

Письма в ЖЭТФ. том 13 стр 624. — 627

5 июня 1971 г.

**ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ
ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ ТРИПЛЕТНОГО ПОЗИТРОНИЯ
В АЛИФАТИЧЕСКИХ УГЛЕВОДОРОДАХ И ИХ ПРОИЗВОДНЫХ**

А. П. Бучихин, В. И. Гольданский, В. П. Шантарович

В работе авторов [1] было показано, что процесс pickoff аннигиляции атома позитрония хорошо описывается моделью "пузырька", впервые предложенной Ферреллом [2] и развитой впоследствии Роллигом [3].

В данной работе применимость этой модели к описанию температурной зависимости процесса pickoff аннигиляции атома позитрония в органических жидкостях. Было исследовано временное распределение аннигиляции позитронов в *n*-гексадекане, *n*-октане, *n*-пропаноле и этаноле, при температурах от -20 до 100°C .

Измерения проводились на установке, подробно описанной в работе [1]. Разрешение установки не хуже 1 нсек , причем одному каналу анализатора соответствовало время $0,1 \text{ нсек}$. Все изучаемые вещества подвергались необходимой обработке для удаления растворенного кислорода.

Согласно модели "пузырька" в интерпретации Роллига [3]:

$$1/r_2 N = \pi r_0^2 c z_{\text{эфф}} P(kR_0), \quad (1)$$

$$P(kR_0) = \frac{\sin^2 kR_0}{1 - kR_0 \text{ctg} kR_0}, \quad (2)$$

$$k = \sqrt{\frac{4m_e E}{\hbar^2}}, \quad (3)$$

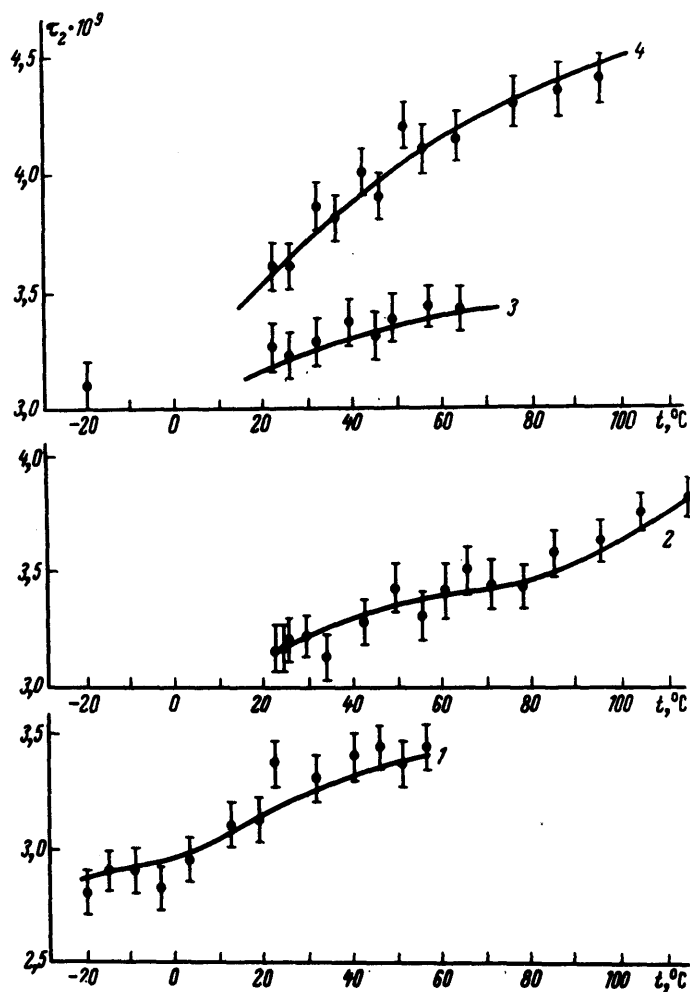
где $P(kR_0)$ – квантовомеханическая вероятность выхода атома позитрония за пределы ямы-пузырька, E – энергия атома позитрония в яме (отсчет от дна ямы), R_0 – радиус пузырька. В качестве оценки $Z_{\text{эфф}}$, т. е. числа электронов, на которых аннигилирует позитроний, можно взять число валентных электронов атомов молекулы [1]. Из условий минимума энергии системы атом позитрония – жидкость и непрерывности логарифмической производной волновой функции атома позитрония в яме можно получить:

$$\frac{\sin^4 kR_0}{kR_0 (\text{tg} kR_0 - kR_0)} = - \frac{\pi \hbar^2 \sigma}{m_e U_0^2}. \quad (4)$$

Соотношения (1), (2) (4) позволяют получить зависимость времени жизни орто-позитрония от температуры ($r_2(t^\circ)$) в данной органической жидкости, если для нее известны зависимости поверхностного натяжения жидкости ($\sigma(t^\circ)$), числа молекул в единице объема ($N(t^\circ)$) и глубины ямы ($U_0(t)$) от температуры. Зависимости $\sigma(t^\circ)$ и $N(t^\circ) = \mu(t^\circ)A/M$ ($\mu(t^\circ)$ – зависимость плотности жидкости от температуры, M – молекулярный вес, A – число Авогадро) для изучаемых жидкостей хорошо известны [5].

