

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ КОРРЕЛЯЦИОННОЙ ФУНКЦИИ ВБЛИЗИ КРИТИЧЕСКОЙ ТОЧКИ

*М.А. Анисимов, А.М. Евтюженков, Ю.Ф. Килченко, И.К. Юдик*

Из анализа угловой и температурной зависимости критической опалесценции обнаружено отличие корреляционной функции от приближения Орнштейна – Цернике. Полученная корреляционная функция имеет вид  $G(k, r_c) \sim (r_c^{-2} + k^2)^{-(1 - (\eta/2))}$ , где  $k$  – волновое число,  $r_c$  – радиус корреляции,  $\eta = 0,055 \pm 0,010$ .

Для описания корреляционных свойств жидкостей вблизи критических точек обычно используют следующую интерполяционную формулу

(см., например, [1]):

$$G(k, r_c) = \rho r_0^{-(2-\eta)} (r_c^{-2} + k^2)^{-(1-\eta/2)}, \quad (1)$$

где  $r_c = r_0 [(T - T_c)/T_c]^{-\nu} = r_0 t^{-\nu}$  – радиус корреляции,  $\rho$  – плотность,  $k$  – волновое число. В экспериментах по рассеянию  $k = 4\pi\lambda^{-1}n \times \sin(\theta/2)$  ( $\lambda$  – длина волны излучения,  $n$  – показатель преломления среды,  $\theta$  – угол рассеяния). Показатель  $\eta$  характеризует предполагаемое отклонение от приближения Орнштейна – Цернике, в котором  $\eta = 0$  [2].

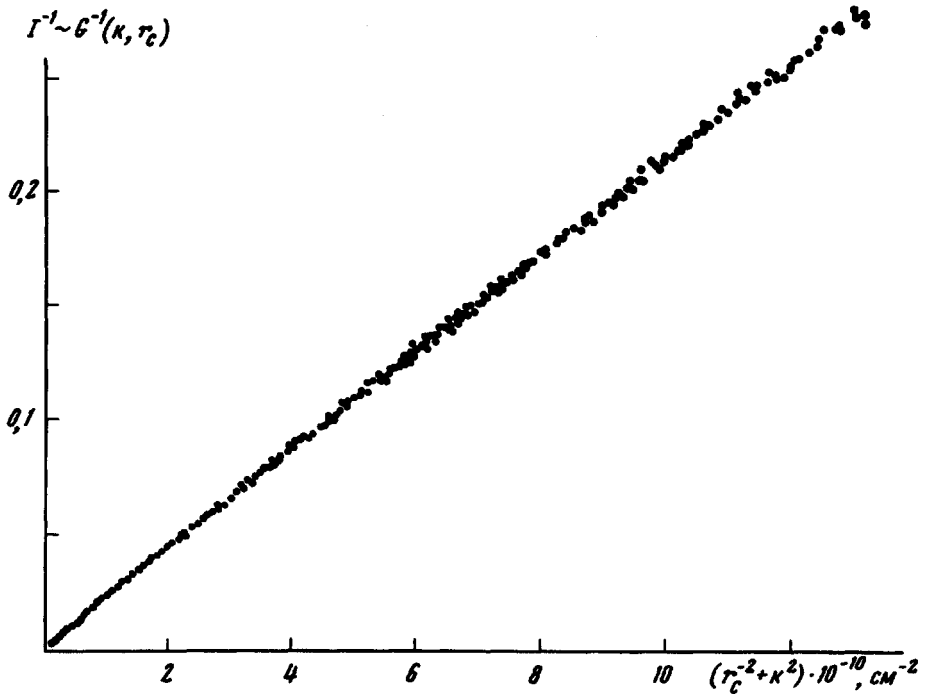


Рис. 1. Корреляционная функция вблизи критической точки. На рисунке приведена часть экспериментальных точек. Исследованный интервал аргумента  $(r_c^{-2} + k^2) (0,18 + 54) \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$

