

УДК 535.36;536.4;535.34

## ПОПЫТКА ОПИСАНИЯ С ПОМОЩЬЮ НЕЛОКАЛЬНОЙ ТЕОРИИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ПОГЛОЩЕНИЯ ГИПЕРЗВУКА В КРИТИЧЕСКОМ РАСТВОРЕ С ОБЛАСТЬЮ РАССЛАИВАНИЯ

С. В. Кривохижа, Л. Л. Чайков

*Сделана попытка аппроксимации температурной зависимости поглощения гиперзвука вблизи критических точек расслаивания раствора гваякол-глицерин с областью расслаивания с помощью формул нелокальной теории И. А. Чабан, приведенных к виду, пригодному для описания объектов с двумя критическими точками. Показано, что теория качественно хорошо описывает поведение поглощения гиперзвука, но полученные значения критического индекса поглощения существенно отличаются от предсказанного теорией.*

Исследования распространения ультра- и гиперзвука в жидкостях и растворах вблизи критических точек позволяют получить важные знания о динамике критических явлений. Полученная информация, в силу изоморфизма критических явлений, может быть также приложена к описанию других фазовых переходов.

Особенности поведения скорости  $V$  и поглощения  $\alpha$  ультра- и гиперзвука в растворах с верхней или нижней температурой расслаивания при приближении к критической точке широко изучались экспериментально ([1] и цитируемая в ней литература) и теоретически. Наиболее известные теоретические описания их поведения принадлежат Фиксману [2] и Кавасаки [3]. Оказалось, что формулы [3] хорошо описывают зависимость  $V$  и  $\alpha$  от приведенной частоты  $\Omega\tau^1$  в области ультразвуковых частот при

<sup>1</sup> $\tau$  – характерное время релаксации критических флуктуаций параметра порядка (плотности для чистой жидкости или концентрации для раствора).

$\Omega\tau \leq 1$ , а в области гиперзвуковых частот ( $\Omega \approx 10^9 - 10^{10} \text{ сек}^{-1}$ ), где  $\Omega\tau \gg 1$ , дают при приближении к критической точке, падение  $\alpha$  вместо экспериментально наблюдаемого возрастания. Попытки подправить результаты Кавасаки не дали ожидаемого согласия с экспериментом [4].

Иной подход к проблеме, основанный на учете нелокальности и использовании как экспериментальных данных, так и результатов теории взаимодействующих мод, позволил И.А. Чабан теоретически объяснить рост поглощения при приближении к критической точке при  $\Omega\tau > 1$  и описать экспериментальные данные по высокочастотному ультразвуку в критических растворах вплоть до частоты 75 МГц, что соответствует диапазону изменения  $\Omega\tau$  от 0.01 до 20 [5, 6].

Настоящая работа посвящена попытке описания с помощью теории И.А. Чабан поведения поглощения гиперзвука вблизи критических точек в интересном объекте, обладающем двумя критическими точками и быстрым ростом  $\tau$  при приближении к этим точкам.

Таким объектом оказался раствор гваякол-глицерин, обладающий на фазовой плоскости температура  $T$  – концентрация  $C$  областью расслаивания. В таком растворе с критической концентрацией гваякола и глицерина существуют две критические точки: верхняя –  $T_U$  и нижняя –  $T_L$ . Область расслаивания в этом растворе возникает при добавлении малого количества третьего компонента – воды ( $C_{\text{добавки}} = 1$  молекула на 27 молекул раствора) или четыреххлористого углерода ( $C_{\text{добавки}} = 1$  молекула  $CCl_4$  на 170 молекул раствора). Размер области увеличивается при увеличении количества третьего компонента. На трехмерной фазовой диаграмме такого раствора в координатах  $T, C, C_{\text{добавки}}$  или  $T, C, p$  (давление) возникает купол расслаивания, сечения которого плоскостями  $T - C$  и образуют области расслаивания. Каждая из областей имеет две критические точки  $T_U$  и  $T_L$ . В вершине купола расслаивания, где  $T_U$  и  $T_L$  сливаются в одну точку, существует раствор с двойной критической точкой. Описание фазовой диаграммы раствора гваякол-глицерин приведено в [7, 8].

Наши исследования температурной зависимости скорости и поглощения гиперзвука в растворах гваякол-глицерин показали, что существует ряд особенностей в поведении гиперзвука при приближении к критическим точкам расслаивания [9, 10]. Так, при приближении к критическим точкам наблюдается сильный рост поглощения гиперзвука.

