

КОГЕРЕНТНЫЕ СОСТОЯНИЯ МОМЕНТА И ТЕРМОДИНАМИКА
МОДЕЛИ ДИКЕ

Т. М. Махвиладзе, А. И. Рез, М. Е. Сарычев

УДК 621.375.82

В представлении когерентных состояний рассмотрены термодинамические свойства и энергетический спектр системы молекул, взаимодействующих с собственным полем излучения в резонаторе.

Недавно было показано /1/, что для системы энергетических спинов, взаимодействующих с линейным осциллятором, в условиях сильной связи имеет место фазовый переход 2-го рода по температуре. Рассмотрение Хеппа и Либа /1/ проведено в представлении кооперативных состояний Дике и n -частичных состояний осциллятора. Вонг и Хисе /2/ достигли значительных упрощений при расчете термодинамики, благодаря использованию глауберовских состояний осциллятора. Результаты /1,2/ были использованы авторами /3/ для детального изучения термодинамического поведения реальной системы излучающих молекул в резонаторе (в частности, были получены и исследованы условия безинверсной генерации). В настоящем сообщении сформулирован новый подход к рассмотрению подобных систем, основанный на использовании представления когерентных состояний момента (КСМ) /4/ для системы излучателей, который позволяет получить ряд дополнительных результатов.

I. В представлении энергетического спина гамильтониан задачи имеет вид

$$H = \epsilon a^+ a + \epsilon R_3 + \frac{\lambda}{\sqrt{N}} (R_+ a + R_- a^+); \quad (I)$$

$$R_{\pm} = \sum_{j=1}^N \sigma_{\pm}^j \exp(\pm i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j); \quad R_3 = \sum_{j=1}^N \sigma_z^j,$$

где ϵ - расстояние между уровнями, \mathbf{r}_j - радиус вектор j -й двухуровневой частицы, описываемой матрицами Паули σ_{α}^j ; a^+ ,

а - бозе-операторы фотонов поля с волновым вектором \vec{k} . Для системы молекул в резонаторе $\lambda = i\sqrt{2\pi\epsilon\rho}(\vec{d}_{12}\vec{e})$, где \vec{d}_{12} - матричный элемент дипольного момента, \vec{e} - вектор поляризации резонансной моды, $\rho = N/V$; N - число молекул, V - объем резонатора. В (1) использовано приближение вращающейся волны. Точное рассмотрение /3/ приводит к замене во всех термодинамических формулах $\lambda \rightarrow 2\lambda$, что принципиально не сказывается на получаемых ниже результатах. Выберем в качестве базисных функций глауберовские состояния по полю ($a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle$) и КСМ для системы молекул /4/. В швингеровском представлении момента

$$R_+ = b_1^\dagger b_2, \quad R_- = b_2^\dagger b_1, \quad R_3 = \frac{1}{2} (b_1^\dagger b_1 - b_2^\dagger b_2), \quad [b_1, b_1^\dagger] = \delta_{1,1}.$$

КСМ есть суперпозиция собственных векторов $|j, m\rangle$ операторов момента и его проекции

$$|\delta_1, \delta_2\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}|\delta|^2\right) \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{m=-j}^{+j} \frac{\delta_1^{j+m} \delta_2^{j-m}}{[(j+m)!(j-m)!]^{1/2}} |j, m\rangle,$$

$$|\delta|^2 = |\delta_1|^2 + |\delta_2|^2; \quad \langle \delta_2, \delta_1 | \delta_1, \delta_2 \rangle = 1, \quad (2)$$

$$r_+ \equiv \langle \delta_2, \delta_1 | R_+ | \delta_1, \delta_2 \rangle = \delta_1^\dagger \delta_2;$$

$$r_3 \equiv \langle \delta_2, \delta_1 | R_3 | \delta_1, \delta_2 \rangle = \frac{1}{2} (|\delta_1|^2 - |\delta_2|^2).$$

