

ОБНАРУЖЕНИЕ РАЗЛИЧНЫХ ФАЗ В ЖИДКОСТЯХ ПО СКОРОСТИ И ЗАТУХАНИЮ ГИПЕРЗВУКА ВБЛИЗИ ЗАМКНУТЫХ ОБЛАСТЕЙ РАССЛАИВАНИЯ РАСТВОРОВ

К. В. Коваленко^a, С. В. Кривохижса^a, И. А. Чабан^b, Л. Л. Чайков^{a}*

^aФизический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия

^bАкустический институт им. Н. Н. Андреева
117036, Москва, Россия

Поступила в редакцию 2 мая 2007 г.

Теоретический анализ показал, что экспериментальные данные, полученные в наших работах по распространению гиперзвука в растворе гвякол–глицерин вблизи замкнутой области расслаивания, двойной критической точки и особой точки, как и само их появление, удается объяснить существованием двух различных фаз (I и II) раствора с температурой фазового перехода T_0 . Температура T_0 совпадает и с температурой центров замкнутых областей расслаивания, и с двойной критической точкой, и с особой точкой. В фазе I (френкелевской) молекулы находятся в потенциальных ямах с глубиной, превышающей тепловую энергию молекулы, а в фазе II (газоподобной) тепловая энергия оказывается больше глубины потенциальной ямы. В нижней критической точке оказываются равными термодинамический потенциал фазы I и термодинамический потенциал расслоившегося раствора. В верхней критической точке оказываются равными термодинамический потенциал фазы II и термодинамический потенциал расслоившегося раствора. Наблюдавшийся широкий купол коэффициента поглощения гиперзвука вблизи T_0 удается объяснить вкладом, связанным с флуктуациями параметра порядка, соответствующего переходу из фазы I в фазу II. Получают также объяснение различие температурных коэффициентов скорости гиперзвука по разные стороны от T_0 и ряд других эффектов.

PACS: 62.80.+f, 62.60.+v, 43.35.+d, 64.75.+g, 64.60.-i

1. ВВЕДЕНИЕ

В твердых телах при изменении температуры и давления происходят переходы из одной фазы в другую. Каждая фаза характеризуется своим термодинамическим потенциалом с его характерной зависимостью от температуры, давления и других параметров. В газах подобных переходов нет: вещество находится в единственной возможной фазе. До сих пор считается, что в обычных жидкостях (жидкие кристаллы не рассматриваются) также отсутствуют фазовые переходы — отсутствуют различные фазы. Однако эксперименты по рассеянию света вблизи малой замкнутой области расслаивания, вблизи двойной критической точки и особой точки [1–5], описанные ниже, приводят к другому мнению. Це-

лый ряд эффектов, наблюдавшихся в этих экспериментах, как будет показано в настоящей работе, удается объяснить, если предположить существование различных фаз в жидкости. Это предположение относится как к однородным жидкостям, так и к растворам.

В последнее время вопрос о существовании различных фаз в жидкостях (о существовании фазовых переходов жидкость–жидкость) неоднократно обсуждался. Так, в работах [6–8] перечислены экспериментальные факты, относящиеся к различным жидкостям, указывающие на это. Однако, как сказано в работах [6–8], эти переходы не признаются достаточно убедительно доказанными и существование фазовых переходов жидкость–жидкость остается интригующей проблемой дальнейших исследований. Идеология работ [6–8] заключается в следующем. Во мно-

*E-mail: chaik@sci.lebedev.ru

гих переохлажденных жидкостях существует средний порядок (кластеры, упорядоченные области). Предпочтительные связи в кластерах могут быть различными в различных температурных интервалах и различных интервалах давления. Это и приводит к существованию различных фаз в жидкостях (фаз с различным средним порядком). Такая идеология нам представляется вполне оправданной. Однако в настоящей работе акцент будет сделан на другом фазовом переходе жидкость–жидкость, а именно, на переходе жидкости со средним порядком (кластерами, упорядоченными областями), которую далее мы будем называть френкелевской жидкостью, в газоподобную жидкость.

Как будет следовать из настоящей работы, доказательства существования различных фаз в жидкостях можно получить из данных по распространению гиперзвука вблизи замкнутых областей расслаивания растворов.

Последовательность изложения следующая. Вначале будут приведены полученные в работах [1–5] экспериментальные результаты по измерению скорости и коэффициента затухания гиперзвука вблизи критических точек замкнутых областей расслаивания (CSR), вблизи двойной критической точки (DCP) и особой точки (special point, SP) в растворе гвяжол–глицерин, полученные с помощью исследования молекулярного рассеяния света. Затем будет описана физическая картина, вытекающая, по нашему мнению, из этих экспериментальных результатов. Далее будут подробно обсуждены следующие из этих экспериментальных результатов доказательства справедливости изложенной физической картины.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Наряду с бинарными растворами, имеющими верхнюю критическую точку расслаивания, и бинарными растворами, имеющими нижнюю критическую точку расслаивания, существует немногочисленная группа бинарных растворов, которые, будучи однородными на всей плоскости c, T (c — концентрация, T — температура), приобретают замкнутую область расслаивания при добавлении малого количества третьей компоненты. Примером такого раствора является раствор гвяжол–глицерин. Достаточно в такой раствор внести 1 молекулу воды на 23 молекулы раствора или 1 молекулу четыреххлористого углерода на 170 молекул раствора, как в некотором интервале температур возникнет замкну-