Растворы с двумя критическими точками и областью расслаивания представляют большой интерес для проверки теории поглощения гиперзвука, т.к. в таких растворах необычно сильно развиты критические флуктуации концентрации, и радиус корреля-

ции этих флуктуаций  $r_c$  и время их релаксации  $\tau$  растут значительно быстрее, чем в растворах с одной критической точкой.

В настоящей работе сделана попытка описать экспериментально измеренную температурную зависимость поглощения гиперзвука в растворе гваякол-глицерин с добавкой воды с двумя критическими точками и с областью расслаивания  $\Delta T = T_U - T_L = 7.28^\circ C$  [10] с помощью теории И. А. Чабан [5, 6]. Для этого мы преобразовали формулы указанной теории к форме, включающей измеряемые параметры вещества и приведенную температуру в виде, пригодном для описания раствора с двумя критическими точками.

Согласно [5], комплексная адиабатическая сжимаемость раствора вблизи критической точки описывается выражением:

$$\beta = \beta_0 + \beta_1 - \frac{1}{(2\pi)^3} \int \left[ \frac{\partial}{\partial p} \left( \frac{B}{s(qr_c)} \right) \right]_{S_0} \langle |C_{\vec{q}}|^2 \rangle d\vec{q}. \quad (1)$$

Здесь  $\vec{q}$  – волновой вектор;  $\langle |C_{\vec{q}}|^2 \rangle$  – среднеквадратичная (по модулю) пространственная Фурье-компонента флуктуаций концентрации с волновым вектором  $q$ ;  $s(qr_c)$  – вид пространственной функции корреляции флуктуаций:

$$s(qr_c) = \frac{1}{1 + q^2 r_c^2}, \quad r_c = r_0 \varepsilon^{-\nu}, \quad (2)$$

где  $r_c$  – радиус корреляции этих флуктуаций,  $\nu$  – его критический индекс,  $\beta_0$  – фоновая часть сжимаемости, которая находится известными методами, величина  $\beta_1$  – чисто действительная и дает вклад только в изменение скорости ультра- и гиперзвука  $V$ , но не в поглощение  $\alpha$ ,  $p$  – давление в звуковой волне,  $B$  – коэффициент, входящий в термодинамический потенциал:  $\Phi = \Phi_0 + \frac{VB}{(2\pi)^3} \int |C_{\vec{q}}|^2 \frac{1}{s(qr_c)} d\vec{q}$ . Тогда выражение для критической части поглощения вблизи критической точки расслаивания имеет вид [5]:

$$\alpha_c = \frac{\Omega^2 k T \rho V_B \tau}{4\pi^2 r_c^3 B^2} \left( \frac{\partial B}{\partial p} \right)^2 F_1(\Omega\tau) = \frac{3}{2} \cdot \frac{\Omega^2 \rho V_B \eta}{\pi B^2} \left( \frac{\partial B}{\partial p} \right)^2 F_1(\Omega\tau). \quad (3)$$

Здесь  $k$  – постоянная Больцмана,  $\Omega$  – частота волны,  $\rho$  – плотность среды (раствора),  $V_B$  – невозмущенная критическими явлениями (фоновая) скорость звука,  $\tau = \frac{r_c^2}{D} = \frac{r_c^3 6\pi\eta}{kT}$ ,  $D$  – коэффициент взаимной диффузии,  $\eta$  – сдвиговая вязкость. Функция  $F_1(\Omega\tau)$ , приведенная в [6], имеет сложную, но известную аналитическую форму. Таким образом, все величины (кроме  $B$ ), входящие в (3), известны или измеряются имеющимися методами.

Рассмотрим вид  $B$  и выражения  $\frac{1}{B} \left( \frac{\partial B}{\partial p} \right)$  подробнее. В [5] показано, что

$$B = \frac{1}{2} \frac{kT}{|C_{\bar{q}}|^2} s(qr_c) = B_0 \varepsilon^\gamma \sim \chi^{-1}, \quad (4)$$

где  $\chi$  – обобщенная восприимчивость (или интенсивность рассеяния),  $\gamma$  – ее критический индекс,  $\varepsilon$  – приведенная температура. Последняя для объекта с одной критической точкой имеет вид:

$$\varepsilon^{(1)} = \frac{(T - T_c)}{T_c},$$

где  $T_c$  – температура критической точки.

Для раствора с областью расслаивания или другого объекта, имеющего замкнутую область расслаивания (ненулевого параметра порядка) и, следовательно, имеющего критические точки  $T_U$  и  $T_L$ ,  $\varepsilon$  имеет более сложный вид [11]:

$$\varepsilon^{(2)} = \frac{(T - T_U)(T - T_L)}{T_U T_L} = \frac{(T - T_0 - \frac{\Delta T}{2}) \cdot (T - T_0 + \frac{\Delta T}{2})}{T_0^2 - (\frac{\Delta T}{2})^2}, \quad (5)$$

где  $T_0 = \left(\frac{T_U + T_L}{2}\right)$ ,  $\Delta T = T_U - T_L$  – ширина области расслаивания.

