЙ И ЯДЕРНЫЙ ЗАХВАТ МЕЗОНОВ**

Направлено в "Annual Review of Nuclear  
Science".



## В В Е Д Е Н И Е

Попадая в вещество, отрицательно заряженные мезоны ( $\mu^-$ ,  $\pi^-$ ,  $K^-$ ) тормозятся там и после остановки образуют с ядрами атомов атомоподобные системы - мезоатомы и мезомолекулы. Размеры таких систем в десятки и сотни раз меньше размеров соответствующих атомов и, как правило, целиком помещаются внутри их К-оболочек. Поэтому при изучении мезоатомных процессов электронные оболочки атомов обычно не принимают во внимание. По той же причине трудно предположить заранее, что захват мезонов на орбиты мезоатомов и их реакции с ядрами могут зависеть от особенностей строения химических связей между атомами вещества. В самом деле, химические свойства веществ определяются внешними электронными оболочками атомов, размеры которых ( $10^{-8}$  см) намного превышают радиус действия ядерных сил ( $10^{-13}$  см) и величину мезоатомов ( $10^{-11}$ - $10^{-10}$  см), с уровней которых происходит ядерный захват мезонов.

Тем не менее эксперименты последних десяти лет убедительно доказывают влияние молекулярной структуры веществ на процессы атомного и ядерного захвата мезонов. Обсуждаемые эффекты впервые наиболее отчетливо были установлены при изучении реакции перезарядки  $\pi^-$ -мезонов на ядрах химически связанного водорода, а затем - при исследовании структуры  $\mu^-$ -рентгеновских серий элементов в химических соединениях и смесях.

Попытки интерпретировать указанные факты привели к существенному уточнению картины захвата отрицательных мезонов в веществе. В частности, было установлено, что при торможении и остановке мезонов в химических соединениях значительная их часть за-

хватывается не на уровни изолированных атомов, а на уровни всей молекулы в целом. В таких возбужденных комплексах, которые были названы "большими мезомолекулами", мезоатомные орбиты сравнимы с размерами молекул вещества и в сотни раз превышают характерные мезоатомные расстояния.

Обнаружение и изучение упомянутых явлений позволяет в принципе использовать их для исследования электронной структуры молекул, а также в различных прикладных задачах качественного и количественного анализа веществ. Получение интенсивных мезонных пучков на мезонных фабриках делает эти надежды более обоснованными.

В данном обзоре представлены основные экспериментальные работы, в которых обнаружено и исследовано влияние химической структуры веществ на процессы захвата мезонов, и представления, которые используются в настоящее время для анализе результатов этих экспериментов. Подробная библиография по всем относящимся сюда вопросам опубликована в работах<sup>/1-3/</sup>. Смежные вопросы обсуждаются в обзорах<sup>/4-7/</sup>.

#### Последовательные стадии поглощения мезонов в веществе

В 1947 году Ферми и Теллер<sup>/8/</sup> сформулировали так называемый  $Z$ -закон, согласно которому при торможении отрицательно заряженных мезонов ( $\mu^-$ ,  $\pi^-$ ,  $K^-$ ) в химических соединениях  $Z_k Z_m$  вероятности захвата мезонов  $W(Z)$  и  $W(Z')$  атомами пропорциональны зарядам их ядер  $Z$  и  $Z'$

$$W(Z)/W(Z') = m Z / \kappa Z' \quad (I)$$

На рис. I из работы Байджала и др.<sup>/9/</sup> представлены результаты проверки  $Z$ -закона. Прямые соответствуют формуле

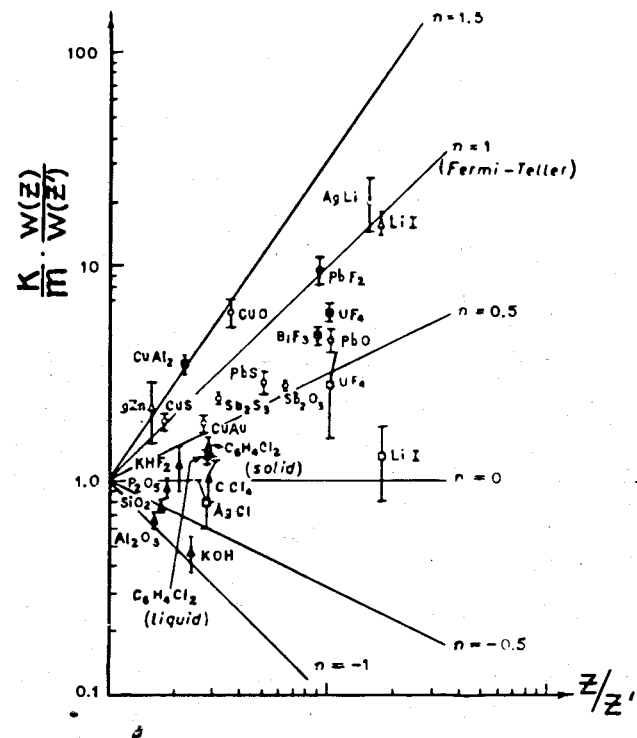


Рис. I. Результаты проверки  $Z$ -закона по работе Байджала и др.<sup>/9/</sup>.

$$k W(z)/m W(z') = (z/z')^s \quad (2)$$

при различных показателях степени  $s$ , причем значение  $s = 1$  соответствует  $Z$ -закону. Из приведенного рисунка очевидно, что в целом экспериментальные данные свидетельствуют против  $Z$ -законa. Встает вопрос о причинах его нарушения.

Процесс захвата мезонов включает в себя несколько стадий, из которых отметим главные:

Торможение от скоростей  $v \sim c$  до  $v \sim \alpha c$ . Вплоть до скоростей  $v \sim \alpha c$  (порядок скоростей атомных электронов,  $\alpha = 1/137$  - постоянная тонкой структуры) тормозная способность веществ пропорциональна  $Z$ , а время торможения составляет  $10^{-9}$ - $10^{-10}$  сек (в газах в  $10^3$  раз больше). В водороде процесс торможения определяется механизмом адиабатической ионизации<sup>/8/</sup>. Согласно вычислениям Вейтмана<sup>/10/</sup> в жидком водороде  $\tau \sim 10^{-9}$  сек.

Атомный захват мезонов. Стадия захвата мезонов на высоко-возбужденные уровни мезоатомов и мезомолекул менее всего изучена. Обычно, не вдаваясь в детали процесса торможения, предполагают, что в конденсированных веществах мезоны со скоростями  $v \sim \alpha c$  довольно быстро, за время  $10^{-13}$ - $10^{-14}$  сек, тормозятся до тепловых скоростей  $v_T \sim (3kT/m)^{1/2}$ . Дальнейшие потери энергии мезонов и их захват в связанное состояние мезоатомов должны существенным образом зависеть от свойств вещества мишени, поскольку при этом происходят передачи малых порций энергии от мезона к атому. Учесть аккуратно упомянутые особенности пока не удалось. В водороде, по-видимому, наиболее эффективен адиабатический захват<sup>/8, 10/</sup>, согласно которому мезон, приближаясь к ядру атома водорода, экранирует его заряд, вследствие чего электрон

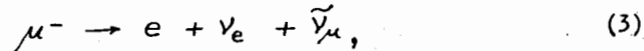
покидает атом, а мезон с массой  $m$  захватывается на орбиту с номером  $N_0 \approx 0,8\sqrt{\mu^*}$ , где  $\mu^* = m(1 + m/M_p)$  - приведенная масса системы мезон-протон. Отсюда следуют значения  $N_0 = 14, 15$  и  $26$  для  $\mu^-$ ,  $\pi^-$  и  $K^-$  мезонов соответственно<sup>/10/</sup>. Эти значения исходных орбит  $N_0$  были приняты Айзенбергом и Кесслером<sup>/11, 12/</sup> при их расчетах каскадов в различных мезоатомах.

Процессы девозбуждения. Из высоковозбужденных состояний  $N$  мезоатомов мезоны переходят в состояния  $n$  с меньшей энергией, либо излучая  $\gamma$ -квант, либо отдавая энергию электрону атомной оболочки (Оже-переходы).

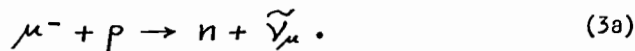
Вероятности радиационных переходов  $\sim (\Delta E)^3$ , Оже-переходов  $\sim (\Delta E)^{-1/2}$ , поэтому  $\gamma$ -излучение преобладает при глубоких переходах мезонов в тяжелых атомах, в то время как Оже-электроны преимущественно сопровождают переходы мезона между высоковозбужденными уровнями легких мезоатомов с малой передачей энергии  $\Delta E$ . Оба типа переходов подчиняются обычным правилам отбора по орбитальному моменту  $l$  и его проекции  $m$  для дипольных переходов:  $\Delta l = \pm 1$ ,  $\Delta m = 0, \pm 1$ . В изолированном мезоатоме эти правила сильно удлиняют время каскада, поскольку благодаря им мезон из состояния  $(nlm)$  может перейти не ниже, чем в состояние  $n' \geq l-1$  и поэтому достигает основного уровня только последовательными переходами.

Ядерный захват мезонов. Достигнув орбиты  $n' = 1$  мезоатома

$Z\mu$ ,  $\mu^-$  - мезон либо распадается по реакции



либо взаимодействует с протоном ядра



Скорости этих процессов сравнительно невелики и составляют  $10^6-10^7$  сек<sup>-1</sup>.

Скорости ядерного захвата  $\pi^-$  и  $K^-$ -мезонов из  $nS$ -состояний мезоатомов  $p\pi$  и  $pK$  весьма значительны, что приводит к поглощению мезонов уже с орбит  $n \geq 4$ .

Захват  $\pi^-$ -мезонов ядрами  $Z$  вызывает развал ядер, в случае же атомов водорода происходит реакция перезарядки  $\pi^-$ -мезонов на протонах. Абсолютная скорость этой реакции из  $nS$ -состояний  $p\pi$ -мезоатома согласно вычислениям Фрэя<sup>/13/</sup>  $\Gamma = 1,6 \cdot 10^{15} n^{-3}$  сек<sup>-1</sup> на много порядков величины превышает скорость распада свободного  $\pi^-$ -мезона ( $\sim 10^8$  сек<sup>-1</sup>).

Столкновения мезоатомов водорода. Этот процесс предшествует ядерному захвату мезонов в водороде и в некоторых случаях может существенно изменить его скорость. Время самого быстрого радиационного перехода  $2p \rightarrow 1s$  в изолированном мезоатоме  $p\pi$  составляет  $\sim 6 \cdot 10^{-12}$  сек, однако правила отбора  $\Delta l = \pm 1$  удлиняют общее время каскада с уровня  $(nlm)$  на уровень  $1s$  до величины  $\sim 10^{-9}$  сек. Последнее значение значительно превышает экспериментально измеренное в жидком водороде  $\tau_H = (2,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-12}$  сек<sup>/14-16/</sup>. Это означает, что в процессе девозбуждения  $p\pi$ -атомов радиационные переходы несущественны, а основную роль играют процессы столкновения  $p\pi$ -мезоатомов с атомами водорода<sup>х)</sup>

х) Истинность изложенного механизма девозбуждения подтверждается измерениями времени жизни  $\pi^-$ -мезонов в гелии, мезоатомы которого из-за кулоновского отталкивания не могут подходить вплотную к ядрам атомов. По этой причине  $\tau_{He} = (3,6 \pm 0,7) \cdot 10^{-10}$  сек<sup>/20/</sup> на два порядка величины превышает значение  $\tau_H$ .

Электронейтральность  $p\pi$ -атомов и их малые размеры ( $10^{-10}-10^{-11}$  см) позволяют им проникать внутрь электронных оболочек атомов и отдавать энергию возбуждения электронам "чужого атома" (т.н. внешний Оже-эффект<sup>/17/</sup>).

Кроме того, смешивание высоковозбужденных состояний  $p\pi$ -атома с различными  $l$  в кулоновском поле налетающего ядра приводит к постоянному обогащению  $nS$ -состояний, из которых идет интенсивный захват мезонов ядрами. Эффективно это приводит к ядерному захвату мезонов из состояний с  $l \neq 0$ , минуя каскад (механизм Дэй-Сноу-Сачера<sup>/18, 19/</sup>). Учет обоих упомянутых механизмов девозбуждения  $p\pi$ -мезоатомов приводит к удовлетворительному согласию вычисленного и измеренного времени жизни  $\pi^-$ -мезонов в водороде<sup>/17/</sup>.

Кроме упомянутых процессов при столкновении мезоатомов водорода с ядрами  $Z$  других атомов идут процессы перехвата мезонов  $p\mu \rightarrow Z\mu$  и  $p\pi \rightarrow Z\pi$ , о которых в дальнейшем мы будем говорить подробнее.

Такая, бегло очерченная схема мезоатомных процессов в веществе сложилась к началу 60-х годов после работ Ферми и Теллера<sup>/8/</sup>, Вайтмана<sup>/10/</sup>, Эйзенберга и Кесслера<sup>/11, 12/</sup>, Леона и Бете<sup>/17/</sup>, Герштейна<sup>/21/</sup>. Во всех этих работах молекулярная структура веществ во внимание не принимается, а нарушения  $Z$ -закона, установленные в ряде работ<sup>/22-25/</sup>, объясняются особенностями захвата мезонов атомами различных элементов<sup>х)</sup>.

х) Например, Бобров и др. <sup>/25/</sup> объясняли обнаруженные ими систематические отступления от  $Z$ -закона различным сродством элементов к электронам.

Однако эксперименты, начатые в 1962-1965 годах, убедительно показали, что одной из основных причин обнаруженных аномалий является молекулярная структура веществ.

#### АТОМНЫЙ ЗАХВАТ $\mu^-$ -МЕЗОНОВ В ХИМИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ

В ранних работах вероятность атомного захвата  $\mu^-$ -мезонов в химических соединениях изучалась с помощью реакции (3а). В последнее время такие измерения продолжены в работе<sup>/26/</sup>. Другой способ измерения вероятностей атомного захвата  $W(Z)$  и  $W(Z')$  состоит в измерении относительных интенсивностей мезорентгеновского излучения различных элементов в химических соединениях. Существенно, что стадия каскадных переходов ближе к началу цепочки мезоатомных процессов и окончательные результаты опытов не искажены процессами перехвата.