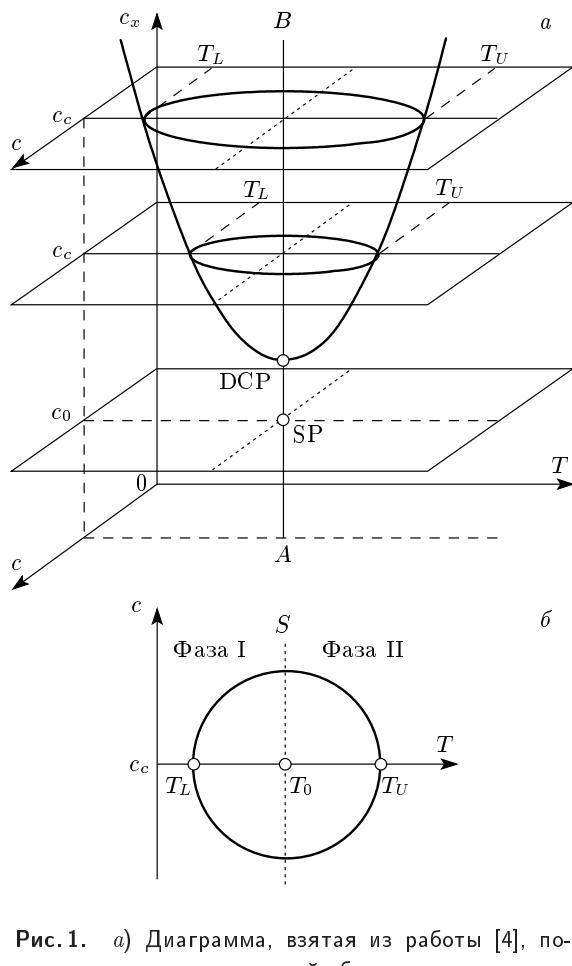


Рис. 1. а) Диаграмма, взятая из работы [4], поясняющая смысл замкнутой области расслаивания, двойной критической точки и особой точки в растворе гвяжол–глицерин: T — температура, c — концентрация гвяжола, c_x — концентрация добавки, T_U — температура верхней критической точки, T_L — температура нижней критической точки, DCP — двойная критическая точка, SP — особая точка.
б) Замкнутая область расслаивания в плоскости c, T

тая область расслаивания (CSR) с верхней и нижней критическими точками [3–5]. Как показал опыт, область расслаивания возникает лишь при добавках, растворимых только в одной из компонент раствора. Диаграмма, изображенная на рис. 1а и взятая из работ [4, 5], иллюстрирует эту ситуацию. Особыми точками являются все точки линии AB в интервале от A до DCP. В этих точках при фиксированном c_x имеется максимум в зависимостях интенсивности рассеяния и радиуса корреляции флуктуаций концентрации от T и c .

В работах [1–5] были измерены скорость и коэффициент затухания гиперзвука в окрестности CSP,

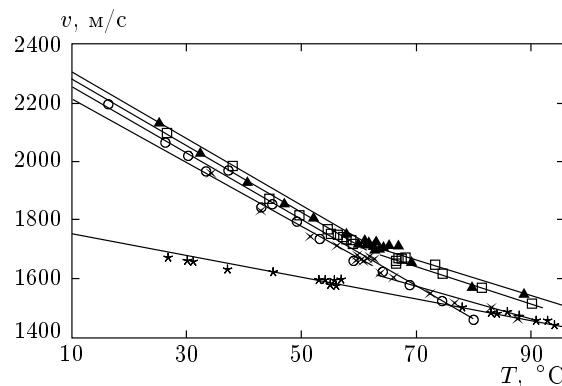


Рис. 2. Температурная зависимость скорости гиперзвука в растворе гвяжкол-глицерин с добавками воды [5]: без добавок (\circ), с SP (\times), с DCP (\blacktriangle), с CSR с шириной $7\text{ }^{\circ}\text{C}$ (\square). Температурная зависимость скорости ультразвука ($*$)

DCP и SP. Скорость гиперзвука определялась по положению компонент Мандельштама–Бриллюэна в спектре молекулярного рассеяния света, а затухание по ширине этих компонент — с использованием пятипроходного интерферометра и одночастотного аргонового лазера [1]. Результаты этих измерений приведены на рис. 2 и 3, взятых из работ [3–5]. Как видно на рис. 2, температурный коэффициент скорости гиперзвука (производная скорости гиперзвука по температуре) при критической концентрации оказывается различным по обе стороны от плоскости S , перпендикулярной оси температур и содержащей линию AB . Для фиксированной замкнутой области расслаивания линия сечения плоскостью S плоскости c, T показана точками на рис. 1б. Та же линия показана на рис. 1а также точками. Измерения температурных коэффициентов скорости проводились при критической концентрации и при приближении по температуре к верхней и нижней критическим точкам. Значения этих температурных коэффициентов скорости гиперзвука одинаковы при приближении к CSP, DCP и SP. Для ультразвука такого различия в температурных коэффициентах скорости по разные стороны от плоскости S не наблюдалось. Такого различия не наблюдалось и для раствора без добавок («сухого» раствора). Кроме того, в ближайшей окрестности DCP и SP имеется небольшой температурный интервал вблизи плоскости S , где скорость гиперзвука не меняется с температурой.

