УДК 535.36

КРИТИЧЕСКАЯ ОПАЛЕСЦЕНЦИЯ В ГРАВИТАЦИОННОМ ПОЛЕ

Е. Л. Лакоза и *А. В. Чалый*

Исследовано влияние неоднородностей, созданных гравитационным полем, на интегральную интенсивность рассеяния вблизи критической точки, которые приводят к отклонениям от теории Орнштейна—Цернике. Проведен анализ высотной и угловой зависимостей рассеивающей способности вещества в предельных случаях, соответствующих окрестностям критических изохоры и изотермы.

Для изучения молекулярного рассеяния в околокритическом состоянии вещества и анализа экспериментальной информации, содержащейся в рассеянном излучении, необходим последовательный учет пространственной неоднородности, связанной с аномальным ростом восприимчивости к внешним воздействиям. Это требует не только решения общей электродинамической задачи распространения электромагнитных волн в оптически неоднородной среде вблизи критической точки, но и знания корреляционных функций такой системы при наличии внешних полей.

Ранее в работе [1] были исследованы особенности прохождения и рассеяния света в оптически неоднородной среде, представляющей собой однокомпонентную жидкость вблизи критического состояния парообразования в гравитационном поле. Решение уравнений Максвелла с учетом высотного распределения диэлектрической проницаемости в такой среде приводит к следующему выражению для вектора Умова—Пойнтинга однократно рассеянного света:

$$\langle \mathbf{S} \rangle = \frac{c}{16\pi}\left(\frac{k_0^2}{4\pi}\right)\frac{1}{L^2}\,\mathrm{Re}\iint\limits_V d\mathbf{R}\,d\mathbf{r}'\,e^{-ik_0\sqrt{\varepsilon_c}\,\mathbf{n}_0\cdot\mathbf{R}}\,\langle \varepsilon'(\mathbf{r})\,\varepsilon'(\mathbf{r}')\rangle\,\varepsilon_0^{-1/2}(z',t)\times$$
$$\times\left[\mathbf{n}_0(1+\cos^2\vartheta)+\frac{\Delta\varepsilon(z',t)}{\varepsilon_c}(\mathbf{m}_0\cos\vartheta-\mathbf{n}_0\cos^2\vartheta)\right]\times$$
$$\times\left\{|A^{(-)}|^2\,e^{ik_0\sqrt{\varepsilon_0(z',t)}\,\mathbf{m}_0\mathbf{R}}+|A^{(+)}|^2\,e^{-ik_0\sqrt{\varepsilon_0(z',t)}\,\mathbf{m}_0\mathbf{R}}\right\}. \quad (1$$

Здесь $k_0 = 2\pi/\lambda$, $\mathbf{R} = \mathbf{r}-\mathbf{r}'$, $t = (T-T_c)/T_c$; $\mathbf{m}_0$ и $\mathbf{n}_0$ = единичные векторы в направлении падения и рассеяния; $\Delta\varepsilon = 3r_c\,[\rho(z',t)-\rho_c]$ — отклонение макроскопической диэлектрической проницаемости $\varepsilon_0(z',t)$ от своего критического значения $\varepsilon_c = 1+3r_c\rho_c$; ρ_c, T_c, r_c — критические плотность, температура и удельная рефракция; $A^{(-)}$ и $A^{(+)}$ — амплитуды прямой и обратной волн. В (1) опущены интерференционные члены, исчезающие при усреднении в слое толщиной $\Delta z \gg \lambda$.