Зависимость $U_0(t^\circ)$ была рассчитана по схеме Вигнера – Зейтца [6]. Каждая молекула жидкости представляется как твердый цилиндр с радиусом a , равным длине рассеяния позитрония. Волновая функция его при этом равна:

$$\psi(\rho) = A I_0(q\rho) + B Y_0(q\rho). \quad (5)$$



1. — Зависимость времени жизни от температуры в этаноле, 2 — н-гексадекане, 3 — н-пропаноле, 4. — н-октаноле.
 Сплошные кривые — теоретический расчет

Граничные условия на твердом (радиуса σ) и эквивалентном (радиуса ρ_s) цилиндрах запишутся соответственно:

$$\begin{cases} \psi(\sigma) = A I_0(q\sigma) + B Y_0(q\sigma) = 0 \\ \left. \frac{\partial \psi}{\partial \rho} \right|_{\rho = \rho_s} = -A I_1(q\rho_s) + (-B Y_1(q\rho_s)) = 0 \end{cases}, \quad (7)$$

где $q = \sqrt{4mU_0/\hbar^2}$, I_0 , I_1 , Y_0 , Y_1 — функции Бесселя нулевого и первого порядков первого и второго рода соответственно. Система уравнений (7) решалась относительно U_0 графическим способом. При этом значения эквивалентного радиуса ρ_s при различных температурах определялись из уравнения:

$$\pi \rho_s^2 \left[(n_C - 1) r_{C-C} \sin \frac{\alpha}{2} + n_{OH} r_{C-OH} \sin \frac{\beta}{2} + 2\rho_s \right] = \frac{M}{\mu A}, \quad (8)$$

где $n_{\text{ОН}}$, n_{C} — число групп ОН и атомов углерода в молекуле, $r_{\text{C-C}}$, $r_{\text{C-ОН}}$ — длина связи C-C и C-ОН, $\alpha = \beta = 109,5^\circ$ — углы $\angle \text{CCC}$ и $\angle \text{CCO}$.

Уравнение (8) было получено в предположении, что молекулы в жидкости располагаются параллельно друг другу, причем расположение молекул в плоскости, перпендикулярной их осям, плотно упакованное [7]. Значение длины рассеяния позитрония σ определялось из условия наилучшего согласия теории с экспериментом.

На рисунке представлены экспериментально полученные результаты и теоретически рассчитанные зависимости времени жизни орто-позитрония от температуры в *n*-гексадекане ($\sigma = 0,846 \pm 0,006 \text{ \AA}$), *n*-октане ($\sigma = 0,804 \pm 0,006 \text{ \AA}$), *n*-пропаноле ($\sigma = 0,638 \pm 0,008 \text{ \AA}$) и этаноле ($\sigma = 0,755 \pm 0,006 \text{ \AA}$). Полученные значения σ находятся в хорошем согласии с предположением о том, что $Z_{\text{эфф}}$ равно числу валентных электронов всех атомов молекулы.

Действительно, в этом случае минимально возможное расстояние между осью молекулы и центром атома позитрония (равное σ) можно оценить так: $\sigma \approx r_{\text{C}+4} + r_{\text{P}_s}$, где $r_{\text{C}+4}$ — радиус остова углерода, приближенно равный радиусу иона $\text{C}^{+4} = 0,15 + 0,29 \text{ \AA}$ [5], r_{P_s} — радиус атома позитрония = $0,54 \text{ \AA}$. Таким образом $0,69 \text{ \AA} \leq \sigma \leq 0,83 \text{ \AA}$, что хорошо согласуется со значениями σ полученными экспериментально. Согласие теоретических расчетов с экспериментальными результатами позволяет сделать два вывода: 1) модель "пузырька" правильно описывает поведение атома позитрония в алифатических соединениях и их производных; 2) атом позитрония, по-видимому, аннигилирует только на валентных электронах атомов молекулы, т. е. $Z_{\text{эфф}} = Z_{\text{вал}}$ (так как $Z_{\text{эфф}}$ является, фактически, единственным параметром теории, то согласие расчетов с экспериментом при выборе $Z_{\text{эфф}} = Z_{\text{вал}}$ позволяет сделать этот вывод).

Институт химической физики
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
21 апреля 1971 г.

Литература

- [1] А.П.Бучихин, В.И.Гольданский, А.О.Татур, В.П.Шантарович. ЖЭТФ, 60, 1136, 1971.
- [2] R.A.Ferrell. Phys. Rev., 108, 167, 1957.
- [3] L.O.Roellig. Positron annihilation, edited by A.T.Stewart and L.O.Roellig, Academic Press, New-York-London, 1967, p.127.
- [4] В.И.Гольданский, Т.А.Солоненко, В.П.Шантарович. ДАН СССР, 151, 608, 1963.
- [5] Справочник химика. Изд. Химия, том 1, 1967.
- [6] Современная квантовая химия под ред А.М.Бродского, изд. МИР, том 2, стр. 165, 1968.
- [7] В.И.Данилов. Строение и кристаллизация жидкостей, Киев, изд. АН УССР, 1956, стр. 69.