Действительно, в наших работах [12 – 14] показано, что с помощью (5), (4) и (2) хорошо описываются результаты измерений температурной зависимости интенсивности рассеянного света и радиуса корреляции флуктуаций концентрации.

Нормировка приведенной температуры в (5) на  $T_U \cdot T_L$ , применявшаяся нами ранее, может оказаться нефизичной в случае исследования концентрационных зависимостей, т.к. тогда  $T_U$ ,  $T_L$  и, следовательно, нормировочный множитель зависят от концентрации и давления. В этом случае нормировочный множитель дает существенный вклад в  $\frac{\partial \varepsilon}{\partial p}$  и в температурную и концентрационную зависимости  $V$  и  $\alpha$ , чего не должно быть [15]. Поэтому далее мы будем пользоваться следующей нормировкой температуры:

$$\varepsilon = \frac{(T - T_L)(T - T_U)}{T_0^2} = \frac{(T - T_0)^2 - \left(\frac{\Delta T}{2}\right)^2}{T_0^2}. \quad (6)$$

В растворах с областью расслаивания величины критических температур и ширина области расслаивания  $\Delta T$  сильно зависят от давления, и эта зависимость дает важный вклад в поглощение звука. Данные о зависимости  $\Delta T(p)$  для похожего на наш раствор раствора  $\alpha$ -пиколин- $D_2O$  приведены в [16]. В нашем растворе линия критических точек совпадает с сечением купола фазовой диаграммы плоскостью  $T - C_{H_2O}$  или плоскостью  $T - p$  и имеет параболическую форму. Если эту линию аппроксимировать функцией

$$\Delta T = A_p(p_0 - p)^\zeta, \quad (7)$$

где  $p_0$  – давление, соответствующее вершине купола, а  $A_p, \zeta$  – подгоночные параметры, то из данных, приведенных в [16], получается  $\zeta = 0.514 \pm 0.014$ ,  $p_0 = 208 \text{ атм}$ ,  $A_p = (2.01 \pm 0.12) \cdot 10^{-3} \frac{\text{град}}{\sqrt{(\text{дин}/\text{см}^2)}}$ ;  $T_0 = \frac{(T_U + T_L)}{2} = 101^\circ \pm 0.5^\circ$ . Поэтому далее мы будем считать, что  $T_{U,L} = T_0 \pm \frac{A_p}{2} \sqrt{p_0 - p}$ . В нашем растворе такую форму имеет кривая  $T_{L,U}(C_{H_2O})$  [8]. Тогда, учитывая (7),

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial p} = \frac{2(T - T_0)}{T_0^2} \cdot \frac{\partial T}{\partial p} + \frac{A_p^2}{4} \frac{1}{T_0^2}, \quad (8)$$

$$\frac{1}{B} \frac{\partial B}{\partial p} = \gamma \varepsilon^{-1} \frac{\partial \varepsilon}{\partial p}, \quad (9)$$

из (3), с помощью подстановки (8) и (9), получаем,

$$\alpha_c = \frac{3}{2\pi} \Omega^2 \rho V_B \eta \gamma^2 \varepsilon^{-2} \left( \frac{\partial \varepsilon}{\partial p} \right)^2 F_1(\Omega \tau) = \frac{3}{2\pi} \Omega^2 \rho V_B \eta \gamma^2 F_1(\Omega \tau) \varepsilon^{-2} \left[ 2(T - T_0) \frac{\partial T}{\partial p} + \frac{A_p^2}{4} \right]^2.$$

Теперь можно получить окончательный вид  $\alpha(T)$ , пригодный для практической аппроксимации экспериментальных результатов:

$$\alpha_c = \alpha - \alpha_B = K_n \cdot \varepsilon^\delta \left[ 2(T - T_0) \frac{\partial T}{\partial p} + \frac{A_p^2}{4} \right]^2 = K_n \varepsilon^\delta \left[ T - T_0 + \frac{A_p^2}{8} \left( \frac{\partial T}{\partial p} \right)^{-1} \right]^2 \cdot \left( 2 \frac{\partial T}{\partial p} \right)^2, \quad (10)$$

где

$$K_n = \frac{3\Omega^2 \rho V_B \eta \gamma^2}{2\pi T_0^4} \cdot F_1(\Omega \tau), \quad \delta = -2.$$