Расчеты для трехмерной модели Изинга дают  $\eta = 0,041$  (численные методы [3]) и  $\eta = 0,037$  (аналитические методы [4]). В то же время, результаты многочисленных экспериментальных исследований корреляционных свойств жидкостей вблизи критических точек (методом рассеяния света) [1, 5 – 10] противоречивы. Например, для одного и того же объекта – раствора нитроэтан – 3, метилпентан (система аналогичная исследованной нами) получено  $\eta = 0 \pm 0,01$  [5] и  $\eta = 0,2 \pm 0,1$  [1]. По существу до сих пор не было ни одной экспериментальной работы, достаточно убедительно доказывающей неадекватность приближения Орнштейна – Цернике [6].

Можно указать следующие основные причины подобных расхождений. Во-первых, предполагаемое значение показателя  $\eta$  мало отличается от нуля, и для его определения необходима высокая точность измерения

интенсивности рассеянного света в максимально широком диапазоне измерения  $kr_c$ . Во-вторых, наличие трудноустраняемых искажающих факторов, сопутствующих эксперименту вблизи критической точки вообще и исследованию критической опалесценции в частности (многократное рассеяние, ослабление света, паразитный свет на малых углах и т.п.).

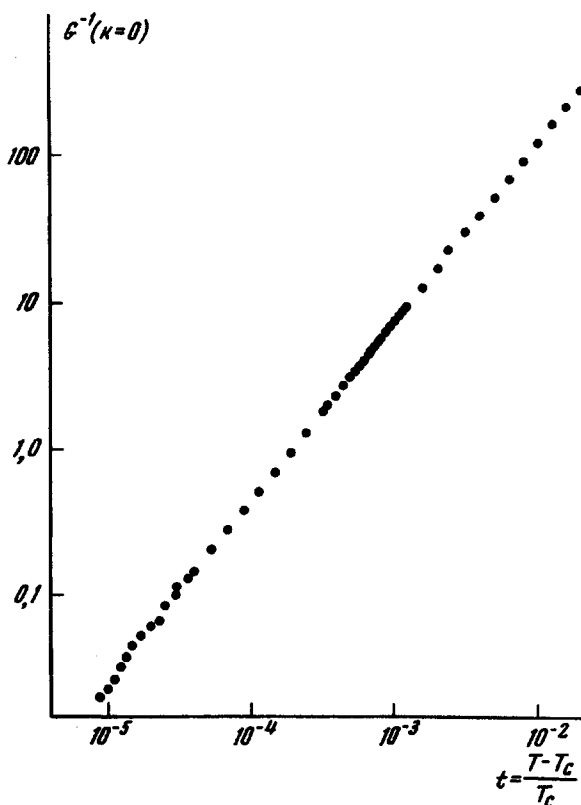


Рис. 2. Значения корреляционной функции при  $k = 0$  в зависимости от температуры

Нами была измерена интенсивность рассеянного света вблизи критической точки равновесия жидкость – жидкость раствора нитроэтангексан ( $T_c = 304,030 \pm 0,001^\circ \text{K}$ ,  $x = x_c = 51,8 \pm 0,2$  вес. % гексана, разность показателей преломления компонентов  $\Delta n \approx 0,017$ ) при 24 углах рассеяния в диапазоне  $\theta = 12 + 150^\circ$  и в интервале температур  $t = 3 \cdot 10^{-2} + 10^{-5}$ . Было получено около тысячи экспериментальных точек в интервале изменения  $kr_c$  от 0,4 до 6,3. Система термостатирования, несколько усовершенствованная по сравнению с описанной в [11], позволяла поддерживать заданную температуру с точностью  $\pm 2 \cdot 10^{-4}$  град. Способ приготовления образца и конструкция оптической кюветы были аналогичны описанным в работе [11]. Источник света – гелий-неоновый лазер ЛГ-55 ( $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ , мощность  $\sim 10^{-3} \text{ вт}$ ) со стабилизацией мощности ( $\pm 0,1\%$  в течение часа). Мощность возбуждающего пучка в рассеивающем объеме вблизи  $T_c$  уменьшалась до  $2 \cdot 10^{-6} \text{ вт}$ , что позволяло практически исключить нагрев образца лазерным лучом. Интенсивность рассеянного света измерялась методом счета фотонов (ФЭУ-79 → дискриминатор → частотомер ЧЗ-34). Диапазон измеряемых интенсивностей  $10^2 + 10^6$  счетов/сек. Стабильность при максимальных

