

04,09

Добавочные электромагнитные волны в одноосном кристалле с флуктуациями анизотропии

© В.М. Дубовик, М.И. Рязанов

Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“,
Москва, Россия

E-mail: vdubovik44@mail.ru

(Поступила в Редакцию 17 сентября 2013 г.
В окончательной редакции 12 марта 2014 г.)

Показано, что учет флуктуаций ориентации осей неполярных аксиально-симметричных молекул приводит к пространственной дисперсии диэлектрической проницаемости одноосного кристалла. Получены выражения для локального поля, поляризации и главных значений тензора диэлектрической проницаемости кристалла. Дана оценка длины волны, выше которой вклад в пространственную дисперсию флуктуаций ориентаций осей молекул является преобладающим. Найдены фазовые скорости обыкновенной и необыкновенной электромагнитных волн в одноосном кристалле. Показано, что вблизи нулей главных значений тензора диэлектрической проницаемости кристалла в определенных областях углов между волновым вектором и оптической осью кристалла возможно существование добавочных медленных необыкновенных электромагнитных волн.

1. Введение

Как известно, анизотропия одноосного кристалла, состоящего из аксиально-симметричных молекул, определяется главным образом ориентациями их осей. Упорядоченность положений центров инерции молекул менее важна и в приближении кристаллооптики ей пренебрегается. В среднем оси молекул направлены вдоль главной оптической оси кристалла, но тепловое движение приводит к случайным отклонениям на малые углы относительно главной оптической оси.

Учет флуктуаций ориентаций осей молекул приводит к тому, что электрическая индукция может быть представлена в виде интеграла от произведения плотности вероятности и поля. Это означает, что возникает интегральная, т.е. нелокальная связь индукции с полем, эквивалентная пространственной дисперсии среды, т.е. зависимости диэлектрической проницаемости среды не только от частоты, но и от волнового вектора \mathbf{q} . Малым флуктуациям ориентаций молекул соответствуют малые добавки к диэлектрической проницаемости $\delta\epsilon$. При этом, если без учета флуктуаций ϵ зависит только от ω , то учет флуктуаций приводит к зависимости от q только малой флуктуационной части диэлектрической проницаемости, $\delta\epsilon$. В некоторых случаях эти малые поправки качественно изменяют ситуацию, например, повышают порядок алгебраического по q дисперсионного уравнения, что приводит к появлению новых решений [1]. Малая величина флуктуационных добавок к диэлектрической проницаемости означает, что их влияние возрастает вблизи частот, обращающих в нуль главные значения ϵ_o и ϵ_e тензора ϵ_{ij} диэлектрической проницаемости одноосного кристалла, где добавки $\delta\epsilon_o$ и $\delta\epsilon_e$ могут играть определяющую роль.

Малая величина диэлектрической проницаемости делает большой фазовую скорость обыкновенной волны.

Фазовая скорость необыкновенной волны зависит от направления, поэтому, как показано ниже, в определенной области углов фазовая скорость необыкновенной волны невелика. Малой скорости соответствует большой волновой вектор, или малая длина волны. Поэтому медленные волны чувствительны к малым неоднородностям среды, в частности к рассеянию на них.

В [2] показано, что медленные волны в одноосном кристалле без флуктуаций анизотропии существуют в области частот, где главные значения тензора диэлектрической проницаемости имеют разные знаки. Пространственная дисперсия в изотропной среде из аксиально-симметричных молекул изучена в [3], а в многокомпонентном аморфном диэлектрике, состоящем из нескольких сортов молекул — в [4]. В [5] исследовано дисперсионное уравнение добавочных волн в таком диэлектрике вблизи узкой линии поглощения [1] и выяснены условия, при которых закон дисперсии этих волн определяется, в основном, средним квадратом флуктуаций поляризуемости молекул.

Представляет интерес найти спектры добавочных медленных необыкновенных волн в одноосном кристалле из неполярных молекул с флуктуациями анизотропии и определить области их существования.

2. Поляризация одноосного кристалла с учетом флуктуаций локального поля

Поляризация среды, по определению, связана со средним, действующим на молекулу полем, а ее связь со средним макроскопическим полем выводится из дополнительных соображений с учетом свойств рассматриваемого вещества [6–12]. Микроскопическая плотность дипольного момента среды складывается из дипольных

моментов отдельных молекул $\mathbf{d}(\mathbf{r}_a, t)$, которые будем считать неполярными, а ее Фурье-образ по времени можно представить в виде

$$P_i^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_a \alpha_{is}(\omega) E_s^{\text{mic}}(\mathbf{r}_a, \omega) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a) = n^{\text{mic}}(\mathbf{r}) \alpha_{is}(\omega) E_s^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega), \quad (1)$$

где $n^{\text{mic}}(\mathbf{r})$ — микроскопическая плотность молекул, $\alpha_{is}(\omega)$ — тензор поляризуемости аксиально-симметричной молекулы (\mathbf{s} — единичный вектор ее оси),

$$\alpha_{ik}(\omega) = \alpha(\omega)(\delta_{ik} - s_i s_k) + \beta(\omega) s_i s_k, \quad (2)$$

а $\mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega)$ — Фурье-образ по времени микроскопического электрического поля. Поляризация среды получается из (1) в результате усреднения по координатам центров инерции молекул, обозначаемого ниже двойными угловыми скобками $\langle\langle \dots \rangle\rangle$, и усреднения по ориентациям их осей, обозначаемого одиночными угловыми скобками $\langle \dots \rangle$

$$P_i(\mathbf{r}, \omega) = \langle\langle \alpha_{is}(\omega) n^{\text{mic}}(\mathbf{r}) E_s^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle\rangle. \quad (3)$$

Как отмечено выше, в приближении кристаллооптики анизотропия монокристалла определяется его ориентационной упорядоченностью, а позиционной упорядоченностью центров инерции молекул пренебрегается. Отсюда следует, что флуктуации ориентаций анизотропных молекул в монокристалле играют основную роль, а флуктуации их пространственных положений, флуктуации плотности, несущественны. В этом приближении усреднение по положениям молекул и по их ориентациям можно считать независимыми друг от друга. Поэтому (3) можно записать как

$$P_i(\mathbf{r}, \omega) = n_0 \langle \alpha_{is}(\omega) \langle\langle E_s^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle\rangle \rangle. \quad (4)$$

Здесь $\langle\langle E_s^{\text{mic}} \rangle\rangle$ — это микроскопическое поле, усредненное по положениям молекул, а „внешние“ одиночные скобки соответствуют усреднению по ориентации молекул.