При $|\delta| \gg 1$ эти состояния с точностью до $O(1/|\delta|^2)$ определяют классический вектор момента с длиной $r = |\delta|^2/2$. В представлении когерентных состояний статистическая сумма системы равна

$$Z = \sum_{\alpha=0}^{N/2} \sum_{r_3=-r}^r \Gamma(r) \langle r_3, r | \text{Sp}_F e^{-\beta H} | r, r_3 \rangle =$$

$$= \int \frac{d^2\alpha}{\pi} \int \frac{d^2\delta_1}{\pi} \frac{d^2\delta_2}{\pi} \Gamma(\delta_1, \delta_2) \exp\left\{-\beta\epsilon|\alpha|^2 - \frac{\beta\epsilon}{2} (|\delta_1|^2 - |\delta_2|^2) - \frac{\beta\lambda}{\sqrt{N}} (\alpha\delta_1^\dagger\delta_2 + \alpha^*\delta_1\delta_2^\dagger)\right\}, \quad (3)$$

где $\Gamma(r)$ - статистический вес состояния с фиксированным значением энергетического спина r и всевозможными значениями проекции $|r_3| \leq r$:

$$\Gamma(r) = (2r + 1)N! \left[\left(\frac{N}{2} - r \right)! \left(\frac{N}{2} + r + 1 \right)! \right]^{-1} \text{ при } |r_3| \leq r \leq \frac{N}{2}, \quad (4)$$

$\Gamma(r) = 0$ в остальных случаях; $\Gamma(\gamma_1, \gamma_2) = \Gamma\left(r = \frac{1}{2} |\gamma_1|^2\right)$. В (4) использовано, что при $N \rightarrow \infty$

$$\langle \alpha | \langle \gamma_2, \gamma_1 | e^{-\beta H} | \gamma_1, \gamma_2 \rangle | \alpha \rangle = \exp \left\{ - \langle \alpha | \langle \gamma_2, \gamma_1 | \beta H | \gamma_1, \gamma_2 \rangle | \alpha \rangle \right\}. \quad (5)$$

Формула (3) дает удобное для приложений интегральное представление Z .

2. Используем (3) для определения термодинамических функций. При $N \rightarrow \infty$ Z вычисляется методом перевала по $|\alpha|, |\gamma_1|, |\gamma_2|$. $\varphi = \arg(\alpha)$, $\psi_1 = \arg(\gamma_1)$. При $\lambda^2 > \varepsilon^2$ существует критическая температура $T_c = \varepsilon \left[2 \operatorname{arcth}(\varepsilon^2 / \lambda^2) \right]^{-1}$, ниже которой (f и $\bar{n} = |\bar{\alpha}|^2 / N$ - свободная энергия и среднее число фотонов на частоту)

$$\beta f = - \ln 2 \operatorname{ch} \frac{\beta \lambda^2 \sigma}{\varepsilon} + \frac{\beta \lambda^2 \sigma^2}{\varepsilon} - \frac{\beta \varepsilon^3}{4 \lambda^2}; \quad 2\sigma = \operatorname{th} \frac{\beta \lambda^2 \sigma}{\varepsilon}; \quad \sigma \equiv \frac{r}{N}; \quad (6)$$

$$\sigma_3 \equiv \frac{r_3}{N} = - \frac{\varepsilon^2}{2 \lambda^2}; \quad \bar{n} = \frac{\sigma^2 - \sigma_3^2}{2 |\sigma_3|}; \quad \varphi = \pi - \psi_1 + \psi_2.$$

При прохождении через T_c система испытывает фазовый переход второго рода со скачком теплоемкости $\Delta C \approx 1$ при $\lambda^2 \gg \varepsilon^2$. Выше T_c

$$\beta f = - \ln 2 \operatorname{ch} \frac{\beta \varepsilon}{2}; \quad \sigma_3 = - \frac{1}{2} \operatorname{th} \frac{\beta \varepsilon}{2} = - \sigma; \quad (7)$$

φ, ψ_1 и ψ_2 - произвольны.