Как видно на рис. 3, коэффициент затухания как функция температуры имеет широкий фон в виде купола, на котором наблюдается резкий подъем при приближении к CSP, DCP и SP. Резкий рост коэф-

фициента затухания в критической области вблизи CSP, DCP и SP был объяснен в работе [9] рассеянием гиперзвука на флуктуациях концентрации, расступающих по мере приближения к критическим точкам, DCP и SP. В дальнейшем он обсуждаться не будет. Настоящая работа является, по существу, продолжением работы [9] и нацелена на исследование особенностей раствора, непосредственно не связанных с критическими флуктуациями концентрации. Обе эти работы посвящены анализу обширного экспериментального материала по распространению гиперзвука в растворе с CSP, DCP и SP, накопленного в течение многолетней работы группой под руководством И. Л. Фабелинского.

3. ФИЗИЧЕСКАЯ КАРТИНА, ВЫТЕКАЮЩАЯ ИЗ ПРИВЕДЕНИХ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Эти результаты можно интерпретировать следующим образом. Плоскость S , пересекаясь с плоскостью c, T , дает линию раздела фаз жидкости при концентрациях близких к критической (линии точек на рис. 1а, б). При всех температурах ниже этих линий в гомогенном растворе существует одна равновесная фаза (фаза I), а при температурах выше этих линий — другая (фаза II). Должна существовать некоторая зависимость линии раздела фаз от концентрации, однако ею мы пока пренебрегаем. В фазе I, френкелевской фазе, молекулы находятся в потенциальных ямах, глубина которых больше $k_B T$ (k_B — постоянная Больцмана). Френкелевская фаза обладает текучестью благодаря перескокам молекул в соседние пустые ямы, что требует преодоления потенциального барьера. Поэтому вязкость в этой фазе описывается формулой Аррениуса. Только во френкелевской фазе возможно существование упорядоченных областей (кластеров), т. е. среднего порядка. Только в этой фазе может существовать высокочастотный модуль сдвига. Фаза I характеризуется линейно уменьшающейся с ростом температуры долей объема, занятой упорядоченными областями, и достаточно узким распределением упорядоченных областей по размерам [10]. Упорядоченные области — это не флуктуационно возникающие образования (хотя на начальной стадии они могут разваливаться и образовываться вновь), а структурный элемент фазы I. В фазе II, газоподобной, молекулы не находятся в потенциальных ямах. В этой фазе нет среднего порядка и модуля сдвига. В жидкостях может существовать и не одна, а несколько френ-

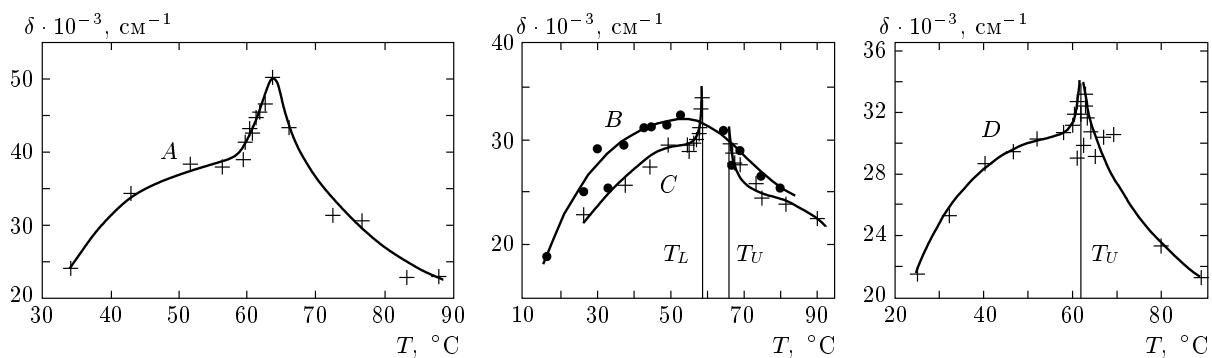


Рис. 3. Коэффициент поглощения гиперзвука [3–5] как функция температуры для раствора гвякол–глицерин: кривая A — вблизи SP, B — без добавок, C — вблизи CSR с шириной 7°C , D — вблизи DCP