Корреляционная функция флуктуаций диэлектрической проницаемости $\langle\varepsilon'(\mathbf{r})\,\varepsilon'(\mathbf{r}')\rangle$ связана известным образом

$$\langle\varepsilon'(\mathbf{r})\,\varepsilon'(\mathbf{r}')\rangle = \left(\rho\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T^2\langle\Delta\rho(\mathbf{r})\,\Delta\rho(\mathbf{r}')\rangle$$

с корреляционной функцией флуктуаций безразмерной плотности $\Delta\rho(\mathbf{r}) = (\rho(\mathbf{r})-\langle\rho(\mathbf{r})\rangle)/\rho_c$, расчет которой является важной задачей теории критических флуктуаций. Общепринятыми вариантами такой теории являются приближение Орнштейна—Цернике (ОЦ) [2], дающее в критической точке спектральное распределение $\langle|\rho(k)|^2\rangle \sim k^{-2}$, и теория масштабных преобразований [3], требующая $\langle|\rho(k)|^2\rangle \sim k^{-(2-\eta)}$, где η — критический индекс (в трехмерной модели Изинга $\eta \approx 0.06$). Необходимо, однако, отметить, что использование приближения ОЦ или его аналога из теории подобия для расчета рассеивающих свойств системы достаточно большого объема справедливо лишь в отсутствие внешних воздействий, которые в общем случае нарушают изотропность системы и тем самым не позволяют выразить флуктуационную часть свободной энергии через соответствующие скалярные инварианты.

Корреляционную функцию $\langle\Delta\rho(\mathbf{r})\,\Delta\rho(\mathbf{r}')\rangle$ при наличии внешнего поля можно найти, используя развитый в [4] метод локально-равновесного распределения. Применение идей этого метода к описанию критической точки приводит к следующему выражению для корреляционной функции флуктуаций плотности [1]:

$$\langle\Delta\rho(\mathbf{r})\,\Delta\rho(\mathbf{r}')\rangle = \frac{k_{\text{Б}}T}{4\pi b P_c}\,\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}\exp\left\{-\sqrt{b^{-1}t^{\gamma}G'_y[y(z',t)]}\,|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|\right\}, \tag{2}$$

где b — константа взаимодействия [6], $G(y) = -z^*/t^{\beta\delta}$ — масштабная функция уравнения состояния теории подобия, зависящая от $y(z^{*\prime}, t) = [\rho(z^{*\prime}, t) - \rho_c]/\rho_c t^{\beta}$ [3, 7], γ, β, δ — критические индексы, $z^* = \rho_c g z/P_c$ — безразмерная «полевая» переменная, отсчитываемая от уровня $(z = 0)$ с максимальными градиентом плотности. Общим критерием применимости формулы (2) является выполнение неравенства $V \gg R_c^3$, где $R_c = (b^{-1}t^{\gamma}G'_y)^{-1/2}$ — радиус корреляции, для объема системы V, в котором исследуется критическая опалесценция.

Соотношения (1) и (2), а также известные асимптотики масштабной функции [8]

$$G(y) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n y^{2n+1} \quad \text{при} \quad y \ll 1, \tag{3а}$$

$$G(y) = \sum_{n=0}^{\infty} b_n y^{\delta - \frac{n}{\beta}} \quad \text{при} \quad y \gg 1 \tag{3б}$$

служат основой для исследования влияния неоднородностей, созданных внешним (гравитационным) полем, на интегральную интенсивность рассеяния вблизи критической точки.

С л у ч а й $y \ll 1$. В этом предельном случае, соответствующем окрестности критической изохоры, корреляционная функция флуктуаций плотности с учетом (3а) имеет вид

$$\langle\Delta\rho(\mathbf{r})\,\Delta\rho(\mathbf{r}')\rangle = \frac{k_{\text{Б}}T}{4\pi b P_c}\,\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}\exp\left\{-\frac{1}{\sqrt{b}}\left(a_0 t^{\gamma} + \frac{3a_1 z^{*\prime 2}}{a_0^2 t^{\beta(\delta+1)}}\right)^{1/2}|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|\right\}. \tag{4}$$

