

535.36

**МНОГОКРАТНОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА
ВБЛИЗИ КРИТИЧЕСКОЙ ТОЧКИ***Е. Л. Лакоза, А. В. Чалый***СОДЕРЖАНИЕ**

Введение	393
1. Развитие представлений о критической опалесценции	394
2. Изучение процесса рассеяния при критической опалесценции	396
а) Итерационная процедура решения электродинамической задачи (396).	
б) Корреляционные функции в критической области (397). в) Приближение однократного рассеяния. Искажающие факторы (398).	
3. Интегральная интенсивность и деполяризация двукратно рассеянного света в критической области	401
а) Теория (401). б) Учет геометрии эксперимента (404). в) Эксперимент (405).	
4. Рассеяния высших кратностей	409
а) Полный коэффициент многократного рассеяния (409). б) Коэффициент экстинкции многократного рассеяния. Соотношения между различными кратностями (410). в) Эксперименты по изучению рассеяний высших кратностей (411). г) Учет ослабления, показатель преломления в критической области (413).	
5. Влияние многократного рассеяния на спектр критической опалесценции	415
а) Спектр однократного рассеяния (415). б) Расчеты спектра двукратно рассеяния (420). в) Экспериментальные исследования спектров многократного рассеяния (422).	
Заключение	424
Цитированная литература	425

«Наука эта — лес дремучий.
Не видно ничего вблизи...»
Иоганн-Вольфганг Гёте

ВВЕДЕНИЕ

При описании процесса распространения электромагнитных волн часто встречаются ситуации, в которых приближение однократного рассеяния становится непригодным. Это может иметь место как в средах достаточно больших геометрических размеров, в которых рассеяние происходит на отдельных частицах или молекулах (облака, туманы, искусственный аэрозоль, атмосферы звезд и планет и т. п.), так и в средах, где рассеяние происходит на флуктуациях различных физических параметров, приводящих к значительному возрастанию коэффициента экстинкции (вещество вблизи критических точек (КТ) и точек фазовых переходов II рода, среды с развитой турбулентностью и др.). В таких случаях становится необходимым учет эффектов многократного рассеяния электромагнитного излучения.

Вопросам многократного рассеяния волн в средах с дискретными рассеивателями и в средах с развитой турбулентностью посвящен ряд обзоров и монографий (см., например, ¹⁻⁴). Состояние теоретических и экспери-

ментальных исследований по многократному рассеянию света вблизи КТ освещено менее подробно. Вместе с тем важность эффектов многократного рассеяния света в критической области очевидна. Рассеяние света является здесь одним из наиболее удобных методов изучения физических свойств вещества, поскольку радиус корреляции флуктуаций характерного параметра порядка исследуемой системы сравним с длиной световой волны.

Необходимость глубокого понимания особенностей процессов многократного рассеяния диктуется также следующими причинами: 1) многократное рассеяние света содержит определенную информацию о старших пространственно-временных корреляционных функциях (ПВКФ) флуктуаций различных физических величин; 2) учет эффектов многократного рассеяния обязателен для интерпретации результатов исследования критической опалесценции в приближении однократного рассеяния, для которого имеется надежная теория.

За последние 10—15 лет понимание природы критических явлений существенно углубилось. Вскрыта основная причина универсального поведения систем различной физической природы вблизи КТ — скоррелированность на больших расстояниях и временах флуктуаций параметра порядка. Это стало возможным благодаря развитию и совершенствованию современных теорий критических явлений и фазовых переходов — теории масштабной инвариантности ⁵ и ренормализационной группы ⁶.

Общий прогресс в изучении критических явлений проявился в развитии представлений и об особенностях рассеяний высших кратностей в явлении критической опалесценции. К настоящему времени накоплен значительный экспериментальный и теоретический материал по изучению интегральной и спектральной интенсивностей многократно рассеянного света вблизи КТ. Целый ряд результатов можно считать уже надежно установленными. В такой ситуации «... исход единственный и лучший» — освещение современного состояния исследований по многократному рассеянию света при критической опалесценции.

1. РАЗВИТИЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЙ О КРИТИЧЕСКОЙ ОПАЛЕСЦЕНЦИИ

Первые наблюдения явления критической опалесценции были приняты, по-видимому, в 80-х—90-х годах прошлого столетия Герзи, Альтшулем и Везендонком. Локальная термодинамическая теория флуктуаций Смолуховского ⁷ и Эйнштейна ⁸ объяснила возрастание по всем направлениям интенсивности рассеянного света с приближением к КТ. Учет пространственной нелокальности флуктуаций, приводящий к фундаментальному понятию радиуса корреляции r_c , был проведен Орнштейном и Цернике ⁹. Обоснованию основных результатов теории Орнштейна — Цернике (ОЦ) на термодинамическом и молекулярном уровнях, а также ее экспериментальной проверке посвящены многие работы, анализ которых содержится, например, в ¹⁰. Теория ОЦ, объясняющая явление критической опалесценции учетом дальних корреляций, соответствует фактически модели невзаимодействующих флуктуаций и, естественно, не дает точного описания аналитических свойств флуктуирующих величин в близкой окрестности КТ.

Создание теории сверхпроводимости Гинзбурга — Ландау ¹¹, установление критерия ^{12, 13} применимости самосогласованного поля Ландау показали растущую роль взаимодействия флуктуаций по мере приближения к КТ. Современные теории критических явлений Паташинского и Покровского, Каданова, Вильсона ^{5, 6}, последовательно учитывающие этот определяющий фактор, позволили выяснить ряд новых важных

свойств парной и старших КФ флуктуаций параметра порядка. В частности, принципиальным следствием масштабной инвариантности явилось появление индекса η аномальной размерности парной КФ, который отсутствовал в теории ОЦ. Для интенсивности I_1 однократно рассеянного света тот факт, что $\eta \neq 0$, должен приводить к нелинейной зависимости I_1^{-1} от квадрата изменения волнового вектора при рассеянии на произвольный угол.

Наряду с ростом радиуса корреляции r_c при подходе к КТ увеличивается также время релаксации t_c длинноволновых флуктуаций параметра порядка. Подобное «критическое замедление» проявляется прежде всего в резком сужении интенсивно растущей центральной линии тонкой структуры спектра. Различные варианты динамической теории критических явлений¹⁴⁻¹⁶ создают весьма надежную основу для исследования характеристик спектра критической опалесценции в приближении однократного рассеяния.

Понятие кратности рассеяния в электродинамике возникает, как известно (см., например, ^{4, 17, 18}), в результате итерационного решения интегральных уравнений задачи распространения и рассеяния электромагнитных волн в статистически неоднородных средах, представленного в виде борновского или рэлеевского ряда по поляризуемостям молекул (флуктуациям диэлектрической проницаемости). Результаты электродинамического расчета совместно с масштабно-инвариантными КФ флуктуаций параметра порядка служат для описания многократного рассеяния света вблизи КТ *).

Последовательный электродинамический расчет двукратного рассеяния света вблизи КТ, использующий корректные КФ флуктуаций параметра порядка, был выполнен независимо и практически одновременно в ²¹⁻²⁵. В этих работах удалось теоретически выяснить основные особенности двукратного рассеяния (температурная зависимость полной интенсивности I_2 и коэффициента деполяризации Δ , нетривиальная зависимость I_2 и, следовательно, Δ от характерных линейных размеров рассеивающего объема, особенности угловой зависимости I_2 и др.). Вместе с тем в ²¹⁻²⁵ не было уделено должное внимание учету реальной геометрии рассеивающего объема. Такие расчеты, совершенно необходимые для правильных оценок поправок на двукратное и многократное рассеяния при критической опалесценции, были приведены в ²⁶⁻²⁹. Появление надежных теоретических расчетов I_2 и Δ ²¹⁻³³ в значительной степени стимулировало проведение соответствующих экспериментальных исследований^{26, 27, 34-39}.

Не меньший интерес представляет исследование возможного влияния многократного рассеяния на характеристики спектра критической опалесценции. Учет этого фактора необходим для проверки ряда положений динамической теории критических явлений (величина динамического индекса \tilde{z} , точный вид масштабной функции для ширины Γ_c центральной компоненты и др.). В данном направлении уже проведены первые теоретические⁴⁰⁻⁴⁴ и экспериментальные^{42, 43, 45} исследования.

*) Здесь мы не будем останавливаться на работах, в которых использовались различные приближенные методы расчета двукратного рассеяния света вблизи КТ (см. подробнее ^{19, 20}) и известные методические приемы снижения его вклада (уменьшение рассеивающего объема, выбор смесей с близкими показателями преломления компонент и т. д.). Отсутствие в подобных работах строгого теоретического анализа оставляло все-таки открытым принципиальный вопрос о величине и роли эффектов многократного рассеяния.

2. ИЗУЧЕНИЕ ПРОЦЕССА РАССЕЯНИЯ ПРИ КРИТИЧЕСКОЙ ОПАЛЕСЦЕНЦИИ

а) Итерационная процедура решения электродинамической задачи

Описание процесса распространения и рассеяния электромагнитных волн в веществе, находящемся в околокритическом состоянии, может быть проведено на основе двух подходов — макроскопического и микроскопического.

В макроскопическом подходе используется представление о флуктуирующей диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0(\mathbf{r}) + \varepsilon'(\mathbf{r}, t)$, где $\varepsilon_0(\mathbf{r})$ — среднее значение для среды, которую будем считать пространственно-неоднородной вследствие, например, наличия внешнего поля, а $\varepsilon'(\mathbf{r}, t)$ — флуктуационная часть. Понятие кратности рассеяния появляется в результате применения итерационной процедуры при решении волнового уравнения

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \varepsilon(\mathbf{r}, t) \mathbf{E} - \text{grad div } \mathbf{E} = 0, \quad (2.1)$$

записанного в такой форме для немагнитной непроводящей среды. Суть итерационной процедуры заключается в отыскании напряженности электрического поля $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \sum_{i \geq 1} \mathbf{E}_i$ как суммы поля возбуждающей волны \mathbf{E}_0 , удовлетворяющей уравнению (2.1) с $\varepsilon = \varepsilon_0(\mathbf{r})$, и полей \mathbf{E}_i , являющихся функционалами от i -кратного произведения $\varepsilon'(\mathbf{r}, t)$. Общие рекуррентные формулы для электрических \mathbf{E}_i и магнитных \mathbf{H}_i полей в (\mathbf{r}, ω) -представлении имеют вид ⁴¹⁶

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_i(\mathbf{r}, \omega) = & -\pi \int_V \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon'(\mathbf{r}_i, \omega_i) G_0^{(-)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i, \omega_i) \frac{\mathbf{m}_i E_{i-1}(\mathbf{r}_i, \omega - \omega_i)}{\varepsilon_0(\mathbf{r}_i) |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|^2} \times \\ & \times \left[1 - i \frac{\omega_i}{c} \sqrt{\varepsilon_0(\mathbf{r}_i)} |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i| - \frac{\omega_i^2}{c^2} \varepsilon_0(\mathbf{r}_i) |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|^2 \right] d\mathbf{r}_i d\omega_i, \end{aligned} \quad (2.2)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_i(\mathbf{r}, \omega) = & \frac{i\hbar\omega}{c} \int_V \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon'(\mathbf{r}_i, \omega_i) G_0^{(-)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i, \omega_i) [\mathbf{n}_i, \mathbf{m}_i] \times \\ & \times E_{i-1}(\mathbf{r}_i, \omega - \omega_i) \left[1 + i \frac{\omega_i}{c} \sqrt{\varepsilon_0(\mathbf{r}_i)} |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i| \right] d\mathbf{r}_i d\omega_i; \end{aligned} \quad (2.3)$$

здесь $\mathbf{n}_i = (\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) / |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|$ — единичный вектор в направлении точки наблюдения, $G_0^{(-)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i, \omega_i)$ — причинная функция Грина волнового уравнения, ω_i — частота i -кратно рассеянного света. Вектор \mathbf{m}_i , определяющий направление поляризации i -кратно рассеянной волны, удовлетворяет соотношению ⁴⁶ $\mathbf{m}_i = \mathbf{m}_{i-1} - \mathbf{n}_i (\mathbf{n}_i \cdot \mathbf{m}_{i-1})$.

В микроскопическом подходе исходным является соотношение ¹⁷

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}_i, t) = \alpha [\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_i, t) + \sum_{j \neq i} \hat{T}_{ij} \mathbf{P}(\mathbf{r}_j, t)] \quad (2.4)$$

для дипольного момента $\mathbf{P}(\mathbf{r}_i, t)$ молекулы, расположенной в момент времени t в точке \mathbf{r}_i , который наводится внешним полем $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_i, t)$ и полями всех остальных молекул. В (2.4) α — поляризуемость молекулы, не зависящая от частоты и принятая здесь скаляром,

$$\hat{T}_{ij} = (\nabla_i \nabla_j + k_0^2 \hat{I}) e^{ik_0 |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|^{-1}, \quad k_0 = \frac{2\pi}{\lambda},$$

— пропагатор электромагнитного поля. Напряженность поля рассеянной волны определяется с помощью формул

$$\mathbf{E} = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{\Pi}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{\Pi}}{\partial t^2}, \quad \mathbf{\Pi} = \int_V \frac{\mathbf{P}(\mathbf{r}', t - |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|/c)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}'$$

через значение дипольного момента $\mathbf{P}(\mathbf{r}', t)$, который находится из (2.4) формальной итерационной процедурой

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}_i, t) = \alpha \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_i, t) + \alpha^2 \sum_{j \neq i} \hat{T}_{ij} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_j, t) + \alpha^3 \sum_{\substack{j \neq i \\ l \neq j}} \hat{T}_{ij} \hat{T}_{jl} \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_l, t) + \dots \quad (2.5)$$

Слагаемые в (2.5) трактуются как вклады возбуждающего, однократно, двукратно и т. д. рассеянных полей. Связь обоих подходов в теории многократного рассеяния обсуждается в ⁴⁷.

Дальнейшее решение задачи многократного рассеяния сводится к вычислению вектора Умова — Пойнтинга

$$\langle \mathbf{S} \rangle = \frac{c}{8\pi} \operatorname{Re} \sum_{i,j} \langle [\mathbf{E}_i, \mathbf{H}_j^*] \rangle. \quad (2.6)$$

Слагаемые с $i = j$ определяют интенсивность «чистых» i -кратных рассеяний, а остальные — с $i \neq j$ — интенсивность так называемых «интерференционных» эффектов. Слагаемые с $i = 1, j = 2$ и $i = 2, j = 1$ называют иногда полуторакратным рассеянием. Угловые скобки в (2.6) означают усреднение по статистике флуктуаций $\varepsilon'(\mathbf{r}, t)$ в макроскопическом или среднее по ансамблю в микроскопическом подходе.

Таким образом, исследование процессов многократного рассеяния требует знания ПВКФ флуктуаций диэлектрической проницаемости произвольного порядка $G_{i+j}^* = \left\langle \prod_{k=1}^i \varepsilon'(\mathbf{r}_k, t) \prod_{s=1}^j \varepsilon'(\mathbf{r}_s, t_s) \right\rangle$ или частичных статистических функций распределения $F_{i+j}(\mathbf{r}_1 t_1; \dots; \mathbf{r}_i t_i; \mathbf{r}'_1 t'_1; \dots; \mathbf{r}'_j t'_j)$. В макроскопическом подходе ПВКФ флуктуаций диэлектрической проницаемости может с достаточной точностью быть заменена ПВКФ флуктуаций плотности (здесь и в дальнейшем для определенности рассматривается система жидкость — пар вблизи КТ)

$$G_{i+j}^* = \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T^{i+j} G_{i+j}^{\rho}, \quad G_{i+j}^{\rho} = \left\langle \prod_{k=1}^i \Delta \rho(\mathbf{r}_k, t_k) \prod_{s=1}^j \Delta \rho(\mathbf{r}'_s, t'_s) \right\rangle. \quad (2.7)$$

При анализе рядов по кратностям для полей и интенсивности многократно рассеянного излучения весьма широкое применение находят диаграммная техника, аналогичная технике Фейнмана в квантовой теории поля. Суммирование этих рядов при определенных предположениях сводится к решению уравнений типа уравнения Дайсона и уравнения Бете — Солипитера соответственно для поля и интенсивности рассеянного излучения ^{2, 4, 24a, 25a, 30b, 40, 48}.

б) Корреляционные функции в критической области

Долгое время единственной теорией критических флуктуаций являлась теория ОЦ, основная идея которой сводится, как известно, к учету нелокальности флуктуаций плотности $\Delta \rho$ вблизи КТ, что дает для парной КФ

$$G_2^{\rho}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \sim \exp(-|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|/r_c) |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1}. \quad (2.8)$$

Радиус корреляции r_c , неограниченно растущий с приближением к КТ, обеспечивает дальнедействующий характер корреляции флуктуаций.

С созданием теории масштабной инвариантности удалось выяснить ряд новых важных свойств парной и старших КФ⁵. Так было установлено, что многоточечная КФ $G_n^{A_1, \dots, A_n}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n)$ зависит от отношений $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|/r_c$ и является однородной функцией своих пространственных аргументов порядка $\Delta_{A_1} + \dots + \Delta_{A_n}$, где Δ_{A_i} — масштабные размерности, которые характеризуют изменение флуктуирующих величин A_i при масштабном преобразовании $A_i(\tilde{\lambda}r) \rightarrow \tilde{\lambda}^{-\Delta_i} A_i(r)$. Для парной КФ этот результат означает, что

$$G_{2, A_1, A_2}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = g(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|/r_c) / |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{\Delta_{A_1} + \Delta_{A_2}}, \quad (2.9)$$

причем в случае флуктуаций параметра порядка $\Delta_{A_1} = \Delta_{A_2} = (d-2+\eta)/2$, где d — размерность пространства, $\eta \leq 0,06$ — критический индекс аномальной размерности КФ, отличающий ее поведение от (2.8) приближения ОЦ. В (2.9) $g(0) = \text{const}$, обычно $g(x) \sim \exp(-x)$. Радиус корреляции

$$r_c = |\tau|^{-\nu} f(\Delta\rho/\tau^\beta), \quad (2.10)$$

где $\tau = (T - T_c)/T_c$, $\Delta\rho = (\rho - \rho_c)/\rho_c$ — безразмерные отклонения температуры и плотности от критических значений; масштабная функция $f(x)$ имеет асимптотики: $f(x \rightarrow 0) = a_0 \approx 10^{-(7-8)}$ см, $f(x \rightarrow \infty) \sim x^{-\nu/\beta}$, $\nu \approx 0,63$ и $\beta \approx 0,34$ — критические индексы.