Воспользуемся уравнением (П6) из Приложения 1 для усредненного по положениям молекул микроскопического поля $\langle\langle E_s^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle\rangle$. Введем локальное поле $\mathbf{E}^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) = \langle\langle \mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle\rangle$, необходимое для нахождения поляризации кристалла. Учитывая, что ориентационные флуктуации малы, удобно разбить входящие в (П6) величины, зависящие от ориентации оси молекулы, на усредненные по ориентациям значения и отклонения от них

$$\langle\langle \mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle\rangle = \mathbf{E}^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) + \delta \mathbf{E}^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega), \quad \alpha_{is}(\omega) = \langle \alpha_{is}(\omega) \rangle + \delta \alpha_{is}(\omega). \quad (5)$$

Усредненная по ориентациям поляризуемость молекулы в одноосном кристалле зависит только от единичного

вектора направления главной оптической оси \mathbf{e}

$$\begin{aligned} \langle \alpha_{ik}(\omega) \rangle &= \alpha(\omega)(\delta_{ik} - \langle s_i s_k \rangle) + \beta(\omega) \langle s_i s_k \rangle \\ &= L_0(\omega)(\delta_{ik} - e_i e_k) + L(\omega) e_i e_k \\ &= L_0(\omega) t_{ij} + L(\omega) l_{ij}, \end{aligned} \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned} L_0(\omega) &= (1/2) \{ \alpha(\omega) + \beta(\omega) + [\alpha(\omega) - \beta(\omega)] \langle (\mathbf{e}\mathbf{s})^2 \rangle \}; \\ L(\omega) &= \{ \alpha(\omega) + [\beta(\omega) - \alpha(\omega)] \langle (\mathbf{e}\mathbf{s})^2 \rangle \}. \end{aligned}$$

Подстановка (5) в (3) дает

$$P_i(\mathbf{r}, \omega) = n_0 \langle \alpha_{is}(\omega) \rangle E_s^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) + n_0 \langle \delta \alpha_{is}(\omega) \delta E_s^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle \quad (7)$$

или

$$P_i(\mathbf{r}, \omega) = n_0 \langle \alpha_{is}(\omega) \rangle E_s^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) + n_0 L_{iss}(\mathbf{r}, \omega), \quad (8)$$

где

$$L_{iss}(\mathbf{r}, \omega) = \langle \delta \alpha_{is}(\omega) \delta E_s^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle. \quad (9)$$

Второе слагаемое в (8) мало и во многих случаях им можно пренебречь. Но для процессов, связанных с влиянием этого слагаемого, его роль может стать определяющей. Именно такое положение возникает, когда учет этого слагаемого приводит к появлению пространственной дисперсии [13–18,3,4], нарушая локальную связь электрической индукции с макроскопическим полем. Чтобы выяснить, как влияют флуктуации ориентации на локальное поле, рассмотрим кристалл с фиксированными направлениями осей молекул и подставим в уравнение (П6) $\langle\langle \mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle\rangle$ и $\alpha_{is}(\omega)$ в виде (5)

$$\begin{aligned} E_i^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) + \delta E_i^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) &= E_i^0(\mathbf{r}, \omega) + (n_0/2\pi^2) \\ &\times \int d^3 q Q_{is}(q, \omega) [\langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle + \delta \alpha_{sj}(\omega)] \int d^3 r'' \{ 1 - f(\mathbf{r}'') \} \\ &\times \{ E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) + \delta E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) \} \exp\{ i \mathbf{q} \mathbf{r}'' \}. \end{aligned} \quad (10)$$

Усреднив (10) по ориентациям молекул, получаем уравнение для локального поля

$$\begin{aligned} E_i^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) &= E_i^0(\mathbf{r}, \omega) + (n_0/2\pi^2) \int d^3 q Q_{is}(q, \omega) \\ &\times \int d^3 r'' \{ 1 - f(\mathbf{r}') \} \{ \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) \\ &+ \langle \delta \alpha_{sj}(\omega) \delta E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) \rangle \} \exp\{ i \mathbf{q} \mathbf{r}'' \}. \end{aligned} \quad (11)$$

Умножив (10) на $\delta \alpha_{kn}(\omega)$ и усредняя по ориентациям молекул, нетрудно получить для величины

$$L_{kni}(\mathbf{r}, \omega) = \langle \delta \alpha_{kn}(\omega) \delta E_i^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle \quad (12)$$

уравнение

$$\begin{aligned}
 L_{kni}(\mathbf{r}, \omega) &= \langle \alpha_{kn}(\omega) \delta \alpha_{sj}(\omega) \rangle (n_0/2\pi^2) \int d^3 q Q_{is}(q, \omega) \\
 &\times \int d^3 r'' \{1 - f(\mathbf{r}'')\} E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) \exp\{i\mathbf{q}\mathbf{r}''\} \\
 &+ (n_0/2\pi^2) \int d^3 q Q_{is}(q, \omega) \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle \\
 &\times \int d^3 r'' \{1 - f(\mathbf{r}'')\} L_{knj}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) \exp\{i\mathbf{q}\mathbf{r}''\}.
 \end{aligned} \quad (13)$$

С помощью тех же рассуждений, что были сделаны при переходе от (П6) к (П10), получаем из (11) уравнение для Фурье-образа локального поля

$$\begin{aligned}
 E_i^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) &= E_i^0(\mathbf{q}, \omega) + 4\pi n_0 \{Q_{is}(q, \omega) - J_{is}\} \\
 &\times \{ \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) + L_{sjj}(\mathbf{q}, \omega) \}.
 \end{aligned} \quad (14)$$

Из (13) видно, что величина L_{kni} определяется локальным полем и средним от произведения флуктуаций поляризуемости или ориентаций осей молекул (П11). Корреляция между ориентациями соседних молекул кристалла выражается в их качаниях около равновесных ориентаций, определяемых локальным полем. Поэтому характерная длина ориентационных корреляций молекул по порядку величины совпадает с характерным расстоянием, на котором изменяется локальное поле, то есть значительно больше среднего расстояния между молекулами $n_0^{-1/3}$. Учитывая это, можно в уравнении (13) в интегралах, содержащих $f(\mathbf{r}'')$, пренебречь \mathbf{r}'' и в $E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega)$ и в $L_{knj}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega)$. В результате (13) принимает следующий вид

$$\begin{aligned}
 L_{kni}(\mathbf{r}, \omega) &= 4\pi n_0 \langle \delta \alpha_{kn}(\omega) \delta \alpha_{sj}(\omega) \rangle \\
 &\times \int d^3 q Q_{is}(q, \omega) \{ E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}) \\
 &- f(-\mathbf{q}) E_j^{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) \} + 4\pi n_0 \int d^3 q Q_{is}(q, \omega) \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle \\
 &\times \{ L_{knj}(\mathbf{q}, \omega) \exp(i\mathbf{q}\mathbf{r}) - f(-\mathbf{q}) L_{knj}(\mathbf{r}, \omega) \}.
 \end{aligned} \quad (15)$$