Используя (4) и вводя обозначения

$$\mathbf{J}_0(z, t, \vartheta) = \frac{c}{16\pi}\left(\frac{k_0^2}{4\pi}\right)^2 \frac{k_{\text{Б}}T}{4\pi b P_c L^2}\left(\rho\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T^2 \times$$
$$\times\left\{\mathbf{n}_0(1+\cos^2\vartheta) + \frac{\Delta\varepsilon(z, t)}{\varepsilon_c}(\mathbf{m}_0\cos\vartheta - \mathbf{n}_0\cos^2\vartheta)\right\}\varepsilon_0^{-1/2}(z, t), \tag{5}$$

$$J_1^{(\mp)}(z, t) = |A^{(\mp)}|^2 \int\limits_V \frac{d\mathbf{R}}{R}\exp\left\{-ik_0\left[\sqrt{\varepsilon_c}\,\mathbf{n}_0 \mp \sqrt{\varepsilon_0(z, t)}\,\mathbf{m}_0\right]\mathbf{R} -\right.$$
$$\left. -\frac{1}{\sqrt{b}}\left(a_0 t^{\gamma} + \frac{3a_1 z^2}{a_0^2 t^{\beta(\delta+1)}}\right)^{1/2} R\right\}, \tag{6}$$

[1] Детальному обоснованию вида корреляционных функций флуктуаций скалярного параметра порядка во внешних полях посвящена работа [5].

выражение (1) перепишем следующим образом:

$$\langle \mathbf{S} \rangle = \frac{V}{2L_z^*} \operatorname{Re} \int_{-L_z^*}^{L_z^*} \langle \mathbf{s}(z^*, t, \vartheta) \rangle \, dz^*, \tag{7}$$

$$\langle \mathbf{s}(z^*, t, \vartheta) \rangle = \mathbf{J}_0(z^*, t, \vartheta) \left[J_1^{(-)}(z^*, t) + J_1^{(+)}(z^*, t) \right]. \tag{7'}$$

Здесь пределами интегрирования являются координаты верхней и нижней границ плоского слоя, причем $|L_z^*| \gg R_c^*(t) = (\rho_c g/P_c)(b/a_0 t^\gamma)^{1/2}$.

Интегрирование (6) в объеме системы $V \gg R_c^3(t)$ дает

$$J_1^{(\mp)}(z^*, t) = \frac{4\pi |A^{(\mp)}|^2}{\frac{1}{b}\left(a_0 t^\gamma + \frac{3a_1 z^{*2}}{a_0^2 t^{\beta(\delta+1)}}\right) + q_{(\mp)}^2 \left(1 + \frac{3 r_c \rho_c z^*}{2\varepsilon_c a_0 t^\gamma}\right)^2}, \tag{8}$$

где $q_{(\mp)} = \sqrt{2} k_0 \sqrt{\varepsilon_c} (1 \mp \cos\vartheta)^{1/2}$ — переданный волновой вектор в прямом и обратном направлениях.

Анализ общего выражения (7) с учетом (8) показывает, что с приближением к собственно критическому состоянию ($z^* \to 0$, $t \to 0$ при условии $|z^*| \ll |t|^{\beta\delta}$) угловая зависимость вектора Умова—Пойнтинга имеет особенности не только при $\vartheta = 0$, но и при $\vartheta = \pi$. При этом дифференциальное сечение $\langle s(z^*, t, \vartheta) \rangle$ из (7') существенно изменяется с высотой, обнаруживая резкий максимум при $z^* \to 0$, обсуждаемый ранее в теоретических и экспериментальных работах [9].

Для абсолютной величины вектора Умова—Пойнтинга имеем

$$|\langle \mathbf{S} \rangle| = \{(\langle \mathbf{S} \rangle, \mathbf{n}_0)^2 + [\langle \mathbf{S} \rangle, \mathbf{n}_0]^2\}^{1/2}, \tag{9}$$