Следствия, вытекающие из теории масштабной инвариантности⁵, позволяют оценить особенность нулевых фурье-компонент старших КФ вблизи КТ.

Помимо инвариантности относительно изменения масштаба, КФ могут обладать также инвариантностью по отношению к специальному конформному преобразованию^{49, 50}. В этом случае определена структура тройных КФ в КТ и существенно сужен класс функций, описывающих четверные КФ.

К сожалению, в настоящее время неизвестна явная зависимость старших КФ от волновых векторов, по направлениям которых необходимо проводить суммирование переизлучений в задаче многократного рассеяния. Однако имеется одно существенное обстоятельство, которое позволяет рассчитать слагаемые в векторе Умова — Пойнтинга (2.6). В той области переменных, где радиус корреляции r_c остается меньше длины световой волны λ , выполняется условие волновой зоны

$$k_0 \sqrt{\varepsilon_0(\mathbf{r}_j)} |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j| \gg 1. \quad (2.11)$$

Именно такая ситуация реализуется во многих оптических экспериментах. Это делает оправданным при расчете рассеянных полей по рекуррентным формулам (2.2) и (2.3) использование полученных в^{51, 52} асимптотик многочастичных КФ, соответствующих удалению одной группы частиц от другой на расстояния $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j| \gg \lambda \gg r_c$. Особенности ПВКФ критических флуктуаций будут обсуждены в гл. 5.

в) Приближение однократного рассеяния. Искажающие факторы

Интегральная интенсивность однократно рассеянного света I_1 пропорциональна фурье-образу парной КФ флуктуаций плотности. С учетом (2.9) имеем

$$I_1 = \frac{c}{8\pi} \text{Re} \langle \{\mathbf{E}_1, \mathbf{H}_1^*\} \rangle \cdot \mathbf{n}_1 \sim G_2(q) \sim 1/(r_c^{-2} + q^2)^{1-\eta/2}, \quad (2.12)$$

где $q = k_0 \sqrt{2\varepsilon_0} (1 - \cos \theta)^{1/2}$ — изменение волнового вектора при рассеянии на угол θ .

Из анализа формулы (2.12) вытекает, что

1) в КТ $r_c^{-1} \rightarrow 0$ и $I_1^{-1} \sim q^2 \eta$, что в принципе открывает возможность для определения критического индекса η из измерений угловой зависимости однократного рассеяния;

2) $I_1 (q \rightarrow 0) \sim r_c^2 \eta \sim \beta_T$ характеризует изотермическую сжимаемость

$$\beta_T = \tau^{-1} f_1 \left(\frac{\Delta \rho}{\tau^\beta} \right), \quad f_1(x \rightarrow 0) = \beta_T^0 \approx 10^{-(8-9)} \text{ Па}^{-1}, \quad (2.13)$$

$$f_1(x \rightarrow \infty) \sim x^{1-\delta}, \quad \gamma \approx 1,2, \quad \delta \approx 4,5,$$

что позволяет находить значения критических индексов γ , δ и явный вид масштабной функции $f_1(x)$;

3) угловой наклон зависимости $(I_1/\beta_T)^{2/(\eta-2)}$ от q^2 дает r_c^2 и тем самым, при варьировании τ и $\Delta \rho$, критические индексы ν , ν/β и масштабную функцию $f(x)$ из (2.10).

Подобные методы определения критических индексов и масштабных функций были использованы во многих экспериментальных исследованиях (см., например, ⁵³).

Перечисленные следствия формулы (2.12) справедливы для асимптотической окрестности изолированной КТ. Существует ряд искажающих такое идеализированное критическое поведение факторов, которое необходимо принимать во внимание при интерпретации в приближении однократного рассеяния экспериментальных данных по критической опалесценции.

1) Внешние воздействия. Аномальный рост восприимчивости вблизи КТ и точек фазовых переходов II рода является причиной понижения симметрии (нарушения макроскопической однородности) исследуемой среды при наличии внешних воздействий. Для системы жидкость — пар это приводит к сужению области истинного фазового перехода (гравитационный эффект).

Пусть рассеяние происходит в неоднородном по z плоскопараллельном слое $-L_z \leq z \leq L_z$ при нормальном падении на границу $z = -L_z$ возбуждающей волны, поляризованной вдоль оси x (рис. 1). Критические явления в слое реализуются на уровне $z = 0$ при $\tau \rightarrow 0$. Усредненная по слою интенсивность однократно рассеянного света определяется следующей формулой:

$$I_1(2L_z) = I_0 \frac{\pi \sigma}{\lambda^4} \left(\rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T^2 \frac{1 - (\mathbf{n}_0 \cdot \mathbf{m}_0)^2}{L^2} \int_{-L_z}^{L_z} \times$$

$$\times \left[G_2(q, z) + \frac{|A^{(+)}|^2}{|A^{(-)}|^2} G_2(q^{(+)}, z) \right] dz. \quad (2.14)$$

Здесь σ — сечение падающего пучка, \mathbf{m}_0 — единичный вектор в направлении поляризации возбуждающей волны, L — расстояние от рассеивающего

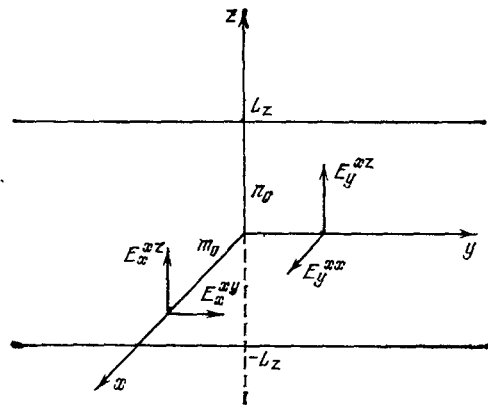


Рис. 1. Геометрия задачи рассеяния ^{22,54,55}.

объема до приемника, $G_2(q, z)$ — фурье-образ парной КФ пространственно-неоднородной среды⁵⁴. Второе слагаемое связано с наличием обратной волны⁵⁵.

Из (2.14) следует, что а) интенсивность $\Delta I_1/\Delta z$, отнесенная к единичному интервалу Δz , имеет резкую высотную зависимость с максимумом на уровне $z = 0$; б) при $z, \tau \rightarrow 0$ и $\theta \rightarrow 0$, π величина $\Delta I_1/\Delta z$ аномально возрастает, но при усреднении по слою особенности сглаживаются и величина $I_1(2L_z)$ остается конечной даже при $\tau \rightarrow 0$ и $\theta \rightarrow 0, \pi$; в) температурная зависимость $I_1(2L_z)$ на критической изохоре описывается индексом $\gamma_{\text{эфф}} < \gamma$; г) обратная величина $I_1^{-1}(2L_z)$ характеризуется нелинейной зависимостью от q^2 даже при использовании формулы (2.8) приближения ОЦ.

Высотная зависимость рассеивающей способности вещества вблизи КТ жидкость — пар изучалась в экспериментах⁵⁶⁻⁶⁰. Так, при $\tau \approx 10^{-4}$ и отходе от уровня $z = 0$ всего на 1 см интенсивность однократного рассеяния в *n*-пентане под углом $\theta = \pi/2$ уменьшалась в 80 раз⁵⁹. На фиксированных высотах $z \neq 0$ экстремумы интенсивности однократного рассеяния достигались при $\tau \neq 0$ ⁶⁰. Уменьшение индекса γ и приближение его значения к «классической» величине $\gamma = 1$ наблюдались в⁶¹ и были объяснены влиянием гравитации⁶². Появление нелинейной зависимости $I_1^{-1}(q^2)$ в гравитационном поле отмечалось в^{54, 63-65}. В⁶⁵ была вычислена величина индекса $\eta_{\text{грав}}$, описывающего эту нелинейность: для Хе при $2L_z = 10$ см и $\tau \approx 10^{-5} \eta_{\text{грав}}$ достигает значения порядка единицы.

2) Неасимптотическая и асимметричная окрестность критической точки. Использование простых степенных соотношений теории масштабной инвариантности для интерпретации экспериментальных данных приводит, как правило, к определению не предельных, а эффективных значений критических индексов, изменяющихся по мере приближения к КТ. Для нахождения предельных значений критических индексов обязателен учет а) неасимптотических поправок, связанных с расширением окрестности КТ и точек фазовых переходов II рода в идеализированных моделях типа несжимаемого магнетика (решеточного газа) с закрепленными в узлах спинами (атомами); б) асимметричных поправок, описывающих отличия реальных систем (например, система жидкость — пар вблизи КТ) от упомянутых идеализированных моделей^{5, 66-68}. Корректная обработка экспериментальных данных в критической области с учетом неасимптотических и асимметричных поправок проводилась, например, в^{69, 70}. Разумеется, в широкой окрестности КТ следует принимать во внимание наряду с сингулярными также и регулярные части физических величин, характеризующие их значения вдали от КТ, где $\tau \approx 1$ и $\Delta\rho \approx 1$.

3) Дополнительные термодинамические переменные. Большинство фазовых переходов происходит на линиях или поверхностях в пространстве термодинамических переменных. Поэтому возникает естественный вопрос об изоморфности этих фазовых переходов и фазового перехода в единственной реальной системе с изолированной КТ — однокомпонентной жидкости, характеризующейся лишь двумя независимыми переменными (например, τ и $\Delta\rho$). Подробное обсуждение этого вопроса (в частности, перенормировка критических индексов при фиксации в экспериментальных условиях дополнительных плотностных, а не полевых, переменных) содержится в⁵³.

4) Кроссовер. Характер критических аномалий также изменяется при подходе к КТ высших порядков на линиях или поверхностях

фазовых переходов. Так, вблизи трикритической точки с точностью до логарифмических температурных поправок сжимаемость $\beta_T \sim \tau^{-\nu_t}$ и радиус корреляции параметра порядка $r_c \sim \tau^{-\nu_t}$, где $\nu_t = 1$, $\nu_t = 0,5$. Переход от критического к поликритическому поведению (кроссовер) необходимо принимать во внимание в системах со взаимодействующими параметрами порядка⁷¹.

5) Рассеяния высших кратностей. Обсуждению этого фактора посвящено все дальнейшее изложение.

3. ИНТЕГРАЛЬНАЯ ИНТЕНСИВНОСТЬ И ДЕПОЛЯРИЗАЦИЯ ДВУКРАТНО РАССЕЯННОГО СВЕТА В КРИТИЧЕСКОЙ ОБЛАСТИ

а) Т е о р и я

Стремление исследователей изучить особенности физических свойств вещества (в частности, его рассеивающей способности) в близкой ($\tau \lesssim 10^{-3}$) окрестности КТ привело к необходимости выяснения основных закономерностей рассеяний высших кратностей при критической опалесценции. Это стимулировало повышенный интерес к теоретическим расчетам в первую очередь двукратного рассеяния света, которые были выполнены в²¹⁻³³. Отметим, что все расчеты были основаны на расщеплении КФ G_4 на произведение парных КФ G_2 , что, как отмечалось (см. (2.11)), оправдано при $\lambda > r_c$ и соответствует реальной экспериментальной ситуации при изучении критической опалесценции до $\tau \gtrsim 10^{-5}$.

1) И н т е г р а л ь н а я и н т е н с и в н о с т ь. Основной вклад в интегральную интенсивность двукратного рассеяния определяется выражением^{22, 46}

$$I_2 = I_0 \left(\frac{\pi}{\lambda^4} \right)^2 \frac{VL_0}{L^2} \left(\rho \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T^4, \quad (3.1)$$

$$\int_{\sigma_1} [1 - (\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{m}_0)^2] \left[1 - \frac{(\mathbf{n}_2 \cdot \mathbf{m}_1)^2}{|\mathbf{m}_1|^2} \right] G_2(q_1) G_2(q_2) d\sigma_1,$$

где L_0 — характерный линейный размер рассеивающего объема V , \mathbf{q}_1 и \mathbf{q}_2 — изменение волновых векторов в процессе последовательных рассеяний. Интеграл по телесному углу в (3.1) суммирует по направлению все однократное рассеяние в объеме, ответственное за двукратное, регистрируемое приемником.

Теоретические следствия (3.1) таковы: 1) величина I_2 пропорциональна четвертой степени линейного размера ($I_2 \sim VL_0 \sim V^{4/3}$); 2) при $qr_c \ll 1$ (рэлеевская область) $I_2(\tau) \sim \beta_T^2(\tau) \sim r_c^{2(2-\eta)} \sim \tau^{-2\nu}$ на критической изохоре и $I_2(z) \sim \beta_T^2(z) \sim z^{-2(\delta-1)/\delta}$ на критической изотерме неоднородной жидкости в гравитационном поле; 3) при $qr_c \lesssim 1$ и $n_2 \approx n_0$ (малые углы рассеяния) $I_2 \sim \beta_T + \ln \beta_T$. Этот результат отражает специфику распада корреляций для четырехточечной КФ^{5, 72, 73}; 4) индикатриса $I_2(\theta)$ является более плавной, чем индикатриса $I_1(\theta)$: $I_2 \sim 1 + (7/11) \cos^2 \theta$, $I_1 \sim 1 + \cos^2 \theta$ при $qr_c \ll 1$ и для падающего естественного света *).

*) Ряд отмеченных результатов ($I_2 \sim \beta_T^2$ при $qr_c \leq 1$, $I_2/I_1 \sim L_0$ и более плавная угловая зависимость $I_2(\theta)$, чем $I_1(\theta)$) были получены ранее в¹⁹ при расчете интенсивности двукратного рассеяния вблизи КТ на основе уравнения переноса излучения с индикатрисой, определяемой теорией ОЦ.

2) Деполяризация рассеянного излучения. К основным механизмам деполяризации рассеянного света относятся: рассеяние на флуктуациях анизотропии ⁷⁴⁻⁷⁶; рассеяние, обусловленное флуктуациями функции распределения тепловых флуктуаций ⁷⁷; многократное рассеяние. Предметом изучения является коэффициент деполяризации

$$\Delta = \frac{I_{yy}^{xz}}{I_{yy}^{xx}}, \quad (3.2)$$

где нижний индекс указывает направление наблюдения, а верхние — соответственно поляризацию возбуждающего и рассеянного излучений (см. рис. 1).

Для оценки относительных вкладов разных механизмов деполяризации удобно воспользоваться следующими соотношениями:

$$\left. \begin{aligned} \Delta &= \frac{I_{y, \text{аниз}}^{xz}}{I_y^{xx}} + \frac{I_{y, \text{фл}}^{xz}}{I_y^{xx}} + \frac{I_{y, \text{мн}}^{xz}}{I_y^{xx}}, \\ I_y^{xx} &\approx I_{y1}^{xx} \sim \lambda^{-4} \beta_T V, \quad I_{y, \text{аниз}}^{xz} \sim \lambda^{-4} V \varphi(\tau), \\ I_{y, \text{фл}}^{xz} &\sim \lambda^{-4} V \beta_T^{1/2}, \quad I_{y, \text{мн}}^{xz} \approx I_{y2}^{xz} \sim \lambda^{-8} V L_0 \beta_T^2, \end{aligned} \right\} \quad (3.3)$$

справедливыми при $qr_c \ll 1$.

Вопрос о характере особенности $I_{\text{аниз}}$ в критической области в настоящее время является открытым и требует своего теоретического решения. Экспериментальные исследования (см. ниже) дают основание считать, что если особенность $I_{\text{аниз}}$ в КТ и существует, то она является весьма слабой, так что $\varphi(\tau) \beta_T^{-1}(\tau) \rightarrow 0$ при $\tau \rightarrow 0$. Из (3.3) следует, что $I_{y, \text{фл}}^{xz}/I_{y1}^{xx} \sim r_c^{-1}$, т. е. этот вклад, как и предыдущий, убывает с приближением к КТ. Последний механизм деполяризации, связанный с многократным рассеянием, становится определяющим в критической области, поскольку $I_{y2}^{xz}/I_{y1}^{xx} \sim \beta_T$.

Последовательный расчет отдельных компонент двукратного рассеяния для сферической геометрии образца был выполнен в ²¹:

$$I_2^{xz} \sim V_1 R_s a^2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi \frac{d\theta \sin^3 \theta \cos^2 \theta \sin^2 \varphi}{(1 + a \sin \theta \cos \varphi) [1 + a \sin \theta \cos(\varphi + \varphi_s)]}, \quad (3.4a)$$

$$I_2^{xx} \sim V_1 R_s a^2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi d\theta \sin^5 \theta (1 + a \sin \theta \cos \varphi)^{-1} \times \\ \times [1 + a \sin \theta \cos(\varphi + \varphi_s)]^{-1}. \quad (3.4b)$$

Здесь V_1 — освещаемый объем, R_s — радиус сферы, $a = 2k_0^2/(2k_0^2 + r_c^{-2})$, φ_s — угол рассеяния. Из (3.4) следует, что $I_2^{xz}, I_2^{xx} \sim V_1 R_s$, а при $k_0 r_c \ll 1$ $I_2^{xz}, I_2^{xx} \sim r_c^4$ (это отмечалось уже в связи с формулой (3.1)). Экстраполяция (3.4a) на КТ ($k_0 r_c \rightarrow \infty$) дает конечное значение для I_2^{xz} .

В ²³ была теоретически изучена угловая зависимость поляризованной компоненты $I^{xx} = I_1^{xx} + I_2^{xx}$. Рассчитанные значения $1/I^{xx}(q^2)$ для Хе при $R_s = 10^{-2}$ см и $T - T_c = 0,031$ °C показали отклонения от линейной зависимости, даваемой теорией ОЦ для $1/I^{xx}(q^2)$, особенно заметные при малых углах рассеяния. Несмотря на то, что в расчете использовалась КФ G_2 приближения ОЦ, эти отклонения характеризуются отличным от нуля эффективным значением индекса аномальной размерности $\eta_{2-кр}$ вследствие учета двукратного рассеяния. Как и в случае $\eta_{\text{грав}}$ ⁶⁵, величина $\eta_{2-кр}$ оказывается весьма большой: $\eta_{2-кр} = 0,7$. При уменьшении

рассеивающего объема доля двукратного рассеяния в общей интенсивности снижается и соответственно уменьшается значение $\eta_{2-кр}$. При $R_s \approx \approx 10^{-3}$ мм $\eta_{2-кр} \approx 0,1$, что близко к теоретическому значению индекса η аномальной размерности КФ G_2 .