Переходя в (15) к Фурье-образам по координатам, нетрудно получить

$$\begin{aligned}
 L_{kni}(\mathbf{q}, \omega) &= 4\pi n_0 \langle \delta \alpha_{kn}(\omega) \delta \alpha_{sj}(\omega) \rangle \{ Q_{is}(q, \omega) - J_{is} \} \\
 &\times E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) + 4\pi n_0 \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle \{ Q_{is}(q, \omega) - J_{is} \} L_{knj}(\mathbf{q}, \omega)
 \end{aligned} \quad (16)$$

или

$$\begin{aligned}
 L_{knj}(\mathbf{q}, \omega) \{ \delta_{ij} - 4\pi n_0 [Q_{is}(q, \omega) - J_{is}] \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle \} \\
 = 4\pi n_0 \langle \delta \alpha_{kn}(\omega) \delta \alpha_{sj}(\omega) \rangle [Q_{is}(q, \omega) - J_{is}] E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega).
 \end{aligned} \quad (17)$$

Свернув L_{knj} по двум последним индексам, принимая во внимание, что

$$t_{is}(\mathbf{q}) = a_1(\mathbf{q})t_{is} + a_2(\mathbf{q})l_{is}, \quad (18)$$

и используя (П15), имеем

$$\begin{aligned}
 L_{iss}(\mathbf{q}, \omega) &= - (2/3) \delta \alpha_{sq}^2 \left\{ (1/4) \frac{4\pi n_0 (J_0 - Qa_1)}{1 + 4\pi n_0 L_0 (J_0 - Qa_1)} t_{ij} \right. \\
 &\left. + \frac{4\pi n_0 (J - Qa_2)}{1 + 4\pi n_0 L (J - Qa_2)} l_{ij} \right\} E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega).
 \end{aligned} \quad (19)$$

Воспользуемся выражениями для обыкновенной, ϵ_o^0 , и необыкновенной, ϵ_e^0 , частей диэлектрической проницаемости кристалла без учета флуктуаций [20]

$$\epsilon_o^0(\omega) = \{1 + 4\pi n_0 L_0(\omega) J_0\} / \{1 + 4\pi n_0 L_0(\omega) (J_0 - 1)\} \quad (20)$$

$$\epsilon_e^0(\omega) = \{1 + 4\pi n_0 L(\omega) J\} / \{1 + 4\pi n_0 L(\omega) (J - 1)\}, \quad (21)$$

откуда

$$1/4\pi n_0 L_0 = [\epsilon_o^0 / (\epsilon_o^0 - 1)] - J_0$$

$$\text{и } 1/4\pi n_0 L = [\epsilon_e^0 / (\epsilon_e^0 - 1)] - J.$$

Тогда

$$L_{iss}(\mathbf{q}, \omega) = \{ \delta L_0(\mathbf{q}, \omega) t_{is} + \delta L(\mathbf{q}, \omega) l_{is} \} E_s^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega), \quad (22)$$

где

$$\delta L_0/L_0 = -(2/3) (\delta \alpha_{sq}/2L_0)^2 (\epsilon_o^0 - 1) \frac{(J_0 - Qa_1)}{[\epsilon_o^0 - (\epsilon_o^0 - 1)Qa_1]}, \quad (23)$$

$$\delta L/L = -(2/3) (\delta \alpha_{sq}/L)^2 (\epsilon_e^0 - 1) \frac{(J - Qa_2)}{[\epsilon_e^0 - (\epsilon_e^0 - 1)Qa_2]}. \quad (24)$$

Подставив (22) в (8), с помощью (6) получаем для поляризации одноосного кристалла следующее выражение:

$$\begin{aligned}
 P_i(\mathbf{q}, \omega) &= n_0 \{ [L_0(\omega) + \delta L_0(\mathbf{q}, \omega)] t_{ij} \\
 &+ [L(\omega) + \delta L(\mathbf{q}, \omega)] l_{ij} \} E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega).
 \end{aligned} \quad (25)$$

3. Пространственная дисперсия диэлектрической проницаемости одноосного кристалла

Усреднив (П4) по ориентациям молекул и переходя к Фурье-образам по координатам, получим уравнение, связывающее среднее макроскопическое поле, \mathbf{E} , с первичным, \mathbf{E}_0 , и локальным, \mathbf{E}^{loc} , полями

$$\begin{aligned}
 E_i(\mathbf{q}, \omega) &= E_i^0(\mathbf{q}, \omega) + 4\pi \{ Q_{is}(\mathbf{q}, \omega) - \delta_{is} \} \\
 &\times \{ \langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) + L_{sjj}(\mathbf{q}, \omega) \}.
 \end{aligned} \quad (26)$$

Исключая первичное поле E_0 из (26) с помощью (14), получим соотношение

$$E_i(\mathbf{q}, \omega) = E_i^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) + 4\pi(J_{is} - \delta_{is}) \times \{\langle \alpha_{sj}(\omega) \rangle E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) + L_{sjj}(\mathbf{q}, \omega)\}, \quad (27)$$

из которого, используя (22), выражаем локальное поле, E^{loc} , через среднее поле E

$$E_j^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega) = \{[1 + 4\pi n_0(J_0 - 1)[L_0 + \delta L_0(\mathbf{q}, \omega)]]^{-1} t_{js} + \{1 + 4\pi n_0(J - 1)[L + \delta L(\mathbf{q}, \omega)]\}^{-1} l_{js}\} E_s(\mathbf{q}, \omega). \quad (28)$$

Воспользуемся определением электрической индукции, $\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P}$, и представим ее Фурье-образ в форме

$$D_i(\mathbf{q}, \omega) = \{\varepsilon_o(q, \omega) t_{is} + \varepsilon_e(q, \omega) l_{is}\} E_s(\mathbf{q}, \omega), \quad (29)$$

где ε_o и ε_e — главные значения тензора диэлектрической проницаемости одноосного кристалла с учетом флуктуаций локального поля. С помощью (25), (28) и (29) получаем следующие выражения для ε_o и ε_e :

$$\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = \{1 + 4\pi n_0[L_0 + \delta L_0(\mathbf{q}, \omega)]J_0\} / \{1 + 4\pi n_0[L_0 + \delta L_0(\mathbf{q}, \omega)](J_0 - 1)\}, \quad (30)$$

$$\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = \{1 + 4\pi n_0[L + \delta L(\mathbf{q}, \omega)]J\} / \{1 + 4\pi n_0[L + \delta L(\mathbf{q}, \omega)](J - 1)\}. \quad (31)$$