интенсивностях  $\sim 0,5\%$  в течение часа. Интенсивность рассеяния калибровалась по интенсивности проходящего света, что позволяло учесть эффект ослабления, зависящий от близости к  $T_c$ . Одновременно измерялась степень деполяризации рассеянного света ( $\Delta$ ), равная по порядку величины вкладу многократного рассеяния [12]. При  $t = 10^{-4} + 10^{-5}$   $\Delta = 0,1 + 0,2\%$ . Используемая методика позволяла измерять относительную интенсивность однократно рассеянного света с точностью не хуже 1%.

Результат измерения корреляционной функции  $G(k, r_c)$ , пропорциональной относительной интенсивности  $I$ , в зависимости от  $(r_0^{-2} + k^2)$  представлен на рис. 1, а на рис. 2 показана зависимость значений  $G(k, r_c)$  при  $k = 0$  от температуры:  $G(0, r_c) \sim r_0^{2-\eta} \sim t^{-\gamma}$ , где  $\gamma = (2 - \eta)\nu$ . Аппроксимация кривой рис. 1 выражением (1) дала следующие результаты:  $\eta = 0,055 \pm 0,010$ ,  $\nu = 0,63 \pm 0,01$ ,  $r_0 = 2,2 \pm 0,2 \text{ \AA}$ . Наклон прямой на рис. 2 соответствует  $\gamma = 1,22 \pm 0,02$ .

По нашему мнению, отличие корреляционной функции вблизи критических точек жидкостей от приближения Орнштейна – Цернике можно считать теперь экспериментально доказанным.

Отметим, что результаты, полученные для жидкости с одной стороны и для трехмерной модели Изинга с другой, оказались численно близки.

Корреляционная функция должна также содержать члены более высокого порядка по  $k$  [3], но для их обнаружения необходимо существенное повышение точности.

Всесоюзный  
научно-исследовательский институт  
физико-технических и радиотехнических  
измерений

Поступила в редакцию  
16 июля 1974 г.

### Литература

- [1] Д.Мак-Интайр, Дж.Сэнджерс. В книге "Физика простых жидкостей". "Экспериментальные исследования". М., изд. Мир, 1973, стр. 97.
- [2] Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц. Статистическая физика, М., изд. Наука, 1964.
- [3] M.Ferer, M.A.Moore, M.Wortis. Phys. Rev. Lett., 22, 1382, 1969; M.A.Moore, D.Jasnow, M.Wortis. Phys. Rev. Lett., 22, 940, 1969.
- [4] K.G.Wilson. Phys. Rev. Lett., 28, 548, 1972.
- [5] R.F.Chang, P.H.Keyes, J.V.Sengers, C.O.Alley. Phys. Rev. Lett., 27, 1706, 1971.
- [6] B.Chu. Ber. Bunsen-Ges. Phys. Chem., 76, 202, 1972.
- [7] K.Jaekel, U.Majer. Ber. Bunsen-Ges. Phys. Chem., 76, 232, 1972.
- [8] C.C.Lai, S.H.Chen. Phys. Lett., 41, 259, 1972.
- [9] P.Calmettes. J.Laguës, C.Lai. Phys. Rev. Lett., 28, 478, 1972.
- [10] D.S.Cannell, J.H.Lunacek. Phys. Rev. Lett., 27, 841, 1971.

- [ 11] М.А.Анисимов, И.М.Арефьев, А.В.Воронель, В.П.Воронов, Ю.Ф.Кияченко, И.Л.Фабелинский. ЖЭТФ, 61, 1526, 1971.
- [ 12] М.А.Анисимов, Сб. "Современные проблемы физической химии". Изд. МГУ, 5, 364, 1970.
-