#### Интегральная интенсивность К-серии

В работах Зинова и др.<sup>/27-31/</sup> измерялась интегральная интенсивность  $J(Z)$  К-серии различных элементов в смесях веществ и в бинарных химических соединениях типа  $Z'_k Z_m$ . Ввиду того, что перехват мюонов в таких системах отсутствует, величина  $J(Z)$  может служить мерой вероятности  $W(Z)$  атомного захвата. Отношение вероятностей захвата  $A(Z/Z')$  рассчитанное на один атом

$$A(Z/Z') = k W(Z) / m W(Z') \quad (4)$$

характеризует степень отклонения от  $Z$ -закона, для которого  $A(Z/Z') = Z/Z'$ .

Смеси инертных газов. Оказалось, что в смеси инертных газов<sup>/31/</sup>  $Z$  - закон выполняется удовлетворительно (рис. 2). Небольшие отклонения от него объясняются, по-видимому, различием ионизационных потенциалов, от которых логарифмически зависят тормозные способности элементов.

В то же время в смеси  $Az + CO_2$   $Z$  - закон резко нарушается; измеренная величина  $W(CO_2)$  превышает расчетную примерно в два раза (рис. 2)<sup>x)</sup>.

Сплавы и соли галогенов. При измерении величины  $A(Z/Z')$  в соединениях металлов между собой и с галогенами<sup>/27/</sup> была установлена некоторая закономерность, которая представлена на рис. 3. Все экспериментальные точки группируются вокруг прямой

$$A(Z/Z') = 0,66 Z/Z' \quad (5)$$

Этот результат можно считать подтверждением справедливости  $Z$  - закона для смесей элементов, поскольку ионные соединения (каковыми являются соли галогенов) в некотором смысле также можно рассматривать как "механическую смесь ионов".

Оксиды. На рис. 4 представлены результаты измерения величины  $A(Z/Z')$  для нормальных оксидов  $Z_k O_m$ , то есть для оксидов, в которых валентность металлов совпадает с номером их группы в таблице Менделеева. Прежде всего, из рисунка видно, что величина  $A(Z/O) < Z/O$ , то есть независимо от вида элемента, образующего оксид, вероятность атомного захвата мюона  $W(Z)$  на элемент  $Z$  по отношению к вероятности  $W(O)$  захвата на кислород всегда меньше, чем это следует по  $Z$ -закону<sup>/27/</sup>.

x) Этот факт, в частности, доказывает, что в некоторых случаях сечение атомного захвата определяется последними стадиями торможения, при скоростях мезонов  $v < \alpha c$ , когда формула для тормозных потерь неприменима.

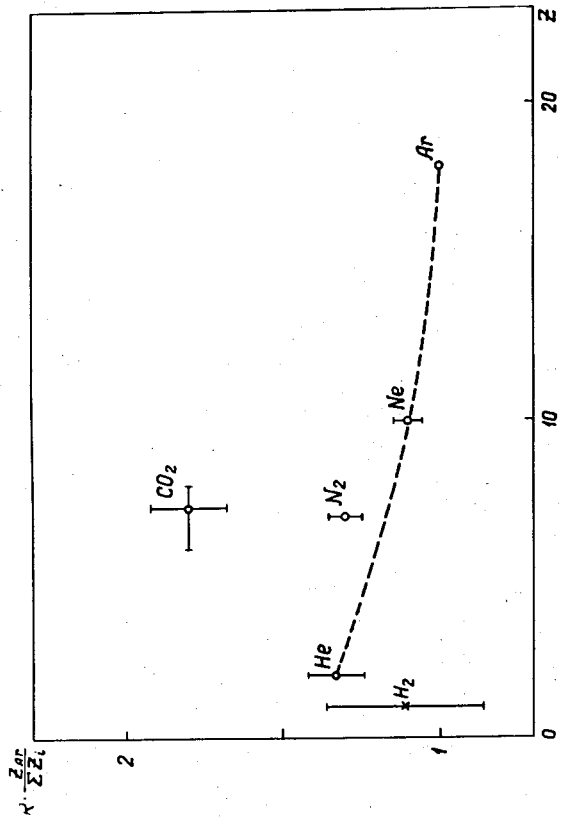


Рис. 2. Результаты проверки  $Z$ -закона в смесях газов.  $R$  - отношения тормозных способностей  $Az$  и элемента с порядковым номером  $Z$  (Зинов и др./29/).

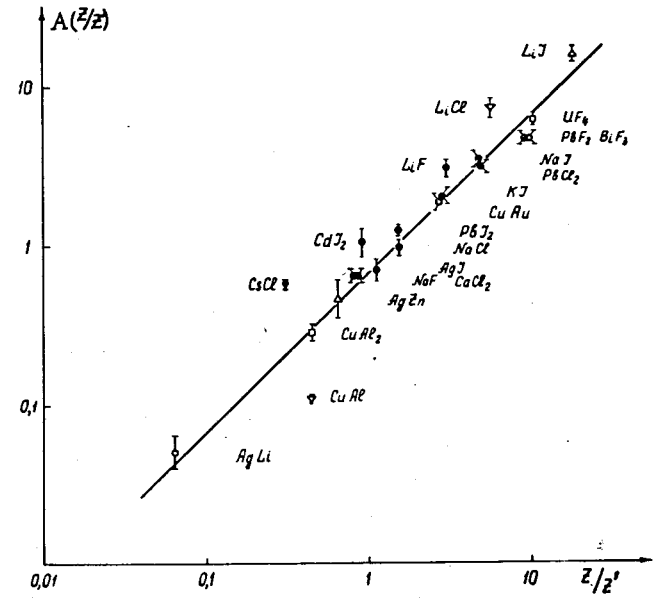


Рис. 3. Атомный захват в сплавах и галогенах металлов  $Z'_k Z_m$  по работе Зинова и др./27/. Прямая соответствует формуле  $A(Z/Z') = 0,66 Z/Z'$ .



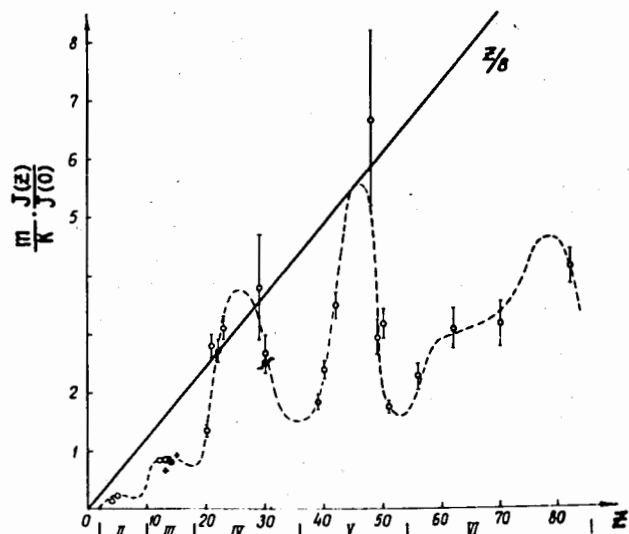


Рис. 4. Периодическая зависимость относительной вероятности  $A(Z/8)$  захвата мюонов атомами металлов в окислах (Зинов и др. /27/).

Кроме того, величина  $A(Z/8)$  обнаруживает периодическую зависимость от значения  $Z$ , причем ее минимумы приходятся на начало периодов, т.е. на щелочные металлы. Этот факт свидетельствует о влиянии типа химической связи на вероятность атомного захвата мюонов.

Наиболее отчетливо это влияние установлено параллельными измерениями величины  $A(Z/8)$  в различных окислах одного и того же металла, например:

$$A(\text{MgO}) = 0,83 \pm 0,07 \quad A(\text{MgO}_2) = 0,53 \pm 0,03$$

$$Z/8 = 1,5$$

$$A(\text{BaO}) = 2,27 \pm 0,22 \quad A(\text{BaO}_2) = 3,28 \pm 0,30$$

$$Z/8 = 7,0$$

Наибольшее различие (в два раза) найдено для пары окислов /27/

$$A(\text{Sb}_2\text{O}_3) = 3,48 \pm 0,35 \quad A(\text{Sb}_2\text{O}_5) = 1,73 \pm 0,09$$

$$Z/8 = 6,4$$

(6)

#### Структура K- и L-серий

Более полную информацию о процессе атомного захвата мюонов дает изучение структуры K- и L-серий, т.е. измерения интенсивностей  $J_\alpha, J_\beta, J_\gamma$  отдельных компонент K-серии:  $K_\alpha$  (переход  $2p \rightarrow 1s$ ),  $K_\beta$  ( $3p \rightarrow 1s$ ),  $K_\gamma$  ( $4p \rightarrow 1s$ ) и L-серии:  $L_\alpha$  ( $3d \rightarrow 2p$ ),  $L_\beta$  ( $4d \rightarrow 2p$ ) и  $L_\gamma$  ( $nd \rightarrow 2p$ ).

Расчеты Айзенберг и Кесслер<sup>/II, I2/</sup> предсказывают монотонное падение интенсивности высоких переходов К-серии с ростом атомного номера  $Z$  элементов. Однако экспериментальные результаты не подтверждают этой зависимости: после  $Ca$ , где результаты опытов<sup>/32, 33/</sup> и расчеты<sup>/II, I2/</sup> совпадают, интенсивность  $J_{\nu}$  резко возрастает с увеличением  $Z$  (Рис. 5).

В первоначальных опытах Зинова и др.<sup>/28/</sup> было обнаружено, что структура К-серии чистых металлов отличается от структуры К-серии тех же металлов, входящих в состав окислов. С помощью спектрометра  $NaJ$  были изучены спектры пар  $Ti$  и  $TiO_2$ ,  $V$  и  $V_2O_5$ ,  $Cr$  и  $Cr_2O_3$ . Во всех трех случаях вклад  $K_{\nu}$  - переходов в общую интенсивность К-серии для чистых металлов оказался заметно выше, чем для тех же металлов в составе окислов (Рис. 6а).

С помощью  $Ge(Li)$  спектрометров Кесслеру и др.<sup>/34/</sup> удалось разрешить отдельные компоненты  $K_{\nu}$ - и  $L_{\nu}$ -серий. Измеренные ими отношения интенсивностей

$$R = (J_i/J_{\alpha})_{TiO_2} / (J_i/J_{\alpha})_{Ti} \quad (7)$$

отдельных  $K_i$  и  $L_i$  линий титана представлены на рис. 5б. Из него непосредственно видно, что при переходе от металла к его окислу уменьшается не только общая интенсивность  $K_{\nu}$ -серии, но также интенсивность каждой из компонент этой серии, причем тем сильнее, чем выше измеряемый переход  $np \rightarrow 1s$ . Кроме того, было установлено, что суммарная интенсивность всех  $K_{\nu}$ -переходов с уровнями  $n \geq 6$  превышает вдвое предсказанную теоретически, в отношении  $L_{\alpha}/K_{\alpha}$  в  $Ti$  на 12% меньше, чем в  $TiO_2$ .

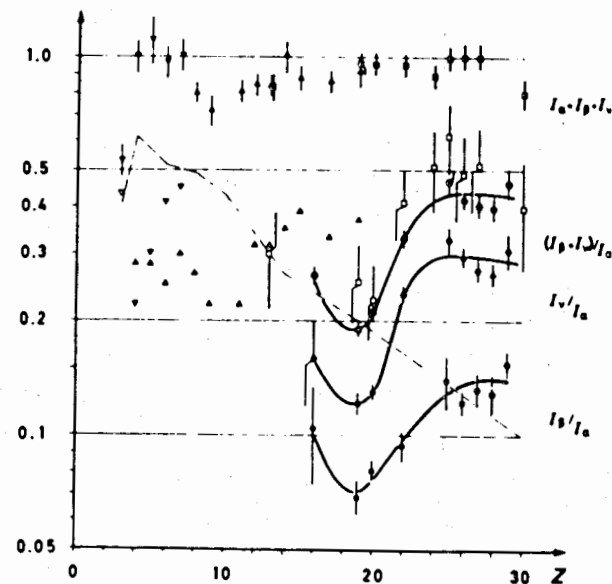
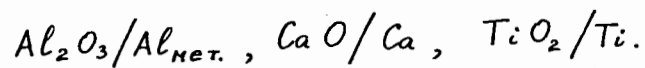


Рис. 5. Относительный вклад  $K_{\nu}$ -серии в общую интенсивность К-серии как функция атомного номера  $Z$  элемента по работе Квитмена и др.<sup>/33/</sup>.

Эксперименты такого типа были продолжены затем в работах Даниэля и др.<sup>/35/</sup> и Тошере и др.<sup>/36/</sup> на пучке  $\mu^-$ -мезонов и в работе Грина и Кэнсельмана<sup>/37/</sup> на пучке  $\pi^-$ -мезонов.

В первой из упомянутых работ<sup>/35/</sup> отношение того же вида, что и (7) измерялось для пар:  $NaCl/Na_{мет.}$ ,



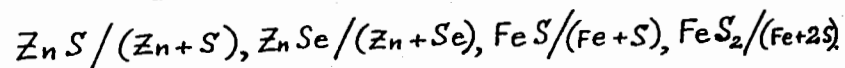
Во всех случаях установлено, что интенсивность  $K_{\gamma}$ -линий металлов в оксидах меньше, чем в чистых металлах.

В следующей работе<sup>/36/</sup> авторы обнаружили зависимость отношения интенсивностей переходов  $\alpha(Z) = (5f-3d)/(4f-3d)$  не только от химического состояния селена, но также от его физического состояния. Измеренное отношение оказалось равным:

$$R = \alpha(Se_{аморф.})/\alpha(Se_{мет.}) = 0,74 \pm 0,06 \quad (8)$$

Авторы отмечают также отличие результатов, полученных с  $\mu^-$  и  $\pi^-$ -мезонами: как правило "химические эффекты" больше в случае  $\mu^-$ -мезонов.

В работе<sup>/36/</sup> исследованы отношения интенсивностей пионных рентгеновских переходов типа  $\alpha(Z_1, Z_2) = (4f-3d)Z_1/(3d-2p)Z_2$  в соединениях  $Z_1 Z_2$  и в эквивалентных им механических смесях  $Z_1 + Z_2$ . В частности, были исследованы пары



Наибольшие различия наблюдаются для пары  $ZnSe/(Zn+Se)$  для которой отношение

$$R(Zn, Se) = \alpha(ZnSe)/\alpha(Zn+Se) = 5,50 \pm 0,35 \quad (9)$$

Такого типа отношения зависят от характера химической связи.

Например, отношение интенсивностей переходов  $R(Fe, S)$  для пар  $FeS/(Fe+S)$  и  $FeS_2/(Fe+2S)$  различно и равно соответственно  $R = 2,25 \pm 0,10$  и  $R = 1,55 \pm 0,10$ .