Ввиду малости флуктуации $\delta\alpha_{sq}$ из (30), (31) с помощью (23), (24) нетрудно представить ε_o и ε_e в виде

$$\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = \varepsilon_o^0(\omega) + [\delta L_0(\mathbf{q}, \omega)/L_0](\varepsilon_o^0 - 1) = \varepsilon_o^0(\omega) + \delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega), \quad (32)$$

$$\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = \varepsilon_e^0(\omega) + [\delta L(\mathbf{q}, \omega)/L](\varepsilon_e^0 - 1) = \varepsilon_e^0(\omega) + \delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega), \quad (33)$$

$$\delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = -(2/3)(\delta\alpha_{sq}/2L_0)^2(\varepsilon_o^0 - 1)^2 \times \frac{[J_0 - Q(q, \omega)a_1(\mathbf{q})]}{[\varepsilon_o^0 - (\varepsilon_o^0 - 1)Q(q, \omega)a_1(\mathbf{q})]}, \quad (34)$$

$$\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = -(2/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2(\varepsilon_e^0 - 1)^2 \times \frac{[J - Q(q, \omega)a_2(\mathbf{q})]}{[\varepsilon_e^0 - (\varepsilon_e^0 - 1)Q(q, \omega)a_2(\mathbf{q})]}, \quad (35)$$

где $\delta\varepsilon_o$ и $\delta\varepsilon_e$ с учетом (П2), (П8) и (П9) можно записать следующим образом:

$$\delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = -(1/6)(\delta\alpha_{sq}/L_0)^2(\varepsilon_o^0 - 1)^2 \times \frac{[(2J_0 - 1)q^2 - 2J_0(\omega^2/c^2) - q^2 \cos^2 \theta]}{[(\varepsilon_o^0 + 1)q^2 - 2\varepsilon_o^0(\omega^2/c^2) - (\varepsilon_o^0 - 1)q^2 \cos^2 \theta]}, \quad (36)$$

$$\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = -(2/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2(\varepsilon_e^0 - 1)^2 \times \frac{[(J - 1)q^2 - J(\omega^2/c^2) + q^2 \cos^2 \theta]}{[q^2 - \varepsilon_e^0(\omega^2/c^2) + (\varepsilon_e^0 - 1)q^2 \cos^2 \theta]}. \quad (37)$$

Из (32–35) видно, что при учете флуктуаций анизотропии молекул возникает пространственная дисперсия диэлектрической проницаемости одноосного кристалла. Однако при выводе уравнения (14) для $E^{\text{loc}}(\mathbf{q}, \omega)$ было использовано нулевое приближение по малому параметру обычной, структурной, дисперсии, $qa \sim (\omega/c)a \ll 1$. Получим главные значения ε_o и ε_e тензора диэлектрической проницаемости, пренебрегая флуктуациями анизотропии молекул, но учитывая структурную пространственную дисперсию. Для этого в выражении

$$J_{is}(\mathbf{q}, \omega) = \int d^3p Q_{is}(\mathbf{p} - \mathbf{q}, \omega) f(\mathbf{p}) = \quad (38)$$

разложим $Q_{is}(\mathbf{p} - \mathbf{q}, \omega) = \{(\mathbf{p} - \mathbf{q})^2 / [(\mathbf{p} - \mathbf{q})^2 - (\omega^2/c^2)]\} \times t_{is}(\mathbf{p} - \mathbf{q})$ в ряд до второго порядка по qa , $(\omega/c)a$ и запишем $J_{is}(\mathbf{q}, \omega)$ в виде

$$J_{is}(\mathbf{q}, \omega) = (J_0 + \delta J_0) t_{is} + (J + \delta J) l_{is}, \quad (39)$$

где

$$\delta J_0 = A_0 q^2 + B_0(\omega^2/c^2) + C_0 q^2 \cos^2 \theta; \quad \delta J = A q^2 + B(\omega^2/c^2) + C q^2 \cos^2 \theta, \quad (40)$$

параметры A_0 , B_0 , C_0 , A , B и C линейным образом выражаются через интегралы

$$K = \int d^3p [f(\mathbf{p})/p^2], \quad K_1 = \int d^3p [f(\mathbf{p})/p^2] \cos^2 \gamma \quad \text{и} \quad K_2 = \int d^3p [f(\mathbf{p})/p^2] \cos^4 \gamma, \quad (41)$$

например, $A_0 = K - 4K_1 + 2K_2$, и т.п.; θ — угол между волновым вектором \mathbf{q} и единичным вектором оптической оси \mathbf{e} , а γ — угол между \mathbf{p} и \mathbf{q} (под интегралами $\int d^3p$ ось z направлена по \mathbf{q}). Очевидно, что тогда

$$\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = \{1 + 4\pi n_0 L_0 [J_0 + \delta J_0(\mathbf{q}, \omega)]\} / \{1 + 4\pi n_0 L_0 [J_0 - 1 + \delta J_0(\mathbf{q}, \omega)]\}, \quad (42)$$

$$\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = \{1 + 4\pi n_0 L [J + \delta J(\mathbf{q}, \omega)]\} / \{1 + 4\pi n_0 L [J - 1 + \delta J(\mathbf{q}, \omega)]\} = \quad (43)$$

или, учитывая малость величин δJ_0 и δJ ,

$$\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = \varepsilon_o^0(\omega) + (\varepsilon_o^0 - 1)^2 \delta J_0(\mathbf{q}, \omega), \quad (44)$$

$$\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = \varepsilon_e^0(\omega) + (\varepsilon_e^0 - 1)^2 \delta J(\mathbf{q}, \omega). \quad (45)$$

Сравнение (32), (33), (36) и (37) с (44), (45) показывает, что вклад флуктуаций в диэлектрическую проницаемость кристалла преобладает, если

$$(\delta\alpha_{sq}/L_0)^2 \gg \delta J_0, \quad \text{и} \quad (\delta\alpha_{sq}/L)^2 \gg \delta J. \quad (46)$$

Расчет интегралов K , K_1 и K_2 с помощью бинарной функции распределения гауссового вида (см. [20]) сделан в Приложении 3. Согласно (П19) $K \sim a^2 \sim b^2$, где b и a — характерные длины корреляции положений молекул вдоль оптической оси и перпендикулярно к ней. Такие же оценки получаются для K_1 и K_2 , а следовательно, и для δJ_0 и δJ . Поскольку $(\beta - \alpha)/L_0 \sim 1$, то $(\delta\alpha_s q/L_0)^2 \sim \nu$. Тогда из (46) получаем, что $\nu \gg (qa)^2$, где $a \equiv n_0^{-1/3}$ (см. Приложение 1). Откуда $\nu \gg n_0^{-2/3}/\lambda^2$ или

$$\lambda \gg \nu^{-1/2} n_0^{-1/3}. \quad (47)$$

Полагая $\nu \sim 10^{-2}$ и $n_0 \sim 10^{23} \text{ см}^{-3}$, получаем оценку длины волны $\lambda \gg 10^{-7} \text{ см}$, выше которой причиной пространственной дисперсии являются ориентационные флуктуации. Очевидно, для оптического диапазона это неравенство справедливо. К этому следует добавить, что флуктуационная пространственная дисперсия сильно зависит от температуры через среднее $\langle (\mathbf{es})^2 \rangle$, что качественно отличает ее от других видов пространственной дисперсии. Заметим, что для негиротропных кристаллов, которые и рассматриваются выше, тензор диэлектрической проницаемости при учете пространственной дисперсии записывают в виде [16]:

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{q}, \omega) = \varepsilon_{ij}(\omega) + \alpha_{ijlm}(\omega) q_l q_m,$$

где во второе, малое по параметру qa , слагаемое подставляются диэлектрические проницаемости $\varepsilon_o^0(\omega)$ и $\varepsilon_e^0(\omega)$, что, очевидно, нельзя делать вблизи нулей этих величин [14].

