

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭНЕРГИИ СПИН-СПИНОВОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В ДЕЙТЕРО-ВОДОРОДЕ HD И ОЦЕНКИ ПРОЯВЛЕНИЯ АКСИОН-ПОДОБНЫХ ЧАСТИЦ

Ю. И. Неронов*

*Институт метрологии им. Д. И. Менделеева
190005, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 14 августа 2017 г.

Получено экспериментальное значение энергии спин-спинового взаимодействия в дейтерированном молекулярном водороде HD: $J_{pd} = (43.112 \pm 0.005)$ Гц (300 К) при исследовании двух газообразных образцов с давлением 95 и 155 атм. Экспериментальный результат не совпадает со значением $J_{pd} = (43.31 \pm 0.05)$ Гц, который вычислен теоретически в работе Хельгакера и др. Наблюдаемое расхождение $\Delta J_{pd} \approx (0.20 \pm 0.05)$ Гц может указывать на проявление участия в спин-спиновом взаимодействии протона и дейтрона молекулы HD легких псевдоскалярных (аксион-подобных) бозонов с массой $m_a \approx 1$ кэВ/ c^2 .

DOI: 10.7868/S0044451018030045

но проявляться в гравитационных и спин-спиновых взаимодействиях.

1. ВВЕДЕНИЕ

Ранее было предсказано, что легкая псевдоскалярная частица, названная аксионом, решит проблему сохранения CP-четности в сильном взаимодействии [1–5]. Многие исследовательские группы проводят поиск таких и других аксион-подобных частиц как среди частиц, поступающих из космоса, так и путем проведения специальных экспериментов или путем анализа согласованности данных, полученных из прецизионных экспериментов и тщательно выполненных соответствующих теоретических вычислений [6–13]. Ограничения на константы связи аксионов с нуклонами из астрофизических данных и экспериментов по поиску солнечных аксионов оказываются на уровне 10^{-9} – 10^{-6} .

Указанные ограничения на константы связи получены в рамках конкретных теоретических моделей аксиона. В работе [12] предполагают, что существуют аксион-подобные бозоны не подпадающие под указанные ограничения. Масса темной материи превышает общую массу видимого адрон-лептонного вещества более чем в пять раз. Стабильные псевдоскалярные бозоны реликтового происхождения могут отсутствовать в составе солнечного ветра,

В работе [14] было обнаружено, что существует расхождение между экспериментальными и теоретическими данными для спин-спинового взаимодействия ядер в частично дейтерированном аналоге водорода HD. Согласно работе [14] причиной расхождения может быть проявление присутствия легких псевдоскалярных (аксион-подобных) частиц. Однако такое предположение требует дальнейшей тщательной перепроверки.

Одной из возможных причин расхождения между экспериментально наблюдаемым и рассчитанным значениями константы J_{pd} может быть следующее. Теоретическая величина была рассчитана для изолированной молекулы HD [15], в то время как экспериментальная методика требует использования образца с газообразным HD при давлении 60 атм или выше. В условиях, когда диффузия молекул ограничена, соотношение неопределенности $\Delta E \cdot \Delta t \approx h$ позволяет при больших Δt наблюдать спектральные линии от HD шириной в несколько герц, что обеспечивает требуемую точность экспериментальных данных. В этой связи, целью настоящей работы было экспериментальное исследование спектров газообразных образцов с HD при разных давлениях.

* E-mail: yineronov@yandex.ru

2. СТРУКТУРА ЯМР-СПЕКТРА

Спиновый гамильтониан для двух ядер молекулы HD в магнитном поле B имеет вид

$$\hat{H} = \gamma_p \hbar B (1 - \sigma_p) I_{pz} + \gamma_d \hbar B (1 - \sigma_d) I_{dz} + J_{pd} \mathbf{I}_p \cdot \mathbf{I}_d, \quad (1)$$

где γ_p, γ_d — гиромагнитные отношения протона и дейтрона, σ_p, σ_d — соответствующие экранирования ядер в молекуле, $\mathbf{I}_p, \mathbf{I}_d$ и I_{pz}, I_{dz} — ядерные спины и их проекции в направлении магнитного поля, J_{pd} — константа спин-спинового взаимодействия, которая должна быть измерена. Первые два члена определяют зеемановское взаимодействие, а третий член учитывает скалярное спин-спиновое взаимодействие ядер. Резонансные частоты определяются формулой

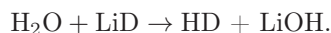
$$\nu_p = \gamma_p B (1 - \sigma_p) / 2\pi, \quad \nu_d = \gamma_d B (1 - \sigma_d) / 2\pi,$$

если взаимодействие ядер не учитывать. В работе [16] описан метод, используя который можно вычислить энергетические уровни гамильтониана (1).