где в приближении слабой неоднородности [5] проекция $\langle \mathbf{S} \rangle$ на направление наблюдения $\mathbf{n}_0$

$$(\langle \mathbf{S} \rangle, \mathbf{n}_0) = \frac{c}{16\pi} \left(\frac{k_0^2}{4\pi}\right)^2 \left(\rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_T^2 \frac{k_Б T V}{L^2 P_c V} (1 + \cos^2\vartheta) \times$$
$$\times \left\{ \frac{|A^{(-)}|^2}{\varkappa^2(t) + q_-^2} \left[1 - \frac{L_z^{*2}}{3} \frac{d - a q_-^2}{\varkappa^2(t) + q_-^2}\right] + \frac{|A^{(+)}|^2}{\varkappa^2(t) + q_+^2} \left[1 - \frac{L_z^{*2}}{3} \frac{d - a q_+^2}{\varkappa^2(t) + q_+^2}\right] \right\} \tag{10}$$

и часть $|\langle \mathbf{S} \rangle|$, ответственная за рефракцию,

$$|\langle \mathbf{S} \rangle \times \mathbf{n}_0| = \frac{c}{16\pi} \left(\frac{k_0^2}{4\pi}\right)^2 \left(\rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_T^2 \frac{k_Б T V}{L^2 P_c b} \frac{2}{3} a^2 L_z^{*2} \sin\vartheta \cos\vartheta \times$$
$$\times \left\{ \frac{|A^{(-)}|^2}{\varkappa^2(t) + q_-^2} \left[\frac{\frac{3}{5}(d + a^2 q_-^2) L_z^{*2} - 2 q_-^2}{\varkappa^2(t) + q_-^2} - 1 \right] + \right.$$
$$\left. + \frac{|A^{(+)}|^2}{\varkappa^2(t) + q_+^2} \left[\frac{\frac{3}{5}(d + a^2 q_+^2) L_z^{*2} - 2 q_+^2}{\varkappa^2(t) + q_+^2} - 1 \right] \right\}. \tag{11}$$

Здесь $\varkappa^2(t) = a_0 t^\gamma / b$, $a = 3 r_c \rho_c f / 2\varepsilon_c a_0 t^\gamma$, $d = 3 a_1 f / a_0^2 b t^{\beta(\delta+1)}$, а

$$f = \begin{cases} 1 & \text{при наличии поля,} \\ 0 & \text{в отсутствие поля.} \end{cases}$$

Предполагая, что вклад обратной волны в интенсивность рассеяния (10) является незначительным для малых углов рассеяния, в отсутствие внешнего поля получаем известный результат теории ОЦ [2]

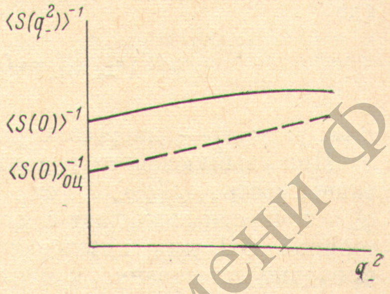
$$\langle S(q_-^2) \rangle_{ОЦ} = I_0 \frac{\pi^2 V}{2L^2 \lambda^4} \left(\rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_T^2 \beta_T \frac{k_Б T (1 + \cos^2\vartheta)}{1 + R_c^2(t) q_-^2}, \tag{12}$$

где $I_0 = (c/8\pi)\,|A^{(-)}|^2$, $\beta_T = [b\varkappa^2(t)\,P_c]^{-1}$. В этих условиях среда является макроскопически однородной и формула (11) естественно обращается в нуль. Членом $[\langle S\rangle,\ n_0]^2$ в (9) можно пренебречь и в гравитационном поле для $t \gg 10^{-4}$ и $\vartheta \approx 0$.

В связи со сказанным выше выражение для интенсивности однократно рассеянного света в окрестности критической изохоры приобретает вид

$$\langle S(q_-^2)\rangle = \langle S(q_-^2)\rangle_{\text{оц}} \left[1 - L_z^{*2}\frac{d - aq_-^2}{3\,(\varkappa^2(t) + q_-^2)}\right]. \tag{13}$$