4. Добавочные электромагнитные волны в одноосном кристалле

Известно, что учет пространственной дисперсии может изменить порядок дисперсионного уравнения, определяющего спектр волны $\omega(q)$. Поскольку, как показано выше, зависимость от волнового вектора q содержится в малых добавках к главным значениям диэлектрической проницаемости, $\delta\varepsilon_o$ и $\delta\varepsilon_e$, то естественно рассмотреть область частот вблизи нулей главных значений, где эти добавки могут играть определяющую роль.

Пусть $\varepsilon_o^0(\Omega_o) = 0$ и $\varepsilon_e^0(\Omega_e) = 0$, так что вблизи частот Ω_o и Ω_e имеем следующие выражения для ε_o и ε_e :

$$\begin{aligned} \varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) &= \delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = -(1/6)(\delta\alpha_{sq}/L_0)^2 \\ &\times \frac{\{2J_0[q^2 - (\omega^2/c^2)] - q^2(1 + \cos^2 \theta)\}}{\{\eta_o(\omega - \Omega_o)[q^2 \sin^2 \theta - 2(\omega^2/c^2)] + q^2(1 + \cos^2 \theta)\}}, \end{aligned} \quad (48)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) &= \delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = -(2/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2 \\ &\times \frac{\{J[q^2 - (\omega^2/c^2)] - q^2 \sin^2 \theta\}}{\{\eta_e(\omega - \Omega_e)[q^2 \cos^2 \theta - (\omega^2/c^2)] + q^2 \sin^2 \theta\}}, \end{aligned} \quad (49)$$

где $\eta_o = \partial\varepsilon_o^0(\Omega_o)/\partial\Omega_o$ и $\eta_e = \partial\varepsilon_e^0(\Omega_e)/\partial\Omega_e$.

Дисперсионные уравнения обыкновенной и необыкновенной волн в одноосном кристалле определяются известными соотношениями

$$q^2 c^2 / \omega^2 = \varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) \quad (50)$$

$$\text{и } \omega^2 / q^2 c^2 = \{\cos^2 \theta / \varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega)\} + \{\sin^2 \theta / \varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega)\}. \quad (51)$$

а) Рассмотрим сначала эти уравнения вблизи частот Ω_o . Для обыкновенной волны имеем

$$\begin{aligned} q^2 c^2 / \omega^2 &= \delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) \\ &= \frac{(J_0/3)(\delta\alpha_{sq}/L_0)^2}{(q^2 c^2 / \omega^2)(1 + \cos^2 \theta) - 2\eta_o(\omega - \Omega_o)} \ll 1, \end{aligned} \quad (52)$$

откуда фазовая скорость обыкновенной волны равна

$$v_{ph}^o = c \left\{ \frac{1 + \cos^2 \theta}{\eta_o(\omega - \Omega_o) + \{[\eta_o(\omega - \Omega_o)]^2 + (J_0/3)(\delta\alpha_{sq}/L_0)^2(1 + \cos^2 \theta)\}^{1/2}} \right\}^{1/2} \gg c. \quad (53)$$

Для необыкновенной волны при произвольных углах θ ($\cos \theta \sim 1$) получаем уравнение $q^2 c^2 / \omega^2 = \delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) / \cos^2 \theta$, дающее для фазовой скорости v_{ph}^e дополнительный множитель $\cos \theta$ в выражении (53).

Однако, если необыкновенная волна распространяется в главном сечении вблизи нормали к оптической оси (θ близко к $\pi/2$), в правую часть уравнения (51) могут дать вклад оба слагаемые, поэтому (51) приобретает следующий вид:

$$\omega^2 / q^2 c^2 = \{(\pi/2 - \theta)^2 / \delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega)\} + \{1/\varepsilon_e^0(\Omega_o)\}, \quad (54)$$

где

$$\delta\varepsilon_o(\mathbf{q}, \omega) = (\delta\alpha_{sq}/L_0)^2 \{1 + 2J_0[(\omega^2/q^2 c^2) - 1]\} \ll 1. \quad (55)$$

Нетрудно показать, что в этом случае имеются два решения уравнения (54), что соответствует указанной выше возможности появления добавочной волны при учете пространственной дисперсии. Кроме того, если выполняется условие $(\pi/2 - \theta)^2 \approx (\delta\alpha_{sq}/L_0)^2 (2J_0 - 1) / \varepsilon_e^0(\Omega_o)$, одна из волн становится медленной, то есть ее фазовая скорость нерелятивистской

$$v_{ph}^e = c \left\{ \frac{2J_0[2J_0 - 1 - \varepsilon_e^0(\pi/2 - \theta)^2(L_0/(\delta\alpha_{sq})^2)]}{|2J_0(\varepsilon_e^0 + 1) - \varepsilon_e^0|} \right\}^{1/2} \ll c. \quad (56)$$

Для применимости макроскопической электродинамики необходимо, чтобы обратная величина постоянной решетки, $1/d$, была велика по сравнению с q , так что для медленной волны должны выполняться неравенства

$$(c/\omega d)^2 \gg \frac{|2J_0(\varepsilon_e^0 + 1) - \varepsilon_e^0|}{2J_0[2J_0 - 1 - \varepsilon_e^0(\pi/2 - \theta)^2(L_0/(\delta\alpha_{sq})^2)]} \gg 1. \quad (57)$$

б) Аналогичное рассмотрение области частот, близких к нулю необыкновенной части диэлектрической проницаемости, Ω_e , дает для обыкновенной волны обычное выражение для фазовой скорости

$$v_{ph}^o = c / \{\varepsilon_o^0(\Omega_e)\}^{1/2}. \quad (58)$$

Для необыкновенной волны при произвольных углах θ уравнение (51) имеет вид

$$\omega^2/q^2c^2 = \sin^2\theta/\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega), \quad (59)$$

где

$$\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = \frac{(2J/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2}{\{(q^2c^2/\omega^2)\sin^2\theta - \eta_e(\omega - \Omega_e)\}} \ll 1, \quad (60)$$