келевских фаз, различающихся характером среднего порядка. Температурные коэффициенты скорости гиперзвука должны быть различны в фазе I и фазе II. Это и наблюдалось в экспериментах. Различие температурных коэффициентов скорости гиперзвука по обе стороны от плоскости S связано в значительной степени с существованием высокочастотного модуля сдвига в фазе I и с его отсутствием в фазе II. Отсутствие подобного различия для ультразвука объясняется малостью низкочастотного модуля сдвига в фазе I. Отсутствие различия в температурных коэффициентах скорости гиперзвука по разные стороны плоскости S для «сухого» раствора (без добавки) связано, по-видимому, с перегревом фазы I. В нижней критической точке оказываются равными термодинамический потенциал фазы I и расслоившегося раствора. В верхней критической точке оказываются равными термодинамический потенциал фазы II и расслоившегося раствора. Френкелевская фаза имеет меньшую энергию и меньшую энтропию, а газоподобная фаза имеет большую энергию и большую энтропию, поэтому термодинамические потенциалы этих фаз могут совпасть при определенной температуре T_0 . Более того, можно утверждать, что нижние критические точки появляются во френкелевских фазах растворов, а верхние критические точки — в газоподобных фазах в жидкостях рассмотренного типа.

Во френкелевской фазе энтропия сравнительно мала, а в газоподобной — велика. Поскольку производная по температуре от термодинамического потенциала при постоянном давлении равна энтропии со знаком «минус», термодинамический потенциал Φ_I фазы I будет медленно убывать с температурой, а термодинамический потенциал фазы II Φ_{II} — быстро. Схематически это показано на рис. 4. По-

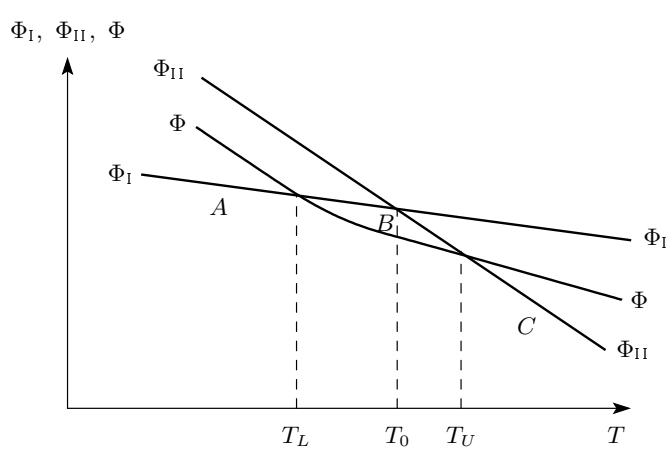


Рис. 4. Термодинамические потенциалы Φ_I и Φ_{II} фаз I и II и расслоившегося раствора Φ как функции температуры

скольку, как показал эксперимент, используется добавка, растворимая лишь в одной компоненте раствора, она притягивает эту компоненту, способствуя расслоению. На том же рисунке изображен термодинамический потенциал расслоившегося раствора Φ . Поскольку линия термодинамических потенциалов равновесных фаз ABC оказывается выпуклой, Φ пересекает эту линию в двух точках. При критической концентрации соответствующие температуры будут равны T_L и T_U . Интервал между этими температурами соответствует ширине области расслаивания. При небольшом изменении концентрации добавки термодинамические потенциалы Φ_I и Φ_{II} меняются незначительно, а Φ — довольно существенно, понижаясь с ростом концентрации добавки. Соответственно меняется и область расслаивания, увеличиваясь с ростом концентрации добавки. При изме-

нении концентрации компонент раствора будут меняться как Φ_I и Φ_{II} , так и Φ , что приведет к изменению области расслаивания.

Вблизи границы, разделяющей фазы I и II, должны возникать флуктуации соответствующего параметра порядка. Как будет показано далее, этот параметр порядка ξ можно отождествить с флуктуациями свободного объема (флуктуациями концентрации дырок). Эти флуктуации должны давать вклад в коэффициент поглощения гиперзвука. Куполообразный фон, над которым возвышается пик, обусловленный критическими флуктуациями концентрации, связан, как мы полагаем, в основном именно с этими флуктуациями ξ . Время рассасывания этих флуктуаций растет по мере приближения к границе, разделяющей фазы I и II. Это время также меняется с изменением вязкости.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ДОКАЗАТЕЛЬСТВА СПРАВЕДЛИВОСТИ ИЗЛОЖЕННОЙ ФИЗИЧЕСКОЙ КАРТИНЫ

В работе [10], посвященной распространению волн в сильновязких жидкостях, было показано, что обширный экспериментальный материал по распространению звуковых, сдвиговых и электромагнитных волн в сильновязких жидкостях может быть успешно объяснен, если считать, что сильновязкая жидкость представляет собой двухкомпонентную среду, состоящую из неупорядоченной жидкости и помещенных в нее упорядоченных областей. Эти области перестраиваются под влиянием звуковых, сдвиговых и электромагнитных волн, что и

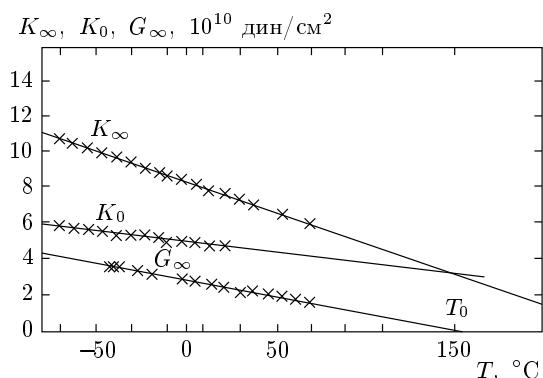


Рис. 5. Зависимость $K_\infty = gv_\infty^2$, $K_0 = gv_0^2$ и высокочастотного модуля сдвига G_∞ от температуры в глицерине, взятая из работы [10]