Разрешенные магнитные переходы ($\Delta m = \pm 1$) образуют триплет вблизи частоты протонного резонанса ν_p . В общем случае интервалы между компонентами триплета не равны J_{pd} из-за наличия слабеющих второго порядка. Для нашего магнита эта поправка равна $J^2 / 2(\nu_p - \nu_d) \approx 1.2 \cdot 10^{-5}$ Гц. Такая поправка на два порядка меньше, чем наша экспериментальная погрешность. Поэтому мы можем пренебречь коррекцией второго порядка. С аналогичным приближением на частоте магнитного резонанса ядер дейтерия ν_d можно наблюдать дублет, с интервалом между его компонентами равным J_{pd} .

3. ИЗГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ

Как и в работах [17–20], мы получали HD с использованием химической реакции



Реакция проводилась внутри ампулы после ее запайки газовой горелкой. Ампулы были изготовлены из стеклянных трубок наружным диаметром 5 мм и толщиной стенок 1 мм. Такие ампулы выдерживают давление до 130 атм в течение нескольких дней, если их высота составляет 130 мм [17]. В настоящей работе были изготовлены две ампулы с одинаковыми размерами и высотой 90 мм. Соответствующее уменьшение внутреннего объема позволило увеличить их устойчивость к разрыву.

Последовательность заполнения образцов была следующей. Предварительно на дно ампулы помещалась вода. Количество воды было тщательно рассчитано для получения конечного давления в образцах 95 и 155 атм. Далее над водой помещался ватный тампон. Затем кристаллы LiD засыпались на ватный тампон, что исключало преждевременное начало химической реакции. Вес кристаллов, помещенных в ампулу, был рассчитан таким образом, чтобы в итоге химическая реакция полностью очистила образец от воды и ее паров.

Оба образца имели симметричную форму, что обеспечивало стабильность вращения ампул воздушным потоком во время записи сигнала. Кроме того, перед запайкой образца мы замораживали ампулы в жидком азоте и откачивали воздух. Таким образом, мы устранили дополнительное уширение ЯМР-сигналов, которое возникает из-за присутствия в воздухе парамагнитного кислорода. Описанная методика приготовления образцов позволяла оценить погрешность вычисления давления в ампулах величиной около 5%. Она связана с неопределенностью оценки внутреннего объема ампул и с погрешностью взвешивания исходных реагентов.

4. ЯМР-СПЕКТРОМЕТР

В своих опытах мы не могли использовать какой-либо коммерческий ЯМР-спектрометр из-за его возможного повреждения при разрыве образцов. Величина J_{pd} не зависит от магнитного поля ЯМР-спектрометра. По этой причине сверхпроводящие магниты с высоким полем в данном случае не имеют преимуществ. Для минимизации погрешности определения J_{pd} существенным является высокая однородность магнитного поля в пределах расположения образца. В оптимальном случае доля не более 10% ширины линии должна зависеть от неоднородности магнитного поля. При этом форма сигналов спектра будет достаточно хорошо соответствовать контуру Лоренца.

В настоящей работе был использован ЯМР-спектрометр, который ранее был описан в работе [21]. Он включал электромагнит с полем 2.14 Тл, изготовленный фирмой «Bruker». Для повышения однородности магнитного поля было использовано вращение образцов (частота вращения около 30 Гц). Предварительно мы исследовали образцы с HD на резонансе протонов и получили следующий результат: $J_{pd} = (43.09 \pm 0.03)$ Гц. Ширина протонных сигналов от HD на половине