В ²¹ был проведен также численный расчет $\Delta(k_0 r_c)$ для Хе при $R_s = = 10^{-3}$ м (рис. 2). Рост Δ при $k_0 r_c > 0,04$ ($\tau \ll 10^{-2}$ на критической изоохоре) связан с увеличением деполяризованной компоненты I_{y2}^{xz} . Следует подчеркнуть, что $I_{y2}^{xz}/I_{y1}^{xx} \sim R_s r_c^2$ при $k_0 r_c \ll 0,3$.

Зависимость $I_2 \sim VL_0$ была независимо получена также в ^{24, 25a}. В ^{24, 25a} использовались микроскопический подход к описанию многократного рассеяния в дипольном приближении и диаграммная техника, подобная той, которая была развита для задачи о распространении волн в средах со случайными неоднородностями ^{2, 4}.

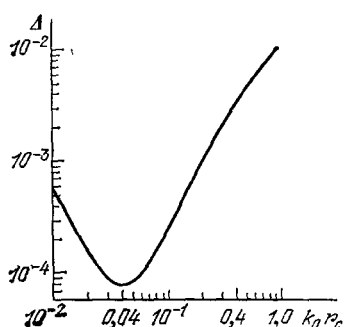


Рис. 2. Коэффициент деполяризации двукратного рассеяния в Хе ²¹.

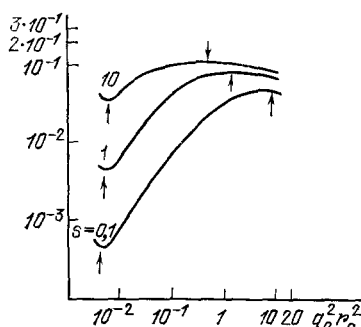


Рис. 3. Зависимость коэффициента деполяризации от параметра $(q_0 r_c)^2$ ³³.

В ^{25b} был проведен расчет коэффициента деполяризации Δ в CO_2 при перпендикулярном градиенту гравитационного поля падении возбуждающего излучения. В частности, показано, что $\Delta = I_{2, деп}/I_{1, пол} \sim \sim L_0$, где L_0 — вертикальный размер рассеивающего объема.

Полный вклад двукратного рассеяния в коэффициент деполяризации был рассчитан в ³³. Результаты, полученные в интервале $3 \cdot 10^{-3} \leq q_0^2 r_c^2 \leq \leq 11$ ($q_0 = \sqrt{2}k_0$ — изменение волнового вектора при рассеянии на угол $\theta = \pi/2$), использовались для получения зависимости $\Delta = \gamma_1/(1 + \gamma_2)$ и величин

$$\gamma_1 = \frac{\bar{I}_{y2}^{xz}}{\bar{I}_{y1}^{xx}} = s(1 + q_0^2 r_c^2) q_0^2 r_c^2 K_1(q_0 r_c), \quad (3.5a)$$

$$\gamma_2 = \frac{\bar{I}_{y2}^{xx}}{\bar{I}_{y1}^{xx}} = s(1 + q_0^2 r_c^2) q_0^2 r_c^2 K_2(q_0 r_c) \quad (3.5b)$$

от параметра $q_0^2 r_c^2$. Здесь K_1 и K_2 — вычисленные в явном виде функции $q_0^2 r_c^2$, $s = \left(\rho \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho}\right)_T^2 k_B T L_0 / 8 \lambda^2 f^*$ — параметр, слабо зависящий от τ и $\Delta \rho$, $f^* = r_c^2 / \beta_T$ — фактор нелокальности флуктуаций ¹⁰.

Представленные на рис. 3 результаты расчета Δ (стрелками указаны положения экстремумов) подтверждают следующие качественные соображения. Падающее на систему изотропных молекул поляризованное излучение сохраняет при небольшой кратности рассеяния преимущественно направление исходной поляризации, вследствие чего величина γ_1 должна быть сравнительно небольшой. С приближением к КТ доля γ_2 двукратного

рассеяния в поляризованной компоненте увеличивается. Однако в непосредственной окрестности КТ ($q_0^2 r_c^2 \gg 1$) рассеянное излучение малых кратностей попросту не достигает приемника, на что указывают следующие формулы:

$$I_y^{xz} = I_0 \frac{2\pi V L_0}{L^2} (2 \ln 2 - 1) \left(\frac{s}{L_0} \right)^2, \quad I_y^{xx} = I_0 \frac{4\pi V L_0}{L^2} \left(\frac{s}{L_0} \right)^2 \ln(q_0^2 r_c^2),$$

$$\Delta = \frac{\ln 2 - (1/2)}{\ln(q_0^2 r_c^2)}.$$

Исходная поляризация перестает быть предпочтительной, и вклады разных поляризаций в интенсивность критического рассеяния выравниваются. Асимптотическое значение Δ в КТ должно стремиться к единице.

При увеличении параметра $q_0^2 r_c^2$ до значения $(q_0 r_c)_{\max}^2 = 11$, как показано в ³³, I_{y2}^{xx} растет, а Δ соответственно убывает. Тем самым становится очевидным, что дальнейший расчет Δ в приближении двукратного рассеяния теряет смысл, так как в области $(q_0 r_c)^2 \geq (q_0 r_c)_{\max}^2$ становятся существенными рассеяния высших кратностей.

Результаты ²¹, ²⁵⁶ расчета Δ в приближении двукратного рассеяния количественно согласуются с расчетом ³³ величины γ_1 в области $(q_0 r_c)^2 \leq 0,1-0,2$, поскольку в ²¹, ²⁵⁶ не учитывался вклад двукратного рассеяния в поляризованную компоненту I_y^{xx} ($\gamma_2 = 0$). Например, в области $(q_0 r_c)^2 < 0,18$, где $\gamma_2 \approx 0$, при использованных в ²¹ $L_0 = 0,1$ см, $\lambda = 2\pi \cdot 10^{-5}$ см параметр $s \approx 10^{-2}$ для Хе ($T_c = 289,757$ К, $f^* \approx 10^{-6}$ дн, $(\rho \partial \epsilon / \partial \rho)_T \geq 10^{-1}$) и результаты расчета Δ , выполненные в ³³ и в ²¹ для величины γ_1 , практически совпадают при $(\rho \partial \epsilon / \partial \rho)_T \approx 1,74 \cdot 10^{-1}$.

б) Учет геометрии эксперимента

Принципиальным фактором, влияющим на точный расчет рассеяний высших кратностей, является конкретная геометрия исследуемой системы. Ее учет обусловил создание «аппаратных» теорий ²⁶⁻²⁹, адекватно отражающих экспериментальные условия.

В ²⁶, ²⁹ была осуществлена оригинальная идея, заключающаяся в том, что облучаемый V_1 и регистрируемый V_2 объемы (верхний и нижний цилиндры на рис. 4) могут не пересекаться, обеспечивая тем самым исключение однократного рассеяния. Ав-

торами был проведен цикл хорошо согласующихся между собой экспериментальных исследований и теоретических расчетов по изучению зависимости поляризованного I_2^{zz} и деполаризованного $I_2^{z(xy)}$ (рассеянный свет изучался в плоскости x, y) двукратного рассеяния от расстояния между цилиндрами h , угла рассеяния θ , параметра $k_0 r_c$. Расчеты и эксперимент подтвердили более плавную зависимость $I_2^{z(x,y)}(\theta)$, чем $I_1^z(\theta)$, возрастание доли двукратного рассеяния в поляризованной компоненте I^{zz} с ростом параметра $k_0 r_c$, нетривиальную зависимость рассеивающих свойств от линейных размеров системы. Показано также, что учет двукратного рассеяния приводит к увеличению

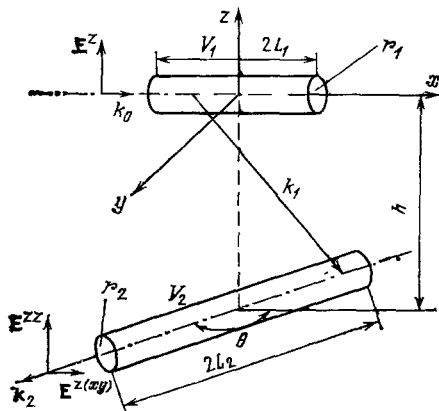


Рис. 4. Геометрия эксперимента для изучения деполаризации рассеянного излучения вблизи критической точки ²⁹.

Рис. 4. Геометрия эксперимента для изучения деполаризации рассеянного излучения вблизи критической точки ²⁹.

индекса ν , уменьшению индекса γ и величины a_0 (соответственно, без учета и с учетом двукратного рассеяния значения этих величин равны $\nu = 0,58$, $\gamma = 1,29$, $a_0 = 3,20 \cdot 10^{-8}$ см и $\nu = 0,625$, $\gamma = 1,21$, $a_0 = 2,36 \cdot 10^{-8}$ см).

Важным результатом ²⁷ явилось получение соотношения

$$\Delta = g\sigma_0 L_0 \quad (\sigma_0 = \pi^2/\lambda^4 [(n^2 - 1)(n^2 + 2)/3]^2 k_B T \beta_T) \quad (3.6)$$

и его экспериментальное подтверждение для рассеивающего объема в форме параллелепипеда с высотой L_0 . Используя для вычисления четырехкратного интеграла, определяющего численное значение g , метод Монте-Карло, авторы ²⁷ показали, что g слабо зависит от L_0 : при изменении от 0,3 до 1,5 мм величина g плавно уменьшалась от $\pi/4$ до 0,76. Численный расчет Δ для цилиндрического образца высоты L_0 и радиуса r_0 , выполненный в ²⁸, подтвердил соотношение (3.6). В результате приближенных вычислений соответствующих интегралов было установлено, что $g = (\pi/4) \ln(1 + \sqrt{2}) (2r_0/L_0)$ при $2r_0 \ll L_0$ и $g = (\pi/4) - (1/6)(1 + \pi/2) \times (2r_0/L_0)^{-2}$ при $2r_0 \gg L_0$. Произведение gL_0 растет линейно с наклоном $\pi/4$ при $L_0 \ll 2r_0$, затем наклон уменьшается и, наконец, величина gL_0 достигает постоянного значения $r_0 (\pi/2) \ln(1 + \sqrt{2})$ при $L_0 \gg 2r_0$.

в) Эксперимент

1) Температурная зависимость Δ и I_2 . Экспериментальные исследования температурной зависимости коэффициента деполяризации $\Delta(\tau)$ имеют довольно давнюю историю (см. соответствующую библиографию в ⁷⁸). В ^{78, 79} совершенно правильно утверждалось, что рост Δ с приближением к КТ связан с эффектами многократного рассеяния. Экспериментальные работы последних лет ^{26, 27, 34, 39} подтвердили правильность этого вывода и позволили, опираясь на упомянутые теоретические результаты, рассчитать критические индексы и другие характеристики двукратного рассеяния. Так, экспериментальные данные по $\Delta(\tau)$ в Хе ²⁷, представленные на рис. 5, удалось описать формулой $\Delta = \text{const} \cdot \beta_T^{-1} + g\sigma_0 L_0$, где первое слагаемое соответствует отношению $I_{\text{аниз}}/I_1$. В ^{37a} по данным $\Delta(\tau)$ в Хе было установлено, что в области $\Delta T \gtrsim 50^\circ$ Δ плавно зависит от T , не обнаруживая критического поведения; в интервале $5^\circ \leq \Delta T \leq 50^\circ$ Δ — убывающая функция T с показателем $\gamma \approx 1,2$, что объясняется возрастанием I_{y1}^{xz} , постоянством $I_{\text{аниз}}$ и практическим отсутствием I_{y2}^{xz} ; в области $(1-3)^\circ \lesssim \Delta T \lesssim 5^\circ$ убывание первого и рост третьего слагаемых формулы (3.3) компенсируются и коэффициент деполяризации проходит через минимум; наконец, в области $\Delta T \lesssim (1-3)^\circ$ наблюдается рост Δ в связи с более быстрым возрастанием I_{y2}^{xz} по сравнению с I_{y1}^{xz} , причем наклон $\Delta(\tau)$ в этой области снова дается индексом γ .

Максимально достижимые экспериментальные значения коэффициента деполяризации таковы: $\Delta \approx 1,2 \cdot 10^{-2}$ при $\tau \approx 1,1 \cdot 10^{-4}$ для CO_2 ^{35a}, $\Delta \approx 5 \cdot 10^{-1}$ при $\tau \approx 6 \cdot 10^{-5}$ для Хе ^{35b}, $\Delta \approx 10^{-2}$ при $\tau \approx 3,4 \cdot 10^{-4}$ для Хе ²⁷, $\Delta \approx 4 \cdot 10^{-3}$ при $\tau \approx 1,4 \cdot 10^{-3}$ для Хе ^{37a}. Следует отметить, что в ^{35a} после достижения максимума наблюдалось незначительное (до 10%)

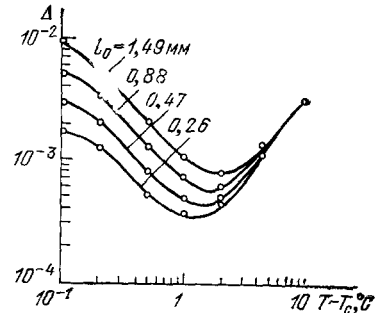


Рис. 5. Температурная зависимость коэффициента деполяризации в Хе при разных значениях L_0 ²⁷.

уменьшение Δ в области $\tau \lesssim 10^{-4}$. Несмотря на кажущееся согласие с расчетом Δ ³³ (см. рис. 3), надежность этого результата представляется сомнительной, поскольку при $\tau \lesssim 10^{-4}$ появляющиеся высшие кратности рассеяния должны дать дальнейшее увеличение Δ . Ведь именно трехкратное рассеяние явилось, по мнению авторов ^{35б}, причиной сильного роста $\Delta(\tau)$ и особенностей зависимости $\Delta(L_0)$, обнаруженных ими же в Хе.

Изменение температурной зависимости интенсивности I_2 двукратного рассеяния, предсказанное в ^{21, 22}, наблюдалось экспериментально в ³⁴. Авторами был проведен анализ деполяризованного многократного рассеяния в смеси нитробензол-н-гексан для температур $10^{-5} \lesssim \tau \lesssim 10^{-2}$. Угловой наклон многократного (преимущественно, двукратного) рассеяния в двойном логарифмическом масштабе в области $\tau \approx 10^{-2}$ оказался равным 2,52, что хорошо согласуется со значением 2γ в полном соответствии с ^{21, 22}. В области $\tau \approx 10^{-4}$ наблюдалось уменьшение показателя степени в зависимости $I_{\gamma 2}^{xz}(\tau)$ от значения 2γ до γ , что отмечалось в ²². При еще меньших τ проявлялась тенденция к ослаблению зависимости $I_{\gamma 2}^{xz}$, что также согласуется с теоретическими предсказаниями ^{21, 22}.

2) Зависимость Δ от плотности. Плотностная зависимость коэффициента деполяризации изучена не столь детально, как его температурная зависимость. На рис. 6 представлены результаты измерений зависимости $\Delta\rho$ в Хе ^{37а}. В интервале $\rho_c + \rho_0 < \rho < \rho_c - \rho_0$ для самой близкой к критической изотермы $T_0 = 290,74$ К наблюдается уменьшение Δ с приближением ρ к ρ_c . Причина — снижение относитель-

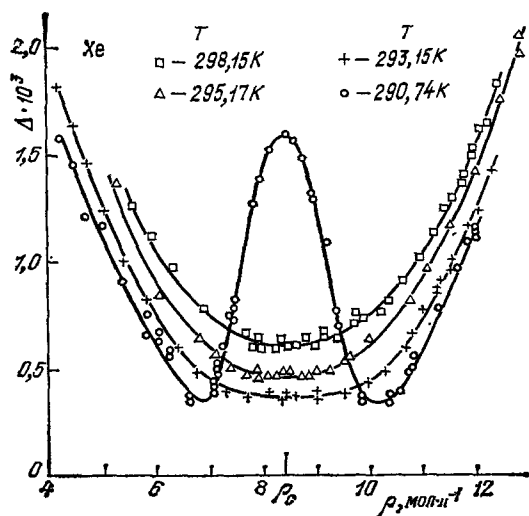


Рис. 6. Плотностная зависимость коэффициента деполяризации в Хе в критической области ^{37а}.

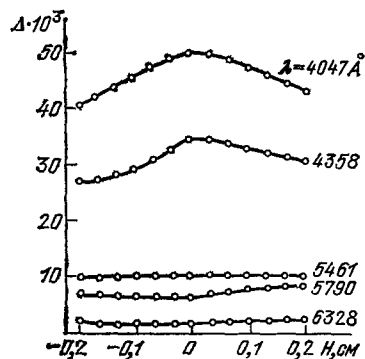


Рис. 7. Высотная зависимость коэффициента деполяризации в н-пентане для разных длин волн ³⁸.

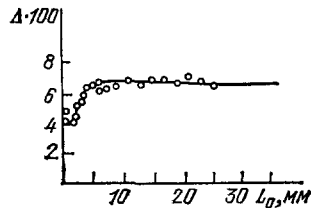
го вклада $I_{\text{аниз}}/I_1$. По поводу возможной особенности $I_{\text{аниз}}$ от параметра порядка $\Delta\rho$ ($I_{\text{аниз}} \sim \lambda^{-4} V \varphi_1(\Delta\rho)$) можно утверждать, что $\varphi_1(\Delta\rho) \cdot \Delta\rho^{\delta-1} \rightarrow 0$ при $\Delta\rho \rightarrow 0$. Если $\varphi_1(\Delta\rho)$ вовсе не имеет особенностей в КТ, то в интервале $\rho_c + \rho_0 < \rho < \rho_c - \rho_0$ из данных $\Delta(\rho)$ в области $\tau \ll \Delta\rho^{1/\beta}$ (окрестность критической изотермы) определяется критический индекс δ и масштабная функция изотермической сжимаемости $\beta_T = \Delta\rho^{1-\delta} g_1(\tau/\Delta\rho^{1/\beta})$. В интервале плотностей $\rho_c - \rho_0 < \rho < \rho_c + \rho_0$ на изотерме $T = T_0$ доминирующим становится рост деполяризованного двукратного рассеяния. С ростом τ , т. е. при переходе, например, на изотерму $T = T_1$ с $\tau_1 =$

$= (T_1 - T_c)/T_c \approx 4\tau_0$, указанный эффект возрастания Δ из-за двукратного рассеяния должен также наблюдаться, но в более узком интервале плотностей $\rho_c - \rho_1 < \rho < \rho_c + \rho_1$, причем по оценкам $\rho_1 \approx 0,1\rho_0$. По-видимому, в ^{37a} не ставилась задача контролировать $\Delta(\rho)$ при столь малых отклонениях плотности от критической.