Анализ зависимости обратной интенсивности рассеяния $\langle S(q_-^2)\rangle^{-1}$ от квадрата переданного волнового вектора обнаруживает при малых углах ϑ отклонение от линейности по q_-^2. При этом график зависимости $\langle S(q_-^2)\rangle^{-1}$ обращен выпуклостью вверх (см. рисунок). Этот результат связан с растущим влиянием неоднородностей, вызванных гравитационным полем по мере приближения к критической точке. Такого рода внешние воздействия могут являться причиной экспериментально наблюдаемых отклонений от теории ОЦ, феноменологическое описание которых основано на введении критического индекса η [3, 10]. Отметим, что наличие поля приводит к возрастанию $\langle S(q_-^2)\rangle^{-1}$ по сравнению с $\langle S(q_-^2)\rangle_{\text{оц}}^{-1}$ из (12) во всем интервале изменения q_-^2. Количественные оценки эффекта нелинейности $S(q^2)^{-1}$ затруднены из-за отсутствия надежных данных относительно параметров масштабного уравнения состояния.



Следует обратить внимание на достаточно сильную зависимость поправки к отношению $\langle S(q_-^2)\rangle / \langle S(q_-^2)\rangle_{\text{оц}}$ в формуле (13) от поперечного размера $2L_z^*$ исследуемого объема. При получении экспериментальной информации со слоев «локальной однородности» в смысле критерия работы [1], размеры которых уменьшаются с подходом к критическому состоянию, поправкой в (13) можно пренебречь. Если это обстоятельство не учитывается при экспериментальных исследованиях критической опалесценции, то должны наблюдаться отклонения от линейной зависимости $\langle S(q_-^2)\rangle^{-1}$ в соответствии с формулой (13).

С л у ч а й $y \gg 1$. При $y \to \infty$, т. е. на критической изотерме, зависимость корреляционной функции от «полевой» переменной, даваемая с учетом (3б) выражением

$$\langle \Delta\rho(\mathbf{r})\,\Delta\rho(\mathbf{r}')\rangle = \frac{k_Б T}{4\pi b P_c}\,\frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}\exp\left\{-\sqrt{\delta b_0^{1/\delta} z^{*(\delta-1)/\delta}}\,|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|\right\}, \tag{14}$$

становится естественно более сильной, чем в рассмотренном выше предельном случае $y \ll 1$.

Выполняя интегрирование соотношения, эквивалентного (6), в объеме $V \gg R_\xi^3 = (b/\delta b_0^{1/\delta} z^{*[1-(1/\delta)]})^{3/2}$, который ограничен поверхностями $z^* = L_1^*$ и $z^* = L_2^*$, имеем

$$J_2^{(\mp)}(z^*,\ t) = \frac{4\pi\,|A^{(\mp)}|^2}{\dfrac{\delta b_0^{1/\delta} z^{*[1-(1/\delta)]}}{b} + q_{(\mp)}^2\left(1 + \dfrac{3r_c\rho_c z^{*1/\delta}}{2\varepsilon_c b_0^{1/\delta}}\right)^2}, \tag{15}$$

что дает для вектора Умова—Пойнтинга следующее общее выражение:

$$\langle \mathbf{S}\rangle = \frac{V}{L_2^* - L_1^*}\,\mathrm{Re}\int_{L_1^*}^{L_2^*} \mathbf{J}_0(z^*,\ t,\ \vartheta)\,[J_2^{(-)}(z^*,\ t) + J_2^{(+)}(z^*,\ t)]\,dz^*. \tag{16}$$

Здесь $J_0(z^*, t, \vartheta)$ определяется выражением (5), а пределы интегрирования удовлетворяют условиям $L_1^* \gg R_c^*$ и $L_2^* \ll b_0$, при которых может быть использована корреляционная функция (14).

Высотная зависимость $\langle s(z^*, t, \vartheta)\rangle$ из (16) обнаруживает сингулярность в критическом состоянии ($t \to 0$ и $z^* \to 0$ при условии $|t|^{\beta\delta} \ll |z^*|$). При этом индикатриса однократного рассеяния расходится, как и ранее, в направлениях $\vartheta = 0$ и $\vartheta = \pi$.