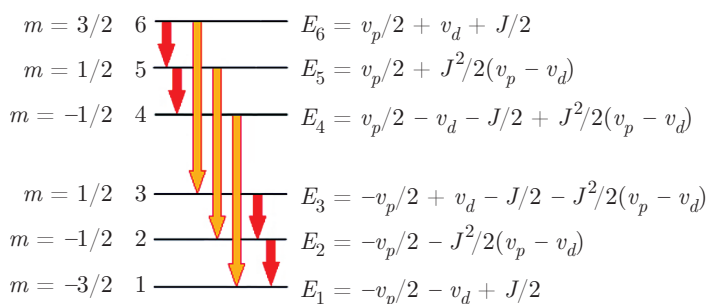


Рис. 1. Уровни энергии и магнитные переходы в дейтерированном молекулярном водороде HD

высоты была равна: $\Delta f(\text{HD}) = 5.2$ Гц. Погрешность определения J_{pd} на протонном резонансе оказывается завышенной из-за присутствия в образцах обычного водорода H_2 , сигнал от которого имеет ширину около 33 Гц и перекрывается с компонентами триплета HD. Подобные спектры с оценкой изотопного сдвига были представлены нами ранее в работе [22].

Меньшая погрешность для J_{pd} была получена при исследовании образцов на резонансе ядер дейтерия. При этом стабилизация резонансных условий осуществлялась с использованием протонного ЯМР-сигнала на частоте 91.2 МГц. Мы не могли использовать протоны, которые присутствовали внутри рабочих ампул, потому что резонансная частота протонов, используемых для стабилизации поля, должна быть далека от резонансной частоты протонов HD. Это требовалось для того, чтобы исключить изменение заселенности уровней (рис. 1), которое должно было определяться тепловым равновесием.

Количество витков для приемной катушки было выбрано оптимальным для максимальной чувствительности спектрометра при резонансе ядер дейтерия на частоте 14.0 МГц. Та же приемная индуктивность была согласована с входом усилителя протонного сигнала. Протонный сигнал формировался от протонов эластичной резиновой трубки, которая была расположена поверх проводников приемной индуктивности (рис. 2). Сигнал от протонов резиновой трубки был достаточно интенсивным и обеспечивал устойчивые условия для стабилизации магнитного поля.

5. НАКОПЛЕНИЕ СИГНАЛОВ

Регистрация данных выполнялась при последовательном использовании трех образцов. Пер-

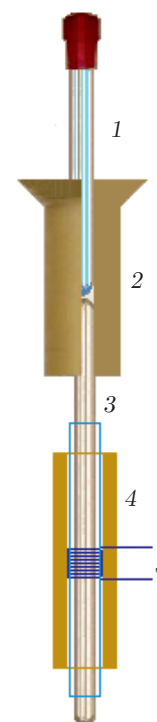


Рис. 2. Общий вид образцов с газом HD: 1 — верхняя ампула, используемая в качестве держателя для оперативной замены образца, 2 — ротор для вращения образца, 3 — ампула с газом, 4 — трубка из мягкой резины, протоны которой использовались для формирования сигнала стабилизации магнитного поля, 5 — катушка индуктивности для регистрации ЯМР-сигналов от протонов и дейтронов

вый образец содержал дейтерированный ацетон $(\text{CD}_3)_2\text{CO}$, который имеет узкую спектральную линию, $\Delta\nu(\text{CD}_3) < 1.0$ Гц. Использование ацетона позволяет оптимизировать регулировки спектрометра и уменьшить часть ширины сигнала, связанную с неоднородностью магнитного поля, до значения менее 0.2 Гц. После этого образцы с HD последовательно помещались в датчик ЯМР-спектрометра. Для каждой ампулы мы накапливали десять спектров и снова устанавливали образец с $(\text{CD}_3)_2\text{CO}$ для контроля предельно высокой однородности магнитного поля. В результате, было накоплено по сорок числовых массивов, содержащих данные о спектрах (рис. 3) для образцов с давлением 95 и 155 атм.

6. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

На рис. 3 показан типичный спектр, накопленный от второго образца с давлением $P = (155 \pm 5)$ атм. Спектр содержит дополнительный сигнал от молекул D_2 , который связан с нежелатель-

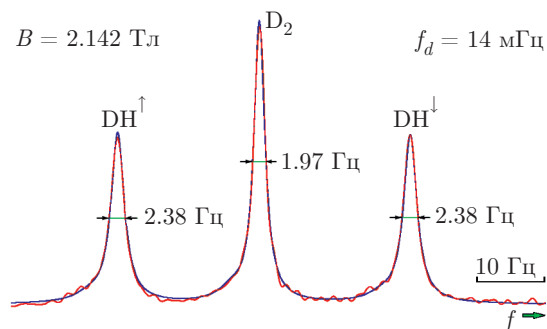


Рис. 3. Типичный пример спектра дейтерия ЯМР, накопленного для газовой смеси DH и D₂ с использованием ампулы с давлением 155 атм. Гладкая кривая соответствует трем контурам Лоренца, параметры контуров были определены методом наименьших квадратов

Таблица. Результаты сравнительного исследования двух образцов

Номер образца	Образец № 1	Образец № 2
<i>P</i> , атм	95 ± 5	155 ± 5
$\Delta f(\text{DH})$, Гц	2.73 ± 0.03	2.45 ± 0.02
$\Delta f(\text{D}_2)$, Гц	2.23 ± 0.03	2.04 ± 0.02
J_{pd} , Гц	43.112 ± 0.005	43.112 ± 0.004

ными реакциями обмена $\text{HD} + \text{LiOH} \leftrightarrow \text{LiOD} + \text{H}_2$ и $\text{HD} + \text{LiOD} \leftrightarrow \text{LiOH} + \text{D}_2$, которые проходят в образцах с участием щелочных кристаллов и молекулами газа. Однако эти три сигнала (рис. 3) не перекрывались, и присутствие сигнала от D₂ не влияло на точность итогового результата. Спектры от образца с давлением 95 атм имели аналогичный вид (рис. 3), но сами сигналы имели большую ширину.

Далее выполнялся математический анализ численных массивов методом минимизации среднеквадратичных отклонений с использованием действительных, и мнимых компонент спектров, как было описано ранее [20, 21]. Форма сигналов находилась в хорошем согласии с контуром Лоренца. Результаты численных расчетов ширины сигналов спектров $\Delta f(\text{DH})$, $\Delta f(\text{D}_2)$ и энергия спин-спинового взаимодействия (выраженная в герцах) представлены в таблице. Разброс данных для сорока спектров представлен как погрешность в одно стандартное отклонение.

7. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Релаксационные процессы в газе HD и уменьшение диффузии позволяют регистрировать более узкие сигналы ЯМР, если давление увеличивается. Уширение сигнала оказывается уменьшенным на 10% при увеличении давления газа от 95 до 155 атм (таблица). Однако изменения энергии спин-спинового взаимодействия для J_{pd} не было зарегистрировано. Ранее в аналогичном эксперименте [17] для образцов с давлением $P = 130$ атм в магнитном поле $B \approx 1.5$ Тл было определено: $J_{pd} = (43.115 \pm 0.012)$ Гц. Затем, для образца с давлением $P = 90$ атм был получен результат: $J_{pd} = (43.115 \pm 0.009)$ Гц [14]. Близкий результат был опубликован ранее в работе [18], когда использовалось магнитное поле $B = 4.7$ Тл ($J_{pd} = 43.08$, $J_{dp} = 43.06$ Гц).

В работе [23] было выполнено экспериментальное определение J_{pd} в условиях, когда HD-газ растворялся в других газах ($J_{pd} = 43.136(7)$ Гц), причем сигналы регистрировались от стационарной ампулы, которая заполнялась от баллонов со смесью газов. В нашем эксперименте была получена меньшая систематическая погрешность, поскольку мы использовали вращение образца и имели возможность обеспечивать минимальное уширение сигнала благодаря возможности быстрой замены основных ампул на ампулу с $(\text{CD}_3)_2\text{CO}$. Мы не учитывали те спектры, которые из-за не оптимальной настройки ЯМР-спектрометра имели дополнительное уширение сигнала более чем на 0.6 Гц из-за неоднородности магнитного поля. Было замечено [14], что если сигналы имели дополнительное уширение более чем на 0.8 Гц, то проявлялась асимметрия сигнала и возникали систематические ошибки.