откуда фазовая скорость волны равна

$$v_{ph}^e = c \sin\theta \{2/\{\eta_e(\omega - \Omega_e) + \{[\eta_e(\omega - \Omega_e)]^2 + (8J/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2\}^{1/2}\}\}^{1/2} \gg c. \quad (61)$$

Так же, как и в п. а), возможно появление добавочной необыкновенной медленной волны, но теперь для углов, близких к оптической оси, $\theta \ll 1$. Действительно, для таких углов в уравнении (51) необходимо оставить первое слагаемое в правой части, так что

$$\omega^2/q^2c^2 = [1/\varepsilon_o^0(\Omega_e)] + [\theta^2/\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega)], \quad (62)$$

где

$$\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega) = - (2/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2 \times \frac{J[1 - (\omega^2/q^2c^2)]}{\theta^2 + \eta_e(\omega - \Omega_e)[1 - (\omega^2/q^2c^2)]}. \quad (63)$$

Из (62) видно, что фазовая скорость добавочной необыкновенной волны $v_{ph}^e = \omega/q$ может быть нерелятивистской, если $-1/\varepsilon_o^0(\Omega_e)$ близко к $\theta^2/\delta\varepsilon_e(\mathbf{q}, \omega)$. С помощью (63) для фазовой скорости получаем

$$v_{ph}^e = c \{(\varepsilon_o^0)^{-1} - \theta^2(3/2J)(L/\delta\alpha_{sq})^2 \times [\theta^2 + \eta_e(\omega - \Omega_e)]\}^{1/2} \ll c, \quad (64)$$

где θ^2 близок к

$$\theta_0^2 = -(1/2)\eta_e(\omega - \Omega_e) + \{(1/4)[\eta_e(\omega - \Omega_e)]^2 + (2J/3\varepsilon_o^0)(\delta\alpha_{sq}/L)^2\}^{1/2}, \quad (65)$$

причем степень близости θ к θ_0 определяется, подобно (57), условием применимости макроскопической электродинамики.

$$(c/\omega d)^2 \gg (c/v_{ph}^e)^2 = \frac{(2J/3)(\delta\alpha_{sq}/L)^2}{(\theta_0^2 - \theta^2)[2\theta_0^2 + \eta_e(\omega - \Omega_e)]} \gg 1. \quad (66)$$

5. Заключение

Малая длина волны медленных волн делает их чувствительными к малым неоднородностям вещества, что существенно для рассеяния медленных волн. Ограниченность области углов, в которой существуют такие волны, приводит к тому, что при рассеянии волна уходит из этой области и превращается в обычную волну. Ослабление интенсивности медленной волны из-за рассеяния происходит намного быстрее, чем для обычной волны, вследствие значительно большей величины коэффициента экстинкции медленных волн. Его пропорциональность четвертой степени волнового вектора показывает, что рассеяние может существенно повлиять на прохождение медленной волны через вещество.

Отметим также, что малая фазовая скорость медленной волны приводит к существенному изменению процессов излучения таких волн по сравнению с обычными. Например, если скорость v равномерно движущегося в кристалле заряда больше фазовой скорости медленной волны, v_{ph}^e , но меньше фазовой скорости обыкновенной волны, $c/(\varepsilon_o^0)^{1/2}$, то черенковское излучение заряда состоит из медленных волн. При этом следует учесть, что для возникновения такого излучения должны быть выполнены условия ориентации скорости заряда в кристалле так, чтобы угол вылета черенковского излучения совпал с областями углов (57) или (66), в которых существуют медленные волны. Можно показать [2], что для заряда, движущегося вдоль главной оси с нерелятивистской скоростью, $v \ll c$, величина угла θ попадает в область существования медленных волн.

Приложение 1. Усреднение по положениям молекул

Пусть $\mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega)$ — Фурье-образ по времени микроскопического поля в точке \mathbf{r} . Оно представляет собой сумму первичного поля \mathbf{E}^0 (еще не взаимодействовавшего ни с одной молекулой) и вторичных полей, созданных в точке \mathbf{r} дипольными моментами всех молекул.

С помощью уравнений Максвелла нетрудно получить уравнение для $\mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega)$ [12]

$$\mathbf{E}_i^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}_i^0(\mathbf{r}, \omega) + (1/2\pi^2) \sum_{r'} \int d^3q \{Q_{is}(q, \omega) - \delta_{is}\} \times \alpha_{sj}(\mathbf{s}, \omega) \mathbf{E}_j^{\text{mic}}(\mathbf{r}', \omega) \exp\{i\mathbf{q}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\}, \quad (\text{П1})$$

где \mathbf{r}' — радиус-векторы молекул, по которым проводится суммирование, и

$$Q_{is}(q, \omega) = \{q^2/[q^2 - (\omega/c)^2]\}(\delta_{is} - q_iq_sq^{-2}) \equiv Q(q, \omega)t_{is}(q). \quad (\text{П2})$$

Удобно сначала рассмотреть кристалл с фиксированными угловыми отклонениями оси каждой молекулы. В таком кристалле остается усреднить лишь по положениям центров инерции молекул. Учтем, что однородное распределение молекул получается из любого другого

смещением каждой молекулы на расстояние порядка среднего межмолекулярного. Так как электрическое поле на таких расстояниях практически не меняется, то под знаком интеграла точное значение действующего на молекулу поля можно заменить усредненным по положениям других молекул полем $\langle\langle \mathbf{E}^{\text{mic}}(\mathbf{r}', \omega) \rangle\rangle$

$$E_i^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) = E_i^0(\mathbf{r}, \omega) + (1/2\pi^2) \sum_{\mathbf{r}'} \int d^3q \{Q_{is}(q, \omega) - \delta_{is}\} \times \alpha_{sj}(\mathbf{s}, \omega) \langle\langle E_j^{\text{mic}}(\mathbf{r}', \omega) \rangle\rangle \exp\{i\mathbf{q}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\}. \quad (\text{П3})$$

Усреднение (П3) по координатам всех молекул в левой части равенства приводит к замене микроскопического поля средним макроскопическим полем $E_i(\mathbf{r}, \omega)$, а в правой части равенства — к замене суммы интегралом по объему вещества

$$E_i(\mathbf{r}, \omega) = E_i^0(\mathbf{r}, \omega) + (n_0/2\pi^2) \int d^3q \{Q_{is}(q, \omega) - \delta_{is}\} \times \alpha_{sj}(\mathbf{s}, \omega) \int d^3r' \langle\langle E_j^{\text{mic}}(\mathbf{r}', \omega) \rangle\rangle \exp\{i\mathbf{q}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\}. \quad (\text{П4})$$