Близкий к ^{37a} результат был получен в ³⁸ при изучении высотной зависимости коэффициента деполяризации $\Delta(z)$ в *n*-пентане с учетом гравитационного эффекта. Экспериментальные данные, полученные для пяти различных длин волн, представлены на рис. 7. Немонотонное изменение $\Delta(z)$ авторы объясняют конкуренцией двух вкладов — двукратного рассеяния и, в отличие от ^{37a}, не $I_{\text{аниз}}$, а $I_{\text{фл}}$ ⁷⁷. Тогда вблизи изотермы ($\tau^B \ll z^* = \rho_c g_0(z - z_c)/p_c$, g_0 — ускорение свободного падения, p_c — критическое давление, z_c — уровень с $\rho = \rho_c$) при $q_0 r_c \ll 1$ из (3.3) с учетом (2.10) и (2.13) следует, что $\Delta = c_1 z^{*\nu/\beta\delta} + c_2 z^{*(1-\delta)/\delta}$, где $\nu/\beta\delta \approx 0,4$, $(1-\delta)/\delta \approx -0,8$, c_1 — константа, не зависящая от λ^4 , а $c_2 \sim L_0/\lambda^4$. С увеличением λ преобладающим в Δ является вклад рассеяния $I_{\text{фл}}$, что может в принципе объяснить особенности температурной и плотностной (высотной) зависимостей Δ в области $q_0 r_c \ll 1$. Проведенная в ³⁹ обработка данных $\Delta(z)$ из ³⁸ показала, что величина $I_{y,\text{фл}}^{xx}/I_y^{xx} = (\Delta_1(z^*)\lambda_1^4 - \Delta_2(z^*)\lambda_2^4)/(\lambda_1^4 - \lambda_2^4) \sim z^{*0,40 \pm 0,06}$, где $\Delta_i(z^*)$ — значения коэффициента деполяризации, измеренные для $\lambda_1 = 435,8$ нм и $\lambda_2 = 632,8$ нм. Полученный результат хорошо согласуется как с теоретическими предсказаниями ⁵⁹, так и с экспериментальными данными ⁸⁰ для зависимости $r_c(z^*)$, определяющей отношение $I_{y,\text{фл}}^{xx}/I_y^{xx} \sim r_c^{-1} \sim z^{*\nu/\beta\delta}$ вдоль критической изохоры.

3) Зависимость Δ и I_2 от линейных размеров рассеивающего объема. Полученные к настоящему времени экспериментальные данные согласуются с важными следствиями теории двукратного рассеяния ²¹⁻²⁵ — зависимость интенсивности от четвертой

Рис. 8. Зависимость коэффициента деполяризации от длины кюветы для раствора нитробензол-*n*-гептан на изотерме $\Delta T = 0,16^\circ$ ⁷⁸.



степени линейных размеров ($I_2 \sim L_0^4$) и связанная с этим пропорциональность коэффициента деполяризации линейному размеру ($\Delta \sim L_0$) в области, где $I_{y2}^{xx}/I_{y1}^{xx} \ll 1$. Вопрос о том, что является характерным линейным размером рассеивающего объема, должен решаться с учетом реальной геометрии эксперимента. Так, $L_0 = R$ для сферического образца радиуса R , $L_0 \approx a$ для куба со стороной a ; для цилиндрического образца L_0 в общем случае зависит от радиуса основания и высоты.

Зависимость $\Delta \sim L_0$ была обнаружена экспериментально еще до создания современных теорий ²¹⁻²⁵ критической опалесценции. На рис. 8 представлена зависимость Δ от длины кюветы L_0 , измеренная в ⁷⁸ для раствора нитробензол-*n*-гептан при $\Delta T = 0,16^\circ\text{C}$. Возрастание Δ при малых $L_0 < 5$ мм объясняется автором ростом кратности рассеяния, а приблизительное постоянство Δ при $L_0 > 5$ мм — установлением глубинного режима, связанного с достижением многократным рассеянием своего максимального значения.

После появления работы ²¹ измерения $\Delta(L_0)$ стали целенаправленными. Проведенное в ²⁶ исследование деполаризованного рассеяния света в смеси нитробензол-гексан вблизи КТ расслаивания показало, что при $h = 0$ (цилиндры на рис. 4 перекрываются) $\Delta \sim d$, где d — диаметр лазерного пучка. Практически одновременно с ²⁶ были выполнены измерения

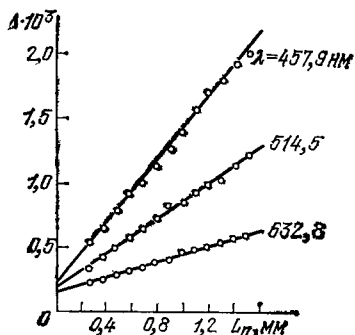


Рис. 9. Зависимость коэффициента деполаризации в Хе от высоты цилиндрического образца для разных длин волн ²⁷.

²⁷ $\Delta(L_0)$ в Хе, подтвердившие пропорциональность Δ высоте цилиндра L_0 (рис. 9). В соответствии с теоретическими предсказаниями $\Delta \sim L_0 \beta_T / \lambda^4$ при $q_0 r_c \ll 1$ (в эксперименте ²⁷ это неравенство выполняется, так как $T - T_c \approx 0,5$ К), наклон зависимости $\Delta(L_0)$ уменьшался с ростом λ . Теория ²¹ предсказывает рост производной $\partial \Delta / \partial L_0 \sim \beta_T$, что проявлялось в эксперименте ²⁷ для $T - T_c \gtrsim 0,15$ К. При меньших $T - T_c$ теория ²¹ и эксперимент ²⁷ не согласуются. Заметим, что учет ³³ двукратного поляризованного рассеяния обеспечивает наблюдаемое в ²⁷ уменьшение наклона зависимости $\partial \Delta / \partial L_0$ от $T - T_c$.

Детальные измерения зависимости $\Delta(L_0)$ в CO_2 при $\rho \approx \rho_c$ были предприняты в ^{35a}. В ходе эксперимента варьировалась высота рассеивающего объема ($L_{01} = 0,7$ мм, $L_{02} = 2,1$ мм, $L_{03} = 2,8$ мм), облучаемого го-

ризонтальным пучком перпендикулярно направлению гравитационного поля. Сравнение теоретических следствий, справедливых для $\tau > 10^{-4}$, и опытных данных представлено в табл. I.

Удобной переменной, описывающей расстояние до КТ, является введенная в ³⁶ величина $D = \{k_0^4 [(\epsilon - 1)(\epsilon + 2)/12\pi]^2 k_B T \beta_T\}^{-1}$, имеющая

Таблица I

Величина	Теория	Эксперимент
$\Delta_{01} : \Delta_{02} : \Delta_{03}$	1 : 3 : 4	0,683 : 1,803 : 2,752 ($\Delta T = 0,2084^\circ$) 0,960 : 3,139 : 4,390 ($\Delta T = 0,1227^\circ$) 2,971 : 8,579 ($\Delta T = 0,0318^\circ$) 0,648 : 1,674 ($\Delta T = 0,0722^\circ$)
$\Delta_{01} : \Delta_{02}$	1 : 3	

размерность длины. С учетом связи r_c и β_T через интеграл сжимаемости соотношение между Δ и D универсально для различных веществ при заданной геометрии эксперимента. В ³⁶ была изучена зависимость $\Delta(D)$ в Хе, дополнившая измерения ³⁵. Для $L_0 = 1,69$ мм в области $0,1 \text{ м} < D < 10 \text{ м}$ определяющим являлось двукратное рассеяние, причем $\Delta = (1/4) \pi D^{-1} h$, что с точностью до множителя ($D^{-1} = \sigma_0/2$) совпадает с результатами ^{27, 28}. Вплоть до $D \gtrsim 0,1 \text{ м}$ ($T - T_c \gtrsim 0,2$ К) поправка на ослабление (см. п. г) гл. 4) была пренебрежимо малой. При $D > 10 \text{ м}$ основной вклад в Δ давало $I_{\text{аниз}}$, при $D < 0,1 \text{ м}$ необходимо принимать во внимание рассеяния высших кратностей.

В заключение раздела обсудим вкратце два вопроса.

Первый из них в настоящее время приобретает дискуссионный характер и связан с конкурирующей относительных вкладов $I_{\text{фл}}^{xz}/I_1^{xx}$ и $I_{\text{аниз}}^{xz}/I_1^{xx}$ по отношению к I_{y2}^{xz}/I_1^{xx} в области минимума коэффициента деполаризации, когда еще $q_0 r_c \ll 1$. Элементарный анализ на основании (3.3) линии мини-

мумов $\tau_{\min} = \tau_{\min}(\lambda)$ на критической изохоре позволяет рассмотреть следующие предельные случаи: 1) $I_{\text{аниз}}^{xz} \ll I_{\text{фл}}^{xz}$, $\tau_{\min}(\lambda) \sim \lambda^{-8/3\gamma}$; 2) $I_{\text{аниз}}^{xz} \gg I_{\text{фл}}^{xz}$, $\tau_{\min}(\lambda) \sim \lambda^{-4/(2\gamma-n)}$, где n — показатель возможной температурной зависимости $I_{\text{аниз}} \sim \varphi(\tau) \sim \tau^{-n}$. Проведение экспериментального исследования спектральной зависимости $\tau_{\min}(\lambda)$ представляется весьма полезным для выяснения того, какой из вкладов в деполяризованное рассеяние ($I_{\text{аниз}}^{xz}$, или $I_{\text{фл}}^{xz}$, или оба) конкурирует с I_2^{xz} в области $\Delta = \Delta_{\min}$. В случае, если $I_{\text{фл}}^{xz}$ и $I_{\text{аниз}}^{xz}$ одного порядка, необходим более детальный анализ системы трех уравнений (3.3) для различных экспериментальных значений $\Delta(\tau)$. Аналогичное исследование может быть проведено для линии минимумов $\tau_{\min} = \tau_{\min}(L_0)$: 1) $I_{\text{аниз}}^{xz} \ll I_{\text{фл}}^{xz}$, $\tau_{\min}(L_0) \sim \sim L_0^{2/3\gamma}$; 2) $I_{\text{аниз}}^{xz} \gg I_{\text{фл}}^{xz}$, $\tau_{\min}(L_0) \sim L_0^{1/(2\gamma-n)}$. Экспериментальные данные $\Delta(L_0)$ ²⁷, представленные на рис. 5, указывают скорее всего на реализацию второй возможности (обработка графиков дает $n \lesssim 0$).

Еще один вопрос связан с использованием в экспериментах по определению деполяризации рассеянного света в плотных газах⁸¹ и вблизи КТ^{37б} величины $\tilde{\Delta} = I_{xx}^x/I_{yy}^x$, т. е. отношения полных интенсивностей рассеянного света, наблюдаемого параллельно и перпендикулярно направлению поляризации падающего излучения. В той области τ и $\Delta\rho$, где можно пренебречь рассеяниями кратности $i > 2$, $\tilde{\Delta} = \Delta(1 + \Delta_1)/(1 + \Delta)$. Значения поляризационного отношения³³ $\Delta_1 = I_{xx}^{xz}/I_{xy}^{xz}$ заключены в интервале $\Delta_1(q_0^2 r_c^2 \rightarrow 0) = 1 < \Delta_1 < \Delta_1(q_0^2 r_c^2 \rightarrow \infty) = 1,589$. В области $10^{-5} < \tau < 10^{-2}$ величина $\Delta_1 \approx 1$. Так, для $q_0^2 r_c^2 = 1$, что соответствует $\tau \approx \approx 10^{-4}$ при $\lambda = 5 \cdot 10^{-5}$ см, $\Delta_1 \approx 1,08$. Поскольку типичное значение $\Delta_{\text{экс}} < 0,1$, то величина $\tilde{\Delta}_{\text{экс}}$ должна быть приблизительно в два раза больше $\Delta_{\text{экс}}$. Сравнение расчетов Δ ³³ с результатами работ³⁷ по измерению $\tilde{\Delta}$ показывает их совпадение по порядку величины, подтверждая тем самым указанный интервал изменения поляризационного отношения Δ_1 .

4. РАССЕЯНИЯ ВЫСШИХ КРАТНОСТЕЙ

а) Полный коэффициент многократного рассеяния

Остановимся вначале на критическом поведении слагаемых в (2.6), ответственных за «интерференционные» эффекты. Зависимость их интенсивностей от характерного размера L_0 рассеивающего объема такова⁴¹: $I_{\text{интер}} \sim \langle [E_i, H_j^*] \rangle \sim L_0^{2i-j+2}$, $i \neq j$. Может показаться, что $\langle [E_2, H_0^*] \rangle$, $\langle [E_0, H_2^*] \rangle$ и $\langle [E_3, H_1^*] \rangle$, $\langle [E_1, H_3^*] \rangle$ дают в общую интенсивность многократного рассеяния тот же вклад, что и $\langle [E_1, H_1^*] \rangle$, $\langle [E_2, H_2^*] \rangle$, определяющие соответственно «чистое» однократное и двукратное рассеяния. Основанием для такого утверждения является тот факт, что $\langle [E_1, H_1^*] \rangle$, $\langle [E_2, H_0^*] \rangle$ и $\langle [E_0, H_2^*] \rangle$ связаны с КФ G_2 , а $\langle [E_2, H_2^*] \rangle$, $\langle [E_3, H_1^*] \rangle$ и $\langle [E_1, H_3^*] \rangle$ — с КФ G_4 . Однако оценки^{21, 22} показывают, что как перечисленные «интерференционные» эффекты, так и полуторакратное рассеяние $I_{3/2} \sim \sim \langle [E_2, H_1^*] \rangle$, $\langle [E_1, H_2^*] \rangle$, содержащее КФ G_3 , дают пренебрежимо малые вклады в интенсивность многократного рассеяния.

Для исследования рассеяний высших кратностей в (2.6) введем полный коэффициент многократного рассеяния

$$R = \sum_{i \geq 1} R_i, \quad R_i = \frac{I_i L^2}{I_0 V}. \quad (4.1)$$

Коэффициент рассеяния i -й кратности R_i определен здесь по аналогии с коэффициентом однократного рассеяния¹⁰. Общие формулы (2.2), (2.3) для рассеянных полей в статическом случае дают для величины R_i следующее рекуррентное соотношение⁴⁶:

$$R_i(\sigma, \sigma_0) = L_0 \int_{\sigma_{i-1}} R_1(\sigma, \sigma_{i-1}) R_{i-1}(\sigma_0, \sigma_{i-1}) d\sigma_{i-1}, \quad (4.2)$$

$$R_1(\sigma, \sigma_{i-1}) = \frac{\pi^2}{\lambda^4} \left(\rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T G_2(q_i) \left(1 - \frac{(\mathbf{n}_i \mathbf{m}_{i-1})^2}{|\mathbf{m}_{i-1}|^2} \right). \quad (4.3)$$

Из (4.1), (4.2) следует, в частности, что $R_i \sim L_0^{i-1}$, $I_i \sim V L_0^{i-1}$.

Учитывая (4.2), легко заметить, что выражение (4.1) является итерационным решением интегрального уравнения

$$R(\sigma, \sigma_0) = R_1(\sigma, \sigma_0) + L_0 \int_{\sigma'} R_1(\sigma, \sigma') R(\sigma', \sigma_0) d\sigma', \quad (4.4)$$

которое имеет следующее замкнутое решение:

$$R(\sigma, \sigma_0) = \sum_{n \geq 0} \frac{B_{0n} Y_n^0(\sigma)}{1 - L_0 B'_{0n}} + \frac{1}{2} \sum_{n \geq 2} \frac{B_{2n} [Y_n^2(\sigma) + Y_n^{-2}(\sigma)]}{1 - L_0 B'_{0n}}; \quad (4.5)$$

здесь

$$B'_{mn} = \left(\frac{4\pi}{2n+1} \right)^{1/2} B_{mn}, \quad B_{mn} = \int_{\sigma} R_1(\sigma, \sigma_0) Y_n^{*m}(\sigma) d\sigma$$

— коэффициенты разложения R_1 из (4.3) по сферическим функциям $Y_n^m(\sigma)$. Формула (4.5) дает возможность находить различные характеристики многократного рассеяния (индикатрису, коэффициент экстинкции и т. п.) по заданной КФ G_2 флуктуаций параметра порядка. Отметим, что из (4.5) непосредственно следует критерий

$$k_1 L_0 < 1 \quad (k_1 = B'_{00}) \quad (4.6)$$

применимости итерационной процедуры к уравнению (4.4).

б) Коэффициент экстинкции многократного рассеяния. Соотношения между различными кратностями

Коэффициент экстинкции многократного рассеяния

$$K = \int_{\sigma} R(\sigma, \sigma_0) d\sigma \quad (4.7)$$

с учетом (4.5) определяется выражением

$$K = \frac{k_1}{1 - k_1 L_0}. \quad (4.8)$$

Этот же результат может быть получен непосредственно из (4.7), (4.1) и (4.2), согласно которым

$$K = \sum_{i \geq 1} k_i = k_1 + k_1^2 L_0 + k_1^3 L_0^2 + \dots \quad (4.9)$$

Суммирование ряда в (4.9) при условии (4.6) приводит к формуле (4.8).

Из (4.9) вытекает соотношение между вкладами в K рассеяний последовательных кратностей

$$\frac{k_{i+1}}{k_i} = k_1 L_0, \quad i = 1, 2, \dots \quad (4.10)$$

При $k_1 L_0 \ll 1$ из (4.8) следует, что экспериментально определяемой величиной является коэффициент экстинкции однократного рассеяния k_1 . В общем же случае на опыте находится отнюдь не k_1 , а коэффициент экстинкции K многократного рассеяния. Из (4.8) и (4.10) получаем $k_{i+1}/k_i = KL_0/(1 + KL_0)$, что дает возможность определять относительные вклады последовательных кратностей на основании экспериментальной величины K .