8. ОЦЕНКИ ПРОЯВЛЕНИЯ АКСИОН-ПОДОБНЫХ БОЗОНОВ

Теоретический результат для J_{pd} был вычислен в работе [15] с погрешностью, превышающей погрешность нашего экспериментального результата (таблица). Авторы показывают [15], что наибольший вклад в погрешность их результата связан с неопределенностью оценки равновесного расстояния между ядрами молекулы HD. Эту погрешность авторы оценили как 0.02–0.03 Гц. Вклад в погрешность из-за релятивистских эффектов был оценен на уровне 0.01 Гц. Другие вклады в общую неопределенность, по оценкам авторов [15], находятся на уровне 0.01 Гц

или менее. В итоге, в работе [15] был получен результат $J_{pd} = (43.31 \pm 0.05)$ Гц.

Отметим, что по данным [15] ферми-контактное взаимодействие вносит доминирующий вклад в энергию спин-спинового взаимодействия двух ядер молекулы HD — 97%. Следовательно, основной вклад в спин-спиновое взаимодействие определяется вероятностью пребывания электрона внутри ядра. Этот вклад содержит множитель α^2 (где α — постоянная тонкой структуры).

Пара электронов с противоположно направленными спинами (как общая квазичастица с нулевым спином, что характерно для бозонов) проявляется в таких явлениях как сверхпроводимость, эффект Джозефсона, а также в строении молекул, которые демонстрируют стабильность из-за ковалентной химической связи. Взаимное электростатическое отталкивание электронов не позволяет этой паре быть устойчивой во многих других физических условиях. Для предварительных оценок будем далее использовать аналогию по вкладам в J_{pd} от взаимодействия спинов ядер HD с парой электронов и с экзотическим бозоном [24].

Между теоретическим расчетом и экспериментальным значением наблюдается разность

$$\begin{aligned} \Delta J_{pd} &= (43.31 \pm 0.05) - (43.112 \pm 0.005) = \\ &= (0.20 \pm 0.05) \text{ Гц.} \end{aligned} \quad (2)$$

Можно предполагать, что разность (2) связана с проявлением спин-спинового взаимодействия ядер HD с псевдоскалярными (аксион-подобными) бозонами [14, 24]. В работе Ледбеттера и др. [12] представлено выражение, которое позволяет оценивать прямой вклад в энергию спин-спинового взаимодействия ядер в молекуле HD из-за взаимодействия с псевдоскалярными бозонами:

$$\Delta J_{pd} = \frac{\alpha_p \alpha_d}{4\pi} \frac{1}{2M_p^2} \frac{m_a^2 e^{-m_a r}}{3r}. \quad (3)$$

В этом выражении авторы [12] использовали следующие приближенные оценки: $M_p = M_n$ (массы протонов и нейтронов равны); $r = 1.4$ радиуса Бора; $\alpha_d = \alpha_p + \alpha_n$ — безразмерные константы, характеризующие взаимодействие псевдоскалярного аксион-подобного бозона с протоном (α_p) и нейтроном (α_n). На основе соотношений (2) и (3) вычислена зависимость произведения $\alpha_p \alpha_d / 4\pi$ от m_a — массы экзотического бозона (рис. 4). Для примера, на рис. 4 представлена также прямая линия KSVZ, которая по оценкам [12] соответствует связи аксиона,

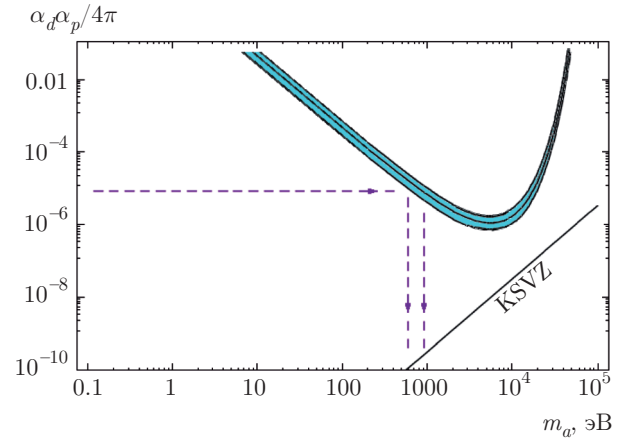


Рис. 4. Зависимость $\alpha_p \alpha_d / 4\pi$ от массы бозона m_a , вычисленная на основе выражений (2) и (3). Прямая линия KSVZ представляет собой аксионную связь, оцененная авторами [12] на основе модели Кима – Шифмана – Вайнштейна – Захарова

определяемого по модели Кима – Шифмана – Вайнштейна – Захарова.