Пусть \mathbf{r} — координата некоторой молекулы вещества. Усреднение (П3) по координатам всех молекул, кроме выделенной, $\mathbf{r}' \neq \mathbf{r}$, приводит в левой части к замене \mathbf{E}^{mic} на $\langle\langle \mathbf{E}^{\text{mic}} \rangle\rangle$. (Полезно подчеркнуть, что в приближении кристаллооптики такое усреднение можно проводить как в аморфном веществе). Для усреднения суммы в правой части достаточно умножить каждое ее слагаемое на вероятность положения молекулы в элементе объема dV' на расстоянии $r'' = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ от рассматриваемой молекулы,

$$dW(\mathbf{r}'') = g(\mathbf{r}'')(dV'/V) = \{1 - f(\mathbf{r}'')\}(dV'/V) \quad (\text{П5})$$

и проинтегрировать по \mathbf{r} . После этого зависимость слагаемых от \mathbf{r}' исчезает и суммирование сводится к умножению на число членов суммы $N - 1 \approx N = n_0V$, где n_0 — средняя плотность числа молекул кристалла. Величина $g(\mathbf{r}'')$ называется обычно радиальной функцией распределения и может быть определена в независимом эксперименте, например, по дифракции рентгеновских лучей [19].

Учитывая сказанное, результат усреднения (П3) по пространственному положению координат центров инерции молекул можно представить как

$$\langle E_i^{\text{mic}}(\mathbf{r}, \omega) \rangle = E_i^0(\mathbf{r}, \omega) + (n_0/2\pi^2) \int d^3q Q_{is}(q, \omega) \alpha_{sj}(\omega) \times \int d^3r'' \{1 - f(\mathbf{r}'')\} \langle E_j^{\text{mic}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'', \omega) \rangle \exp\{i\mathbf{q}\mathbf{r}''\}. \quad (\text{П6})$$

Радиальная функция распределения $g(r) = 1 - f(r)$ обращается в нуль при $r \ll a \equiv n_0^{-1/3}$, так что $f(r) = 1$ при $r \ll a$, так как вероятность неограниченного сближения молекул в однородной среде исчезающе мала. С другой стороны, корреляция расположения далеких молекул отсутствует, поэтому $g(r) = 1$, так что $f(r) = 0$ при $r \gg a$. Это означает, что функция $f(r)$ отлична

от нуля только в области значений r меньше или порядка a . Поэтому в содержащем функцию $f(r'')$ интеграле эффективные значения переменной интегрирования r'' также порядка или меньше a . Усредненное по координатам поле на таких расстояниях практически не меняется, поэтому его можно вынести из-под интеграла в точке $r'' = 0$. Соответственно, эффективные значения переменной интегрирования q порядка $1/a \gg \omega/c$. Остающийся в этом слагаемом интеграл удобно обозначить как

$$J_{is} = (2\pi)^{-3} \int d^3q \{\delta_{is} - q_i q_s q^{-2}\} \int d^3r'' f(\mathbf{r}'') \exp\{i\mathbf{q}\mathbf{r}''\} = \int d^3q \{\delta_{is} - q_i q_s q^{-2}\} f(-\mathbf{q}) = J_0(\delta_{is} - e_i e_s) + J_e e_s = J_0 t_{is} + J l_{is}; \quad (\text{П7})$$

где

$$J_0 = \int d^3q a_1(\mathbf{q}) f(-\mathbf{q}),$$

$$a_1(\mathbf{q}) = (1/2)[1 + (\mathbf{q}\mathbf{e})^2/q^2] = (1/2)[1 + \cos^2\theta]; \quad (\text{П8})$$

$$J = \int d^3q a_2(\mathbf{q}) f(-\mathbf{q}),$$

$$a_2(\mathbf{q}) = 1 - (\mathbf{q}\mathbf{e})^2/q^2 = 1 - \cos^2\theta. \quad (\text{П9})$$

Нетрудно видеть, что J_0 и J связаны условием $2J_0 + J = 2 \int d^3q q f(-\mathbf{q}) = 2f(\mathbf{R} = 0) = 2$. Так как в однородной одноосной среде есть только одно выделенное направление, задаваемое единичным вектором \mathbf{e} (θ — угол между векторами \mathbf{e} и \mathbf{q}), то переходя к Фурье-образам полей по координатам, можно преобразовать (П6) к виду

$$\langle\langle E_i^{\text{mic}}(\mathbf{q}, \omega) \rangle\rangle = E_i^0(\mathbf{q}, \omega) + 4\pi n_0 \{Q_{is}(q, \omega) - J_{is}\} \alpha_{sk}(\omega) \langle\langle E_k^{\text{mic}}(\mathbf{q}, \omega) \rangle\rangle. \quad (\text{П10})$$

Приложение 2. Среднее от произведения флуктуаций поляризуемостей

Среднее по ориентациям произведение флуктуаций поляризуемостей двух молекул с помощью (6) и (5) сводится к среднему от произведения четырех компонент единичного вектора оси молекулы \mathbf{s}

$$\langle\delta\alpha_{ij}(\omega)\delta\alpha_{kl}(\omega)\rangle = -(L_0 - \alpha)^2 \delta_{ij} \delta_{kl} + (L_0 - \alpha)(L_0 - L)(\delta_{ij} e_k e_l + e_i e_j \delta_{kl}) - (L_0 - L)^2 e_i e_j e_k e_l + (\beta - \alpha)^2 \langle s_i s_j s_k s_l \rangle. \quad (\text{П11})$$

Учитывая, что молекулы находятся в разных точках \mathbf{R} и \mathbf{R}' , среднее $\langle s_i s_j s_k s_l \rangle$ представим в виде

$$\langle s_i s_j s_k s_l \rangle = A \delta_{ij} \delta_{kl} + B(\delta_{ij} e_k e_l + e_i e_j \delta_{kl}) + C e_i e_j e_k e_l. \quad (\text{П12})$$

Несложные преобразования дают следующие выражения для коэффициентов A , B , и C :

$$\begin{aligned} A &= (1/4)\{1 - 2\langle(\mathbf{es})^2\rangle + \langle(\mathbf{es})^4\rangle\}, \\ B &= -(1/4)\{1 - 4\langle(\mathbf{es})^2\rangle + 3\langle(\mathbf{es})^4\rangle\}, \\ C &= (1/4)\{1 - 6\langle(\mathbf{es})^2\rangle + 9\langle(\mathbf{es})^4\rangle\}. \end{aligned} \quad (\text{П13})$$

С помощью (6) выразим $(L_0 - \alpha)$ и $(L_0 - L)$ через $\langle(\mathbf{es})^2\rangle$

$$\begin{aligned} (L_0 - \alpha) &= (1/2)(\beta - \alpha)[1 - \langle(\mathbf{es})^2\rangle], \\ (L_0 - L) &= (1/2)(\beta - \alpha)[1 - 3\langle(\mathbf{es})^2\rangle]. \end{aligned} \quad (\text{П14})$$