Оценка величины  $A_p^2$  для аналогичного раствора приведена в (7), а величина  $\partial T / \partial p$  вычислена в [17]:

$$\frac{\partial T}{\partial p} = \frac{\sigma T}{\rho C_{pB}} \approx 1.05 \cdot 10^{-8}, \quad \frac{\text{град} \cdot \text{см}^2}{\text{дин}}, \quad (11)$$

т.к. в нашем растворе фоновая теплоемкость  $C_{pB} \approx 2 \text{ Дж/г} \cdot \text{К}$ ,  $\rho \approx 1.19 \text{ г/см}^3$ , а коэффициент температурного расширения  $\sigma \approx 7.5 \cdot 10^{-4} \text{ К}^{-1}$ .

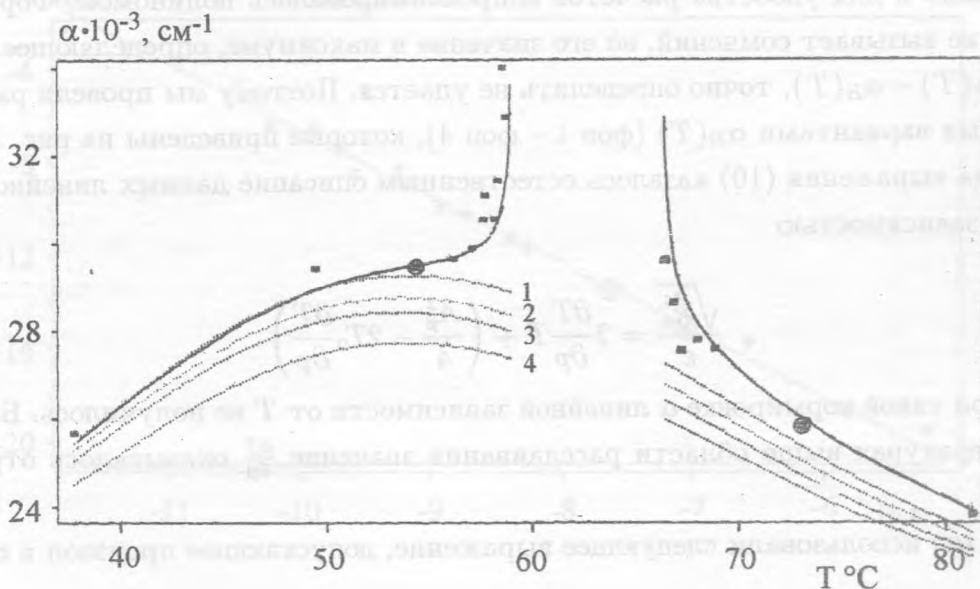


Рис. 1. Зависимость поглощения  $\alpha$  гиперзвука от температуры. Квадраты – экспериментальные данные [10], пунктирные кривые 1–4 – фоновые значения  $\alpha_B(T)$  (фоны 1–4). Верхняя сплошная кривая – результат подгонки по "способу 1" с фоном 2 по точкам в диапазоне  $54 < T < 75^\circ C$ .

Для нормировки  $\alpha$  при аппроксимации данных использовались следующие зависимости входящих в  $K_n$  величин:  $\rho(T) = 1.1892 - (T^\circ C - 20) \cdot 8.912 \cdot 10^{-4} \text{ г/см}^3$ ;  $\eta(T) = \eta_B \cdot 0.8148 \cdot \varepsilon^{-0.04004}$ ;  $\eta_B = 1.68145 \cdot 10^5 / (T^\circ C + 9.202)^{3.22}$  Пуаз (если вдали от  $T_U$  и  $T_L$  коэффициент при  $\eta_B$  оказывается меньше 1, то считается, что  $\eta = 1.001\eta_B$ ) [13, 14];  $V_B = (241000 - 1183 \cdot T^\circ C) \text{ см/сек}$  и  $V_B = (209800 - 640 \cdot T^\circ C) \text{ см/сек}$  ниже и выше области расслаивания соответственно [18];  $\Omega$  определялась как  $4\pi n \sin \frac{\theta}{2} \cdot \frac{V_B}{\lambda}$ , где  $\lambda = 5145 \text{ \AA}$  – длина волны возбуждающего света,  $\theta = 90^\circ$  – угол рассеяния, а показатель преломления  $n(T) = 1.497 - (T^\circ C - 50) \cdot 4.60 \cdot 10^{-4}$ . Критический показатель  $\gamma = 1.25$  [12],  $\tau = \frac{r_c^2}{D}$ , где  $D = \frac{KT}{6\pi\eta r_c}$  [6],  $r_c = 2.871 \cdot \varepsilon^{-0.618} \text{ \AA}$  [12]. Функция  $F_1(\Omega\tau)$  в [6] имеет довольно сложную форму, однако оказалось, что в интересующем нас интервале  $10^5 < \Omega\tau < 2 \cdot 10^{10}$  она с точностью лучше 0.3% аппроксимируется выражением

$$F_1(\Omega\tau) = 0.397 \cdot (\Omega\tau)^{-1.332726}. \quad (12)$$

Фоновое поглощение  $\alpha_B(T)$  определялось графически из формы  $\alpha(T)$  для "сухого" рас-