Для представления более конкретных данных в первом приближении будем использовать $\alpha_p \approx \alpha_d \approx \alpha \approx 1/137$. Тогда $\alpha_p \alpha_d / 4\pi \approx 4.24 \cdot 10^{-6}$ и из (2) и (3) можем оценить массу экзотического бозона как

$$m_a \approx (600-900) \text{ эВ}/c^2. \quad (4)$$

Здесь показан разброс, связанный с погрешностью (2), и следует еще дополнительно учесть неопределенность из-за приближенных оценок постоянных α_p и α_d . Использование соотношения $\alpha_p \approx \alpha_d \approx \alpha = e^2 / 2\epsilon hc \approx 1/137$ может иметь оправдание, если обсуждаемый нейтральный бозон состоит из противоположно заряженных частиц, подобно кваркам с их проблемой невылетания.

Таким образом, существует расхождение между экспериментальными данными и теоретическими расчетами для J_{pd} , и это представляет существенный интерес. Экспериментальные данные для J_{pd} были получены с погрешностью, которая в десять раз меньше погрешности теоретического расчета. Величина m_a будет оценена более надежно после того, как теоретическое значение для J_{pd} будет вычислено с меньшей погрешностью.

Автор выражает благодарность М. Козлову (ПИЯФ) за большой интерес к настоящей работе и очень полезное обсуждение результатов эксперимента.

ЛИТЕРАТУРА

1. S. Weinberg, Phys. Rev. Lett. **37**, 657 (1976).
2. R. D. Peccei and H. R. Quinn, Phys. Rev. Lett. **38**, 1440 (1977).
3. S. Weinberg, Phys. Rev. Lett. **40**, 223 (1978).
4. F. Wilczek, Phys. Rev. Lett. **40**, 279 (1978).
5. J. E. Moody and F. Wilczek, Phys. Rev. D **30**, 130 (1984).
6. А. А. Ансельм, Ю. И. Неронов, ЖЭТФ **88**, 1946 (1985).
7. S. G. Karshenboim, Phys. Rev. Lett. **104**, 220406 (2010).
8. S. G. Karshenboim, Phys. Rev. D **82**, 073003 (2010).
9. S. G. Karshenboim, Phys. Rev. D **82**, 113013 (2010).
10. S. G. Karshenboim, Phys. Rev. A **83**, 062119 (2011).
11. S. G. Karshenboim and V. V. Flambaum, Phys. Rev. A **84**, 064502 (2011).
12. M. P. Ledbetter, M. V. Romalis, and D. F. Jackson Kimball, Phys. Rev. Lett. **110**, 040402 (2013).
13. C. Patrignani et al. (Particle Data Group), Chin. Phys. C **40**, 100001 (2016).
14. Ю. И. Неронов, Н. Н. Серегин, Письма в ЖЭТФ **100**, 671 (2014).
15. T. Helgaker, M. Jaszunski, P. Garbacz, and K. Jankowski, Mol. Phys. **110**, 2611 (2012).
16. J. W. Emsley, J. Feeney, and L. H. Sutcliffe, High-Resolution NMR Spectroscopy, Vol. 1; Pergamon Press (1966).
17. Ю. И. Неронов, А. Е. Барзах, Х. Мухамадиев, ЖЭТФ **69**, 1872 (1975).
18. M. V. Gorshkov, Yu. I. Neronov, E. N. Nikolaev, Yu. V. Tarbeev, and V. L. Talroze, Sov. Phys. Dokl. AS **34**, 362 (1989).
19. N. N. Aruev and Yu. I. Neronov, Tech. Phys. **57**, 1579 (2012).
20. Yu. I. Neronov and A. N. Seregin, Metrologia **51**, 54 (2014).
21. Yu. I. Neronov and A. N. Seregin, Meas. Tech. **53**, 926 (2010).
22. Ю. И. Неронов, А. Н. Серегин, ЖЭТФ **142**, 883 (2012).
23. P. Garbacz, Chem. Phys. **443**, 1 (2014).
24. Yu. I. Neronov, in *13th International Youth School-Conference; Magnetic Resonance and Its Applications*, p. 61–63; November 20–26 (2016); Saint Petersburg, Russia; Book of abstracts Spinus-2016; <http://nmr.phys.spbu.ru/spinus>.