Подставив (П12), (П13) и (П14) в (П11), окончательно получаем

$$\langle\delta\alpha_{ij}(\omega)\delta\alpha_{kl}(\omega)\rangle = (1/6)\delta\alpha_{sq}^2(t_{ij} - 2l_{ij})(t_{kl} - 2l_{kl}), \quad (\text{П15})$$

где

$$\delta\alpha_{sq}^2 = (3/2)\nu(\beta - \alpha)^2,$$

а $\nu = \langle(\mathbf{es})^4\rangle - (\langle(\mathbf{es})^2\rangle)^2$ — коррелятор ориентационных флуктуаций двух молекул. Очевидно, что замена $\langle s_i s_j s_k s_l \rangle$ на $\langle s_i s_j \rangle \langle s_k s_l \rangle$ соответствует замене $\langle\delta\alpha_{ij}(\omega)\delta\alpha_{kl}(\omega)\rangle$ на $\langle\delta\alpha_{ij}(\omega)\rangle\langle\delta\alpha_{kl}(\omega)\rangle$, то есть пренебрежению корреляциями ориентационных флуктуаций, $\nu = 0$.

Приложение 3. Оценка величин K , K_1 и K_2

Для оценки величин K_1 и K_2 используем модель бинарной функции распределения $f(\mathbf{r})$, которая, очевидно, должна характеризовать свободный от других молекул объем вблизи рассматриваемой молекулы. В одноосном кристалле этот объем должен быть аксиально-симметричным. Считая распределение молекул гауссовым, положим:

$$f(\mathbf{r}) = \exp\{-(x^2 + y^2)/a^2 + z^2/b^2\}. \quad (\text{П16})$$

Заметим, что функция $f(\mathbf{r})$ удовлетворяет указанным в Приложении 1 условиям: $f(\mathbf{r}) = 1$ при $r \rightarrow 0$ и $f(\mathbf{r}) = 0$ при $r \rightarrow \infty$. Величины a и b имеют следующий физический смысл. Вероятность обнаружить молекулу в объеме dV равна dV/V , если взаимодействием молекул друг с другом можно пренебречь, как, например, в разреженном газе. В конденсированной среде, где среднее расстояние между молекулами порядка радиуса взаимодействия, эта вероятность отличается от нее множителем $g(\mathbf{r})$: $dW(\mathbf{r}) = g(\mathbf{r})dV/V$, где \mathbf{r} — вектор положения второй молекулы относительно первой. Поэтому разность $dV/V - dW(\mathbf{r}) = f(\mathbf{r})dV/V$ (см. Приложение 1), так что функция $f(\mathbf{r})$ характеризует корреляции положений частиц. Взяв интеграл по объему V_1 элементарной ячейки кристалла [21]

$$(2\pi/V_1) \int_{V_1} f(\boldsymbol{\rho}' + \mathbf{z}')f(\boldsymbol{\rho}' + \mathbf{z}' + \mathbf{r})\rho'd\rho'dz', \quad (\text{П17})$$

можно определить характерные корреляционные расстояния. Несложное интегрирование показывает, что a — характерная длина ослабления корреляций положений

молекул в e раз в плоскости, перпендикулярной оптической оси, а $\sqrt{2}b$ — вдоль нее.

Найдя Фурье-образ выражения (П16) по координатам, получаем

$$\begin{aligned} f(\mathbf{p}) &= f(p, \gamma) = (a^2/8\pi^{3/2}) \\ &\times \exp\{-(1/4)p^2(a^2 \sin^2 \gamma + b^2 \cos^2 \gamma)\}. \end{aligned} \quad (\text{П18})$$

Подставив (П18) в (41) и выполнив элементарное интегрирование, находим, что K , K_1 и K_2 равны при $b < a$

$$\begin{aligned} K &= [a^2 b/2(a^2 - b^2)^{1/2}] \arcsin[(a^2 - b^2)^{1/2}/a], \\ K_1 &= [a^2 b/4(a^2 - b^2)^{1/2}] \{ [a^2/(a^2 - b^2)] \\ &\times \arcsin[(a^2 - b^2)^{1/2}/a] - b/(a^2 - b^2)^{1/2} \}, \\ K_2 &= [a^2 b/16(a^2 - b^2)^{1/2}] \{ [3a^4/(a^2 - b^2)^2] \\ &\times \arcsin[(a^2 - b^2)^{1/2}/a] - 3a^2 b/(a^2 - b^2)^{3/2} \\ &- 2b/(a^2 - b^2)^{1/2} \}. \end{aligned} \quad (\text{П19})$$

При $b > a$ надо $(a^2 - b^2)$ заменить на $(b^2 - a^2)$, $\arcsin[(a^2 - b^2)^{1/2}/a]$ на $\ln\{[b + (b^2 - a^2)^{1/2}]/a\}$ и K_1 на $-K_1$.

Список литературы

- [1] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. Наука, М. (1982). 620 с.
- [2] М.И. Рязанов. ЖЭТФ **103**, 1840 (1993).
- [3] V.M. Dubovik, M.I. Ryzanov. Laser Phys. **14**, 904 (2004).
- [4] В.М. Дубовик, М.И. Рязанов. ЖТФ **76**, 9, 1 (2006).
- [5] В.М. Дубовик. ЖТФ **78**, 5, 125 (2008).
- [6] S.L. Adler. Phys. Rev. **126**, 413 (1962).
- [7] N. Wisser. Phys. Rev. **129**, 62 (1963).
- [8] D.L. Johnson. Phys. Rev. B **9**, 4475 (1974).
- [9] J.T. Foley, A.J. Devaney. Phys. Rev. B **12**, 3104 (1975).
- [10] J.E. Sipe. Can. J. Phys. **55**, 2169 (1977).
- [11] E.G. Maksimov, I.I. Mazin. Solid State Commun. **27**, 527 (1978).
- [12] М.И. Рязанов. Электродинамика конденсированного вещества. Наука, М. (1984). 303 с.
- [13] Е.Ф. Гросс, А.А. Каплянский. ДАН СССР **132**, 98 (1960).
- [14] В.П. Силин, А.А. Рухадзе. Электромагнитные свойства плазмы и плазмоподобных сред. Госатомиздат, М. (1961). 244 с.
- [15] К.Б. Толпыго. УФН **74**, 269 (1961).
- [16] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
- [17] В.М. Агранович. УФН **112**, 143 (1974).
- [18] С.И. Пекар. Кристаллооптика и добавочные световые волны. Наук. думка, Киев (1982). 295 с.
- [19] М.А. Кривоглаз. Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов реальными кристаллами. Наука, М. (1967). 336 с.
- [20] В.М. Дубовик, М.И. Рязанов. Вестн. НИЯУ МИФИ **2**, 277 (2013).
- [21] А. Гинье. Рентгенография кристаллов. Теория и практика. ГИФМЛ, М. (1961). 604 с.