Для конкретных расчетов коэффициента экстинкции K воспользуемся заданием КФ G_2 в приближении ОЦ. В этом случае для k_1 получаем известное выражение (см., например, ^{19,82})

$$k_1 = 2\pi^2 \frac{\tilde{\alpha}}{\tilde{\delta}} \left[\frac{1 + 2\tilde{\delta} + 2\tilde{\delta}^2}{\tilde{\delta}^2} \ln(1 + \tilde{\delta}) - \frac{2(1 + \tilde{\delta})}{\tilde{\delta}} \right],$$

где $\tilde{\alpha} \sim \beta_T/\lambda^4$, $\tilde{\delta} = q_0^2 r_c^2$. Коэффициенты B_{0n} и B_{2n} , входящие в формулу (4.5), вычислены в ⁴⁶. Логарифмическая особенность k_1 в КТ ($\tilde{\delta} \sim r_c^2 \rightarrow \infty$) приводит, вообще говоря, к нарушению критерия (4.6). В табл. II приведены результаты расчета величины $k_1 L_0/s$ ⁴⁶, которые показывают, что

Таблица II

$(q_0 r_c)^2$	10^{-3}	10^{-2}	10^{-1}	$2 \cdot 10^{-1}$	$3 \cdot 10^{-1}$
$-\lg \tau$	2,001	2,801	3,601	3,842	3,982
$k_1 L_0/s$	$8,372 \cdot 10^{-3}$	$8,295 \cdot 10^{-2}$	$7,641 \cdot 10^{-1}$	1,412	1,976
$(q_0 r_c)^2$	1,0	2,0	3,0	4,0	5,0
$-\lg \tau$	4,401	4,642	4,782	4,882	4,960
$k_1 L_0/s$	4,691	7,008	8,604	9,834	10,841
$(q_0 r_c)^2$	$4 \cdot 10^{-1}$	$5 \cdot 10^{-1}$	$6 \cdot 10^{-1}$	$7 \cdot 10^{-1}$	$8 \cdot 10^{-1}$
$-\lg \tau$	4,082	4,160	4,223	4,227	4,323
$k_1 L_0/s$	2,476	2,926	3,336	3,713	4,061
$(q_0 r_c)^2$	6,0	7,0	8,0	9,0	10,0
$-\lg \tau$	5,023	5,077	5,123	5,164	5,201
$k_1 L_0/s$	11,700	12,439	13,097	13,689	14,226
$(q_0 r_c)^2$	11,0	12,0	13,0	14,0	15,0
$-\lg \tau$	5,234	5,277	5,312	5,338	5,358
$k_1 L_0/s$	14,719	15,439	16,197	16,989	17,819

при реалистическом значении параметра $s = 0,1$, введенного в (3.5), критерий (4.6) нарушается ($k_1 L_0 = 1$) при $q_0 r_c \approx 2$, что соответствует температурному отклонению $\tau \approx 10^{-4,9}$ на критической изохоре. При этом же значении s вклады однократного рассеяния и рассеяний всех остальных кратностей сравниваются ($k_1 L_0 = 1/2$) для $q_0 r_c \approx 1,1$ ($\tau \approx 10^{-4,45}$) и, наконец, приближение однократного рассеяния оказывается пригодным с приемлемой точностью ($k_{i+1}/k_i \lesssim 0,1$, $\sum_{i \geq 2} k_i/k_1 \lesssim 11\%$) для всех $\tau \gtrsim 10^{-3,7}$.

в) Эксперименты по изучению рассеяний высших кратностей

В ³⁵⁶ было сделано утверждение об экспериментальном наблюдении трехкратного рассеяния вдоль критической изохоры в Хе. В области $0,02 \text{ К} < T - T_c < 0,1 \text{ К}$ температурная зависимость коэффициента деполаризации $\Delta(\tau)$ описывалась показателем степени $-2,45 \pm 0,05$,

что совпадает с теоретическим значением -2γ для показателя температурной зависимости отношения I_{y3}^{xz}/I_{y1}^{xz} . Была получена также немонотонная зависимость Δ от высоты L_0 рассеивающего объема. С учетом трехкратного рассеяния, для которого $I_3 \sim L_0^5$, эта зависимость может быть описана формулой ³³

$$\Delta(\tau, L_0) \approx (a\tau^{-\gamma}L_0 + b\tau^{-2\gamma}L_0^2) / (1 + a_1\tau^{-\gamma}L_0 + b_1\tau^{-2\gamma}L_0^2) \quad (4.11)$$

$$(q_0^2 r_c^2 \ll 1),$$

где последние слагаемые в числителе и знаменателе представляют соответственно I_{y3}^{xz}/I_{y1}^{xz} и I_{y3}^{xx}/I_{y1}^{xx} . Из (4.11) следует, однако, что обнаружение вклада трехкратного рассеяния по зависимости $\Delta(\tau)$ требует специальной обработки экспериментальных данных, поскольку наряду с ростом деполяризованного рассеяния с приближением к КТ возрастает также и доля рассеяний высших кратностей в поляризованной компоненте интенсивности.

Корректная методика выделения двукратного рассеяния и рассеяний высших кратностей из общей интенсивности рассеянного света при критической опалесценции была разработана и применена в ^{29в}. Суть ее сводится к 1) теоретическому расчету двукратного рассеяния по формулам ^{29б}, учитывающим реальную геометрию эксперимента (см. рис. 4), с использованием критических индексов γ , ν и параметров a_0 , $B = R_1/(qr_c)^2$, найденных из данных по интенсивности однократного рассеяния $I_1(\tau, \theta)$; 2) вычитанию из экспериментальных данных $I_{\text{экс}}(\tau, \theta)$ для каждого угла рассеяния θ теоретического значения $I_2(\tau, \theta)$ и отысканию тем самым интенсивности I_p всех кратностей выше второй; 3) экстраполяции $I_p(h)$ к $h = 0$; 4) исключению из $I_{\text{экс}}(h = 0)$ вкладов $I_2(h = 0)$ и $I_p(h = 0)$ для всех τ и получению исправленной интенсивности $I_1(\tau, \theta, h = 0)$; 5) нахождению нового набора γ , ν , a_0 , B и проведению итерационной процедуры до самосогласования значений этих индексов и параметров. Табл. III иллюстрирует зависимость γ , ν , a_0 , B от числа итераций для изученной в ^{29в} системы нитробензол-гексан вблизи критического состояния расслаивания. Учет многократного рассеяния приводит к уменьшению γ , a_0 , B *) и увеличению ν .

Таблица III

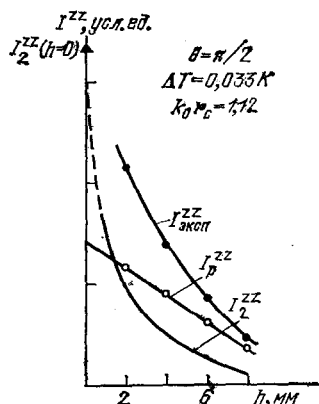
Номер итерации	a_0 , Å	ν	γ	B , см ⁻¹
1	3,25	0,589	1,225	0,321
2	2,79	0,619	1,210	0,287
3	2,72	0,622	1,213	0,294
Окончательные значения	$2,7 \pm 0,2$	$0,62 \pm 0,02$	$1,21 \pm 0,02$	$0,29 \pm 0,02$

На рис. 10, 11 представлены результаты применения разработанной в ^{29в} методики выделения I_2^{zz} и I_p^{zz} из $I_{\text{экс}}^{zz}$. При $k_0 r_c \approx 2$ суммарный вклад двукратного рассеяния и рассеяний высших кратностей сравнивается с однократным (рис. 11). Авторами была изучена также угловая зависимость $I_2^{zz}(\theta)$ и $I_p^{zz}(\theta)$ (рис. 12). Помимо отмеченного ^{19,22,23,83} факта боль-

*) Изменение величины B , связанной с коэффициентом рассеяния R_1 , показывает, как уменьшается абсолютная интенсивность однократного рассеяния при последовательном учете рассеяний высших кратностей. Этот же результат непосредственно следует из соотношений (4.1), (4.4) и (4.9).

шей плавности $I_2(\theta)$ по сравнению с $I_1(\theta)$, интересным является то, что относительная величина многократного рассеяния возрастает с увеличением угла рассеяния.

Рис. 10. Измеренная интенсивность $I_{\text{эксп}}^{zz}$, рассчитанные интенсивности двукратного I_2^{zz} и многократного I_p^{zz} рассеяний для системы нитробензол-гексан вблизи критического состояния расслоения для разных расстояний h между облучаемым и регистрируемым объемами ^{29a} (см. также рис. 4).



Близкие к ^{29b}, ^{35b}, ⁴⁶ оценки области, где существенны эффекты многократного рассеяния, были получены в ^{43a} при экспериментальном исследовании Δ в смеси метанол-циклогексан: при $k_0 r_c < 0,6$ пригодно

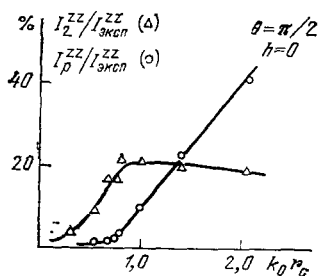


Рис. 11. Относительные вклады двукратного и многократного рассеяний в измеренной интенсивности $I_{\text{эксп}}^{zz}$ при $h = 0^{29a}$.

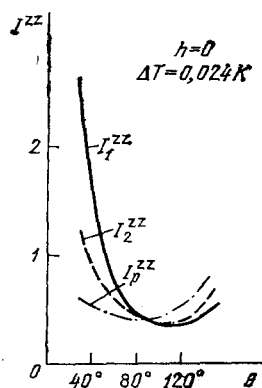


Рис. 12. Угловые зависимости рассеяний различных кратностей в поляризованной компоненте ^{29a}.

приближение однократного рассеяния ($k_0 r_c = 0,6$, $I_2/I_1 \approx 15\%$), при $0,6 \leq k_0 r_c \leq 0,8$ следует принимать во внимание одно- и двукратное рассеяния, а при $k_0 r_c > 0,8$ — рассеяния высших кратностей.

г) Учет ослабления, показатель преломления в критической области

Стандартный метод учета ослабления интенсивности светового пучка, прошедшего в среде расстояние длиной l , основан на применении известного закона Бугера — Ламберта

$$I(l) = I_0 \exp(-k l). \quad (4.12)$$

Обратная длина затухания k' обычно отождествляется в отсутствие собственного поглощения с коэффициентом экстинкции однократного рассеяния k_1 . Основанием для (4.12) является оптическая теорема^{4,17,18}, связывающая k_1 с мнимой частью показателя преломления n :

$$k_1 = 4\pi \operatorname{Im} n/\lambda. \quad (4.13)$$

Наличие мнимой части n и оценка ее величины вблизи КТ приведены в^{84,85} (для некритической области обсуждение этого вопроса содержится, например, в^{2-4,18,47}). В исследованиях^{84,85} были получены дополнительные (к лорентц-лоренцеву) вклады в n , связанные с учетом двухчастичных и более старших корреляций. Аналитически эти вклады выражаются через интегралы от произведения пропагаторов \hat{T}_{ij} электромагнитного поля и частичных статистических функций распределения F_{i+j} , аналогичные тем, которые возникают в микроскопическом подходе при описании многократного рассеяния.

Учет парных корреляций, формально эквивалентный приближению однократного рассеяния, приводит к следующему выражению для показателя преломления вблизи КТ:

$$n = n_{\text{ЛЛ}} + F(kr_c); \quad (4.14)$$

здесь $n_{\text{ЛЛ}}$ — лорентц-лоренцево значение n , критическое поведение которого определяется параметром порядка. Например, для системы жидкость — пар на кривой сосуществования

$$n_{\text{ЛЛ}} = n_c \pm B_0 |\tau|^\beta + B_1 |\tau|^{1-\alpha} \pm B_2 |\tau|^{\beta+\Delta'} + o(|\tau|^m, m \geq 1), \quad (4.15)$$

где $\alpha \approx 0,11$, $\Delta' \approx 0,5$ — критические индексы, верхние знаки соответствуют $\rho > \rho_c$, а нижние — $\rho < \rho_c$. Корреляционный вклад $F(kr_c)$ характеризуется асимптотиками

$$\operatorname{Re} F(kr_c) \sim \begin{cases} a_0 r_c k^2 & \text{при } kr_c \ll 1, \\ a_0 r_c^{-1} + a_0 r_c^{-3} k^{-2} & \text{при } kr_c \gg 1, \end{cases} \quad (4.16a)$$

$$\operatorname{Im} F(kr_c) \sim \int G_2(r) dr \sim \begin{cases} \tau^{-\gamma} & \text{при } kr_c \ll 1, \\ \text{const} & \text{при } kr_c \gg 1. \end{cases} \quad (4.16b)$$

Из (4.14)–(4.16) следует, что показатель преломления в КТ — константа, тогда как производная $\partial n/\partial \tau$ имеет «слабую» особенность типа $|\tau|^{-\alpha}$. Аналогичная особенность $(\partial n/\partial \rho)_T \sim |\Delta \rho|^{-\alpha/\beta}$ должна иметь место на критической изотерме. Формула (4.16b) определяет $\operatorname{Im} n$ в соответствии с оптической теоремой.

Включение в рассмотрение более старших, чем парные, корреляций приводит к уточнению связи $\operatorname{Im} n$ и k_1 , даваемой оптической теоремой (4.13). В связи с этим возникает необходимость связать экспериментальный параметр в (4.12) — обратную длину затухания k' — с коэффициентом экстинкции K многократного рассеяния. Для этой цели, пренебрегая поверхностными эффектами, запишем следующее уравнение баланса⁴⁶:

$$\sigma I_0 = \sigma I(l) + I_0 VK,$$

где σ — сечение падающего (прошедшего) пучка. Учитывая (4.12), находим

$$k' = -l'^{-1} \ln \left(1 - \frac{VK}{\sigma} \right). \quad (4.17)$$

При $k'l \ll 1$ из (4.17) вовсе не следует, что $k' = k_1$. Действительно, при $k'l \ll 1$ и $\sigma l/V = 1$ $k' = K$. Только при выполнении неравенства $KL_0 \ll$

$\ll 1$ из (4.8) имеем $K = k_1$, и обратная длина затухания в (4.12) есть коэффициент экстинкции однократного рассеяния: $k' = k_1$. В общем же случае, когда $\sigma l/V \neq 1$, из (4.10) и (4.17) можно оценить отношение k_{i+1}/k_i по экспериментальной величине k' и геометрическим факторам l , σ , V и L_0 . Отметим, что зависимость обратной длины затухания k' не только от термодинамических переменных, но и от геометрических факторов, указывает на наличие высших кратностей рассеяния.

В расчетах ^{21-23, 27} характеристик двукратного рассеяния вблизи КТ учет ослабления не проводился. В аналогичных расчетах ^{24, 25, 29} фактор ослабления принимался во внимание в приближении, основанном на формуле (4.12) с $k' = k_1$, что, как отмечалось выше, эквивалентно учету однократного рассеяния. Очевидно, что подобное включение фактора ослабления соответствует увеличению кратности рассеянного излучения. Так, учет множителя $\exp(-k_1 l)$ при расчете однократного рассеяния требует одновременного рассмотрения неослабленного двукратного рассеяния. Более того, как отмечалось в ^{28, 47, 86}, последовательным в этом случае является разложение экспоненты в ряд с сохранением линейного слагаемого. Другими словами, для аппроксимации $I_{\text{эрсп}}$ в приближении двукратного рассеяния следует использовать формулу $I_{\text{эрсп}} = I_1 - k_1 I_1 + I_2$ ($k' = k_1$), справедливую для углов $\theta \neq 0$.

5. ВЛИЯНИЕ МНОГОКРАТНОГО РАССЕЯНИЯ НА СПЕКТР КРИТИЧЕСКОЙ ОПАЛЕСЦЕНЦИИ

а) С п е к т р о д н о к р а т н о г о р а с с е я н и я

Спектр рассеянного света содержит чрезвычайно обширную информацию о равновесных и кинетических свойствах исследуемого вещества ^{10, 87-89}. Основная специфика динамики флуктуаций в критической области — увеличение времени релаксации — определяет особенности спектра критической опалесценции, которые хорошо изучены теоретически и экспериментально в приближении однократного рассеяния ^{5, 6, 14-16, 53, 90-94}.

Гидродинамическая теория предсказывает, что ширины Γ_c и $\Gamma_{\text{МБ}}$ центральной (рэлеевской) и боковых (мандельштам-бриллюэновских) компонент триплета однократного рассеяния, а также частотный сдвиг $\Delta\Omega_{\text{МБ}}$ зависят от коэффициентов теплопроводности λ , сдвиговой $\tilde{\eta}$ и объемной ζ вязкостей, теплоемкостей c_p , c_v и скорости звука v :

$$\Gamma_c = \frac{\lambda(q)}{\rho c_p(q)} q^2, \quad \Gamma_{\text{МБ}} = \left[\left(\frac{4}{3} \tilde{\eta}(q) + \zeta(q) \right)^{-1} \rho + \frac{\lambda(q)}{\rho c_v(q)} - \frac{\lambda(q)}{\rho c_p(q)} \right] q^2, \quad (5.1)$$

$$\Delta\Omega_{\text{МБ}} = v(q) q.$$

В бинарной смеси $\Gamma_c = \tilde{L}(q) \chi^{-1}(q) q^2 = D(q) q^2$, где \tilde{L} — онзагеровский коэффициент, χ — восприимчивость, равная $(\partial\rho/\partial p)_{T, \mu-\mu_1-\mu_2}$ или $(\partial x/\partial \mu)_{p, T}$ вблизи КТ парообразования или расслаивания, D — коэффициент диффузии.