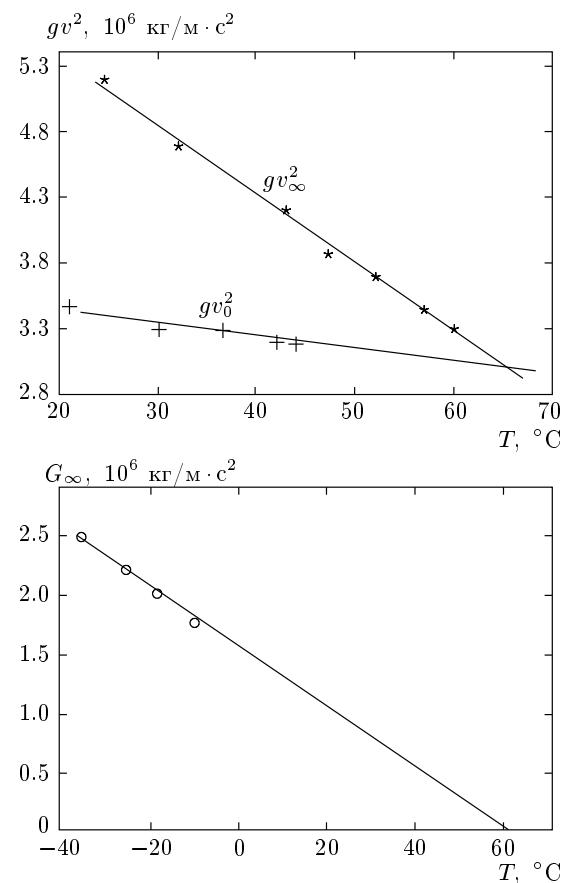


Рис. 6. а) Зависимость gv_∞^2 и gv_0^2 от температуры в растворе гвяжкол-глицерин, б) зависимость высокочастотного модуля сдвига G_∞ от температуры в растворе гвяжкол-глицерин [11]

приводит к дисперсии скорости и аномальному поглощению. В работе [10] были приведены экспериментальные данные, демонстрирующие, что в таких жидкостях предельные упругие модули $K_\infty = gv_\infty^2$ и $K_0 = gv_0^2$ как функции температуры являются прямыми линиями, пересекающимися при некоторой температуре T_0 . В нашем растворе $T_0 = 62.5^\circ\text{C}$. Здесь g — плотность, v_∞ и v_0 — высокочастотная и низкочастотная скорость звука. При температуре T_0 исчезает и высокочастотный модуль сдвига G_∞ . Взятый из работы [10] график для глицерина воспроизведен на рис. 5. Эта температура T_0 трактовалась в работе [10] как точка перехода из состояния, в котором молекулы находятся в потенциальных ямах с глубиной большей $k_B T$, в газоподобное состояние. Используя приведенные на рис. 2 данные, а также значения плотности при различных температурах [9], мы построили графики gv_∞^2 и gv_0^2 как функции температуры для раствора гвяжкол-глицерин, считая скорость гиперзвука высокочастотной скоро-

стью v_∞ , а скорость ультразвука — низкочастотной скоростью v_0 (рис. 6а). Оказалось, что прямые, соответствующие изменению этих величин с температурой, пересеклись при температуре T_0 , совпадающей с температурой DCP, SP и центров CSR. Поскольку разность высокочастотного и низкочастотного модулей должна быть пропорциональна доле объема, занятого упорядоченными областями [10], это подтверждает предположение о том, что плоскость S , пересекаясь с плоскостью c, T , дает линию раздела фаз I и II. В работе [11] были проведены дополнительные эксперименты по измерению высокочастотного модуля сдвига G_∞ в растворе гваякол-глицерин как функции температуры. Модуль сдвига G_∞ определялся по скорости поперечного гиперзвука, полученной из положения компонент Мандельштама–Бриллюэна в спектре деполяризованного рассеяния света. Полученные результаты представлены на рис. 6б. Как видно на этом рисунке, высокочастотный модуль сдвига, который может существовать только в фазе I, также обращается в нуль вблизи температуры T_0 .

Далее будет рассчитан вклад в коэффициент поглощения гиперзвука, связанный с флуктуациями параметра порядка ξ , соответствующего переходу из фазы I в фазу II. Этот вклад, как мы полагаем, и создает в основном куполообразный фон, на котором развиваются критические явления. При таком механизме фона связанная с ним дисперсия скорости гиперзвука будет малой и выразится в уплотнении вблизи T_0 кривой скорости как функции температуры, что и наблюдалось в эксперименте.