Аналогом исследованных пар  $Z_1 Z_2/(Z_1 + Z_2)$  является пара  $KCl/KCl_{(раствор)}$ , поскольку в растворе хлористый кальций полностью диссоциирован и эквивалентен смеси ионов  $K^+$  и  $Cl^-$ . Измеренное отношение  $R = \alpha(KCl)/\alpha(KCl_{раств.})$  величин  $\alpha = (3d \rightarrow 2p)_K / (3d \rightarrow 2p)_{Cl}$  для пары  $KCl/KCl_{раств.}$  равно  $R = 1,40 \pm 0,10$ .

#### Предварительное обсуждение

Приведенные факты убедительно демонстрируют влияние химической структуры веществ на процессы атомного захвата и последующего девозбуждения образующихся мезоатомов и мезомолекул. Их не удается согласовать с теоретическими представлениями о каскадных переходах мезонов в изолированном мезоатоме.

В работе Ау-Янга и Козна<sup>/33/</sup> сделана попытка учесть влияние химической связи на атомный захват мезонов. Согласно их расчетам наблюдаемые особенности атомного захвата мезонов в оксидах<sup>/28/</sup> можно объяснить смещением электронного облака к кислороду, которое количественно описывается эффективным зарядом  $Z_f$  (численно он равен степени ионности связи, умноженной на число валентных электронов<sup>/39/</sup>). Учитывая таким образом изменение эффективных зарядов атомов, образующих молекулу, в остальном они полагают поле центрально-симметричным и в этих предположениях качественно объяснили периодическую зависимость атомного захвата мезонов в оксидах.

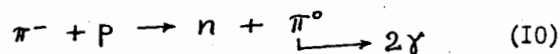
Однако с этой точки зрения нельзя понять сильную зависимость  $K_{\nu}$ -серии элементов от вида химических соединений, поскольку при сохранении центрально-симметричного характера поля атома в молекуле каскадные переходы мезона не должны отличаться от каскадных переходов в изолированном мезоатоме.

Попытка<sup>/34/</sup> согласовать наблюдаемые "химические эффекты" в  $K_{\nu}$ -сериях с расчетами<sup>/II, I2/</sup> каскадов мезона в изолированном мезоатоме показала, что для этого необходимо допустить существенно различные начальные распределения мезонов по уровням мезоатома с различными орбитальными моментами  $l$  даже для элементов с близкими атомными номерами (например,  $Ti$  и  $Mn$ ) Такое предположение выглядит неестественным.

Вся совокупность приведенных экспериментальных фактов по изучению атомного захвата отрицательно заряженных мезонов в химических соединениях вынуждает признать, что структура валентных оболочек элементов существенно влияет на процессы атомного захвата мезонов. Особенно ярко это влияние проявляется при изучении поглощения  $\pi^-$ -мезонов в водородосодержащих веществах<sup>/40-45/</sup>.

ЯДЕРНЫЙ ЗАХВАТ  $\pi^-$ -МЕЗОНОВ ПРОТОНАМИ ХИМИЧЕСКИ СВЯЗАННОГО ВОДОРОДА И МОДЕЛЬ БОЛЬШИХ МЕЗОМОЛЕКУЛ

Реакция перезарядки  $\pi^-$ -мезонов на протонах идет по двум каналам



с вероятностями 0.6 и 0.4 соответственно<sup>/46/</sup> и обладает рядом

особенностей. В жидком водороде ее вероятность близка к единице, т.е. каждый  $\pi^-$ -мезон, остановившийся в мишени, приводит к реакции (I0) или (I0a). Реакция (I0) обладает, кроме того, характерным "почерком" (при распаде покоящегося  $\pi^0$ -мезона пара  $\gamma$ -квантов летит в противоположных направлениях), что позволяет надежно выделить ее на фоне других реакций. При захвате  $\pi^-$ -мезонов ядрами других элементов вместо реакции (I0) происходит развал ядра или же вылет нуклона<sup>/47/</sup>. Даже в дейтерии реакция (I0) подавлена до уровня  $\sim 10^{-3}$  по сравнению с водородом<sup>/47/x)</sup>. Таким образом, факт наблюдения реакции (I0) означает, что  $\pi^-$ -мезон поглотился именно ядром водорода и в соответствии с этим в чистом водороде ее вероятность можно нормировать на единицу:  $W(H_2) = 1$ .

Обнаружение эффекта

Если водород входит в химическое соединение типа  $Z_m H_n$ , то следует ожидать подавления реакции (I0), поскольку часть мезонов уже на стадии атомного захвата попадает на уровни  $Z\pi$ -атомов и вклада в реакцию (I0) не дает. В этом случае  $Z$ -закон предсказывает для вероятности  $W(Z_m H_n)$  следующее выражение

$$W(Z_m H_n) \approx n/mZ. \quad (II)$$

Однако попытка Панофского и др.<sup>/40/</sup> обнаружить эту реакцию в

x) Исключение составляет  $He^3$ , в котором реакция I0 идет с вероятностью 0,155<sup>/48/</sup>. На ядрах тяжелых элементов происходит перезарядка пионов "на лету", т.е. минуя стадию образования мезоатома. Однако вероятность такой реакции весьма мала и составляет  $10^{-5}-10^{-4}$ . В  $LiD$  вероятность реакции перезарядки I0 равна  $\sim 3 \cdot 10^{-5}$  /47/.

и полиэтилене  $(\text{CH}_2)_n$  оказалась безуспешной. Причина этого выяснилась после работ Дунэйцева и др./41, 43/, Петрухина и Прокошкина/42/, Чарба и др./44/, Бартлетта и др./45/. Оказалось, что вероятность  $W(Z_m H_n)$  подавлена значительно сильнее, а именно по закону

$$W(Z_m H_n) \approx a n Z^{-3} / m, \quad (12)$$

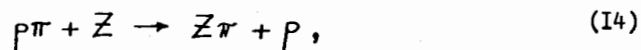
где  $a$  - некоторый коэффициент порядка единицы.

Из рис. 7, где представлена величина

$$P = m W(Z_m H_n) / n = a \cdot Z^{-3} \quad (13)$$

видно, что значения  $P$  для водородосодержащих соединений элементов второго периода таблицы Менделеева хорошо описываются второй частью формулы (13) с коэффициентом  $a \approx 1,3$ .

Такое сильное подавление (например,  $W(L:H) \approx 3,5 \cdot 10^{-2}$ ,  $W(H_2O) \approx 3,5 \cdot 10^{-3}$ ) нельзя объяснить процессами перехвата  $\pi^-$ -мезонов по реакции



как это предлагалось в работах/40, 41/, поскольку в этом случае вероятность (12), должна зависеть от числа столкновений  $p\pi$  атомов с ядрами  $Z$ , т.е. от числа ядер в единице объема. Опыт противоречит такому заключению/50/: вероятность реакции (10) в этане  $\text{C}_2\text{H}_6$  остается неизменной при варьировании плотности этана в 110 раз (от газе до жидкости).

Предпринятые в дальнейшем специальные опыты по изучению реакции (10) в смеси водорода с другими газами  $\text{H}_2 + Z$  /51, 52/ показали, что реакция (14) слабо зависит от зарядов  $Z$

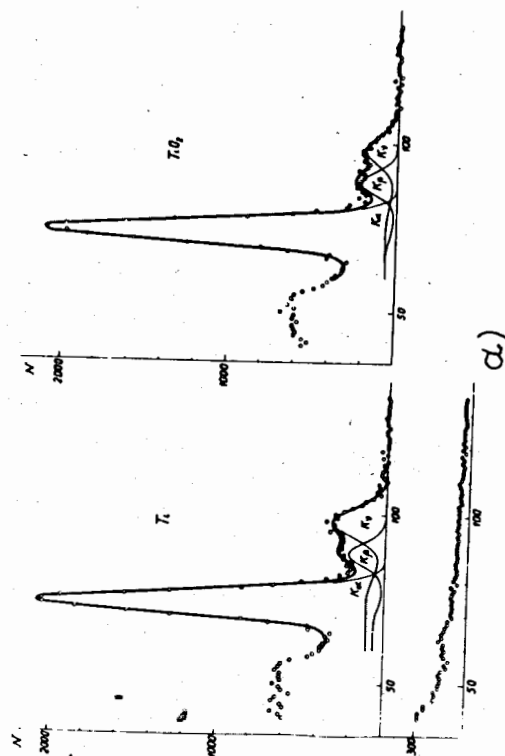
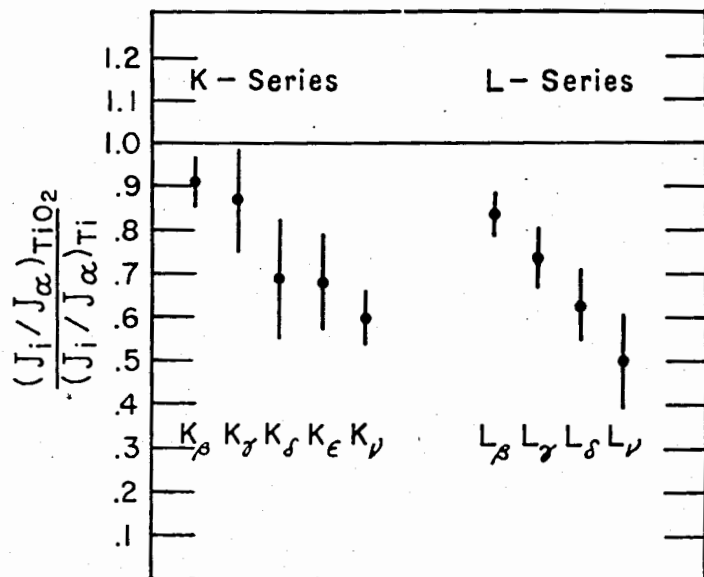


Рис. 6. Интенсивность  $K\alpha$ -серии  $Ti$  в чистом металле и в окисле  $TiO_2$ .

а) Изменение суммарной интенсивности  $K\alpha$ -серии (Зинов и др./28/).



б)  
Рис. 6.

б) Изменение интенсивностей отдельных линий  $K_\gamma$ -серии (Кесслер и др. /34/).

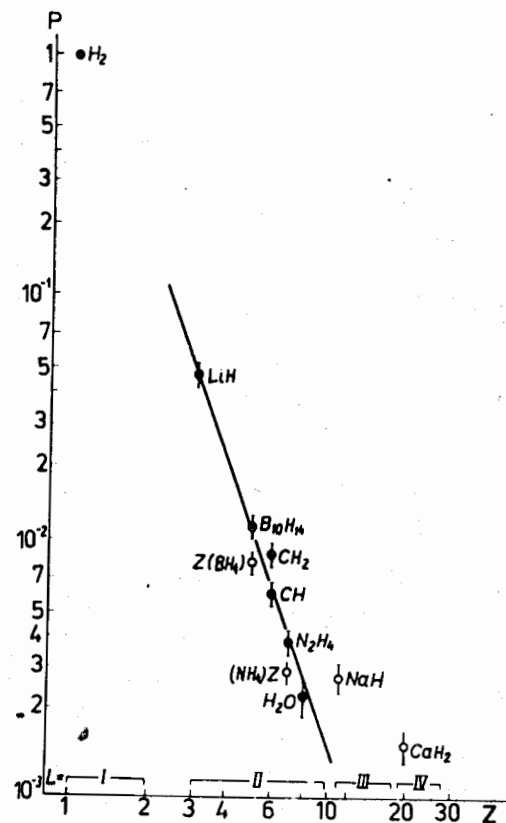


Рис. 7. Приведенная вероятность  $P = m W(Z_m H_n) / n^2$  реакции перезарядки  $\pi^-$ -мезонов на протонах в водородосодержащих веществах  $Z_m H_n$  как функция атомного номера  $Z$  (Крумштейн и др. /69/). Прямая соответствует зависимости  $P = a \cdot Z^{-3}$  при значении  $a = 1.3$ .

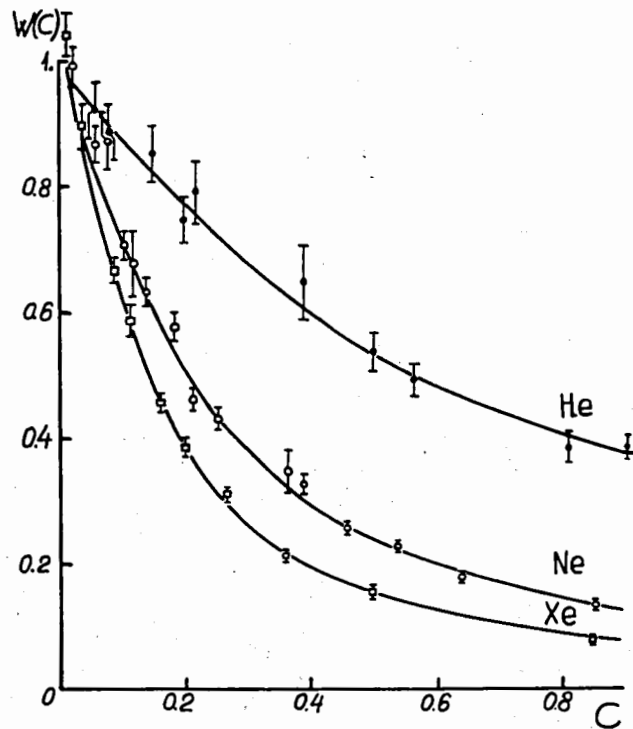


Рис. 8. Перехват  $p\bar{\pi} + Z \rightarrow Z\bar{\pi} + p$  в газовых смесях  $H_2 + Z$  по работам Петрухина и др. /51, 52/.

атомов тяжелых газов и поэтому не может служить причиной зависимости (12).

На рис. 8 представлена зависимость  $W(C) = W(H_2 + Z)/W(H_2)$  как функция относительной концентрации  $C = n_Z/n_H$  атомов  $Z$  в смеси газов  $H_2 + Z$  ( $n_H$  и  $n_Z$  соответственно - числа атомов водорода и примеси  $Z$  в см<sup>3</sup>). Из рисунка видно, что даже при концентрациях  $C \sim 1$ , т.е. сравнимых с концентрациями тяжелых атомов в водородосодержащих веществах типа  $Z_m H_n$ ,  $W(C) = 0,2+0,1$  и слабо зависят от зарядов  $Z$  тяжелого газа в смеси. Этот результат не связан со спецификой газовых смесей, поскольку форма кривых на рис. 8 не зависит от суммарного давления в смеси  $H_2 + Z$ , т.е. от абсолютных концентраций  $n_H$  и  $n_Z$ , а только от величины  $C^{51/x}$ .