творя без расслаивания (без добавки воды) и по точкам  $\alpha_{7.28}(T)$ , удаленным от области расслаивания и для удобства расчетов аппроксимировалось полиномом. Форма  $\alpha_B(T)$  при этом не вызывает сомнений, но его значение в максимуме, определяющее величину  $\alpha_c(T) = \alpha(T) - \alpha_B(T)$ , точно определить не удастся. Поэтому мы провели расчеты с 4 различными вариантами  $\alpha_B(T)$  (фон 1 – фон 4), которые приведены на рис. 1.

Из вида выражения (10) казалось естественным описание данных линейной по температуре зависимостью

$$\frac{\sqrt{\frac{\alpha_c}{K_n}}}{\varepsilon} = 2 \frac{\partial T}{\partial p} T + \left( \frac{A_p^2}{4} - 2T_0 \frac{\partial T}{\partial p} \right). \quad (13)$$

Однако при такой нормировке  $\alpha$  линейной зависимости от  $T$  не получилось. Более того, при температурах выше области расслаивания значение  $\frac{\partial T}{\partial p}$  оказывалось отрицательным.

Тогда мы использовали следующее выражение, допускающее произвол в степени  $\varepsilon$ :

$$\ln \alpha^* = \ln \left[ \frac{\frac{\alpha_c(T)}{K_n}}{\left( T - T_0 + \frac{A_p^2}{8} \left( \frac{\partial T}{\partial p} \right)^{-1} \right)^2} \right] = \delta \ln \varepsilon + 2 \ln \left( 2 \frac{\partial T}{\partial p} \right). \quad (14)$$

Аппроксимация проводилась методом наименьших квадратов для линейной зависимости  $y = \ln \alpha^*$  от  $x = \ln \varepsilon$  и давала величины  $\frac{\partial T}{\partial p}$  и степень  $\varepsilon^\delta$  в выражении (10). Третий параметр  $TC = T_0 - \frac{A_p^2}{8} \left( \frac{\partial T}{\partial p} \right)^{-1}$  вводился искусственно, и его значение было различным в зависимости от "способа" подгонки (см. далее).

Чтобы избежать влияния случайных ошибок при малых значениях  $\alpha_c(T)$  на хвостах  $\alpha(T)$ , для подгонки использовались лишь точки, удаленные от  $T_{L,U}$  не более чем на  $7^\circ \text{C}$ . Однако из рис. 2 видно, что количество учитываемых при подгонке точек практически не влияет на результат. Это подтвердилось и расчетами.