Согласно работе [10], вблизи T_0 при $T < T_0$ за короткие периоды времени образуются и разваливаются упорядоченные области. Параметр, характеризующий степень порядка в упорядоченной области, был обозначен в работе [10] через ξ . В упрощенном варианте, предполагая, что степень порядка зависит только от свободного объема, ξ можно считать флуктуацией концентрации свободного объема (флуктуацией концентрации дырок). Таким образом вблизи T_0 происходят флуктуации концентрации дырок. При $T > T_0$ упорядоченные области не образуются, однако сохраняется смысл ξ как флуктуации концентрации дырок. Параметр ξ является параметром порядка при переходе из фазы I в фазу II.

Величина ξ должна рассасываться по диффузионному закону

$$\dot{\xi} = D \Delta \xi, \quad (1)$$

где D — коэффициент диффузии дырок. Часть термодинамического потенциала, связанную с ξ , вблизи T_0 можно представить в следующем виде:

$$\Delta\Phi = B_0(2\pi)^{-3} [|T_0 - T| + d]^\sigma \int \overline{\xi_\kappa^2} \chi(\kappa\rho) d\kappa, \quad (2)$$

где B_0 и d — постоянные, σ — «критический индекс», ρ — радиус корреляции флуктуаций ξ , $\chi(\kappa\rho)$ — функция Оринштейна–Цернике, ξ_κ — компонента разложения ξ в ряд по волновым векторам κ , интегрирование ведется по всем возможным κ . Это выражение аналогично использованному в работе [11, 12]. Переход из фазы I в фазу II должен быть фазовым переходом первого рода близким ко второму. Именно поэтому множитель в квадратной скобке в формуле (2) не обращается в нуль при $T = T_0$. При приближении к T_0 флуктуации ξ будут расти, но их радиус корреляции в бесконечность обращаться не будет. Далее будем полагать $\sigma = 1$. Возможно, в дальнейшем потребуется небольшое уточнение значения этого «критического индекса». Поскольку как выражение (1), так и выражение (2) аналогичны соответствующим выражениям, рассмотренным в работах [12, 13] при вычислении коэффициента поглощения и дисперсии скорости звука вблизи критической точки расслаивания, где параметром порядка является концентрация одной из компонент раствора, мы можем воспользоваться окончательными выражениями, полученными в этих работах.

Эти выражения для коэффициента поглощения δ , отнесенного к квадрату частоты звука Ω , и для скорости звука v имеют следующий вид:

$$\frac{\delta}{\Omega^2} = M \eta [|T - T_0| + d]^{-2} F_1(\Omega\tau), \quad (3)$$

$$v = v_{00} \left\{ 1 - M \eta v_{00} \tau_1^{-1} [|T - T_0| + d]^{-0.5} \times \right. \\ \left. \times [F_2(\Omega\tau) - (b - \operatorname{arctg} b)/12] \right\}, \quad (4)$$

где

$$M = \frac{1.44 k_B T g v_{00} \tau_1}{4\pi^2 \rho_1^3 \eta} \left(-\frac{\partial T_0}{\partial p} + \frac{T \alpha}{gc_p} \right) \quad (5)$$

и $M \eta v_{00}/\tau_1$ — практически постоянные величины. Здесь p — давление, α — коэффициент теплового расширения, c_p — удельная теплоемкость при постоянном давлении, b — постоянная, равная примерно 5, v_{00} — скорость звука, экстраполированная из области далекой от перехода. Поскольку куполообразный фон коэффициента поглощения гиперзвука в растворе гваякол-глицерин занимает интервал температур примерно от 30 до 90 °C, на котором вязкость η раствора изменяется в 50 раз, в этих выражениях учтено, что τ и τ_1 пропорциональны вязкости. Напомним, что время релаксации флуктуаций τ и радиус корреляции ρ (в данном случае радиус корреляции флуктуаций концентрации дырок) описываются следующими выражениями:

$$\tau = \rho^2/D = \tau_1 [|T - T_0| + d]^{-1.5},$$

$$\rho = \rho_1 [|T - T_0| + d]^{-0.5}.$$

Здесь τ_1 — коэффициент, изменяющийся пропорци-

онально вязкости, ρ_1 — практически постоянный коэффициент.

Функции $F_1(\Omega\tau)$ и $F_2(\Omega\tau)$, входящие в выражения (3) и (4), имеют следующий вид:

$$F_1(\Omega\tau) = \int_0^5 \frac{\frac{3}{4}x^4 \left[\frac{1}{x^2} + 1 + \left(x - \frac{1}{x^3} \right) \operatorname{arctg} x \right] dx}{\left\{ (\Omega\tau)^2 + \frac{9}{4}x^4 \left[\frac{1}{x^2} + 1 + \left(x - \frac{1}{x^3} \right) \operatorname{arctg} x \right]^2 \right\} (1+x^2)^2}, \quad (6)$$

$$F_2(\Omega\tau) = \int_0^5 \frac{\frac{9}{8}x^6 \left[\frac{1}{x^2} + 1 + \left(x - \frac{1}{x^3} \right) \operatorname{arctg} x \right] dx}{\left\{ (\Omega\tau)^2 + \frac{9}{4} \left[\frac{1}{x^2} + 1 + \left(x - \frac{1}{x^3} \right) \operatorname{arctg} x \right]^2 \right\} (1+x^2)^2}. \quad (7)$$