Приведенные факты с очевидностью свидетельствуют, что механизм подавления реакции (10) в химических соединениях отличается от перехвата по реакции (14). Дальнейшие измерения<sup>/46/</sup> вероятности реакции перезарядки (10) в гидразине  $N_2 H_4$  и в эквивалентной ему механической смеси  $N_2 + 2H_2$  показали<sup>/53/</sup>, что отношение вероятностей

$$W(N_2 H_4)/W(N_2 + 2H_2) \approx 1/30,$$

то есть при одном и том же значении относительной концентрации  $C=0,5$  ядра химически связанного водорода вступают в реакцию (10) в 30 раз реже, чем ядра свободного водорода.

Все это вместе взятое означает, что причину наблюдаемых эффектов следует искать в особенностях взаимодействия мезонов с валентными электронами молекул.

\*) Кривые на рис. 8 описываются формулой  $W(C) = (1 + \Lambda C)^{-1}$ , где  $\Lambda = f(Z, C)$  - слабо меняющаяся функция в пределах  $\Lambda = 5-10$  для всех  $Z \leq 36$  и  $C \leq 1$  /52/. В смеси водорода с дейтерием /50/ перехват значительно слабее: при  $C \sim 1$ ,  $W(C) \approx 0,8$ . Эта картина перехвата существенно отличается от перехвата  $\mu^-$ -мезонов, для которых наблюдается практически полный переход  $p\mu^- \rightarrow Z\mu^-$  уже при концентрациях  $C \sim 10^{-5}$ . Указанное различие объясняется большим временем жизни  $\mu^-$ -мезонов на К-орбите и сильным поглощением  $\mu^-$ -мезонов протонами уже из высоких  $ns$ -состояний  $p\pi^-$ -атома.

### Модель больших мезомолекул

Модель больших мезомолекул<sup>/54, 56, I/</sup> была предложена вначале для объяснения особенностей реакции перезарядки  $\pi^-$ -мезонов на ядра химически связанного водорода. Основное утверждение модели состоит в том, что на стадии атомного захвата мезонов часть их захватывается на высоковозбужденные орбиты, лежащие в области валентных электронов молекулы. Такое утверждение эквивалентно предположению, что в природе могут существовать сравнительно устойчивые комплексы типа  $Z_m \pi^- H_n$ , размеры которых "с точки зрения мезона" чрезвычайно велики (500 м.а.е. длины).

Допущение о существовании больших мезомолекул на первый взгляд выглядит неправдоподобным, однако, как показывает простой анализ, не содержит в себе внутренних логических противоречий. Легко видеть, что одна эта гипотеза качественно объясняет многие из упомянутых эффектов (независимость вероятности реакции (IO) от плотности и агрегатного состояния веществ, от примесей тяжелых элементов и т.д.). Однако для количественных предсказаний необходимы более конкретные предположения.

Предварительное рассмотрение. Для простоты рассмотрим бинарную молекулу  $ZH$  (например,  $L:H$ ), схема которой изображена на рис. 9. В такой двойной потенциальной яме возможны три типа уровней: уровни  $n$  изолированного мезоатома водорода, энергия  $E_n$  которых смещена полем ядра  $Z$ , расположенного на расстоянии  $R \gg 1$  от протона

$$E_n \approx -\frac{1}{2n^2} - \frac{Z}{R}, \quad (15)$$

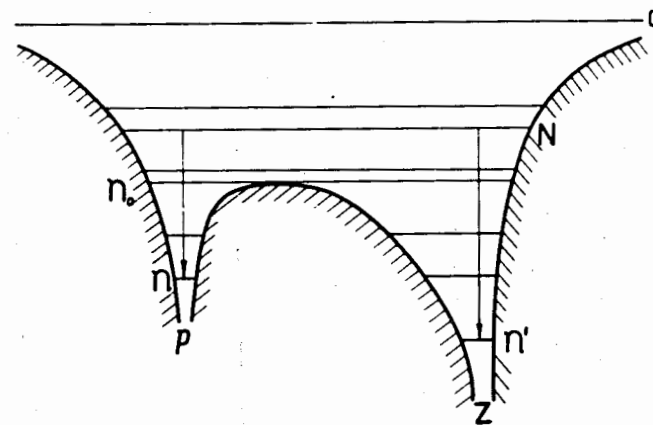


Рис. 9. Схема уровней "большой мезомолекулы"  $p\pi Z$ .  $N$  - мезомолекулярные уровни, расположенные в области валентных электронов молекулы  $ZH$ ;  $n$  и  $n'$  - уровни изолированных мезоатомов  $p\pi$  и  $Z\pi$ .



уровни  $n'$  изолированного  $Z\pi$ -атома

$$E_{n'} \approx -\frac{1}{2} \left(\frac{Z}{n'}\right)^2 - \frac{1}{R} \quad (15a)$$

и, наконец, уровни  $N$ , принадлежащие всей большой мезомолекуле  $Z\pi-H$  в целом. Граничное значение  $n = n_0$ , которое отделяет уровни изолированного мезоатома  $p\pi$  от молекулярных уровней  $N$  определяется из условия  $E_{n_0} \leq U_{\max}$ , где  $U_{\max}$  - высота потенциального барьера, разделяющего обе ямы, равная максимуму потенциальной энергии мезона в поле двух неподвижных ядер  $p$  и  $Z$ , удаленных на расстояние  $R$

$$U = -\frac{1}{z_1} - \frac{Z}{z_2} \quad (16)$$

( $z_1$  и  $z_2$  - расстояния мезона соответственно до протона и ядра  $Z$ ). Величина  $U_{\max}$  достигается на оси молекулы в точке  $z_1 = R/(1 + \sqrt{Z})$  и  $z_2 = R - z_1$  и равна<sup>/54/</sup>

$$U_{\max} = -\frac{(1 + \sqrt{Z})^2}{R}. \quad (17)$$

Отсюда получаем оценку для максимального значения  $n = n_0$ , при котором уровень  $E_n$  можно считать принадлежащим мезоатому водорода, если он расположен на расстоянии  $R$  от ядра  $Z$  в молекуле<sup>x)</sup>

$$n_0 = \left[ \frac{R}{2} (1 + 2\sqrt{Z}) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (18)$$

x) Эта простая оценка подтверждена впоследствии точными расчетами<sup>/57/</sup>. Поскольку  $n_0$  слабо зависит от  $Z$ , то учет экранировки ядра в сложных атомах практически не сказывается на приведенной оценке.

при  $1 \leq Z \leq 10$  и  $R = 400+600$ ,  $n_0 = 5-7$ . Для молекулы водорода ( $Z = 1$ ,  $R = 371$ )  $n_0 = 8$ , что существенно меньше оценки Вайтмана ( $N_0 = 15$ ), которая получена в пренебрежении влиянием второго ядра в молекуле водорода.

Принимая во внимание эти соображения, а также анализ, проведенный в предыдущих разделах, можно сформулировать основные предположения, лежащие в основе модели больших мезомолекул.

а) При переходе  $\pi^-$ -мезонов из состояния свободного движения в связанное состояние некоторая их часть с вероятностью  $W_1$  захватывается на мезомолекулярные орбитали  $N$  большой мезомолекулы  $Z_m \pi-H_n$ , лежащие в области валентных электронов исходной молекулы  $Z_m H_n$ . Оставшаяся их часть захватывается на уровни  $n'$  изолированного мезоатома  $Z\pi$ . На уровни  $n$  мезоатома  $p\pi$  на стадии атомного захвата мезоны не попадают.

в) В дальнейшем с вероятностями  $\omega_{nn}$  и  $\omega_{nn'}$  идут радиационные и Оже-переходы мезонов с общих уровней  $N$  на разделенные уровни  $n$  и  $n'$  мезоатомов  $p\pi$  и  $Z\pi$  соответственно. При этом основной причиной подавления реакции (10) в водородосодержащих веществах является малая вероятность  $W_2 = \omega_{nn}/(\omega_{nn} + \omega_{nn'})$  перехода мезонов с общих уровней  $N$  на уровни  $n$  изолированного мезоатома  $p\pi$ .

с) Достигая одного из нижних уровней  $p\pi$ -атома,  $\pi^-$ -мезон может перехватываться на уровни  $Z\pi$ -мезоатома по реакции (14) и в этом случае будет захвачен протоном лишь с вероятностью  $W_3$ .

В соответствии с этими предположениями результирующую вероятность реакции (10) можно представить в виде произведения вероятностей упомянутых трех стадий а), в) и с)

$$W = a W_1 W_2 W_3, \quad (19)$$

причем коэффициент  $a$  феноменологически учитывает особенности химической связи водорода в молекулах.

Рассмотрим подробнее каждую из упомянутых стадий процесса.

Захват на уровни мезомолекул. В настоящее время отсутствуют расчеты, которые бы позволили аккуратно вычислить вероятность  $W_1$  захвата мезонов на общие уровни  $N$  большой мезомолекулы. Существующие вычисления<sup>/38, 58-64/</sup> носят характер оценок и применимы только к изолированному атому. Из них следует, что мезоны малых энергий наиболее эффективно захватываются на высокие мезоатомные уровни с квантовыми числами  $N \geq 16$ , причем основным механизмом захвата является Оже-эффект на электронах атомной оболочки. В ряде работ отмечается, что распределение захваченных мезонов по уровням с различными значениями орбитального момента  $l$  может существенно отличаться от статистического  $(2l+1)$ -распределения<sup>/59, 60, 62, 63/</sup>. В частности,  $l$ -распределение может иметь максимум в области значений  $l \sim N/3$ <sup>/52/</sup> или  $l \sim (m_{\pi}/m_e)^{1/3}$ <sup>/63/</sup>.

В водороде при малых энергиях столкновения наиболее эффективен адиабатический захват мезонов, при котором мезон "замещает" электрон и захватывается на один из мезоатомных уровней с энергией, примерно равной энергии связи выбитого электрона. Это, в свою очередь, означает, что их орбиты геометрически подобны, т.е. орбита захваченного мезона находится в окрестности бывшей орбиты электрона.

Все вышесказанное остается справедливым и для водородосодержащих веществ с той, однако, разницей, что в этом случае в непрерывный спектр адиабатически уходит валентный электрон молекулы

$Z_m H_n$ . Ясно также, что в этом случае  $\pi^-$ -мезон на стадии атомного захвата не может попасть на уровни изолированного  $p\pi$ -атома, поскольку в химическом соединении единственный электрон атома водорода отдан на образование химической связи и при его адиабатическом замещении мезон попадает на общие уровни  $N$  системы  $ZH$ , а не на разделенные уровни  $n$  атома  $p\pi$ .

Если справедлива гипотеза о геометрическом подобии мезонных и электронных орбит при адиабатическом захвате мезонов, то они преимущественно должны захватываться на высоколежащие уровни с орбитальным моментом  $l \approx 0$ , поскольку электроны внешних оболочек атомов  $Z$ , образующих соединения с водородом, как правило, находятся в  $S$ -состоянии.

Чтобы оценить долю мезонов, захваченных на общие уровни, предположим, что все электроны молекулы  $Z_m H_n$  эквивалентны. Такое предположение является заведомо грубым и равносильно утверждению о справедливости  $Z$ -закона Ферми-Теллера на стадии первоначального захвата мезонов. В этом случае вероятность  $W_1$ -захвата мезонов на уровни  $N$  пропорциональна числу валентных электронов  $n$  и равна:

$$W_1 = n / (n + mZ). \quad (20)$$

Экспериментальные аргументы в пользу последней формулы, а также другие возможности мы рассмотрим несколько позднее.

Каскадные переходы. Мезоны, захваченные на разделенные уровни  $n'$  мезоатома  $Z\pi$ , претерпевают обычный каскад в изолированном мезоатоме. Дальнейшая судьба мезонов, попавших на общие уровни  $N$ , имеет некоторые особенности.

Прежде всего, эти мезоны движутся в поле, которое существенно отличается от центрально-симметричного. В таком поле ослаблены правила отбора по орбитальному моменту  $\Delta l = \pm 1$  для радиационных переходов, которые в изолированном мезоатоме сильно удлиняют время каскада. Поэтому вероятности переходов  $\omega_{Nn}$  и  $\omega_{Nn'}$  с общих уровней  $N$  на разделенные  $n$  и  $n'$  в данном случае должны существенно возрасти.

Кроме того, при описании движения мезона на высоких орбитах необходимо принимать во внимание экранировку ядер электронами внутренних оболочек. Оценки величины  $W_2$  с учетом обоих этих обстоятельств приводят к результату<sup>/55/ x)</sup>

$$\omega_{Nn'} \approx 10^{10} Z^2 \text{ сек}^{-1}. \quad (21)$$

Для переходов  $N \rightarrow n'$  на уровни  $n' \geq Z$  Оже-переходы преобладают над радиационными<sup>/11, 12/</sup>, поэтому процесс девозбуждения, по-видимому, происходит в две стадии: Оже-переход  $N \rightarrow n''$  на уровни  $n'' \sim Z$  и затем обычные радиационные переходы  $n'' \rightarrow n'$  в изолированном атоме  $Zr$  с той, однако, разницей, что заселенность уровней  $n''$  в данном случае может существенно

x) Как известно, без учета экранировки  $\omega_{Nn'} \sim Z^4$ . Полученная зависимость  $\omega_{Nn'} \sim Z^2$  опирается на соотношение  $|\psi_N(0)|^2 \sim Z$  для волновой функции внешних электронов атома в  $Ns$  - состоянии, движущихся в экранированном поле ядра  $Z$ <sup>/65/</sup>. Это соотношение является частным случаем формулы ферми-Сегре<sup>/66/</sup>, которая недавно была вновь выведена в квазиклассическом приближении<sup>/67/</sup>.

отличаться от статистического  $(2l+1)$  - распределения. В частности, из  $Ns$  - состояний наиболее вероятны переходы в  $n'p$  - состояния, причем зависимость  $\omega_{Nn'} \sim Z^2$  при таких ступенчатых переходах должна сохраниться<sup>x)</sup>.

Из общего выражения для вероятности Оже-переходов следует, что наиболее вероятно выбивание электрона, волновая функция которого максимально перекрывается с волновой функцией мезона<sup>/7/</sup>, то есть в случае геометрического подобия их орбит. Отсюда следует, что при каскадных переходах "валентных мезонов" наиболее вероятно выбивание электронов валентной оболочки. (Это следствие может быть проверено экспериментально с помощью Оже-электронной спектроскопии<sup>/68/</sup>).