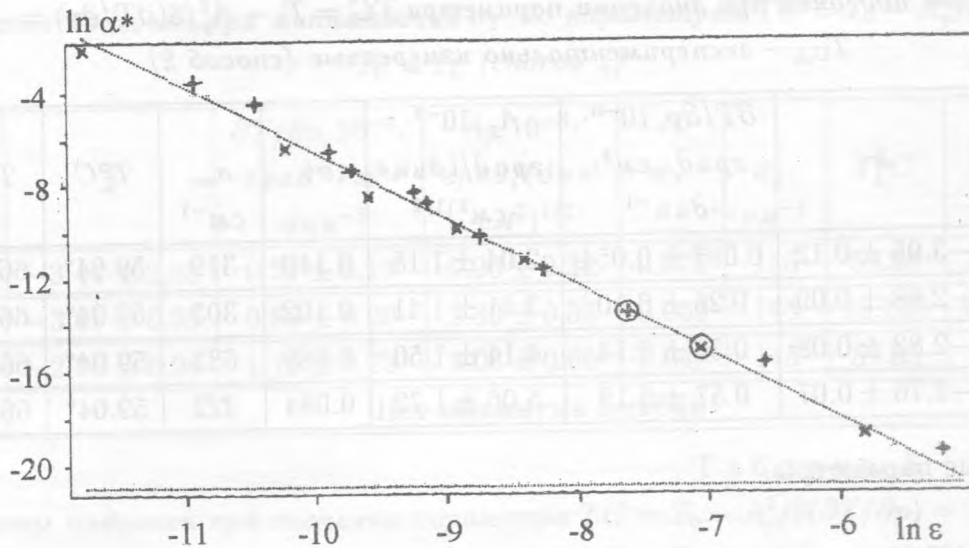


Рис. 2. Зависимость нормированного поглощения гиперзвука (14) от приведенной температуры (6) в двойном логарифмическом масштабе  $\ln \alpha^*(\ln \epsilon)$ . Прямая – результат аппроксимации. В подгонке учитывались точки, отмеченные кружками и расположенные левее них. x – экспериментальные точки, расположенные выше  $T_U$ , + – ниже  $T_L$ .

Т а б л и ц а 1

Результаты подгонки при таком подборе величины  $A_p^2/8(\partial T/\partial p)$ , что  $(\partial T/\partial p) = (\partial T/\partial p)_{пл}$ .  $T_{U,L}$  – экспериментально измеренные (способ 1)

Фон	$\delta$	$\partial T/\partial p, 10^{-8}$ . град·см <sup>2</sup> . ·дин <sup>-1</sup>	$A_p, 10^{-3}$ . град/(дин· ·см <sup>2</sup> ) <sup>1/2</sup>	$\sigma_Y$	$\sigma_\alpha,$ см <sup>-1</sup>	$T_L^\circ C$	$T_U^\circ C$
1	$-3.06 \pm 0.14$	$1.05 \pm 0.69^*$	$2.07 \pm 1.35$	0.161	395	$59.04^*$	$66.32^*$
2	$-2.89 \pm 0.09$	$1.05 \pm 0.42^*$	$3.40 \pm 1.53$	0.110	330	$59.04^*$	$66.32^*$
3	$-2.82 \pm 0.08$	$1.05 \pm 0.40^*$	$4.13 \pm 1.58$	0.094	319	$59.04^*$	$66.32^*$
4	$-2.76 \pm 0.08$	$1.05 \pm 0.37^*$	$5.05 \pm 1.78$	0.087	332	$59.04^*$	$66.32^*$

\* – Заданные и подбираемые параметры.



Т а б л и ц а 2

Результаты подгонки при значении параметра  $TC = T_0 - A_p^2/8(\partial T/\partial p) = -500^\circ C$ .

$T_{U,L}$  - экспериментально измеренные (способ 2)

Фон	$\delta$	$\partial T/\partial p, 10^{-8}$ . град·см <sup>2</sup> . ·дин <sup>-1</sup>	$A_p, 10^{-3}$ . град/(дин· ·см <sup>2</sup> ) <sup>1/2</sup>	$\sigma_Y$	$\sigma_\alpha,$ см <sup>-1</sup>	$T_L^\circ C$	$T_U^\circ C$
1	$-3.05 \pm 0.12$	$0.093 \pm 0.054$	$2.04 \pm 1.18$	0.140	319	59.04*	66.32*
2	$-2.88 \pm 0.09$	$0.26 \pm 0.10$	$3.41 \pm 1.41$	0.102	305	59.04*	66.32*
3	$-2.82 \pm 0.08$	$0.38 \pm 0.14$	$4.14 \pm 1.50$	0.089	633	59.04*	66.32*
4	$-2.76 \pm 0.07$	$0.57 \pm 0.19$	$5.06 \pm 1.72$	0.084	322	59.04*	66.32*

\* - Заданные параметры.

Т а б л и ц а 3

Результаты подгонки при таком подборе величины  $A_p^2/8(\partial T/\partial p)$ , что  $(\partial T/\partial p) = (\partial T/\partial p)_{пл}$ , а  $\sigma_Y$  минимизируется по  $T_{U,L}$  (способ 3)

Фон	$\delta$	$\partial T/\partial p, 10^{-8}$ . град·см <sup>2</sup> . ·дин <sup>-1</sup>	$A_p, 10^{-3}$ . град/(дин· ·см <sup>2</sup> ) <sup>1/2</sup>	$\sigma_Y$	$\sigma_\alpha,$ см <sup>-1</sup>	$T_L^\circ C$	$T_U^\circ C$
1	Нет минимума в области физических значений						
2	$-3.03 \pm 0.05$	$1.05 \pm 0.24^*$	$2.49 \pm 0.57$	0.056	156	58.99	64.71
3	$-2.96 \pm 0.04$	$1.05 \pm 0.21^*$	$3.13 \pm 0.61$	0.046	147	59.02	64.70
4	$-2.88 \pm 0.04$	$1.05 \pm 0.17^*$	$3.93 \pm 0.64$	0.040	146	59.03	64.41

\* - Подбираемый параметр.