Для правильной интерпретации экспериментальных данных по спектру критической опалесценции обязательным является учет фоновых (back-ground) частей кинетических коэффициентов ^{16, 53, 92, 94}. В той области, где фоновые части λ^b , \tilde{L}^b превосходят их сингулярные части $\lambda^s(q)$, $\tilde{L}^s(q)$, увеличение времени релаксации t_c (сужение $\Gamma_c = t_c^{-1}$) полностью определяется сильно расходящимися равновесными свойствами c_p , χ : $\Gamma_c^b = \lambda^b q^2 (1 + q^2 r_c^2)/\rho c_p$ ($q=0$) — в однокомпонентной жидкости, $\Gamma_c^b = \tilde{L}_c^b \chi^{-1}(q=0) q^2 (1 + q^2 r_c^2)$ — в бинарной смеси. Экстра-

поляция гидродинамической формулы для Γ_c на КТ, где $\lambda^s \sim \tau^{-\nu} \gg \lambda^b$ и $\tilde{L}^s \sim \tau^{-\nu} \gg \tilde{L}^b$, приводит к не столь сильному сужению центральной линии: $\Gamma_c \sim \tau^\nu$ при $\rho = \rho_c$ и $\Gamma_c \sim \Delta\rho^{\nu/\beta}$ при $T = T_c$. Этот результат следует из простых соображений, основанных на соотношении Стокса — Эйнштейна: $D = k_B T / 6\pi\tilde{\eta}r_c$.

Поведение компонент Мандельштама — Бриллюэна в критической области определяется особенностями скорости и затухания звуковых волн. Фоновая часть $v^b(\omega \rightarrow 0) \sim (c_V^b)^{-1/2}$ не имеет особенностей. Сингулярная часть $v^s(\omega \rightarrow 0) \sim \tau^{\alpha/2} f_v(\Delta\rho/\tau^\beta)$, где $f_v(x \rightarrow 0) = \text{const.}$ Убывание скорости звука, приводящее к уменьшению частотного сдвига $\Delta\Omega_{MB}$, должно проявляться лишь на частотах $\omega \ll \omega_p$. Частота релаксации $\omega_p = \lambda/\rho c_p r_c^2$ быстро уменьшается с приближением к КТ, в результате чего должна наблюдаться дисперсия скорости звука $v(\omega)$. В близкой окрестности КТ, где вклад Γ_{MB}^b мал, рост затухания звуковых волн и соответственно уширение компонент Мандельштама — Бриллюэна определяются преимущественно сингулярной частью объемной вязкости: $\Gamma_{MB}^s \approx \Gamma_{MB}^s \sim \xi^s \sim \tau^{-(3\nu+\alpha)} f_\xi(\Delta\rho/\tau^\beta)$, где $3\nu + \alpha = 2$, $f_\xi(x \rightarrow 0) = \text{const.}$ При этом дисперсия скорости звука $v(\omega)/v(0) - 1 = (\omega/2\rho v^2(0)) \text{Im}\xi^s(\omega)$ и затухание на длине звуковой волны $\alpha(\omega) = (\pi\omega/\rho v(0)) \text{Re}\xi^s(\omega)$ должны быть (с точностью до слабо зависящего от T и ρ множителя) универсальными функциями приведенной частоты $\omega^* = \omega/2\omega_p$. Экспериментальное подтверждение указанных особенностей поведения компонент Мандельштама — Бриллюэна было получено при использовании методик, основанных на спектроскопии оптического смешения^{18,95}. Перспективным является также проведение ультразвуковых исследований⁵³.

Основное внимание при исследовании спектра критической опалесценции уделяется быстро растущей центральной компоненте. Из соотношения Ландау — Плачека $I_c/2I_{MB} \sim \tau^{-\gamma+\alpha}$ ($q \rightarrow 0$, $\Delta\rho \ll \tau^\beta$) видно, что с приближением к КТ, например, на декаду (по величине τ) $I_c/2I_{MB}$ возрастает на порядок ($\gamma - \alpha \approx 1,1$). Естественно, что учет пространственной дисперсии флуктуаций должен привести к большому, но конечному значению $I_c/2I_{MB}$ ($q \neq 0$) в КТ. Для изучения ширины Γ_c , характеризующей частоту релаксации флуктуаций параметра порядка, развито несколько вариантов динамической теории критических явлений: теории связанных^{96,97} и несвязанных^{98,99} мод и их модификации¹⁰⁰⁻¹⁰⁴, динамическая капельная модель^{105,106}. Учет межмодовой связи (наиболее важной является связь флуктуаций параметра порядка и вязкой моды) приводит к следующему результату для Γ_c^s :

$$\Gamma_c^s = \frac{k_B T}{6\pi\tilde{\eta}^* r_c^3} K_0(qr_c), \quad (5.2)$$

где $\tilde{\eta}^*$ — «высокочастотная» сдвиговая вязкость, а $K_0(x) = (3/4) [1 + x^2 + (x^3 - x^{-1}) \arctg x]$. При $qr_c \ll 1 \lim_{x \rightarrow 0} K_0(x) = x^2$, и результат для $\Gamma_c^s = Dq^2$ согласуется с гидродинамической теорией (см. 5.1)). В негидродинамической области ($qr_c \gg 1$) $\lim_{x \rightarrow \infty} K_0(x) = (3\pi/8) x^3$, что дает значение $\Gamma_c^s = (k_B T / 16\tilde{\eta}^*) q^3$, не зависящее от r_c и, следовательно, от τ и $\Delta\rho$.

В модифицированной теории связанных мод¹⁰⁰⁻¹⁰² были дополнительно учтены следующие факторы: связь $\tilde{\eta}^{*-1} = R(qr_c) \tilde{\eta}^{-1}$ между «высокочастотной» $\tilde{\eta}^*$ и макроскопической $\tilde{\eta}$ сдвиговыми вязкостями; поправка $C(qr_c) = \Gamma_c^s(G_{ФБ}, qr_c) / \Gamma_c^s(G_{оц}, qr_c)$, описывающая отклонение КФ

с $\eta \neq 0$ ¹⁰⁷ от КФ (2.8); «вершинная» поправка $\tilde{V}(qr_c)$, являющаяся следствием более точного, чем в ⁹⁶, решения уравнения типа Дайсона для флуктуаций параметра порядка. Множитель $H(qr_c) = R(qr_c) C(qr_c) \tilde{V}(qr_c)$, появившийся в (5.2), плавно возрастает от значения $H \approx 1,1$ при $qr_c = 0,1$ до $H \approx 1,3$ при $qr_c = 10$.

Близкий, но не эквивалентный ^{96,97} подход к описанию динамики критических явлений был развит в теории несвязанных мод ^{98,99}. Решая совместно систему двух уравнений для Γ_c и $\tilde{\eta}$ методом итераций с учетом ряда упрощающих предположений (факторизация КФ тензоров натяжений при использовании флуктуационно-диссипационной теоремы для вязкости, введение «дебаевского» обрезывающего волнового вектора q_D при вычислении интегралов по \mathbf{q} , пренебрежение «вершинной» поправкой $\tilde{V}(qr_c)$), авторы получили следующее выражение для Γ_c^s :

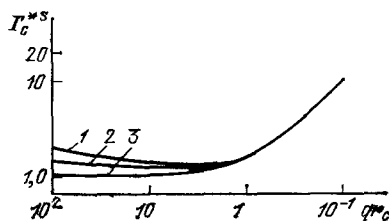
$$\Gamma_c^s = \frac{k_B T}{6\pi\tilde{\eta}_{\text{эф}}\Gamma_c^s} K_0(qr_c) C(qr_c), \quad (5.3)$$

где $\tilde{\eta}_{\text{эф}} = \tilde{\eta}^b + (8\tilde{\eta}/15\pi^2) [\ln(q_D r_c) - \frac{1}{2}(1 + q^2 r_c^2) + \tilde{\tau}(qr_c)]$ — «эффективная» сдвиговая вязкость, $\tilde{\tau}(qr_c)$ — протабулированная функция, а $\tilde{\eta}$ — подгоночный параметр в аппроксимационной формуле ^{5, 99}

$$\Gamma_c^s = \frac{k_B T}{16\tilde{\eta}r_c} q^2 (1 + q^2 r_c^2)^{1/2}, \quad (5.4)$$

хорошо описывающей экспериментальные данные и используемой в качестве нулевого приближения для нахождения $\tilde{\eta}^s$.

Рис. 13. Зависимость «масштабной» ширины Γ_c^{s*} центральной линии от параметра qr_c в различных динамических теориях критических явлений ^{43a}.



Сходная с (5.4) дисперсионная зависимость Γ_c используется в динамической капельной модели ^{105, 106}, согласно которой

$$\Gamma_c = \tilde{\gamma} \frac{k_B T}{6\pi\tilde{\eta}^b r_c} q^2 \sqrt{1 + q^2 r_c^2}, \quad (5.5)$$

где $\tilde{\gamma}$ — множитель порядка единицы, характеризующий нелоренцеву (в отличие от теории ⁹⁶⁻¹⁰⁴) форму контура центральной линии.

На рис. 13 ^{43a} представлена зависимость безразмерной «масштабной» ширины $\Gamma_c^{s*} = 6\pi\tilde{\eta}\Gamma_c^s/k_B T q^3$ для теории связанных мод (кривая 1), теории несвязанных мод (кривая 2) и динамической капельной модели (кривая 3). В гидродинамической области ($qr_c \ll 1$) все теории дают практически совпадающий результат: $\Gamma_c^{s*} = 1/(qr_c)$. В негидродинамической области ($qr_c \gg 1$) проявляется различие. Эксперименты по изучению Γ_c в индивидуальных жидкостях и жидких смесях в области $1 \lesssim qr_c \lesssim 10$ лучше согласуются в одних случаях (Хе, анилин-циклогексан, 3-метил-пентан-нитроэтан) с теорией связанных мод, в других (вода-изобутиловая кислота) — несвязанных мод ^{16,92, 94}. Расхождение между

этим теориями, однако, не превышает 10% при $qr_c \gg 1$. С предсказаниями динамической капельной модели экспериментальные данные по измерению $\Gamma_c(qr_c)$ согласуются хуже. При $\tilde{\gamma} = 1$ расхождение теории и эксперимента достигает иногда десятков процентов¹⁰⁸. Тем не менее, рассматривая $\tilde{\gamma}$ как подгоночный параметр, можно обеспечить удовлетворительное согласие эксперимента и с этой теорией.

Отметим ряд важных проблем динамики критических явлений, которые продолжают привлекать внимание экспериментаторов и теоретиков.

1) Динамический критический индекс. В динамической масштабной теории^{14,15,91} ширина Γ_c определяется формулой $\Gamma_c = \tilde{q}^2 f_\Gamma(qr_c)$. Одной из основных задач теории и эксперимента является установление значения динамического критического индекса \tilde{z} .

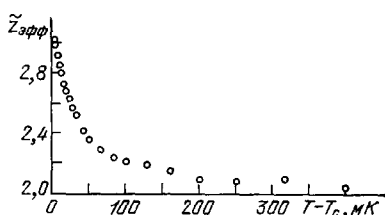


Рис. 14. Температурная зависимость эффективного динамического критического индекса⁹⁴.

Важным, в частности, является ответ на вопрос — связан ли \tilde{z} с индексами статической масштабной теории или это новый критический индекс? Вдали от КТ, где $\Gamma_c^b \gg \Gamma_c^s$, $\tilde{z} = 2$, или $\tilde{z} = 2 - \eta$ в зависимости от того, используется приближение ОЦ или масштабно-инвариантная форма для КФ G_2 . В близкой окрестности КТ в пренебрежении Γ_c^b (в экспериментах $\Gamma_c^b \ll \Gamma_c^s$ практически не осуществляется), как следует из (5.2)–(5.5), $\tilde{z} = 3$. Такое значение \tilde{z} соответствует дополнительному предположению о слабой логарифмической (или полном отсутствии) расходимости вязкости $\tilde{\eta}^s$ в КТ. На самом деле (см. ^{15,94,104}) сдвиговая вязкость имеет слабую степенную особенность $\tilde{\eta}^s \sim r_c^x \tilde{\eta}$ для $x_{\tilde{\eta}} = 0,065$. Этот результат подтверждают экспериментальные исследования^{94,109}, согласно которым $x_{\tilde{\eta}} = 0,0635 \pm 0,0004$. Поэтому для динамического критического индекса \tilde{z} в жидкостях имеем $\tilde{z}_{\text{теор}} = 3 + x_{\tilde{\eta}} = 3,065$ и $\tilde{z}_{\text{эксп}} = 3,063 \pm \pm 0,024$ для смеси 3-метил-пентан-нитроэтан¹⁰⁹. Температурная зависимость $\tilde{z}_{\text{эфф}}$ из⁹⁴, показывающая плавный переход от $\tilde{z} = 2$ к $\tilde{z} \approx 3,06$, приведена на рис. 14. В системах, принадлежащих другому классу универсальности, \tilde{z} может быть, естественно, иным. Зависимость \tilde{z} от размерности параметра порядка, пространственной размерности, а также от того, является полный параметр порядка сохраняющейся или несохраняющейся величиной, обсуждается в^{14,91}.

2) Динамическая масштабная функция. Существующие варианты динамической теории критических явлений предсказывают различные масштабные функции $f_\Gamma(qr_c)$. Согласно теории связанных мод $f_\Gamma(x) \sim x^3 K_0(x) H(x)$. В теории несвязанных мод $f_\Gamma(x) \sim (\tilde{\eta}/\tilde{\eta}_{\text{эфф}}) x^{-3} K_0(x) C(x)$, вообще говоря, не является универсальной функцией $x = qr_c$, поскольку $\tilde{\eta}_{\text{эфф}}$ зависит не только от qr_c , но и просто от r_c . В динамической капельной модели $f_\Gamma(x) \sim (\tilde{\eta}/\tilde{\eta}^b) x^{-1} (1 + x^2)^{1/2}$. Точная структура динамической масштабной функции $f_\Gamma(qr_c)$ необходима для проверки привлекательной гипотезы об универсальности кинетических явлений вблизи КТ и точек фазовых переходов II рода.

3) РГ в динамике критических явлений. Коэффициент диффузии D , определяемый экспериментально по ширине линии Рэля в бинарных смесях, удовлетворяет соотношению $D = \lim_{x \rightarrow 0} \Gamma_c(x) q^{-2} = R k_B T / \eta r_c$, где численный коэффициент $R = 1/6\pi$ в теориях связанных и несвязанных мод. Вместе с тем проведенные в ¹¹⁰ РГ расчеты критической динамики показали, что $R \approx 1,2/6\pi = 1/5\pi$. Такое значение R соответствует соотношению Стокса — Эйнштейна для сферической капли радиуса r_c , движущейся в среде, вязкость которой совпадает с вязкостью жидкости самой же капли ¹¹¹. Увеличение на 20% значения константы R можно было бы связать с множителем $H(x)$, появляющимся в формуле (5.2) в негидродинамической области. Однако в гидродинамической области, где $H(x \rightarrow 0) \approx 1$, такое различие становится заметным и требует объяснения. Ряд экспериментов обнаружили $R \approx 1,2/6\pi$, более поздние исследования Γ_c дали результаты, согласующиеся с теорией связанных мод (см. ⁹⁴). В частности, в ¹⁰⁹ проводились независимые измерения $\tilde{\eta}$ и Γ_c с учетом фоновых вкладов и привлекались данные для r_c из измерений ¹¹² интегральной интенсивности светорассеяния в смеси 3-метил-пентан-нитроэтан. Это дало $R = (1,02 \pm 0,06)/6\pi$.

4) Переходная функция для сдвиговой вязкости. При нахождении \tilde{z} , $f_\Gamma(x)$ и R возникает задача определения переходной функции для сдвиговой вязкости, учитывающей соотношение между ее фоновой и критической частями. В ¹⁰³ эта задача решалась в рамках теории связанных мод, но с включением в рассмотрение Γ_c^b . Это обстоятельство, не учтенное в ⁹⁶⁻¹⁰², следует принимать во внимание, так как основной вклад в интеграл для $\tilde{\eta}^s$ дают большие волновые векторы q , при которых $\Gamma_c^b \sim q^4$, а $\Gamma_c^s \sim q^3$. Уточненная переходная функция для $\tilde{\eta}$ была определена недавно в ¹⁰⁴ методом теории несвязанных мод, т. е. при введении обрезающего волнового вектора q_D с одновременным учетом Γ_c^b по ¹⁰³. Полученные в ¹⁰⁴ результаты находятся в хорошем количественном согласии с экспериментальными данными для вязкости азота ¹¹³ и водяного пара ¹¹⁴.

5) Влияние искажающих факторов. Искажающие идеальное критическое поведение факторы (см. п. 2в) могут оказывать существенное влияние и на спектр критической опалесценции. В частности, высотная зависимость $\Gamma_c(z)$ в гравитационном поле изучалась в ^{92,108,115,116}. В ¹⁰⁸ были проведены измерения $\Gamma_c(z)$ в CO_2 при $T - T_c = 10^{-3}^\circ\text{C}$ (рис. 15). Результаты измерений лучше всего согласуются с теорией несвязанных мод (нижняя кривая, среднеквадратичная ошибка 2,73%). Хуже согласие с теорией связанных мод (ошибка 7,95%). При этом остается неясным происхождение «клюва» в расчетах $\Gamma_c(z)$. Расхождение с динамической капельной моделью велико (верхняя кривая, ошибка 33,95% при $\tilde{\gamma} = 1$), однако при $\tilde{\gamma} = 0,8$ величина ошибки снижается до 2,24%.

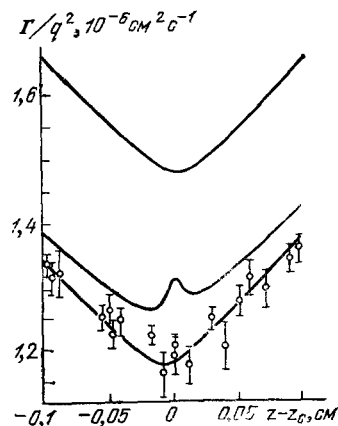


Рис. 15. Высотная зависимость ширины $\Gamma_c(z)$ центральной линии в гравитационном поле ¹⁰⁸.

б) Расчеты спектра двукратного рассеяния

Как и в статическом случае, свойства старших ПВКФ флуктуаций параметра порядка, определяющих особенности спектра многократного рассеяния, мало изучены в критической области. Большинство выполненных к настоящему времени расчетов ⁴⁰⁻⁴³ спектров высших кратностей проведены в приближении некогерентности последовательных процессов переизлучения, т. е. с использованием асимптотических формул, выражающих старшие ПВКФ четных порядков через парную $G_2(r_1, t_1; r_2, t_2)$. Более точные результаты, пригодные в негидродинамической области, могут быть, по-видимому, получены при помощи многоиндексных флуктуационно-диссипационных теорем, подобных той, которая устанавливает связь трехиндексной восприимчивости и тернарной ПВКФ ^{117, 118}. Заметим, что связанный с ПВКФ G_3 и имеющий форму триплета ^{24, 41, 119, 120} спектр полуторакратного рассеяния дает пренебрежимо малый вклад в динамическое рассеяние.