Рассмотрим величину $\langle S(q_-^2)\rangle$ в приближении $\Delta\varepsilon(z, t)/\varepsilon_c \ll 1$, учитывая лишь вклад прямой волны. Расчет показывает, что

$$\frac{\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}}{\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}_{\text{ОЦ}}} = \frac{1}{L_2^* - L_1^*}\left[L_2^* F\left(1, \frac{\delta}{\delta-1}; \frac{2\delta-1}{\delta-1}; -x_2\right) - \right.$$

$$\left. - L_1^* F\left(1, \frac{\delta}{\delta-1}; \frac{2\delta-1}{\delta-1}; -x_1\right)\right], \tag{17}$$

где

$$\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}_{\text{ОЦ}} = I_0 \frac{\pi^2 V}{2L^2\lambda^4}\left(\rho\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T^2 \frac{k_Б T(1+\cos^2\vartheta)}{P_c b q_-^2}, \tag{17'}$$

$F(\alpha, \beta; \gamma; x)$ — гипергеометрическая функция, а $x_{1,2} = (\delta b_0^{1/\delta}/bq_-^2) L_{1,2}^{*[1-(1/\delta)]} f$.

При «выключении» гравитационного поля ($f = 0$) из (17) следует, что зависимость $\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}$ от квадрата переданного волнового вектора q_-^2 в точности совпадает с соответствующей зависимостью (17′), даваемой теорией ОЦ для критической изотермы. «Включение» внешнего поля приводит естественно к отклонению от приближения ОЦ

$$\frac{\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}}{\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}} = 1 - \frac{\delta^2 b_0^{1/\delta} f}{(2\delta-1)\, bq_-^2}\, \frac{L_2^{*\,2-\frac{1}{\delta}} - L_1^{*\,2-\frac{1}{\delta}}}{L_2^* - L_1^*}, \tag{18}$$

причем при фиксированных размерах рассеивающего слоя $L_2^* - L_1^*$ поправка к отношению $\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}/\langle S(q_-^2)\rangle^{t=0}_{\text{оц}}$ растет с уменьшением q_-^2. В рассматриваемом предельном случае отклонение от теории ОЦ менее чувствительно к размерам слоя, чем в окрестности критической изохоры.

Авторы благодарны В. М. Сысоеву за обсуждение результатов работы.

Литература

[1] Н. Л. Цыганов, А. В. Чалый. ЖЭТФ, *61*, 1605, 1971.
[2] L. Ornstein, F. Zernike. Phys. Z., *19*, 134, 1918; *27*, 761, 1926; И. Л. Фабелинский. Молекулярное рассеяние света. Изд. «Наука», М., 1965.
[3] M. Fisher. J. Math. Phys., *5*, 944, 1964; L. Kadanoff et al. Rev. Mod. Phys., *39*, 395, 1967.
[4] Д. Н. Зубарев. Неравновесная статистическая термодинамика. Изд. «Наука», М., 1971.
[5] Е. Л. Лакоза, В. М. Сысоев, А. В. Чалый. УФЖ, *18*, № 5, 1973.
[6] А. С. Давыдов. ЖЭТФ, *10*, 263, 1940.
[7] В. Л. Покровский. Усп. физ. наук, *94*, 127, 1968.
[8] R. Griffiths. Phys. Rev., *158*, 176, 1967.
[9] А. Д. Алехин, А. З. Голик, Н. П. Крупский. Сб. «Современные проблемы физической химии (вопросы молекулярной оптики)». Изд. МГУ, М., 1970; А. В. Чалый. Опт. и спектр., *28*, 148, 1970; А. Д. Алехин, А. В. Чалый. Опт. и спектр., *30*, 910, 1971; ЖЭТФ, *59*, 337, 1970.
[10] P. Heller. Rep. Prog. Phys., *30*, 731, 1967; W. Kao, B. Chu. J. Chem. Phys., *50*, 3986, 1969; J. Lunacek, D. Canell. Phys. Rev. Lett., *27*, 841 1971.

Поступило в Редакцию 10 октября 1972 г.