Если $\lambda^2 < \varepsilon^2$, термодинамические величины описываются формулами (7) (см. /1, 3/): Сильная связь между полем и молекулами при $T < T_c$ приводит к стабильности коррелированной фазы, характеризующейся наличием недиагонального дальнего порядка ($\sigma \neq |\sigma_3|$, $\bar{n} \neq 0$). Вычисление Z по перевалу эквивалентно вычислению по формуле

$$\beta f = \langle \bar{\alpha} | \langle \bar{\gamma}_2, \bar{\gamma}_1 | \beta H | \bar{\gamma}_1, \bar{\gamma}_2 \rangle | \bar{\alpha} \rangle - \ln \Gamma(\bar{\gamma}_1, \bar{\gamma}_2). \text{ Отсюда следует, что}$$

при $N \rightarrow \infty$ система находится в одном когерентном состоянии $|\bar{\alpha}\rangle |\bar{\gamma}_1, \bar{\gamma}_2\rangle$ с параметрами, определяемыми из (6), (7). Коррелированная фаза отвечает макроскопическому заполнению состояния $|\bar{\alpha}\rangle |\bar{\gamma}_1, \bar{\gamma}_2\rangle$. Это позволяет дать классическую трактовку условия фаз $\varphi = \pi - \psi_1 + \psi_2$. Гамильтониан (1) описывает взаимодействие поля напряженности $E \sim (a^+ + a)$, перпендикулярного оси резонатора, с диполями перехода d_{12} . Вектора \bar{E} и \bar{d}_{12} расположены в одной плоскости. В силу (2) $r_x/r_y = \text{tg}(\psi_1 - \psi_2)$, $E_x/E_y = \text{tg}\varphi$. Значит, согласно (6) при $T < T_c$ появляется макроскопическая составляющая вектора поляризации и антипараллельный ей вектор напряженности поля, которые с частотой $\omega = \epsilon/\hbar$ вращаются в плоскости, перпендикулярной оси резонатора. В этом смысле система находится в состоянии безинверсионной генерации, исследованном в [3], где показано, что при нарушении равновесия ("открывании" стенки резонатора в объеме с меньшей температурой) система может служить генератором излучения с интенсивностью $I = N\epsilon\psi(\sigma + \sigma_3)(\sigma - 3\sigma_3)(2|\sigma_3|)^{-1}$, где ψ^{-1} - характерное время выхода фотонов.

3. Согласно п.2 при $T < T_c$ поле выстраивает диполи переходов. Качественно ясно, что резонансный обмен квантами между молекулами (см. (1)) должен приводить к эффективному прямому взаимодействию диполей переходов, ответственному за их ориентационное упорядочение. Представление (3) позволяет найти вид этого взаимодействия путем точного вычисления шпура по α :

$$Z = \frac{1}{\beta\epsilon} \iint \frac{d^2\gamma_1}{\pi} \frac{d^2\gamma_2}{\pi} \times \\ \times \Gamma(\gamma_1, \gamma_2) \exp \left\{ -\beta \left[\frac{\epsilon}{2} (|\gamma_1|^2 - |\gamma_2|^2) - \frac{\lambda^2}{\epsilon N} \gamma_1^* \gamma_2 \delta_2^* \gamma_1 \right] \right\}, \quad (8)$$

что согласно (2) совпадает при $N \rightarrow \infty$ со статсуммой "одномодовой" XY-модели во внешнем поле, гамильтониан которой $H_{XY} = \epsilon R_3 - (\lambda^2/\epsilon N) R_- R_+$. В H_{XY} первый член описывает взаимодействие z - компонент диполей с "внешним полем", а второй - прямое взаимодействие поперечных компонент с константой связи $\lambda^2/\epsilon N = 2\mu d_{12}^2/N$. Величина $2\mu d_{12}^2 \approx 2\mu \bar{d}_{12} \bar{d}_{12} / |\bar{F}_1 - \bar{F}_1|^3$ имеет смысл эффективного дипольного взаимодействия диполей переходов. Поэто-