Здесь $x = \kappa\rho$, верхний предел интегрирования соответствует примерному равенству радиуса корреляции и длины волны звука. Графики этих функций в интервале $\Omega\tau$ от 0 до 40 приведены в работе [10]. Графики функции $F_1(\Omega\tau)$ в интервале $\Omega\tau$ от 0 до 50 и от 40 до 1000 показаны на рис. 7а,б. При $\Omega\tau \ll 1$ функции $F_1(\Omega\tau)$ и $F_2(\Omega\tau)$ равны соответственно постоянным 0.163 и 0.368. В интервале $\Omega\tau$ от 1 до 10 имеем приближенную зависимость $F_1(\Omega\tau) \propto 1/\Omega\tau$, в интервале $\Omega\tau$ от 10 до 40 — $F_1(\Omega\tau) \propto 1/(\Omega\tau)^{3/2}$, а при $\Omega\tau > 100$ наблюдаем $F_1(\Omega\tau) \propto 1/(\Omega\tau)^2$. Функция $F_2(\Omega\tau) < 0.1$ при $\Omega\tau > 15$ и убывает как $1/(\Omega\tau)^{0.23}$ в интервале $\Omega\tau$ от 15 до 40.

В области $\Omega\tau$ от 1 до 10 коэффициент поглощения практически не будет зависеть от вязкости и будет изменяться пропорционально $[|T - T_0| + d]^{-0.5}$. В области $\Omega\tau$ от 10 до 40 коэффициент поглощения будет изменяться пропорционально $\eta^{-0.5}$ и $[|T - T_0| + d]^{0.25}$. На рис. 8 показано сравнение изложенной теории и эксперимента для коэффициента поглощения δ , связанного с рассматриваемым куполообразным фоном. Сплошной линией показана теоретическая кривая при следующих значениях постоянных: $d = 60^\circ$, $\Omega^2 M d^{-2} = 2.09 \cdot 10^{10}$ м/Н · с. При температуре T_0 значение $\Omega\tau$ полагалось равным 12. Точками показана теоретическая кривая при некотором увеличенном параметре $\Omega^2 M d^{-2}$ равном $2.17 \cdot 10^{10}$ м/Н · с. Круговая частота гиперзвука в рассматриваемых экспериментах была равна $4.3 \cdot 10^{10}$ рад/с. Теоретическая кривая хорошо описывает эксперимент при $T > T_0$. При $T < T_0$ совпадение несколько хуже. По-видимому, это связано с тем, что мы не учли, что упорядоченные об-

ласти при T значительно меньшем T_0 могут перестраиваться, внося тем самым небольшой дополнительный вклад в коэффициент поглощения гиперзвука [10].

Функцией $F_2(\Omega\tau)$ в формуле (4) можно пренебречь в использованном интервале $\Omega\tau$. Формула (4) при этом дает малый подъем скорости вблизи T_0 , что и приводит к появлению вблизи плоскости S области, где скорость гиперзвука практически не меняется с температурой, в соответствии с экспериментом.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальные данные по распространению гиперзвука вблизи CSR, DCP и SP, как и само появление последних, в растворе глицерин–гвяжакол удается объяснить существованием различных фаз в жидкостях. В исследованном растворе, как и в других сильновязких жидкостях и растворах, такими фазами являются френкелевская фаза, в которой молекулы находятся в потенциальных ямах с глубиной, превышающей $k_B T$, и газоподобная фаза, в которой тепловая энергия больше глубины потенциальных ям. Только во френкелевской фазе может существовать высокочастотный модуль сдвига и могут образовываться упорядоченные области (средний порядок). Вязкость в этой фазе описывается формулой Аррениуса. Показано, что температура перехода из френкелевской фазы в газоподобную при критической концентрации совпадает с температурой T_0 центров CSR, DCP и SP. Становится при-