Таким образом, вероятность  $\omega_{Nn'}$  перехода мезона с общего уровня  $N$  на разделенные уровни  $n$  мезоатома  $p\pi$  равна

$$W_2 = \omega_{Nn'} / (\omega_{Nn} + \omega_{Nn'}) \approx Z^{-2}. \quad (22)$$

x) Вероятность Оже-переходов  $\omega_{Nn''}^A = \omega_{Nn''} \cdot k$ , причем для дипольных переходов коэффициент конверсии  $k = (\hbar c^2 / \Delta E)^{3/2}$  слабо зависит от  $Z$ , поскольку энергии перехода мезона  $\Delta E$  между молекулярными уровнями  $N \gg Z$  и атомными уровнями  $n'' \sim Z$  практически одинакова для всех атомов. Очевидно также, что в случае двухступенчатого процесса  $N \xrightarrow{\text{Оже}} n'' \xrightarrow{\text{Раг.}} n'$  в  $K_{\alpha}$  - серии будут отсутствовать высокие переходы  $n''p \rightarrow 1s$  с уровнями  $n'' > Z$ . Выполненные недавно эксперименты (Джурьев, Евсеев и др., Зинов и др.) свидетельствуют, что приведенное рассуждение не лишено смысла.

Очевидно, только эти мезоны могут вызвать в дальнейшем реакцию перезарядки (I0), поскольку все остальные мезоны, попавшие на уровни  $n'$  мезоатома  $Z\pi$ , вклада в реакцию не дают.

В принципе, не исключена возможность прямого ядерного захвата  $\pi^-$ -мезонов протонами непосредственно из мезомолекулярных  $Ns$ -состояний, минуя стадию каскадных переходов<sup>x)</sup>. Энергия  $E_N$ -мезонов, движущихся в области валентных электронов молекулы, соответствует уровням энергии мезоатома  $p\pi$  с квантовыми числами  $n \sim \sqrt{m_\pi}$ . Скорость ядерного захвата из этих состояний  $\Gamma_{capt.} \approx 1,6 \cdot 10^{15} (m_\pi)^{-3/2} \approx 4 \cdot 10^{11} \text{ сек}^{-1}$  все еще намного превышает скорость распада свободного  $\pi^-$ -мезона и даже скорости радиационных переходов  $N \rightarrow n$ .

Перехват мезонов от  $p\pi$ -атомов к ядрам  $Z$ . Образовавшийся  $p\pi$ -атом движется в среде и сталкивается с ядрами других атомов. Скорость перехвата  $p\pi \rightarrow Z\pi$  пропорциональна числу ядер  $N_Z$  в единице объема:  $\Gamma_{tz} = \alpha N_Z$ . С этим процессом конкурируют процессы девозбуждения в мезоатоме  $p\pi$  и ядерный захват  $\pi^-$ -мезонов протонами из высоких  $ns$ -состояний  $p\pi$ -атома. Многочисленные факты свидетельствуют<sup>/I4-I6, /I7-I9/</sup> (см. Введение), что скорость этих процессов пропорциональна числу ядер водорода  $n_H$ , то есть  $\Gamma_{deex.} = \beta n_H$ . Отсюда вероятность  $W_3$  остаться  $\pi^-$ -мезону у протона при столкновениях с ядрами  $Z$  вещества равна:

$$W_3 = \beta n_H / (\beta n_H + \alpha N_Z) = (1 + \lambda C)^{-1}, \quad (23)$$

x) На такую возможность обратил внимание автора С.С.Герштейн.

где  $C = n_Z / n_H$ . Характерно, что  $W_3$  зависит только от относительной концентрации ядер атомов  $n_Z$  и  $n_H$  (см. также сноску на стр. 27).

Как показывают недавние опыты<sup>/65/</sup>, константа перехвата  $\lambda$  для  $p\pi$ -атомов, образовавшихся при захвате мезонов в химических соединениях, по крайней мере, в два раза меньше, чем соответствующая константа  $\Lambda$  для  $p\pi$ -атомов, образовавшихся при торможении мезонов в смеси  $H_2 + Z$ . Поэтому в дальнейшем рассмотрении мы будем полагать  $\lambda \approx 0$ , что на фоне остальных неопределенностей задачи не внесет существенной погрешности.

Очевидно, в случае прямого ядерного захвата  $\pi^-$ -мезонов протонами из мезомолекулярных  $Ns$ -состояний стадия перехвата отсутствует ( $\lambda = 0$ ).

Вероятность реакции перезарядки. С учетом соотношений (I9), (20), (22) формула для вероятности реакции перезарядки  $\pi^-$ -мезона на протоне в химических соединениях  $Z_m H_n$  примет вид

$$W(Z_m H_n) = a n Z^{-2} / (n + m Z). \quad (24)$$

Легко видеть, что полученная формула удовлетворительно описывает эмпирическую зависимость (I2).

В случае сложных соединений типа  $Z'_k Z_m H_n$  она преобразуется к виду

$$W(Z'_k Z_m H_n) = (a v Z^{-2} + a' v' (Z')^{-2}) / (n + m Z + k Z') \quad (24a)$$

Здесь  $v$  и  $v'$  - число валентных связей водорода с атомами  $Z$  и  $Z'$  соответственно<sup>x)</sup>.

Учет особенностей химической связи. В согласии с духом резонируемых представлений мезон в высоковозбужденном состоянии  $\mathcal{N}$  системы  $Z_m \pi - H_n$  играет роль "тяжелого электрона", причем его орбита подобна орбите замещенного валентного электрона, а его волновая функция отражает специфику химической связи, которую осуществлял выбитый электрон. В соответствии с этим коэффициент  $\alpha$  в формуле (24) учитывает изменение плотности электронного облака вблизи протона в зависимости от типа химической связи. Очевидно, в ионных соединениях он должен быть меньше, чем в ковалентных, если электроотрицательность водорода  $X_H$  меньше электроотрицательности  $X_Z$  атома  $Z$ . Можно попытаться связать величину коэффициента  $\alpha$  со степенью ионности связи  $\sigma$ . Одно из таких выражений было приведено в работе<sup>166/</sup>.

$$\alpha = 2\sigma + 1,3(1-\sigma), \quad (25)$$

в котором первое слагаемое должно быть опущено, если  $X_H < X_Z$  (например, в воде или кислотах).

x) Эта формула, как и соотношение (20), основана на предположении о справедливости  $Z$ -закона Ферми-Теллера на стадии атомного захвата мезонов. Ее обобщения в случае, когда известны действительные вероятности атомного захвата на атомы  $Z$  и  $Z'$ , очевидны, однако требуют введения по крайней мере еще двух параметров, которые должны определяться из независимых экспериментов.

Не следует, однако, придавать решающего значения такого рода выражениям, поскольку неопределенности в определении вероятностей  $W_i$  довольно велики и часть этих неопределенностей, связанных с первоначальным атомным захватом мезонов и последующим перехватом  $p\pi \rightarrow Z\pi$  неизбежно включается в коэффициент  $\alpha$ . Поэтому в дальнейшем будем рассматривать его как некоторый феноменологический параметр, в терминах которого удобно проводить анализ экспериментальных данных, и который, несмотря на всю свою неопределенность, все-таки правильно ухватывает основные черты явления.

#### Следствия и проверка положений модели

Кроме объяснения эмпирической зависимости  $W \approx n Z^{-3}/m$ , изложенная схема процессов приводит к ряду проверяемых следствий.

Независимость от плотности веществ. Поскольку основной механизм подавления реакции перезарядки (10) действует внутри молекулы, то ее вероятность не должна зависеть от столкновений молекулы с другими атомами, а, следовательно, от плотности и агрегатного состояния вещества. опыты с этаном<sup>150/</sup>, в которых плотность  $C_2H_6$  менялась от 0,0035 г/см<sup>3</sup> (газ) до 0,390 г/см<sup>3</sup> (жидкость) подтверждают это заключение (см. рис. 10).

Независимость от примесей тяжелых элементов. Резкая  $Z$ -зависимость вероятности реакции определяется зарядом  $Z$  ядра атома, химически связанного с водородом. Поэтому небольшие механические добавки элементов даже с очень большими зарядами ядер  $Z'$  не должны существенно изменять величину вероятности. Дейст-

вительно, добавление солей иода в метиловый спирт в пропорции  $9\text{CH}_3\text{OH} + \text{Mg J}$  не изменяет вероятности  $W(\text{CH}_3\text{OH})$  в чистом спирте<sup>/50/</sup>. Опыты в смесях газов  $\text{CH}_4 + \text{Z}'$  приводят к тому же заключению<sup>/70/</sup>.

Химические отличия. В рамках излагаемой модели следует ожидать отличия вероятности реакции (IO) в веществах, которые построены из одних и тех же атомов, но отличаются между собой по типу химической связи. Сравнение величин  $P(\text{Z}_m \text{H}_n) = m W(\text{Z}_m \text{H}_n) / n$ , то есть вероятностей реакции (IO) в расчете на одну связь  $\text{Z}-\text{H}$ , для различных наборов органических веществ подтверждают это заключение (см. таблицу 2).

В частности, отношения приведенных вероятностей

$$P(\text{CH}_4) / P(\text{C}_2\text{H}_4) = 1,3 \pm 0,1$$

$$P(\text{C}_6\text{H}_{12}) / P(\text{C}_6\text{H}_6) = 1,6 \pm 0,2$$

в органических соединениях с разным типом гибридизации связей заметно отличаются от единицы.

В то же время величины  $P$  для веществ с различным стехиометрическим составом, но одинаковым типом химической связи не должны отличаться между собой. Это заключение действительно выполняется для наборов органических веществ, приведенных в таблице 2:  $\text{CH}_4$  (метан),  $(\text{CH}_2)_n$  (полиэтилен) и  $\text{C}_6\text{H}_{12}$  (циклогексан) -  $sp^3$  - гибридизация молекулярных орбиталей;  $\text{C}_2\text{H}_4$  (этилен),  $(\text{CH})_n$  (полистирол) и  $\text{C}_6\text{H}_6$  (бензол),  $sp^2$  - гибридизация.

Измерения вероятности реакции в пропиловом и изопропиловом эфире  $(\text{C}_3\text{H}_7)_2\text{O}$  также не отличаются между собой<sup>/71/</sup>, что свиде-

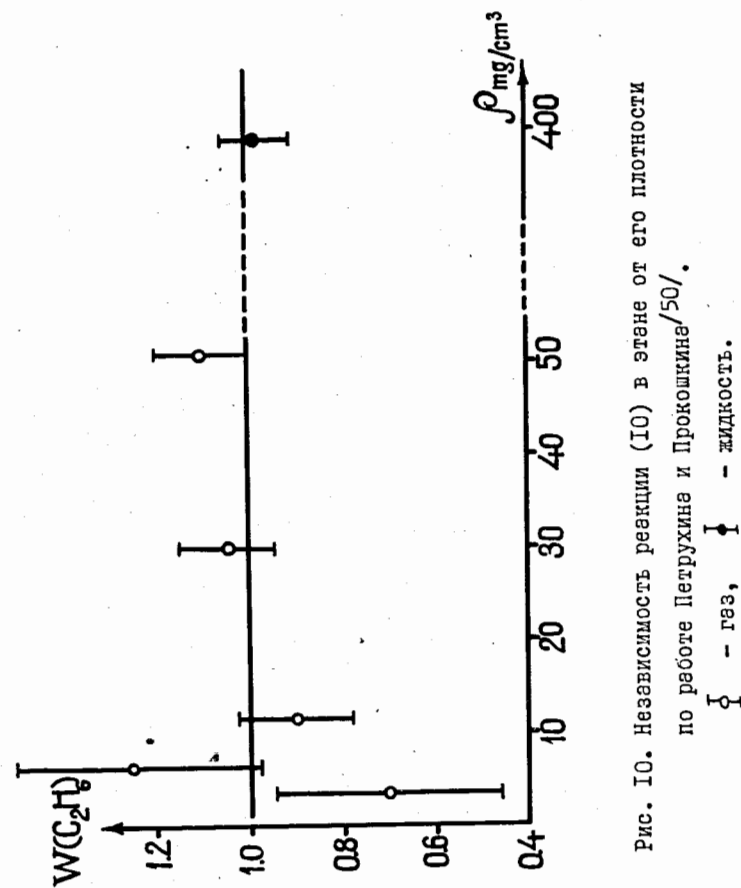


Рис. 10. Независимость реакции (IO) в этане от его плотности по работе Петрушкина и Прокошкина<sup>/50/</sup>.  $\circ$  - газ,  $\bullet$  - жидкость.

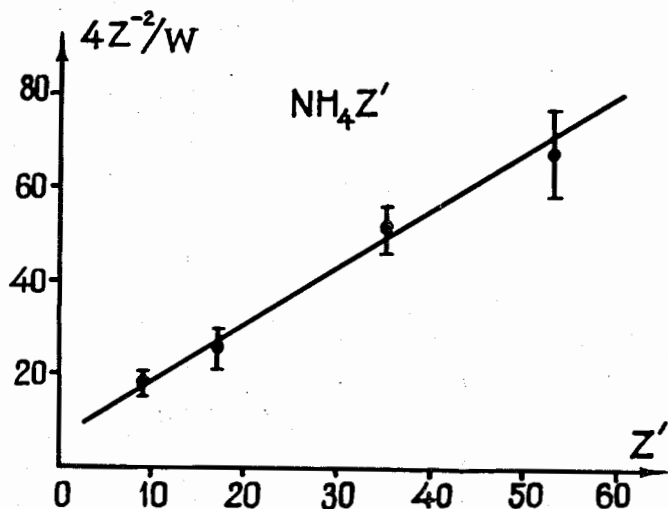


Рис. II. Проверка закона атомного захвата в солях аммония по работе Крумштейна и др.<sup>/69/</sup>.

тельствует об отсутствии влияния изомерии на ход реакции перезарядки.

Далее, с увеличением ионности связи, когда плотность валентного электронного облака вблизи протона уменьшается, вероятность реакции (10) должна быть подавлена еще больше, чем это следует из формулы (24). Измерения в сильных кислотах ( $H_2SO_4$ ,  $HNO_3$  и т.д., см. ниже) подтверждают этот вывод<sup>/72/</sup>.