му из (8) следует термодинамическая эквивалентность резонансного обмена квантами прямому резонансному диполь-дипольному взаимодействию между молекулами. Состояния Дике $|r, r_3\rangle$ - собственные векторы H_{XY} . В этом представлении

$$z = \sum_{r=0}^{N/2} \Gamma(r) \sum_{r_3=-r}^r \exp \left\{ -\beta \left[\varepsilon r_3 - \frac{\lambda^2}{\varepsilon N} (r^2 - r_3^2 + r - r_3) \right] \right\}, \quad (9)$$

что также приводит к (6), (7). Для спектра H_{XY} имеем

$$\varepsilon_{r, r_3} = \varepsilon r_3 - \frac{\lambda^2}{\varepsilon N} (r^2 - r_3^2 + r - r_3); \quad -\frac{N}{2} \leq r_3 \leq \frac{N}{2}, \quad |r_3| \leq r \leq \frac{N}{2}. \quad (10)$$

В частности, энергия основного состояния на одну частицу равна:

$$\varepsilon_0 = \begin{cases} -\frac{\varepsilon}{2} & \text{при } \lambda^2 < \varepsilon^2 \\ -\frac{\varepsilon}{4} \left(\frac{\lambda^2}{\varepsilon^2} + \frac{\varepsilon^2}{\lambda^2} \right) & \text{при } \lambda^2 > \varepsilon^2. \end{cases} \quad (11a) \quad (11b)$$

Из (9), (10) следует, что спектр H_{XY} термодинамически эквивалентен спектру гамильтониана (I), аналитическое вычисление которого является весьма сложной задачей /5/.

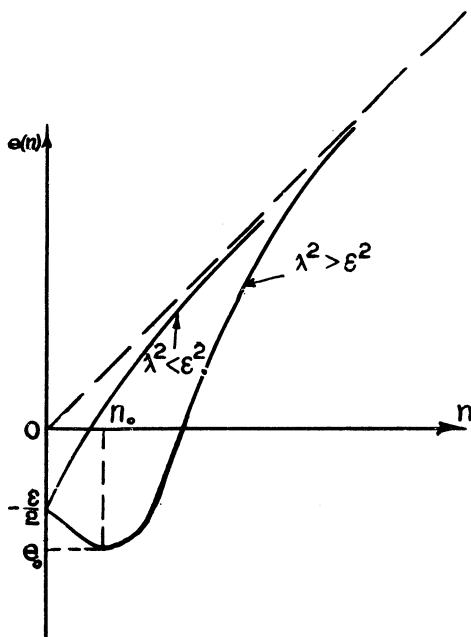
4. Рассмотрим связь между энергией системы в когерентных состояниях поля и момента, которая согласно (3), (5) равна ($\tilde{n} = |\alpha|^2/N$)

$$\xi(\tilde{n}, \sigma, \sigma_3, \varphi, \psi_1, \psi_2) = \varepsilon(\tilde{n} + \sigma_3) + 2\lambda \sqrt{\tilde{n}(\sigma^2 - \sigma_3^2)} \cos(\varphi - \psi_1 + \psi_2), \quad (12)$$

и спектром гамильтониана (I). Непрерывное изменение величин в правой части (12) отражает тот факт, что когерентные состояния образуют переполненную систему. Поэтому (12) помимо уровней, отвечающих спектру (I), включает и промежуточные нефизические состояния. Чтобы показать это, диагонализуем (I) поворотом осей координат (при $N \rightarrow \infty$ операторы R_α можно считать компонентами классического вектора \tilde{R} , а операторы поля - C-числами):

$$H = \varepsilon a^\dagger a + \left(\varepsilon^2 + 4\lambda^2 \frac{a^\dagger a}{N} \right)^{1/2} R_3, \quad \text{где } -\frac{N}{2} \leq R_3 \leq \frac{N}{2}. \quad (13)$$