В ⁴¹ спектр двукратного рассеяния при критической опалесценции был изучен в гидродинамическом приближении. Для этого применялся динамический структурный фактор $G_2(k, k', \omega)$, полученный в ¹²¹ из гидродинамических уравнений, учитывающих неоднородность среды во внешнем поле и все необходимые в критической области эффекты пространственно-временной дисперсии (пространственную дисперсию величины $(\partial p / \partial \rho)_T$ ^{122, 123} и пространственно-временную дисперсию ядер переноса ¹²⁴). Для задания температурных и полевых особенностей коэффициентов гидродинамических уравнений были использованы результаты динамической теории критических явлений ⁹¹⁻⁹⁹ и теории гравитационного эффекта ⁶⁰. В пренебрежении эффектами памяти (временной дисперсии) в ядрах переноса парная ПВКФ имеет структуру «трехполюсника» с корнями

$$\omega^{(1)} = -i \operatorname{Im} \varphi(q), \quad \omega^{(2,3)} = \pm \operatorname{Re} f(q) - i \operatorname{Im} f(q), \quad (5.6)$$

$$\operatorname{Im} \varphi = q^2 \left[\left(\frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_T + B_\rho q^2 \right] \left[\left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_\rho \left(\left(\frac{\partial e}{\partial \rho} \right)_T + h \right) (\lambda^{-1}(z, \tau) + B_\lambda q^2) \right]^{-1}, \quad (5.7a)$$

$$\operatorname{Re} f = q \sqrt{\left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_\rho} \sqrt{\left[\left(\frac{\partial e}{\partial \rho} \right)_T + h \right] [c_V^{-1}(z, \tau) + B_c q^2]}, \quad (5.7b)$$

$$\operatorname{Im} f = \frac{1}{2} q^2 \left[(\zeta^{-1}(z, \tau) + B_\zeta q^2)^{-1} + \left(\frac{3}{4\eta}(z, \tau) + B_\eta q^2 \right)^{-1} - \frac{\operatorname{Im} \varphi}{q^2} \right]. \quad (5.7b)$$

В (5.7) использованы стандартные обозначения ¹⁰. Слагаемые $B_i q^2$ добавлены к исчезающим в КТ величинам для учета пространственной дисперсии.

В результате вычисления ⁴¹ характеристик спектра двукратного рассеяния в гидродинамическом приближении было показано, что Γ_{c2} , Γ_{MB2} , $\Delta\Omega_{MB2}$ имеют такую же температурную, но и более плавную угловую зависимости по сравнению соответственно с Γ_{c1} , Γ_{MB1} , $\Delta\Omega_{MB1}$. Так, Γ_{c2} , $\Gamma_{MB2} \sim q$ и в пределе нулевого угла рассеяния стремятся к нулю медленнее, чем Γ_{c1} , $\Gamma_{MB1} \sim q^2$. Из соотношения ⁴¹

$$\frac{\Gamma_{c1}}{\Gamma_{c2}} = \frac{\Gamma_{MB1}}{\Gamma_{MB2}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 - \cos \theta} \quad (5.8)$$

следует вывод о дополнительном уширении компонент спектра в процессе многократного рассеяния. Однако это уширение незначительно — например, $\Gamma_{c2} = \sqrt{2} \Gamma_{c1}$ при $\theta = \pi/2$. Аналогичное (5.8) соотношение $\Gamma_{c2}(\theta = \pi) = \Gamma_{c1}(\theta = \pi) = 2\Gamma_{c1}(\theta = \pi/2)$ было получено ¹²⁵ для то-

чечных частиц, совершающих броуновское движение. Этот результат был использован в ^{43а} для оценки $\Gamma_{cn} = n\Gamma_{c1} (\pi/2)$ уширения центральной компоненты при n -кратном рассеянии света в такой системе и для качественных соображений по поводу влияния многократного рассеяния на величину Γ_c в реальных средах вблизи КТ.

В ⁴⁰ на основе динамической масштабной гипотезы было проведено сравнение вкладов в двукратное рассеяние, связанных как с «чистым» рассеянием, так и с «интерференционными» эффектами. В частности, учет всех диаграмм, в которых ПВКФ G_4 представляется произведением двух ПВКФ G_2 , дает для ширины центральной компоненты Γ_{c2} оценку, совпадающую по порядку величины с Γ_{c1} : $\Gamma_{c2} \sim \tilde{q}^2$ при $qr_c \gg 1$.

В ⁴² при вычислении спектральной интенсивности $I_2(\omega)$ двукратного рассеяния для центральной компоненты использовалось задание $\Gamma_c(q_i, r_c)$ ($i = 1, 2$) спектра каждого независимого, по предположению, акта рассеяния формулой (5.2). Считая спектр однократного рассеяния лоренцевым, вклад двух последовательных актов рассеяния с соответствующими переданными волновыми векторами q_1 и q_2 в спектральную интенсивность представлялся также лоренцевой формой

$$L(q_1, q_2, \omega, r_c) = \frac{\Gamma_c(q_1, r_c) + \Gamma_c(q_2, r_c)}{[\Gamma_c(q_1, r_c) + \Gamma_c(q_2, r_c)]^2 + \omega^2}. \quad (5.9)$$

Полная спектральная интенсивность двукратного рассеяния получена интегрированием (5.9) по облучаемому V_1 и наблюдаемому V_2 объемам:

$$I_2(\omega, r_c) = \int_{V_2} dV_2 \int_{V_1} dV_1 S(q_1, r_c) S(q_2, r_c) f(q_1, q_2) e^{-h_1 l} L(q_1, q_2, \omega, r_c), \quad (5.10)$$

где $S(q_i, r_c) = r_c^2 / (1 + r_c^2 q_i^2)$ — статический структурный фактор, $f(q_1, q_2)$ — множитель, характеризующий поляризацию падающего и рассеянного излучений и связанный с матрицей дипольного рассеяния, h_1 — коэффициент экстинкции однократного рассеяния в приближении ОЦ. Интегрирование в (5.10) проводилось с учетом реальной геометрии рассеивающего объема в форме прямоугольника и цилиндра. Один из основных результатов численного расчета $I_2(\omega, r_c)$ для смеси нитробензол- n -гексан ⁴² заключается в том, что спектр поляризованного двукратного рассеяния в широком температурном интервале $10^{-5} \leq \tau \leq 10^{-2}$ может быть аппроксимирован (с точностью 5%) следующей формулой:

$$I_2(\omega, r_c) = I_2(r_c) L(\omega/\Gamma_0(r_c)); \quad (5.11)$$

здесь $I_2(r_c)$ — интегральная интенсивность, а функция $L(\omega/\Gamma_0(r_c))$ представляется суммой двух лоренцианов соответственно с полуширинами $\frac{7}{3}\Gamma_0$ и $\frac{2}{3}\Gamma_0$, что указывает на нелоренцев характер спектра.

Еще одно подтверждение нелоренцевости спектра двукратного рассеяния получено в ⁴⁴. Для цилиндрической геометрии, изученной в ²⁸, без использования факторизации четырехточечной ПВКФ G_4 , предполагая, однако, малость полного двукратного рассеяния в КТ, авторы показали, что

$$\ln I(t) = \ln I_0 - (1 + \varepsilon C_1)\Gamma_{c1}t + \varepsilon C_2 F(\Gamma_{c1}t) (\Gamma_{c1}t)^2;$$

здесь $\ln I_0 = \ln I_1 + I_2/I_1$ (I_2 вычислена в ²⁸), $\varepsilon = 4\pi r_0 B$, r_0 — радиус цилиндра, $B = \sigma_0 (k_0 r_c)^{-2}$, а величины C_n связаны с $(\Delta\Gamma/\Gamma_{c1})^n$, $\Delta\Gamma = \Gamma_{c2} - \Gamma_{c1}$. Таким образом, эффекты двукратного рассеяния проявились в изменении наклона (второе слагаемое) и кривизны (третье слагаемое) зависимости $\ln I(t)$. Величина этих изменений определяется кон-

кретными значениями ε , C_1 , C_2 , F . В самой КТ при поляризации падающего света вдоль высоты цилиндра $C_1 = C_1^\perp = -0,07\gamma^{*-1}(\ln \gamma^* - 2,2)$, $C_2 = C_2^\perp = 1,12\gamma^{*-1}(\ln \gamma^* + 0,13)$, где $\gamma^* = 2r_0/L_0$, L_0 — высота цилиндра. Функция $F(\Gamma_{c1}t)$ мало отличается от единицы: $|F - 1| \leq 0,25$. Предложенная в ⁴⁴ методика учета поправок на двукратное рассеяние в спектре критической опалесценции была использована недавно в ⁹⁴.

в) Экспериментальные исследования спектров многократного рассеяния

Отметим вначале исследования ^{126,127}, в которых было уделено внимание влиянию многократного рассеяния на спектр критической опалесценции и в которых, однако, это влияние не было обнаружено. Одна из причин связана со стремлением как раз избежать заметного вклада многократного рассеяния. Для этой цели в ¹²⁷ было ограничено приближение к КТ по температуре, что снизило рассеивающую способность вещества (правда, ценой информации, необходимой для более точного определения a_0 , ν и η), а также уменьшены длина пути луча в среде и диаметр апертуры детектора. Роль последнего фактора была изучена экспериментально в ⁴⁵. При возрастании диаметра приемной апертуры от 0,2 до 1 мм доля многократного рассеяния в общей интенсивности

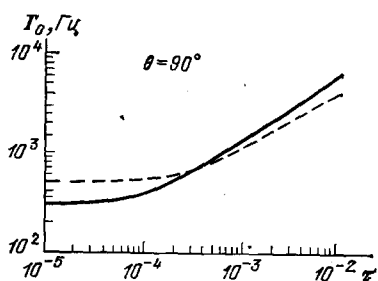


Рис. 16. Температурная зависимость эффективной ширины Γ_0 центральной линии двукратного рассеяния в смеси нитробензол-н-гексан ⁴².

рассеянного света в CO_2 при $\Delta T = 2 \cdot 10^{-3} \text{ K}$ увеличивалась от 20% до 62%. Другой результат ⁴⁵, носящий качественный характер и подтверждающий расчет ⁴¹: ширина центральной компоненты спектра многократного рассеянного света в CO_2 оказалась менее чувствительной к углу рассеяния, чем $\Gamma_{c1}(\theta)$.

Целенаправленное изучение роли многократного рассеяния в экспериментальных исследованиях динамики флуктуаций вблизи КТ было предпринято в ^{42, 43а}.

Методом спектроскопии оптического смещения в ⁴² изучалось крити-

ческое поведение смеси нитробензол-н-гексан при геометрии рассеивающего объема в виде прямоугольника $(2R, L, z)$ с $2R = L = 2 \text{ см}$ и $z = 0,125 \text{ см} \ll R, L$. Результаты эксперимента сравнивались с теоретическими расчетами при следующих значениях параметров, входящих в проинтегрированное выражение (5.10): $\lambda = 632,8 \text{ нм}$, $a_0 = 0,23 \text{ нм}$, $\nu = 0,63$, $\gamma = 1,22$, $T_c = 293,06 \text{ K}$, $\tilde{\eta}^* = 0,67 \text{ с} \cdot \text{Па}$, $(\partial n^2 / \partial c)(\partial c / \partial \mu)_0 = 2,36 \cdot 10^{-3} \text{ см}^3 \text{ Дж}^{-1}$ — величина, связанная с амплитудой восприимчивости смеси. Основные результаты, полученные в ⁴²: 1) форма контура рэлеевской компоненты является нелоренцевой в соответствии с (5.11); 2) экспериментальные данные хорошо согласуются с результатами расчета для интенсивности I_2 до $\tau \geq 10^{-4}$ и для эффективной ширины Γ_0 двукратного рассеяния во всем температурном интервале (рис. 16). Неожиданной является более сильная зависимость $\Gamma_0(\tau)$, чем $\Gamma_{c1}(\tau)$, и меньшее по сравнению с Γ_{c1} значение Γ_0 в области $\tau < 10^{-4}$. Разумное теоретическое объяснение этим фактам отсутствует. Привлекательной чертой полученных при разных τ спектров двукратного рассеяния является возможность их приведения друг к другу с помощью единой формулы (5.11).

Результаты ^{43а} позволили объяснить трудность экспериментального обнаружения влияния многократного рассеяния на ширину Γ_c . В ^{43а} было показано, что в области $k_0 r_c \gg 1$ отношение времен спада корреляции рассеянных полей для двукратного и однократного рассеяний $t_2/t_1 = \Gamma_{c1}/\Gamma_{c2}$ с приближением к КТ возрастает и стремится к величине, близкой к единице. На рис. 17 представлены зависимости отношений t_2/t_1 от $k_0 r_c$ для $\theta = 90^\circ$ в смеси метанол-циклогексан. Величина t_2 находилась из анализа временной зависимости корреляторов поляризованных и деполаризованных полей $\langle E_2^*(t) E_2(0) \rangle$. С помощью кумулянтного анализа спектров ¹²⁸ было установлено, что спектры двукратного рассеяния являются почти экспоненциальными в t -представлении (лоренцевыми в ω -представлении). Отклонение от экспоненциальности характеризуется малым отношением двух первых кумулянтов $K_2/K_1^2 \approx 0,07$. Сплошные линии на

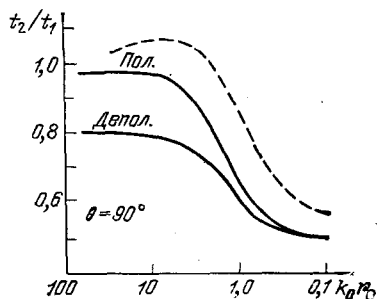


Рис. 17. Отношение времен спада корреляции двукратно и однократно рассеянных полей в зависимости от параметра $k_0 r_c$ для смеси метанол-циклогексан ^{43а}.

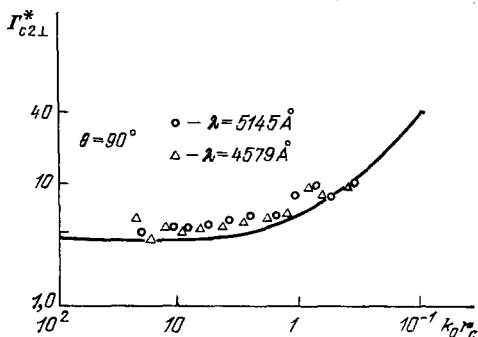


Рис. 18. Зависимость «масштабной» ширины Γ_{c2}^* центральной линии деполаризованного двукратного рассеяния от параметра $k_0 r_c$ ^{43а}.

рис. 17 характеризуют расчеты t_2/t_1 с учетом лишь первого кумулянта. Штриховая кривая соответствует оценке t_2 как того времени, для которого КФ $\langle E_2^*(t) E_2(0) \rangle$ уменьшается в e раз по сравнению со своим значением при $t = 0$. Рост отношения t_2/t_1 особенно выражен для существенно более интенсивной поляризованной компоненты двукратного рассеяния. Большие уширения при двукратном рассеянии наблюдаются при меньших $k_0 r_c$. При $k_0 r_c \gtrsim 8$ рост отношения Γ_{c1}/Γ_{c2} сравнительно невелик и не превышает 4% при $\theta = \pi/2$ и 40% при $\theta = \pi/6$. По мнению авторов, это указывает на то, что ширина Γ_c при многократном рассеянии будет не намного больше (конкретные оценки в ^{43а} не приведены) Γ_{c2} при $k_0 r_c \gg 1$.

В ^{43а} была исследована также ширина деполаризованной компоненты, в которую определяющий вклад при $k_0 r_c \gtrsim 1$ вносят двукратное и многократное рассеяния (рис. 18). Переход к масштабной ширине двукратного рассеяния $\Gamma_{c2}^* = 6\pi\tilde{\eta}^b \Gamma_{c2}/k_B T k_0^3$ аналогичен введению Γ_{c1}^* для спектра однократного рассеяния, с той лишь разницей, что для сдвиговой вязкости $\tilde{\eta}$ принято ее фоновое значение $\tilde{\eta}^b$ (в соответствии с используемой динамической капельной моделью). Экспериментальные данные для ширины деполаризованного рассеяния располагаются при $k_0 r_c \gtrsim 1$ несколько выше сплошной кривой, соответствующей теоретическим оценкам авторов ^{43б}. Это отклонение не превышает 20% и связывается с эффектами многократного рассеяния. Интересно отметить,

что для меньшего угла рассеяния $\theta = 30^\circ$, для которого в ^{43a} также проводились измерения $\Gamma_{c2\perp}^*$, вклад многократного рассеяния снижается. Данный результат согласуется с выводами об угловой зависимости эффектов многократного рассеяния, полученными в ^{29b} ^{41b}.

Проведенные в ^{43a} экспериментальные измерения ширины Γ_c^* всего (а не только деполяризованного) рассеянного света находятся в хорошем количественном согласии со значениями Γ_c^* , рассчитанными в динамической капельной модели в приближении однократного рассеяния при таком выборе варьируемых параметров: $\nu = 0,652$ (значение ν завышено по сравнению с наиболее достоверным $\nu = 0,63$ ⁵³), $a_0 = 0,241$ нм, $\tilde{\gamma} = 1,037$. Определение величины вкладов двукратного и многократного рассеяний в ширину Γ_c^* (qr_c) затруднено из-за сложности учета эффектов неэкспоненциальности спектра в близкой окрестности КТ ($T - T_c < 0,008^\circ\text{C}$ для исследуемой смеси метанол-циклогексан). Результат $\Gamma_{c2} < \Gamma_{c1}$ при $k_0 r_c > 1$, полученный в ⁴², в исследованиях ^{43a} не подтвердился.

В гидродинамической области ($k_0 r_c < 1$), как видно из рис. 17, отношение $t_2/t_1 \approx 0,6$ (по кумулянтным оценкам) и $t_2/t_1 \approx 0,7$ по оценкам, основанным на представлении о строгой экспоненциальности спектра. Для сравнения отметим, что в соответствии с (5.8) отношение $\Gamma_{c1}/\Gamma_{c2} \approx 0,7$ при $\theta = 90^\circ$, причем с уменьшением θ значение Γ_{c1}/Γ_{c2} по (5.8) снижается, в качественном согласии с экспериментом ^{43a}. Отличие отношения $t_2/t_1 = \Gamma_{c1}/\Gamma_{c2}$ от единицы, казалось бы, дает основание ожидать большое влияние двукратного и многократного рассеяний на спектр критической опалесценции в гидродинамической области, но там мала абсолютная величина интегральной интенсивности рассеяний высших кратностей.