Т а б л и ц а 4

Результаты подгонки при минимизации  $\sigma_{\gamma}$  по параметрам  $TC = T_0 - A_p^2/8(\partial T/\partial p)$ ,  $T_U$  и  $T_L$  (способ 4)

Фон	$\delta$	$\partial T/\partial p, 10^{-8}$ . град·см <sup>2</sup> . ·дин <sup>-1</sup>	$A_p, 10^{-3}$ . град/(дин· ·см <sup>2</sup> ) <sup>1/2</sup>	$\sigma_{\gamma}$	$\sigma_{\alpha}$ , см <sup>-1</sup>	$T_L^{\circ}C$	$T_U^{\circ}C$
1	$-3.44 \pm 0.08$	$0.51 \pm 0.17$	$0.96 \pm 0.32$	0.076	145	59.38	63.54
2	$-3.07 \pm 0.05$	$0.85 \pm 0.20$	$2.30 \pm 0.55$	0.055	145	59.105	64.535
3	$-2.96 \pm 0.04$	$1.15 \pm 0.22$	$3.08 \pm 0.60$	0.046	145	59.05	64.51
4	Нет минимума ошибки						

Т а б л и ц а 5

Результаты подгонки при значении параметра  $TC = T_0 - A_p^2/8(\partial T/\partial p) = TC_{\text{способа 4}}$ ,  $T_{U,L}$  – экспериментально измеренные (способ 5). Для фона 4  $TC = -68.3^{\circ}C$  получено экстраполяцией по фонам 1, 2, 3

Фон	$\delta$	$\partial T/\partial p, 10^{-8}$ . град·см <sup>2</sup> . ·дин <sup>-1</sup>	$A_p, 10^{-3}$ . град/(дин· ·см <sup>2</sup> ) <sup>1/2</sup>	$\sigma_{\gamma}$	$\sigma_{\alpha}$ , см <sup>-1</sup>	$T_L^{\circ}C$	$T_U^{\circ}C$
1	$-3.05 \pm 0.17$	$2.43 \pm 2.01$	$2.16 \pm 1.78$	0.204	510	59.04*	66.32*
2	$-2.89 \pm 0.10$	$1.84 \pm 0.90$	$3.40 \pm 1.68$	0.121	357	59.04*	66.32*
3	$-2.82 \pm 0.09$	$2.04 \pm 0.86$	$4.12 \pm 1.74$	0.104	345	59.04*	66.32*
4	$-2.76 \pm 0.08$	$2.43 \pm 0.96$	$5.04 \pm 1.98$	0.097	361	59.04*	66.32*

\* – Заданные параметры.

При экспериментально измеренных значениях  $T_U = 66.32$  и  $T_L = 59.04^{\circ}C$  не удалось минимизировать остаточную ошибку  $\sigma_{\gamma}$  или  $\sigma_{\alpha}$ , изменяя параметр  $TC$ . Зависимость  $\sigma_{\alpha}(TC)$  имеет лишь слабый изгиб при  $TC \approx -500^{\circ}C$ . Получающаяся величина  $A_p^2$  слабо зависит от  $TC$ , но  $\frac{\partial T}{\partial p}$  почти пропорциональна  $(T_0 - TC)^{-1}$ . Поэтому мы воспользовались несколькими способами определения величины третьего параметра  $TC$ . Во-первых (способ 1), величина  $TC$  подбиралась так, чтобы величина  $\frac{\partial T}{\partial p}$  соответствовала оценке Ландау–Лифшица (17). Результаты аппроксимации приведены в табл. 1 и на рис. 1 (при использовании фона 2). В табл. 1 и в остальных таблицах приведены значения показателя  $\delta$  степени  $\varepsilon$  (10, 14),  $(\partial T/\partial p)$ , коэффициента  $A_p$  (7, 10) и остаточные средне-квадратичные ошибки измеряемого ( $\sigma_{\alpha}$ ) и логарифма нормированного ( $\sigma_{\gamma}$ ) поглощения

гиперзвука. Мы получили  $A_p = (3.4 \pm 1.5) \cdot 10^{-3} \div (4.1 \pm 1.6) \cdot 10^{-3} \text{ град} \cdot (\text{дин}/\text{см}^2)^{-1/2}$  для двух наиболее реалистичных фонов 2 и 3 соответственно, что близко к величине  $A_p$  для раствора  $\alpha$ -пиколин- $D_2O$ . Величина  $\delta$  (степень  $\varepsilon$ ) оказалась равной  $2.90 \div -2.82 \pm 0.09$ , что кардинально отличается от предсказанного (10) значения  $\delta = -2$ . Кроме того, предпринимались попытки подгонки при использовании четырех различных фонов (рис. 1) при следующих условиях:

- при  $TC = -500^\circ C$  (способ 2, результаты приведены в табл. 2);
- способ 3 - при подборе  $TC$ , обеспечивающем равенство величины  $\frac{\partial T}{\partial p}$  оценке Ландау-Лифшица и при минимизации остаточной ошибки по  $T_L, T_U$  (табл. 3);
- способ 4 - при оптимизации по  $T_L, T_U, TC$  (в этом случае имеется минимум ошибки в зависимости от  $TC$ ); табл. 4;
- способ 5 - при использовании экспериментально измеренных величинах  $T_L, T_U$  и при  $TC$ , полученном методом оптимизации по способу 4 (табл. 5).

Полученные результаты сведены в таблицах 1 - 5. Из них видно следующее:

1. Результаты подгонки слабо зависят от выбора фона.
2. Величина  $\delta$  степени  $\varepsilon$  в выражении (10) равна  $-2.94 \pm 0.13$  (в среднем по различным фонам и способам подгонки), то есть  $\delta \approx -3$  вместо величины  $\delta = -2$ , предсказанной теорией.
3. Величина  $A_p$  (т.е. форма кривой  $\Delta T(p)$ ) близка к той же величине, полученной в растворе  $\alpha$ -пиколин- $D_2O$  [16].

Оказалось, что величины  $\delta$  и  $A_p$  очень устойчивы относительно искусственно введенного "третьего параметра"  $TC = T_0 - A_p^2/8(\partial T/\partial p)$ .

Наиболее важным результатом представляется полученное отличие степени  $\delta$  от предсказанного значения  $\delta = -2$ . Объяснение этого факта, как нам кажется, требует проверки не только подхода к подгонке, но и использованных формул теории и пригодности самой теории к описанию объектов с сильно развитыми флуктуациями больших размеров.

Авторы благодарны И. Л. Фабелинскому и И. А. Чабан за полезные обсуждения и постоянное внимание к работе.

Работа выполнена при поддержке РФФИ проект N 02-02-16118.

#### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Garrabos Y., Zalczger G., Deysens D. Phys. Rev. A, **25**, N 2, 1147

- (1982).
- [2] Fixman M. J. Chem. Phys., **36**, N 8, 1961 (1962).
- [3] Kawasaki K. in: Phase Transition and Critical Phenomena, ed. by M. S. Green & C. Dome, **5A**, Academic Press, NY, London, 1976, p. 165.
- [4] Романов В. П., Соловьев В. А. Акустич. журнал, **14**, N 2, 262 (1968).
- [5] Чабан И. А. Акустический журнал, **XXI**, N 1, 104 (1975).
- [6] Чабан И. А. *ibid*, N 2, 286 (1975).
- [7] Кривохижа С. В., Луговая О. А., Фабелинский И. Л., Чайков Л. Л. ЖЭТФ, **89**, N 1(7), 85 (1985).
- [8] Johnston R. G., Clark M. A., Wiltzius P., Cannall D. S. Phys. Rev. Lett., **54**, N 1, 49 (1985).
- [9] Кривохижа С. В., Фабелинский И. Л., Чайков Л. Л. Акустический журнал, **47**, N 2, 238 (2001).
- [10] Коваленко К. В., Кривохижа С. В., Фабелинский И. Л., Чайков Л. Л. Письма ЖЭТФ, **58**, N 3, 395 (1993).
- [11] Давидович Л. А., Шиндер И. И. ЖЭТФ, **95**, N 4, 1289 (1989).
- [12] Вайнштейн Л. В., Чайков Л. Л. Оптика и спектроскопия, **92**, N 5, 843 (2002).
- [13] Кривохижа С. В., Луговая О. А., Фабелинский И. Л. и др. ЖЭТФ, **103**, N 1, 115 (1993).
- [14] Chaikov L. L., Fabelinskii I. L., Krivokhizha S. V., et al. J. Raman Spectroscopy, **25**, 463 (1994).
- [15] Чабан И. А. Частное сообщение.
- [16] Garland C. W., Nichigaku K. J. Chem. Phys., **65**, N 12, 5298 (1976).
- [17] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Статистическая физика, М., ГИТТЛ, 1951.
- [18] Kovalenko K. V., Krivokhizha S. V., Fabelinskii I. L., Chaikov L. L. Laser Physics, **11**, N 3, 332 (2003).

Поступила в редакцию 26 декабря 2003 г.