В силу (I3) при фиксированном числе фотонов на молекулу n взаимодействие с молекулами расщепляет уровень ϵn в зону уровней шириной $\delta = (\epsilon^2 + 4\lambda^2 n)^{1/2}$, расстояние между которыми равно $\delta/2n$. Зоны, отвечающие различным n , перекрываются, что при-



Р и с. I.

водит к квазинепрерывному спектру. Нижний край n -ой зоны описывается выражением (см.рис.I) : $\epsilon(n) = \epsilon n - \delta/2$. Минимизируя $\epsilon(n)$, найдем энергию основного состояния, которая совпадает с формулой (IIa,б) для n_{XY} . Появление при $\lambda^2 > \epsilon^2$ нового основного состояния (IIб) отвечает фазовому переходу, описываемому (6), (7). Сравнение (I2) со спектром (I3) показывает, что "спектр" в когерентных состояниях имеет аналогичный вид. Однако, дискретная структура каждой зоны спектра (I3) дополнена непрерывным набором промежуточных нефизических уровней. В частности, энергия основного состояния спектра (I2) при $\lambda^2 > \epsilon^2$ совпадает с (IIб), что согласуется с выводом п.2 о выделении при $N \rightarrow \infty$ одного

состояния $|\bar{\alpha}\rangle|\bar{\gamma}_1, \bar{\gamma}_2\rangle$. Смысл перехода в это состояние следует из квазиклассичности операторов, входящих в (I). Взаимодействие молекулы с полем эквивалентно сдвигу полевого осциллятора, новым основным состоянием которого является глауберовское состояние $|\lambda r_s/\sqrt{N}\rangle$. В свою очередь, поле, действуя на молекулы, поворачивает вектор \bar{E} и переводит молекулы в когерентное состояние момента $|\bar{\gamma}_1, \bar{\gamma}_2\rangle$.

В заключение укажем результат аналогичного рассмотрения в случае многоуровневых молекул (многомодовое взаимодействие). Здесь выполнение условий сильной связи для безинверсной генерации требуется не по всем модам. Например, если эти условия выполнены по переходам $1 \rightarrow 1 + 1$, $l = 1, 2, \dots, n - 1$, то его выполнения по высокоэнергетическому переходу $1 \rightarrow n$ не требуется вообще. При этом мода $1 \rightarrow n$ макроскопически заполнена: $\langle a^+ a \rangle / N \sim \lambda^2 / \epsilon^2$ (λ, ϵ - константа перехода и расстояние между уровнями "1" и "n"). Поэтому реализации эффекта в многоуровневом случае может обладать определенными преимуществами (см. также /3/). Авторы благодарны Л. А. Шелепину за полезное обсуждение.

Поступила в редакцию
3 апреля 1974 г.

Л и т е р а т у р а

1. K. Herr, E. H. Lieb. Ann. Phys., 76, 360 (1973); Phys. Rev., 8A, 2577 (1973).
2. Y. K. Wang, F. T. Hioe. Phys. Rev., 7A, 831 (1973).
3. Т. М. Махвиладзе, А. И. Рез, М. Е. Сарычев. Препринт ФИАН № 178. 1973 г.
4. F. W. Atkins, J. S. Dobson. Proc. Roy. Soc., A321, 321 (1971).
Т. М. Махвиладзе, Л. А. Шелепин. ЯФ, 15, 1082 (1972).
5. M. Tavis, F. W. Cummings. Phys. Rev., 170, 379 (1968).
G. Scharf. Helv. Phys. Acta, 43, 806 (1970).