Первоначальный захват мезонов. Для соединений типа  $Z'_k Z'_m H_n$ , в которых атом  $Z'$  слабо связан с водородом, например, в ионных соединениях  $NH_4 Z'$ , где  $Z' = F, Cl, Br, J$ , вкладом второго члена в формуле (24а) можно пренебречь, после чего получим соотношение

$$4Z'^{-2}/W = A + BZ', \quad (26)$$

в котором для  $NH_4$  следует ожидать  $A \approx 10$ ,  $B \approx 1$ . Обработка экспериментальных данных (рис. II) дает значения  $A = 6,6 \pm 3,7$ ,  $B = 1,2 \pm 0,2$  (при  $\chi^2 = 0,3$ ). Это означает, что в химическом соединении вероятности атомного захвата мезонов на уровнях различных мезоатомов приблизительно пропорциональны зарядам ядер атомов. Этот факт может служить некоторым основанием для первого предположения модели о виде  $W_1$ . Разумеется, такое заключение справедливо только в предположении, что  $W_3 \approx 1$ . В противном случае зависимость (26) является следствием совокупного действия двух механизмов: атомного захвата и перехвата  $p\pi \rightarrow Z\pi$ . Измерения вероятности ядерного захвата мюонов в соединениях  $NH_4 Z'$ <sup>/26/</sup> показывают, что последнее предположение имеет смысл рассмотреть подробнее. Однако точности измерений пока недостаточно для однозначного выбора гипотезы.

Зависимость  $W_2 \approx Z^{-2}$ .  $Z$  - зависимость второй стадии процесса ядерного поглощения  $\pi^-$ -мезонов можно оценить, сравнивая вероятность  $W(CH_4 + Az)$  в смеси газов  $CH_4 + Az$  /70/ и вероятность  $W(NH_4Cl)$  /69/. Можно ожидать, что в этих почти изоэлектронных системах условия атомного захвата ( $W_1$ ) и перехвата ( $W_3$ ) одинаковы, поскольку строение электронной оболочки  $Cl^-$  весьма близко к структуре оболочки благородного газа  $Az$ . В этом случае из формулы (24) следует соотношение<sup>x)</sup>

$$\begin{aligned} W(CH_4 + Az) / W(NH_4Cl) &\approx W_2(CH_4) / W_2(NH_4^+) \approx \\ &\approx (Z_N / Z_C)^2 = 1,36. \end{aligned} \quad (27)$$

Измеренное отношение вероятностей

$$\begin{aligned} W(CH_4 + Az) / W(NH_4Cl) &= \\ &= (4,5 \pm 0,4) \cdot 10^{-3} / (3,2 \pm 0,6) \cdot 10^{-3} = 1,4 \pm 0,3. \end{aligned} \quad (27a)$$

К сожалению, для однозначных выводов точность измерений недостаточна<sup>x)</sup>.

x) В последнем равенстве мы положили также  $a_N = a_C$ , поскольку тип химической связи ( $sp^3$ -гибридизация) в  $CH_4$  и  $NH_4^+$  одинаков /39/.

Интенсивность  $K_V$ -серий. С точки зрения излагаемой модели рост интенсивности  $K_V$ -серии элементов по мере увеличения их валентности в химических соединениях (см. рис. 5) объясняется увеличением числа валентных электронов и соответствующим ему увеличением доли мезонов, захваченных на высоковозбужденные мезомолекулярные уровни  $N$ .

Отмеченная корреляция действительно наблюдается. Например, в металлическом хrome  $J_V \approx 0,22$ , в окисле хrome  $J_V \approx 0,15$ , а в ионных соединениях ( $KCl$ )  $J_V \approx 0,07$  и примерно совпадает с интенсивностью  $K_V$ -серии в благородных газах.

Будяшов и др. /29/ поставили эксперимент, который, как нам кажется, хорошо моделирует механизм перехода мезонов с высоких молекулярных уровней  $N$  на разделенные уровни  $n'$  мезоатома  $Z_M$ . В этом опыте сравнивалась структура  $K_V$ -серии аргона в чистом  $Az$  и в смеси 99,5%  $H_2 + 0,5\% Az$ . Во вто-

x) Другой способ проверки зависимости  $W_2 \sim Z^{-2}$  состоит в измерениях вероятности реакции (10) в дейтерированных соединениях. В последнее время такие измерения были выполнены в наборе веществ  $CH_3OH$ ,  $CD_3OH$ ,  $CH_3OD$  (Гольданский, Петрухин и др.). В этом случае условия захвата ( $W_1$ ) и перехвата ( $W_3$ ) практически идентичны и  $Z$ -зависимость  $W_2$  может быть исследована наиболее непосредственно. Особая важность таких исследований состоит в том, что они позволяют изучать различные функциональные группы в молекулах независимо от остальных.



ром случае практически все  $\mu^-$ -мезоны вначале захватываются на уровне мезоатомов  $p\mu$  и лишь после перехвата по реакции  $p\mu + Az \rightarrow Az\mu + p$  могут дать  $K$ -серию  $Az$ . Из рис. 12 видно, что структура  $K$ -серии в обоих случаях сильно различается: в чистом  $Az$  вклад  $K_v$ -серии составляет  $J_v \approx 0,07$ , в то время как в смеси  $Az + H_2$   $J_v \approx 0,5$ .

Естественное объяснение этого явления состоит в том, что в процессе столкновения  $p\mu$ -атома с ядром  $Az$  возникает высоковозбужденная квазимолекула  $p-\mu-Az$ , в которой каскадные переходы существенно отличаются от каскада в изолированном мезоатоме  $Az\mu$ . Энергия основного состояния  $p\mu$ -атома ( $n = 1$ ) равна энергии уровня  $n' = 18$  мезоатома  $Az\mu$ , поэтому в квазимолекуле  $p-\mu-Az$  переход с уровня  $n = 1$  атома  $p\mu$  соответствует довольно высокому переходу ( $n' = 18$ )  $\rightarrow$  ( $n' = 1$ ) в  $Az\mu$ . Из-за нарушения центральной симметрии поля в квазимолекуле  $p-\mu-Az$  заселенность уровней  $n' < 18$  мезоатома  $Az\mu$ , возникающая при каскадных переходах мезона, будет отличаться от заселенностей в изолированном мезоатоме  $Az\mu$ , вследствие чего изменяется наблюдаемые интенсивности линий  $K_v$ -серии мезоатома  $Az\mu$ .

Другая возможная причина сильной зависимости интенсивности  $K_v$ -серий элементов от вида химических соединений состоит в избирательном захвате мезонов на мезоатомные орбиты с выделенными значениями орбитального момента  $\ell$ . В частности, при адиабатическом захвате мезонов в водородосодержащих веществах предполагаемое обычно начальное статистическое  $(2\ell + 1)$ -распределение мезонов может нарушаться за счет вклада  $N\ell$ -остояний с малыми значениями  $\ell$ , что должно сильно повлиять на конечный результат каскада в мезоатоме  $Z\mu$ .

В частности, при этом сильно сократится число ступеней каскада и благодаря этому информация о структуре химической связи, накопленная волновой функцией мезона на стадии атомного захвата, может быть детектирована даже на последних ступенях каскада<sup>II</sup>.

#### Систематические исследования

Расчет процесса торможения и захвата мезонов с учетом химической структуры вещества — весьма трудоемкая задача, которая, по-видимому, в полном объеме не сможет быть решена в ближайшее время. В этих условиях, отвлекаясь от существующих неопределенностей в выводе формулы (24) и определении параметра  $a$ , можно чисто феноменологически использовать его для анализа экспериментов по измерению вероятности реакции (10) в различных веществах. В настоящее время выполнено около ста измерений такого типа /41-53, 69-73, 75, 79/.

Кислоты. В таблице 3 представлены результаты опытов в кислотах (7.2), из которых видно, что существует определенная корреляция между величиной коэффициента  $a$  и силой кислоты; определенной химическими методами. В согласии со смыслом коэффициента  $a$  он аномально мал в сильных кислотах, в которых имеет место практически полная диссоциация молекул на ионы  $H^+$  и анионы кислот. В то же время для нормальных кислот и кислот, близких к основаниям, он достигает значения  $a = 0,3-0,5$ .

Используя соотношение (25), можно попытаться связать степень диссоциации  $pK_a$  кислоты со степенью ионности  $\sigma$  химической связи в молекуле<sup>/72/</sup>. Особый интерес представляет щавелевая кислота  $H_2C_2O_4$ , в которой общая корреляция между величина-

x) Например, в случае заполнения  $Ns$  и  $Nd$  — орбиталей наиболее вероятен двухступенчатый переход  $Ns \xrightarrow{Auger} n'p \xrightarrow{Rad.} 1s$  для  $Np$ -орбиталей трехступенчатый и т.д. В случае  $(2\ell+1)$ -распределения число переходов существенно больше и особенности первоначального захвата быстро усредняются в процессе каскада (64).

Таблица 1. Гидриды второго периода таблицы Менделеева<sup>x)</sup>

Вещества	Z	W, 10 <sup>-3</sup>	a
LiH	3	35±4	1,26±0,14
B <sub>10</sub> H <sub>14</sub>	5	12,6±1,4	1,44±0,16
CH <sub>4</sub>	6	26,7±0,5	2,40±0,05
N <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	7	5,9±0,7	1,30±0,15
H <sub>2</sub> O	8	3,5±0,6	1,12±0,19

x) Таблица составлена по данным работ/1, 69, 70/

Таблица 2. Органические соединения с различным типом химической связи<sup>x)</sup>

Вещество	W, 10 <sup>-3</sup>	P, 10 <sup>-3</sup>
CH <sub>4</sub>	26,7±0,5	6,7±0,1
(CH <sub>2</sub> ) <sub>n</sub>	13,7±0,7	6,8±0,3
C <sub>6</sub> H <sub>12</sub>	14,3±0,6	7,1±0,3
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	10,0±0,6	5,0±0,3
(CH) <sub>n</sub>	5,1±0,6	5,1±0,6
C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	4,5±0,2	4,5±0,2

x) Таблица составлена по данным работ/50, 70, 71/

Таблица 3. Кислоты<sup>x)</sup>

Кислоты	W, 10 <sup>-4</sup>	a	pK <sub>a</sub>
H <sub>2</sub> S O <sub>4</sub>	< 0,4	< 0,06	-3,0
HNO <sub>3</sub>	< 0,6	< 0,12	-1,4
H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	< 0,1	< 0,01	1,3
H <sub>2</sub> Se O <sub>3</sub>	0,9±0,5	0,17±0,08	2,6
H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub>	1,6±0,4	0,17±0,04	2,1
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	4,2±1,0	0,29±0,05	8,7
Al(OH) <sub>3</sub>	5,6±1,0	0,48±0,09	9,2

x) Таблица составлена по данным работ/72, 79/

Таблица 4. Предельные органические соединения<sup>x)</sup>

Вещество	W, 10 <sup>-2</sup>	a	α
CH <sub>4</sub>	2,67±0,05	2,40±0,05	0,96±0,02
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	2,06±0,09	2,22±0,09	0,99±0,04
C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	1,59±0,06	1,99±0,08	0,95±0,04
C <sub>6</sub> H <sub>14</sub>	1,66±0,05	2,14±0,06	1,03±0,03
C <sub>12</sub> H <sub>26</sub>	1,42±0,06	1,92±0,08	0,94±0,04
C <sub>17</sub> H <sub>36</sub>	1,40±0,05	1,92±0,06	0,95±0,03
(CH <sub>2</sub> ) <sub>n</sub>	1,37±0,07	1,96±0,10	0,99±0,05
C <sub>6</sub> H <sub>12</sub>	1,43±0,06	2,04±0,08	1,03±0,04

(циклогексан)

x) Таблица составлена по данным работ/1, 50, 70, 71/

ми  $\rho K_1$  и  $\sigma$  нарушена. Авторы работы<sup>/72/</sup> объясняют этот факт существованием ассоциаций молекул  $H_2C_2O_4$ .

**Щелочи.** Систематические измерения вероятности  $W$  реакции перезарядки (IO) в щелочах  $Z'(OH)_q$  показали<sup>/71, 73/</sup>, что измеренное значение вероятности в  $q$  раз меньше, чем рассчитанное по формуле (24). Отмеченный факт может быть связан с аномально большой вероятностью атомного захвата мезонов на кислород. Основанием для такого предположения могут служить работы Зинова и др.<sup>/27/</sup> по измерению величины  $A(Z/Z')$  в окислах (см. формулу 4 и рис. 4), а также недавние измерения Джуряева и др.<sup>/26/</sup> величины  $A(OH/Ca) \approx 4$  в  $Ca(OH)_2$ , которая почти на порядок превышает предсказания  $Z$ -закона. Другое объяснение предлагается в работе Гольденского и Берсукера<sup>/74/</sup>.

**Индуктивный эффект.** При изучении реакции (IO) в ряду веществ  $CH_3X$ , где  $X=CH_3, S, J, CN, NO_2, COCl, CH_3CO$  и т.д. авторы работы<sup>/75/</sup> наблюдали корреляцию между величиной коэффициента  $Q$ , вычисленного по формуле (24), и индукционными константами  $\sigma_T$ <sup>/76/</sup>, характеризующими реакционную способность радикала  $CH_3$  под влиянием различных заместителей  $X$  (см. рис. 13). Независимо от смысла, вкладываемого в определение  $Q$ , существование такой корреляции может оказаться полезным для оценок величин  $\sigma_T$  для некоторых соединений, поскольку химические способы определения  $\sigma_T$  весьма трудоемки и не всегда осуществимы.

**Исследования стадии перехвата.** В работах<sup>/70, 80/</sup> исследована реакция перезарядки (IO) в смесях  $CH_4 + Z', C_2H_4 + Z', C_6H_6 + Z'$  при концентрациях примеси  $C = n_{Z'}/n_H \sim 1$

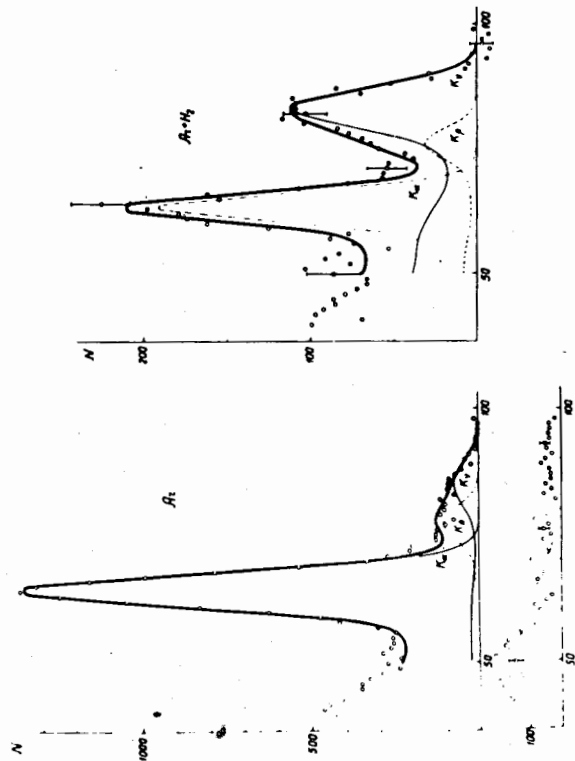


Рис. 12. Структура K-серии аргона в чистом Ar и в смеси 0,5% Ar + 99,5% H<sub>2</sub>. Во втором случае вклад K<sub>ν</sub>-серии много больше, чем в первом (Будяшов и др.<sup>/30/</sup>).