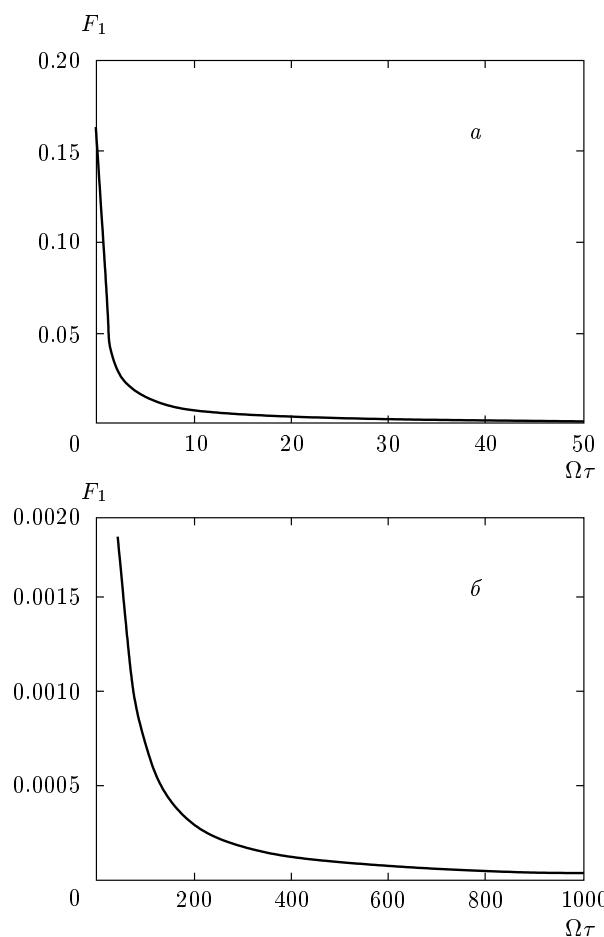


Рис. 7. Функция $F_1(\Omega\tau)$ в интервале $\Omega\tau$ от 0 до 50 — *а*, функция $F_1(\Omega\tau)$ в интервале $\Omega\tau$ от 40 до 1000 — *б*

этом понятным само появление CSR: при $T < T_0$ на границе CSR оказываются равными термодинамический потенциал френкелевской фазы и расслоившегося раствора, а при $T > T_0$ — термодинамический потенциал газоподобной фазы и расслоившегося раствора. По обе стороны от T_0 , в соответствии с экспериментом, оказываются разными температурные коэффициенты скорости гиперзвука. Наблюдавшийся широкий купол коэффициента поглощения гиперзвука в окрестности T_0 связан с флуктуациями параметра порядка при переходе из френкелевской фазы в газоподобную, а именно с флуктуациями свободного объема (или концентрации дырок). Рассчитан коэффициент поглощения гиперзвука, связанный с этими флуктуациями. Полученные формулы неплохо описывают этот купол. На нем наблюдаются резкие пики коэффициента затухания гиперзвука при приближении к CSR, DCP и SP. Они были ранее [9]

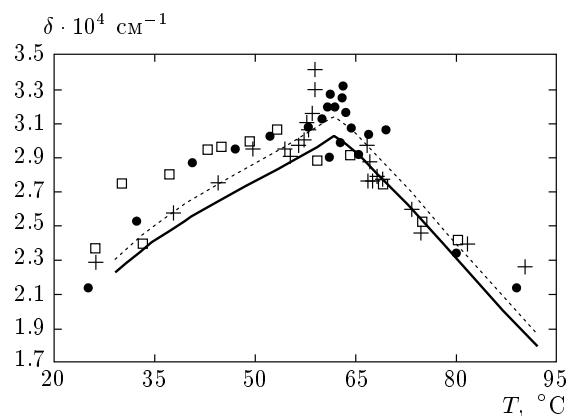


Рис. 8. Сравнение предлагаемой теории фона коэффициента поглощения с экспериментом. Сплошная линия — теоретическая кривая при $d = 60^\circ$, $\Omega^2 M d^{-2} = 2.09 \cdot 10^{10}$ м/Н · с и $\Omega\tau$ при $T = T_0$ равном 12. Точками показана теоретическая кривая с заменой значения параметра $\Omega^2 M d^{-2}$ на $2.17 \cdot 10^{10}$ м/Н · с. Экспериментальные точки: \square — «сухой» раствор, \bullet — раствор с DCP, $+$ — раствор с CSR, имеющий ширину 7°C

объяснены рассеянием гиперзвука на флуктуациях концентрации. Приведенные экспериментальные доказательства существования различных фаз в жидкостях, как мы надеемся, должны существенно изменить подход к физике жидкого состояния.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 06-02-16196, 05-02-16381).

ЛИТЕРАТУРА

1. К. В. Коваленко, С. В. Кривохижка, И. Л. Фабелинский, Л. Л. Чайков, Письма в ЖЭТФ **58**, 395 (1993).
2. К. В. Коваленко, С. В. Кривохижка, И. Л. Фабелинский, Л. Л. Чайков, Кр. сообщ. по физике ФИАН, вып. 11, 19 (2002).
3. К. В. Коваленко, С. В. Кривохижка, И. Л. Фабелинский, Л. Л. Чайков, УФН **166**, 683 (1996).
4. К. В. Коваленко, С. В. Кривохижка, Л. Л. Чайков, Кр. сообщ. по физике ФИАН, вып. 2, 40 (2001).
5. I. L. Fabelinskii, L. L. Chaikov, K. V. Kovalenko, and S. V. Krivokhizha, Lazer Phys. **1**, 332 (2003).

6. H. Tanaka, Phys. Rev. E **62**, 6968 (2000).
7. H. Tanaka, R. Kurita, and H. Mataki, Phys. Rev. Lett. **92**, 025701 (2004).
8. R. Kurita and H. Tanaka, J. Phys.: Condens. Matter **17**, 293 (2005).
9. С. В. Кривохижка, И. А. Чабан, Л. Л. Чайков, ЖЭТФ **127**, 623 (2005).
10. М. А. Исакович, И. А. Чабан, ЖЭТФ **50**, 1343 (1966).
11. К. В. Коваленко, С. В. Кривохижка, Кр. сообщ. по физике ФИАН, вып. 3, 46 (2007).
12. И. А. Чабан, Акуст. ж. **21**, 104 (1975).
13. И. А. Чабан, Акуст. ж. **21**, 286 (1975).