Итак, несмотря на значительный, возрастающий с приближением к КТ вклад высших кратностей в интегральную интенсивность рассеянного света, первые экспериментальные исследования показали, что роль этих эффектов при измерении величины Γ_c сравнительно невелика. Вместе с тем именно эффекты многократного рассеяния являются причиной проявляющегося в эксперименте нелоренцева характера спектральной линии. Эти принципиальные выводы требуют новых подтверждений. Наиболее важным представляется изучение возможного влияния многократного рассеяния на величину динамического критического индекса \tilde{z} . Если все же эти эффекты существенны, то следует ожидать уменьшения \tilde{z} с приближением к КТ ($\tilde{z}_{\text{пред}} \rightarrow 0$), поскольку с ростом кратности зависимость всех характеристик рассеянного света от волнового вектора должна становиться все менее заметной.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Явление критической опалесценции света, известное уже более 100 лет, все шире используется для изучения особенностей физических свойств вблизи КТ. Этому способствует выяснение основных закономерностей рассеяний высших кратностей, проведение учитывающих реальные условия эксперимента надежных расчетов двукратного рассеяния, изучение его влияния на критические индексы. В большей степени сказанное относится к интегральной интенсивности и деполяризации рассеянного света. Для достижения полной ясности в вопросе о роли дву- и многократного рассеяний в спектре критической опалесценции необходимо проведение дополнительных прецизионных экспериментов и соответствующих им расчетов. Наиболее важным при этом является исследование

дование изменения вследствие эффектов многократного рассеяния ширины Γ_c центральной компоненты и, следовательно, динамического критического индекса \tilde{z} . Возрастание вклада многократного рассеяния при критической опалесценции должно приводить, по-видимому, к уменьшению эффективного значения \tilde{z} , поскольку с ростом кратности рассеяния зависимость $\Gamma_c(q)$ должна становиться менее выраженной (ламбертовской).

И наконец, еще один принципиальный вопрос — насколько близко к КТ можно считать вклад однократного рассеяния основным, адекватно описывающим экспериментальные данные, а вклады дву- и многократных рассеяний рассматривать как поправки? Проведенный в гл. 4 анализ сходимости итерационного ряда по кратностям для коэффициента экстинкции в «лестничном» приближении показывает, что такая традиционная ситуация нарушается при $q\Gamma_c \gtrsim 1$ и при значении параметра $s = 0,1$. При меньших s , что достигается, например, уменьшением линейного размера L_0 рассеивающего объема или множителя $(\partial\epsilon/\partial\rho)_T^2$ (в случае смеси связанного с разностью показателей преломления компонент), данный вывод остается в силе, правда, при больших (в ряде случаев пока недоступных в экспериментах) значениях $q\Gamma_c$. Потеря смысла первоначального борновского (рэлеевского) понятия кратности рассеяния требует последовательного применения к описанию критической опалесценции техники пересуммирования исходных рядов для полей и интенсивности рассеянного излучения, а также использования функциональных методов решения электродинамической задачи при негауссовской статистике флуктуаций параметра порядка.

Авторы признательны И. Л. Фабелинскому и участникам школы по молекулярному рассеянию света (Одесса, 1981) за внимание к обсуждаемым вопросам и полезные советы, которые в значительной степени способствовали написанию этого обзора.

Отделение нефтехимии
Института физико-органической химии и углехимии
АН УССР, Киев
Киевский государственный университет
им. Т. Г. Шевченко

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Розенберг Г. В. — УФН, а) 1959, т. 69, с. 57; б) 1967, т. 91, с. 569.
2. Татарский В. И. Распространение волн в турбулентной атмосфере. — М.: Наука, 1967.
3. Барабаненков Ю. Н. — УФН, 1975, т. 117, с. 49.
4. Рытов С. М., Кравцов Ю. А., Татарский В. И. Введение в статистическую радиофизику. Ч. II. — М.: Наука, 1978.
5. Паташинский А. З., Покровский В. Л. Флуктуационная теория фазовых переходов. — М.: Наука, 1975.
6. Вильсон К., Когут Д. ж. Ренормализационная группа и ϵ -разложение. — М.: Мир, 1975.
7. Smoluchowski M. — Ann. d. Phys., 1908, Bd. 25, S. 205.
8. Einstein A. — Ibid., 1910, Bd. 33, S. 1275.
9. Ornstein L., Zernike F. — Proc. Acad. Sci., Amsterdam, а) 1914, v. 17, p. 793; б) 1916, v. 18, p. 1520; в) 1917, v. 19, p. 1321.
10. Фабелинский И. Л. Молекулярное рассеяние света. — М.: Наука, 1965.
11. Гинзбург В. Л., Ландау Л. Д. — ЖЭТФ, 1950, т. 20, с. 1064.
12. Леванюк А. П. — ЖЭТФ, 1959, т. 36, с. 810.
13. Гинзбург В. Л. — ФТТ, 1960, т. 2, с. 2031.
14. Паташинский А. З., Покровский В. Л. — УФН, 1977, т. 121, с. 55.
15. Hohenberg P. C., Halperin B. I. — Rev. Mod. Phys., 1977, v. 49, p. 435.
16. Свинни Г. Л. — В кн. Спектроскопия оптического смещения и корреляция фотонов. — М.: Мир, 1978. — С. 332.

17. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. *Электродинамика сплошных сред*.— М.: Физматгиз, 1957.
18. Ньютон Р. *Теория рассеяния волн и частиц*.— М.: Мир, 1969.
19. Чалый А. В.— УФЖ, 1968, т. 13, с. 1159.
20. Чалый В. В.— Физ. жидк. состояния, 1980, вып. 8, с. 3.
21. Oxtoby D. W., Gelbart W. M.— J. Chem. Phys., 1974, v. 60, p. 3359.
22. Лакоза Е. Л., Чалый А. В.— ЖЭТФ, 1974, т. 67, с. 1050.
23. Oxtoby D. W., Gelbart W. M.— Phys. Rev., 1974, v. A10, p. 738.
24. Кузьмин В. Л.— Опт. и спектр., а) 1975, т. 38, с. 745; б) 1975, т. 39, с. 546.
25. Boots H. M. J., Bedeaux D., Mazur P.— а) Physica. Ser. A, 1975, v. 79, p. 397; б) Chem. Phys. Lett., 1975, v. 34, p. 197.
26. Аджемян Л. В. и др.— Письма ЖЭТФ, 1975, т. 22, с. 11.
27. Reith L. A., Swinney H. L.— Phys. Rev. Ser. A, 1975, v. 12, p. 1094.
28. Bray A. J., Chang R. F.— Ibid., p. 2594.
29. Аджемян Л. В. и др.— а) Опт. и спектр., 1979, т. 46, с. 976; ЖЭТФ, б) 1980, т. 78, с. 1051; в) 1981, т. 80, с. 551.
30. Кузьмин В. Л.— Опт. и спектр., а) 1976, т. 40, с. 552; б) 1978, т. 44, с. 529.
31. Boots H. M. J., Bedeaux D., Mazur P.— Physica. Ser. A, 1976, v. 84, p. 217.
32. Boots H. M. J.— Ibid., 1977, v. 87, p. 185.
33. Лакоза Е. Л., Чалый А. В.— ЖЭТФ, 1980, т. 79, с. 1200.
34. Beysens D., Bourgou A., Charlin H.— Phys. Lett. Ser. A, 1975, v. 53, p. 236.
35. Trapeniers N. J., Michels A. C., Huijser R. H.— Chem. Phys. Lett., а) 1975, v. 34, p. 192; б) 1977, v. 48, p. 31.
36. Trapeniers N. J. et al.— Ibid., 1979, v. 62, p. 203.
37. Garrabos Y., Tufeu R., Le Neindre B.— а) C.R. Ac. Sci. Ser. B, 1976, t. 282, p. 313; б) J. Chem. Phys., 1978, v. 68, p. 495.
38. Алёхин А. Д., Бурак В. И.— Опт. и спектр., 1980, т. 49, с. 749.
39. Алёхин А. Д.— Письма ЖЭТФ, 1981, т. 34, с. 108.
40. Кузьмин В. Л.— В кн. 1-й Всесоюзный симпозиум по акустооптической спектроскопии.— Ташкент: Фан, 1976.— С. 216.
41. Лакоза Е. Л., Чалый А. В.— а) Ibid., с. 223; б) ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 875.
42. Beysens D., Zalczer G.— Phys. Rev. Ser. A, 1977, v. 15, p. 765.
43. Sorensen C. M., Mockler R. C., O'Sullivan W. J.— а) Ibid., 1977, v. 16, p. 365; б) Opt. Comm., 1977, v. 20, p. 140.
44. Ferrel R. A., Bhattacharjee J. K.— Phys. Rev. Ser. A, 1979, v. 19, p. 348.
45. Kim D. M., Schroeter J. P., Kobayashi R.— В кн. *Нелинейная оптика: Труды VI Вавиловской конференции*.— Новосибирск, 1979.— С. 28.
46. Лакоза Е. Л., Чалый А. В.— ЖЭТФ, 1982, т. 82, с. 441.
47. Кросиньяни Б., Ди Порто П., Бертолотти М. *Статистические свойства рассеянного света*.— М.: Наука, 1980.
48. Немов Н. А.— Опт. и спектр., 1978, т. 45, с. 617.
49. Поляков А. М.— Письма ЖЭТФ, 1970, т. 12, с. 538.
50. Покровский В. Л.— Ibid., 1973, т. 17, с. 219.
51. Lebowitz J. L., Percus J. K.— Phys. Rev., 1961, v. 122, p. 1675.
52. Кунн Ф. М.— ДАН СССР, 1968, т. 179, с. 129.
53. Анисимов М. А.— УФН, 1974, т. 114, с. 249.
54. Лакоза Е. Л., Сысоев В. М., Чалый А. В.— ЖЭТФ, 1973, т. 65, с. 605.
55. Цыганов Н. Л., Чалый А. В.— ЖЭТФ, 1971, т. 61, с. 1605.
56. Скрипов В. П., Колпачков Ю. Д.— В кн. *Современные проблемы физической химии*.— М.: Изд-во Моск. ун-та, 1970.— Т. 5, с. 295.
57. Алёхин А. Д. и др.— Ibid.— С. 372.
58. Голик А. З. и др.— В кн. *Теплофизические свойства жидкостей*.— М.: Наука, 1976.— С. 17.
59. Чалый А. В., Алёхин А. Д.— ЖЭТФ, 1970, т. 59, с. 337.
60. Алёхин А. Д., Крупский Н. П., Чалый А. В.— ЖЭТФ, 1972, т. 63, с. 1417.
61. Иванов Д. Ю., Макаревич Л. А.— ДАН СССР, 1975, т. 220, с. 1103.
62. Иванов Д. Ю., Федянин В. К.— Препринт ОИЯИ Р4-8429.— Дубна, 1974.
63. Miller B. N., Splittorff O.— а) J. Opt. Soc. Am., 1972, v. 62, p. 1291; б) Phys. Rev., 1974, v. A9, p. 550.
64. Лакоза Е. Л., Чалый А. В.— Опт. и спектр., 1974, т. 37, с. 144.
65. Leung H. K., Miller B. N.— Phys. Rev. Ser. A, 1975, v. 12, p. 2162.
66. Wegner F. J.— Ibid. Ser. B, 1972, v. 5, p. 4529.

67. Берестов А. Т.— ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 348.
68. Чалый А. В.— Физ. жидк. состояния, 1982, вып. 10, с. 16.
69. Анисимов М. А. и др.— ЖЭТФ, 1979, т. 76, с. 1661.
70. Шиманская Е. Т. и др.— ЖЭТФ, 1981, т. 80, с. 274.
71. Анисимов М. А., Городецкий Е. Е., Запрудский В. М.— УФН, 1981, т. 133, с. 103.
72. Поляков А. М.— ЖЭТФ, 1969, т. 57, с. 271.
73. Маломуж Н. П., Олейник В. П., Фишер И. З.— ЖЭТФ, 1972, т. 63, с. 2336.
74. Атаходжаев А. К. и др.— Письма ЖЭТФ, 1973, т. 17, с. 95.
75. Вихренко В. С.— УФН, 1974, т. 113, с. 627.
76. Gelbart W. M.— Adv. Chem. Phys., 1974, v. 26, p. 1.
77. Андреев А. Ф.— Письма ЖЭТФ, 1974, т. 19, с. 713.
78. Беридзе Д. К.— Цит. в ⁵⁶ сб.— С. 323.
79. Колпаков Ю. Д., Скрипов В. П.— Опт. и спектр., а) 1968, т. 24, с. 249; б) 1970, т. 29, с. 761.
80. Алёхин А. Д.— ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 1880.
81. Triki A., Oksengorn B., Vodar B.— C.R. Ac. Sci. Ser. B, 1973, v. 277, p. 411.
82. Puglielli V. G., Ford N. C., Jr.— Phys. Rev. Lett., 1970, v. 25, p. 143.
83. Lavan M. J.— Opt. Comm., 1978, v. 26, p. 357.
84. Larsen S., Mountain R., Zwanzig J.— J. Chem. Phys., 1965, v. 42, p. 2187.
85. Nosken A., Stell G.— Phys. Rev. Ser. A, 1973, v. 8, p. 887.
86. Толпыго К. В., Чалый А. В.— УФЖ, 1968, т. 13, с. 1261.
87. Вукс М. Ф. Рассеяние света в газах, жидкостях и растворах.— Л.: Изд-во Ленингр. ун-та, 1977.
88. Келих С. Молекулярная нелинейная оптика.— М.: Наука, 1981.
89. Ахманов С. А., Коротеев Н. И. Методы нелинейной оптики в спектроскопии рассеяния света.— М.: Наука, 1981.
90. Стенли Г. Фазовые переходы и критические явления.— М.: Мир, 1973.
91. Ма III. Современная теория критических явлений.— М.: Мир, 1980.
92. Swinney H. L., Henry D. L.— Phys. Rev. Ser. A, 1973, v. 8, p. 2586.
93. Гинзбург В. Л., Леванюк А. П., Собянин А. А.— УФН, 1980, т. 130, с. 615.
94. Burstyn H. C., Sengers J. V.— Phys. Rev. Ser. A, 1982, v. 25, p. 448.
95. Фабелинский И. Л., Чистый И. Д.— УФН, 1976, т. 119, с. 485.
96. Kawasaki K.— а) Phys. Rev., 1966, v. 150, p. 291; б) Ann. Phys. (N.Y.), 1970, v. 61, p. 1.
97. Kadanoff L. P., Swift J.— Phys. Rev., 1968, v. 166, p. 89.
98. Ferrel R. A.— Phys. Rev. Lett., 1970, v. 24, p. 1169.
99. Perl R., Ferrel R. A.— а) Ibid., 1972, v. 29, p. 51; б) Phys. Rev. Ser. A, 1972, v. 6, p. 2358.
100. Kawasaki K., Lo S. M.— Phys. Rev. Lett., 1972, v. 29, p. 48.
101. Lo S. M., Kawasaki K.— Phys. Rev. Ser. A, 1973, v. 8, p. 2176.
102. Kawasaki K., Gunton J.— Ibid. Ser. B, 1976, v. 13, p. 4658.
103. Oxtoby D. W., Gelbart W. M.— J. Chem. Phys., 1974, v. 61, p. 2957.
104. Bhattacharjee J. K. et al.— Phys. Rev. Ser. A, 1981, v. 24, p. 1469.
105. Ackerson B. J. et al.— Phys. Rev. Lett., 1975, v. 22, p. 1371.
106. Sorensen C. M. et al.— Phys. Rev. Ser. A, 1976, v. 13, p. 1593.
107. Fisher M. E., Burford R. J.— Ibid., 1967, v. 156, p. 583.
108. Schroeter J. P., Kim D. M., Kobayashi R.— Ibid. Ser. A, 1979, v. 19, p. 2402.
109. Burstyn H. C., Sengers I. V., Esfandiari P.— Ibid., 1980, v. 22, p. 282.
110. Siggia E. D., Halperin B. I., Hohenberg P. C.— Ibid. Ser. B, 1976, v. 13, p. 2110.
111. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Механика сплошных сред.— М.: Гостехиздат, 1953.
112. Chang R. F., Burstyn H. C., Sengers J. V.— Phys. Rev. Ser. A, 1979, v. 19, p. 866.
113. Зозуля В. Н., Благый Ю. П.— ЖЭТФ, 1974, т. 66, с. 212.
114. Рывкин С. Л., Левин А. Я., Израилевский Л. В.— В кн. Теплофизические свойства веществ и материалов.— М.: Изд-во стандартов, 1976.— Вып. 10.— С. 232.
115. Kim D. M., Henry K. L., Kobayashi R.— Phys. Rev. Ser. A, 1974, v. 10, p. 1974.

- 116. Leung H. K., Miller B. N.— Ibid., 1977, v. 16, p. 406.
- 117. Ефремов Г. Ф.— ЖЭТФ, 1968, т. 55, с. 2322.
- 118. Стратонович Р. Л.— ЖЭТФ, 1970, т. 58, с. 1612.
- 119. Ткаченко И. М., Фишер И. З.— ЖЭТФ, 1975, т. 69, с. 1092.
- 120. Ткаченко И. М.— Физ. жидк. состояния, 1977, вып. 5, с. 16.
- 121. Сысоев В. М., Чалый А. В.— ТМФ а) 1974, т. 18, с. 410; б) 1976, т. 26, с. 126.
- 122. Владимирский В. В.— ЖЭТФ, 1939, т. 9, с. 1226.
- 123. Felderhof B. U.— J. Chem. Phys., 1966, v. 44, p. 602.
- 124. Zubarev D. N., Tischenko S. V.— Physica, 1972, v. 59, p. 285.
- 125. Sorensen C. M., Mockler R. C., O'Sullivan W. J.— Phys. Rev. Ser. A, 1976, v. 14, p. 1520.
- 126. Volochine B., Berge P.— J. de Phys., 1970, t. 31, p. 819.
- 127. Theil D. et al.— J. Chem. Phys., 1975, v. 62, p. 3689.
- 128. Koppel D. E.— Ibid., 1972, v. 57, p. 4814.