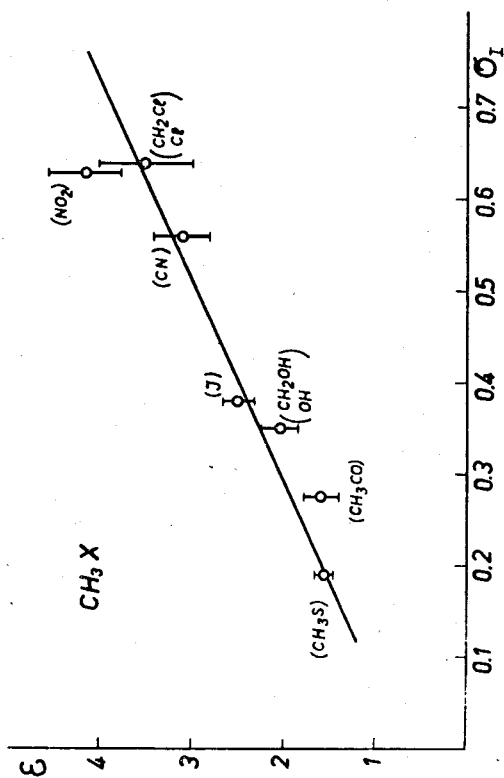


Рис. 13. Зависимость между величиной коэффициента  $\alpha$ , вычисленного по формуле (24) и значением индукционных констант  $\sigma_I$  в соединениях  $\text{CH}_3\text{X}$  по работе Вильгельмовой и др. /75/. По оси ординат отложена величина  $\varepsilon = \alpha_0/a$  где  $\alpha_0 = 2,05 \pm 0,04$ . Прямая соответствует уравнению  $\varepsilon = \alpha \sigma_I + \beta$  при  $\alpha = 4,7 \pm 0,6$ ,  $\beta = 0,6 \pm 0,2$ .

атомов  $Z'$ . Во всех случаях на фоне сильного "химического" подавления реакции (10) в веществах  $Z_m H_n$  было зафиксировано слабое дополнительное подавление реакции. Авторы работ /70, 80/ объясняют это явление перехватом  $p\pi \rightarrow Z'\pi$ , который описывается функцией  $W_3 = (1 + \lambda C)^{-1}$ . Для смеси  $\text{CH}_4 + \text{Az}$  константа перехвата  $\lambda = 3,9 \pm 0,3$  примерно в 2 раза меньше, чем соответствующая константа перехвата  $\Lambda = 8,8 \pm 0,9$  в смеси  $\text{H}_2 + \text{Az}$  при одинаковом значении  $C \approx 0,5^{1/2}$ .

Следует, однако отметить, что приведенные значения  $\lambda$  и  $\Lambda$  вычислены в предположении, что вероятности атомного захвата мезонов на компоненты смеси пропорциональны тормозным способностям этих веществ при энергии мезонов  $\sim 2$  Мэв. Такое предположение выглядит естественным, однако требует проверки, поскольку известны случаи, когда оно несправедливо, например, в смеси  $\text{Az} + \text{CO}_2$  /31/.

#### Трудности модели

Модель больших мезомолекул объединяет и с единой точки зрения объясняет довольно широкий круг явлений мезоатомной и мезомолекулярной физики. Формулы (24) и (24а) полуколичественно описывают измеренные вероятности реакции перезарядки (10) в различных водородосодержащих веществах. Отметим, однако, факты, которые не находят объяснения в рамках модели.

Ядерное поглощение  $K^-$ -мезонов и антипротонов. В настоящее время измерена вероятность поглощения  $K^-$ -мезонов /77/ в фотографических эмульсиях и антипротонов /78/ в пропане ядрами химически

связанного водорода. При обработке результатов этих измерений по формуле (24) оказалось, что соответствующие коэффициенты равны:

$$a(\pi^-) \approx 2, \quad a(K^-) \approx 5, \quad a(\bar{p}) \approx 11. \quad (28)$$

Авторы работы<sup>/78/</sup> объясняют его различием процесса перехвата  $\pi^-$ ,  $K^-$  и  $\bar{p}$  от мезоатомов  $p\bar{p}$ ,  $pK$  и  $p\bar{p}$  к ядрам других атомов.

Другое объяснение основано на гипотезе о предпочтительном заполнении высоковозбужденных  $Ns$ -состояний при адиабатическом захвате мезонов в водородосодержащих веществах. Вероятности радиационных переходов из этих состояний меньше, чем скорость прямого ядерного захвата  $\pi^-$ -мезонов протонами. Для мезона с массой  $m$ , движущегося в области валентных электронов<sup>/11/</sup>

$$\Gamma_{\text{capt.}} = \gamma (m/n)^3 \approx \gamma m^{3/2}$$

Таким образом, если прямой ядерный захват  $\pi^-$ -мезонов протонами происходит с заметной вероятностью (но все еще мал по сравнению с вероятностью каскадных переходов в  $Z\pi$ -атоме), то при переходе от  $\pi^-$ -мезонов к  $K^-$ -мезонам и антипротонам коэффициенты  $a$  в формуле 24 должны возрастать.

Гидриды металлов. Для всех гидридов второго периода таблицы Менделеева коэффициент  $a$  в формуле (24) меняется весьма слабо и по абсолютной величине не превосходит значения  $a \approx 2$  (см. таблицу I). Однако формальное использование формулы (24)

при обработке результатов измерений вероятности реакции (10) в гидридах элементов других периодов приводит к значениям коэффициента  $a$ , которые нельзя считать разумными (в некоторых случаях  $a \sim Z^{1/2}$  /11/). Возможная причина этого явления состоит в том, что на стадии атомного захвата мезонов роль валентных электронов атомов более существенна, чем электронов замкнутых оболочек атомов (см. ниже).

Перезарядка  $\pi^-$ -мезонов в органических соединениях. По своему смыслу коэффициент  $a$  в формуле (24) отражает особенности химической связи атома водорода в молекуле и потому должен быть одинаковым для соединений с идентичным строением валентных оболочек, например, в гомологическом ряду предельных углеводородов  $C_m H_n$ , для которых  $n = 2m + 2$ . Обработка экспериментальных данных (80) по формуле 24 показывает, что это требование не выполняется (см. таблицу 4).

Авторы работы<sup>/80/</sup> объясняют наблюдаемое уменьшение коэффициента  $a$  перехватом  $\pi^-$ -мезонов по реакции  $p\pi^- \rightarrow C\pi^-$ , который становится особенно существенным при значениях  $x = m/n \geq 1$ , например, в циклических (бензол) и полициклических соединениях (антрацен и т.д.). При значениях  $a = 3,52 \pm 0,17$  и  $\lambda = 1,56 \pm 0,14$  в формулах (19) и (23) удается удовлетворительно описать все результаты экспериментов в органических соединениях.

Следует, однако, отметить, что при анализе этих экспериментов использована определенная гипотеза о виде  $W_x$ , а именно выражение (20). В принципе, могут реализоваться другие возможности, которые имеет смысл также обсудить.

В формуле (24) особенности атомного захвата мезонов в химических соединениях отражены в произведении множителей  $\alpha W_1$ , причем выражение (20) для  $W_1$  основано на представлении об эквивалентности всех электронов молекулы на стадии атомного захвата — как валентных, так и электронов остова. Очевидно, что это допущение нельзя признать безоговорочно и имеет смысл обсудить его более детально, особенно в случае органических соединений, где представления о направленных валентностях<sup>/39/</sup> делают гипотезу об эквивалентности всех электронов углерода весьма неправдоподобной. Богатый набор органических соединений позволяет исследовать эту гипотезу более детально.

На рис. 14 представлена величина  $Z^{-2}/W = 1/\alpha W_1 W_3$  для предельных соединений  $C_m H_n$  как функция относительной концентрации углерода  $x = m/n$ . Принимая во внимание формулы (19) и (23) для вероятностей  $W_1$  и  $W_3$ , следует ожидать квадратичной зависимости вида  $Z^{-2}/W = A + Bx + Dx^2$ , где  $A \approx 1$ ,  $B \approx 6 + \lambda$ ,  $D \approx 6\lambda$ . В действительности, обработка экспериментальных данных приводит к результату  $A = 0,04 \pm 0,06$ ,  $B = 4,00 \pm 0,16$ ,  $D \approx 0,15$ .

Одна из возможных интерпретаций полученного результата состоит в том, что при поглощении  $\pi^-$ -мезонов в предельных органических соединениях электроны атомов водорода не участвуют в атомном захвате пионов ( $A \approx 0$ ), а перехватом  $p\pi \rightarrow c\pi$  при существующей точности эксперимента можно пренебречь

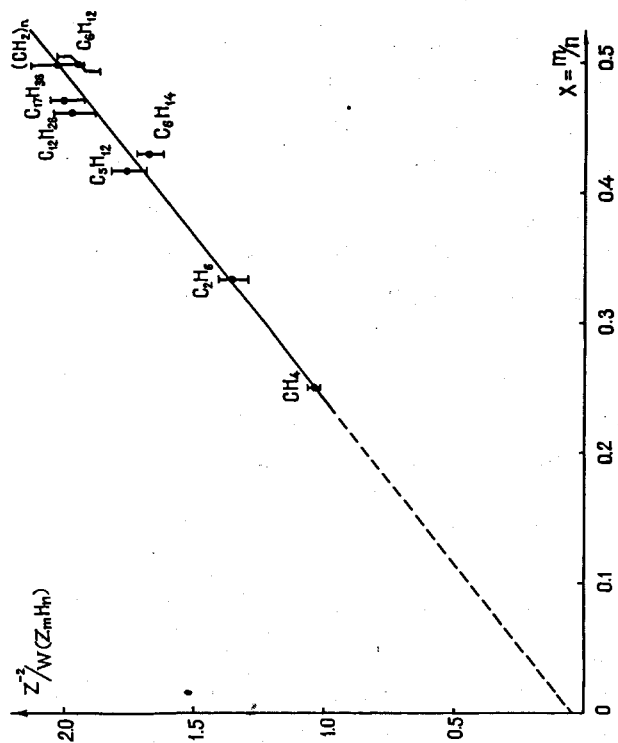


Рис. 14. Результаты измерения вероятности  $W$  реакции (10) в предельных углеводородах  $C_m H_n$ . Прямая соответствует зависимости  $Z^{-2}/W = 4x$ .

( $\lambda \approx 0$ )<sup>x</sup>). При такой интерпретации происходит ядерное поглощение  $\pi^-$ -мезонов протоном непосредственно с валентных орбиталей атомов углерода, осуществляющих химическую связь с атомами водорода, минуя промежуточную стадию каскадных переходов. В соответствии с этим следует положить  $W_3 \approx 1$ ,  $\alpha W_1 = \alpha n / \nu m$ , где  $\nu = 4$  и равно числу валентных электронов углерода. В этих предположениях вероятность реакции (10) в предельных углеводородах выражается весьма простой формулой

$$W(C_m H_n) = \alpha n Z^{-2} / \nu m. \quad (29)$$

в которой  $\alpha \approx 1$  для всего гомологического ряда (см. таблицу 4).

#### Модификация модели

Многочисленные факты, большая часть которых изложена в настоящей работе, вынуждают критически пересмотреть гипотезы, лежащие в основе модели больших мезомолекул, и, в частности, предположение (20) о виде функции  $W_I$ . Как показывает предыдущий анализ в случае предельных органических соединений более предпоч-

x) В пользу этого предположения говорят также равенства

$$P(CH_2) \approx P(CH_4) \quad \text{и} \quad P(CH) \approx P(C_2H_2)$$

(таблица 2), которые выполняются с хорошей точностью, хотя условия перехвата для этих пар существенно различаются. Отсутствие стадии перехвата в химических соединениях естественно объясняется, если определяющую роль играет прямой ядерный захват  $\pi^-$ -мезонов протонами из высоких  $Ns$ -состояний.

тительным оказывается соотношение

$$W_1 = n / \nu m \quad (30)$$

где  $\nu$  равно числу валентных электронов атома  $Z$ . Это означает, что вероятность атомного захвата мезонов, сопровождающаяся вылетом Оже-электронов из замкнутой  $Is^2$  оболочки атома углерода, пренебрежимо мала.

Обобщение этого результата на случай элементов других периодов приводит к заключению:

влиянием замкнутых электронных оболочек атомов  $Z$  на процесс атомного захвата мезонов можно пренебречь; вероятность  $W_1$  выражается формулой (30), где  $\nu$  равно числу электронов в незаполненной оболочке атома  $Z$ ; вероятность  $W(Z_m H_n)$  реакции перезарядки (10) вычисляется по формуле (29).

Подробный количественный анализ всех следствий этой гипотезы еще не проведен и мы остановимся только на некоторых ее очевидных качественных следствиях.

а) Все результаты по измерению вероятности реакции (10) в веществах  $Z_m H_n$  с элементами  $Z$  из второго периода таблицы Менделеева останутся практически без изменения, поскольку в этом случае  $\nu = Z - 2$  и переход от формулы (24) к формуле (29) при существующей точности измерений эквивалентен некоторому переопределению коэффициента  $\alpha$ .

б) Для гидридов других периодов вместо  $Z$ -зависимости  $W \sim Z^{-3}$  следует ожидать зависимости  $W \sim Z^{-2}$ . Предварительные измерения вероятности  $W(Z_m H_n)$  в гидридах с большими  $Z$  не противоречат такому заключению (I).

в) формула (29) более естественно, чем (24) объясняет соотношения  $P(CH_2)_n \approx P(CH_4) \approx P(C_2H_2)$  и  $P(CH)_n \approx P(C_2H_4) \approx P(C_4H_6)$ ,

следующие из таблицы 2.

г) Резкие отступления от  $Z$ -закона [9,26] с этой точки зрения вполне естественны. В частности, периодическая зависимость величины  $A(Z/\delta)$  в окислах  $Z_k O_m$  (см. рис. 4) является естественным следствием периодического изменения числа внешних электронов  $\nu$  элемента  $Z$ . С этой точки зрения следует ожидать также периодического изменения интенсивности  $K_\nu$ -серии элементов, и растущие кривые на рис. 5. являются по-видимому фрагментом кривой типа представленной на рис. 4.

д) Наконец, предположение о преимущественном захвате мезонов на уровне  $N$ , лежащие в области валентных электронов молекулы, просто объясняет резкие различия вероятностей атомного захвата в разных окислах одного и того же элемента, например, в  $Sb_2O_3$  и  $Sb_2O_5$ .

Дополнительное предположение о преимущественном заполнении высоковозбужденных  $Nl$ -состояний с малыми значениями  $l$  в процессе адиабатического захвата мезонов позволяет понять также влияние химической связи на структуру  $K$  и  $L$ -серий элементов (см. сноску II).

Оценивая ситуацию в целом, следует признать, что для однозначного установления аналитического выражения для вероятности  $W(Z_m, H_n)$  существующие точности измерений недостаточны, а теоретические представления требуют дальнейшей разработки.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящее время можно считать твердо установленным, что молекулярная структура веществ существенно влияет на процессы атомного и ядерного захвата мезонов. В принципе это позволяет использовать мезоны для изучения электронной оболочки молекул и в задачах качественного и количественного анализа веществ [53,75,76].

Вторая из упомянутых задач существенно проще и в настоящее время уже существуют конкретные предложения и попытки практической реализации возникающих возможностей. Используя зависимость интенсивности и структуры мюонной рентгеновской  $K$ -серии элементов от их химического и физического состояния, предложены методы анализа количественного и качественного состава образцов [81, 82]. По сравнению с обычным рентгеноструктурным анализом предлагаемые методы обладают рядом преимуществ. В частности, используя локализованность мюонного пучка и меняя его энергию, можно менять точку остановки мюонов в образце и исследовать состав элементов только в окрестности этой точки, независимо от остальных. Проект такой установки для составления подробной "химической карты" человека обсуждается в LAMPF.

Кроме того, поскольку проникающая способность мюонных рентгеновских лучей много больше, чем обычных, это позволяет анализировать массивные образцы, что недоступно пока ни одному из существующих методов.

Уникальная избирательность реакции перезарядки  $\pi^-$ -мезонов на протонах и ее сильная зависимость от химического состояния водорода уже сейчас позволяет надежно отличить химически связанный водород от свободного [53]. В дальнейшем такой метод



в принципе может быть использован для изучения кинетики и катализа химических реакций с участием водорода, для исследования особенностей химической связи водорода в органических соединениях и в гидридах переходных металлов, а также при изучении структуры водородосодержащих веществ в критических режимах: сверхнизкие температуры, сверхвысокие давления и т.д.

Однако для того чтобы обнаруженные эффекты стали основой нового метода анализа структуры вещества, необходимы систематические исследования и сравнение их результатов с данными других методов: ядерного магнитного резонанса, электронного парамагнитного резонанса, инфракрасной спектроскопии и других.

Первая задача - изучение структуры электронного облака молекул - существенно сложнее и для своего разрешения требует комплексных экспериментальных исследований и теоретических расчетов. Прежде всего необходимо надежно отделить "физические" эффекты от "химических", т.е. процессы перехвата и атомного захвата на внутренние оболочки атомов от эффектов взаимодействия мезонов с валентными электронами молекул. В этой связи целесообразно изучить одновременно все характеристики рентгеновских спектров: энергию переходов, их интенсивность и остаточную поляризацию каскадных мюонов. Весьма перспективным представляется также использование для этой цели Оже-электронной спектроскопии, которая позволяет определять энергию связи Оже-электронов с точностью до 0,1эВ /68/.

В случае водородосодержащих соединений необходимы комплексные исследования с одновременным использованием  $\pi^-$  и  $\mu^-$  мезонов, которые во многом дают дополнительную информацию, поскольку реакцию перезарядки (IO) можно наблюдать только на ядрах водорода, а рентгеновское излучение мюонов - только на ядрах  $Z > 1$ .

Необходимым условием успеха этих исследований, которые можно объединить под общим названием "мезонная химия", является повышение точности экспериментов, которая в среднем в настоящее время не превышает 10%. Кроме того, для этой цели необходимы теоретические расчеты процесса атомного захвата отрицательных мезонов на современном уровне строгости.

Автор искренне признателен С.С.Герштейну за постоянный интерес к работе и многочисленные обсуждения затронутых здесь проблем, В.Г.Зинову, В.И.Петрухину, В.Н.Покровскому и Ю.А.Ютландову за полезные дискуссии. Особо мне хотелось бы поблагодарить В.М.Суворова за многостороннюю научную и техническую помощь в процессе подготовки рукописи к печати.

Л и т е р а т у р а

1. С.С.Герштейн, В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев, Ю.Д.Прокошкин. Успехи физических наук 97, 3 (1969).
2. Y.N.Kim. Mesic atoms and nuclear structure. North-Holland, Amsterdam, London (1971).
3. S.S.Gershtein, L.I.Ponomarev. In Muon Physics, ed. V.W.Hughes and C.S.Wu, Academic, New York (1973).
4. E.H.S.Burhop, High Energy Physics. 3, 109 (1969).
5. C.S.Wu, L.Wilets. Ann. Rev. Nucl. Sci., 19, 527 (1969).
6. S.Devons, I.Duerdoth. In Advances in Nuclear Physics, ed. M. Baranger et al., Plenum Press, New York, 1969.
7. G.Backenstoss, Ann. Rev. Nucl. Sci., 20, 467 (1970).
8. E.Fermi, E.Teller. Phys. Rev. 72, 399 (1947).
9. J.S.Baijal, J.A.Diaz, S.N.Kaplan, R.V.Pyle, Nuovo Cimento, 30, 711 (1963).
10. A.S.Wightman. Phys. Rev., 77, 521 (1950).
11. Y.Eisenberg, D.Kessler. Nuovo Cimento, 19, 1195 (1961).
12. Y.Eisenberg, D.Kessler. Phys. Rev., 130, 2352 (1963).
13. G.Fray. Phys. Rev. 113, 688 (1959).
14. T.H.Fields, G.B.Yodh, M.Derrick, J.G.Fetkovich. Phys.Rev.Lett. 5, 69 (1960).
15. E.Bierman, S.Taylor, E.L.Koller, P.Stamer, T.Huetter. Phys. Lett. 4, 351 (1963).
16. K.Derrick, M.Derrick, J.G.Ferkovich, T.H.Fields, E.G.Pewitt, G.B.Yodh. Phys. Rev. 151, 82 (1966).
17. H.L.Leon, H.Bethe. Phys.Rev. 127, 636 (1962).
18. T.B.Day, G.A.Snow, J.Sucher. Phys. Rev. Lett. 3, 61 (1959).
19. T.B.Day, G.A.Snow, J.Sucher. Phys. Rev. 118, 864 (1960).
20. M.M.Block, et. al. Phys. Rev. Lett. 11, 301 (1963).
21. С.С.Герштейн. ЖЭТФ 43, 706 (1962).

22. J.C.Sens, R.A.Swanson, V.L.Telegdi, D.D.Yovanovitch. Nuovo Cimento, 7, 536 (1958).
23. J.F.Lathrop, R.A.Lundy, R.A.Swanson, V.L.Telegdi, D.D.Yovanovitch. Nuovo Cimento 15, 831 (1960).
24. M.Eckhause, T.A.Filippas, R.B.Sutton, R.E.Welsh, T.A.Romanowski. Nuovo Cimento 24, 666 (1962).
25. В.Д.Бобров и др. ЖЭТФ 48, II97 (1965)
26. В.И.Гольдманский и др. ДАН 211, 60 (1973).
27. В.Г.Зинов, А.Д.Конин, А.И.Мухин, ЯФ 2, 859 (1965).
28. В.Г.Зинов, А.Д.Конин, А.И.Мухин, ЯФ 5, 591 (1968). Препринт Р-2039, Дубна, 1965.
29. Ю.Г.Будяшов, П.Ф.Ермолов, В.Г.Зинов, А.Д.Конин, А.И.Мухин. ЯФ, 5, 830 (1967).
30. Ю.Г.Будяшов, П.Ф.Ермолов, В.Г.Зинов, А.Д.Конин, А.И.Мухин ЯФ, 5, 599 (1967).
31. В.Г.Зинов, А.Д.Конин, А.И.Мухин, ЖЭТФ 46, I919 (1964).
32. C.S.Johnson, E.P.Hincks, H.L.Anderson. Phys. Rev. 125, 2102 (1962).
33. D.Quitmann, R.Engfer, V.Hegel, P.Brix et. al. Nucl. Phys. 51, 609 (1964).
34. D.Kessler, H.L.Anderson, M.S.Dixit, H.J.Evans et al. Phys. Rev. Lett. 18, 1179 (1967).
35. H.Daniel et al. Phys. Lett. 26B, 281 (1967).
36. L.Tauscher, G.Backenstoss et al. Phys. Lett. 27A, 581 (1968).
37. G.A.Grin, R.Kunselman. Phys.Lett. 31B, 116 (1968).
38. M.Y.Au-Yang, M.L.Cohen. Phys. Rev. 174, 468 (1968).
39. L.C.Pauling. The Nature of the Chemical Bond and the Structure of Molecules and Crystals. Cornell University Press, Ithaca, N.Y. 3rd ed. 1960.

40. W.K.Panofsky, R.L.Aamodt, J.Hadley. Phys. Rev., 81, 565 (1951)
41. А.Ф.Дунайцев, В.И.Петрухин, Ю.Д.Прокошкин, В.И.Рыкелин.  
ЖЭТФ 42, 1680 (1962).
42. V.I.Petrukhin, Yu.D.Prokoshkin. Nuovo Cimento, 28, 99 (1963).
43. A.F.Dunaitsev, V.I.Petrukhin, Yu.D.Prokoshkin. Nuovo Cimento.  
34, 521 (1964).
44. M.Chabre, P.Depommier, J.Heintze, V.Soergel. Phys. Lett.  
5, 67 (1963).
45. D.Bartlett, S.Devons, S.L.Meyer, J.L.Rosen. Phys. Rev. 136B,  
1452 (1964).
46. J.Ashkin. Nuovo Cimento, 16, 490 (1960).
47. V.I.Petrukhin, Yu.D.Prokoshkin. Nucl. Phys. 54, 414 (1964).
48. О.А.Займидорога и др. ЖЭТФ 48, 1267 (1965).
49. R.E.Marshak. Meson Physics. Mc. Graw-Hill Book Company,  
Inc., New York, 1952.
50. В.И.Петрухин, Ю.Д.Прокошкин, ДАН 160, 71 (1965).
51. В.И.Петрухин, Ю.Д.Прокошкин, В.М.Суворов.  
ЖЭТФ 55, 2173 (1969).
52. В.И.Петрухин, В.М.Суворов. Препринт ОИЯИ, Дубна, 1973 г.
53. В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев, Ю.Д.Прокошкин.  
Химия высоких энергий, 1, 283 (1967).
54. Л.И.Пономарев, ЯФ, 2, 223 (1965).
55. Л.И.Пономарев, ЯФ, 6, 389 (1967).
56. L.I.Ponomarev, Yu.D.Prokoshkin. Comments on Nuclear and  
Particle Phys. 2, 176, (1968).
57. Л.И.Пономарев, Т.П.Пузынина, ЖЭТФ 52, 1273 (1967).
58. R.L.Rosenberg. Phys. Mag. 40, 759 (1949).
59. G.A.Baker. Phys. Rev. 117, 1130 (1960).

60. A.D.Martin. Nuovo Cimento 27, 1359 (1963).
61. G.T.Condo. Phys. Lett. 9, 65 (1964).
62. G.T.Condo, R.D.Hill, A.D.Martin. Phys. Rev. 133A, 1280  
(1964).
63. С.С.Герштейн, ЖЭТФ 39, 1170 (1960).
64. J.R.Rook. Nucl. Phys. B20, 14 (1970).
65. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, "Квантовая механика", Физматгиз,  
1963.
66. E.Fermi, E.Segre. Z.Phys. 82, 729 (1933).
67. N.Fröman, P.O.Fröman. Phys. Rev. 6A, 2064 (1972).
68. J.M.Hollander, D.A.Shirley. Ann.Rev. Nucl. Sci.  
20, 435 (1970).
69. З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев, Ю.Д.Прокошкин,  
ЖЭТФ 54, 1990 (1968).
70. В.И.Петрухин, В.Е.Рисин, И.Ф.Саменкова, В.М.Суворов.  
Препринт ОИЯИ, Дубна, 1973 г.
71. З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, В.Е.Рисин, Л.М.Смирнова,  
В.М.Суворов, И.А.Ютландов, Препринт ОИЯИ PI-6853, Дубна, 1972.
72. З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, Л.М.Смирнова, В.М.Суворов,  
И.А.Ютландов, Препринт ОИЯИ PI2-5224, Дубна, 1970.
73. З.В.Крумштейн, В.И.Петрухин, Л.И.Пономарев, Ю.Д.Прокошкин.  
ЖЭТФ 55, 1640 (1969).
74. В.И.Гольденский, И.Б.Берсукер, ДАН 203, 1332 (1972).
75. Л.Вильгельмова, П.Зимрот, В.И.Петрухин и др.  
Препринт ОИЯИ PI-6854, Дубна, 1972.
76. L.P.Hammett. Physical organic chemistry. McGraw, N.Y., 1970.
77. W.N.Barkas, J.N.Dyer, P.C.Giles, et al. Phys. Rev., 112,  
622 (1958).

78. W.T.Pawlewicz, C.T.Murphy, J.G.Fetkovich et al.  
Phys.Rev. 2D, 2539 (1970).
79. В.И.Петрухин, Доклад на IV Международной конференции по физике высоких энергий и структуре ядра, 7-11 сентября 1971 г.  
стр. 431-443, Дубна, 1972 г.
80. В.И.Петрухин, В.Е.Рисин, В.М.Суворов.  
Препринт ОИЯИ, Дубна, 1973 г.
81. J.D.Knight, M.E.Schillaci, R.A.Naumann, Report on IV.  
International Conference on High Energy Physics and  
Nuclear Structure, 7-11 Sept., 1971, Dubna.
82. В.Г.Зинов, А.Д.Конин, А.Н.Мухин, Препринт ОИЯИ П14-6407,  
Дубна, 1972.
83. Muons in Solids, Meeting 1-3 September, 1971, Bürgenstock,  
Suisse.

Рукопись поступила в издательский отдел  
25 июня 1973 года.