

05:09;12

О НЕЛИНЕЙНЫХ СВОЙСТВАХ МНОГОУРОВНЕВОЙ КВАДРУПОЛЬНОЙ СПИН-СИСТЕМЫ

© А.С.Ким

Наличие в кристалле спин-системы квадрупольных ядер с многоуровневым неэквидистантным энергетическим спектром позволяет осуществлять двухчастотное возбуждение квадрупольного спинового эха [1,2]. При воздействии на два перехода, имеющие общий энергетический уровень, сериями радиочастотных импульсов с частотами заполнения, равными частотам этих переходов, возникают сигналы откликов, количество, амплитуды и местоположения которых зависят от различных параметров импульсных последовательностей [3-6].

Особый интерес представляет изучение нелинейных свойств многоуровневой квадрупольной спин-системы, которые проявляются при взаимодействии с двумя резонансными РЧ полями. Характеристикой нелинейных свойств такой системы может служить отклик ее на двухчастотное импульсное воздействие, которое возможно в двух вариантах.

1. Когда возбуждаются два соседних ($m \leftrightarrow m - 1$ и $m + 1 \leftrightarrow m$, где m — магнитное квантовое число) перехода, а регистрация сигналов на смешанной частоте производится на двухквантовом переходе ($m + 1 \leftrightarrow m - 1$). Для образцов, содержащих ядра с целыми спинами (например, со спином 1), наблюдаемая частота будет разностной между частотами возбуждаемых переходов, а для образцов, содержащих ядра с полупелыми спинами, будет регистрироваться суммарная частота.

2. Когда возбуждаются два перехода, один из которых одноквантовый, другой двухквантовый, регистрация ведется на втором одноквантовом переходе. При этом для полупелых спинов регистрируют разностную частоту, а в случае целых спинов — суммарную.

Гамильтониан квадрупольной спин-системы, на которую воздействует РЧ поле, имеет следующий вид [7]:

$$H = H_Q + H_1,$$

где H_Q — гамильтониана взаимодействия квадрупольного момента ядра с градиентом электрического поля (ГЭП)

кристалла, \mathcal{H}_1 — гамильтониана взаимодействия с радиочастотным полем,

$$\mathcal{H}_Q = \frac{eQq_{zz}}{4J(2J-1)} \left[3I_z^2 + I^2 + \frac{\eta}{2} (I_+^2 + I_-^2) \right], \quad (2)$$

где

$$\begin{aligned} I^2 &= I_x^2 + I_y^2 + I_z^2, & I_{\pm} &= I_x \pm iI_y, \\ \eta &= (q_{zz} - q_{yy})/q_{xx}, \\ \mathcal{H}_1 &= -2\gamma\hbar H_1 I_x (\cos \omega_1 t + \cos \omega_2 t). \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь eQq_{zz} и η — константа квадрупольного взаимодействия и параметр асимметрии ГЭП соответственно; I_i — компоненты спинового момента ядра в системе главных осей X, Y, Z ГЭП; H_1 — амплитуда РЧ поля, линейно поляризованного вдоль оси X ; ω_1 и ω_2 — частоты заполнения РЧ импульсов; γ — гиромагнитное отношение ядра; \hbar — постоянная Планка.

Поведение спин-системы определяется матрицей плотности $\rho(t)$, являющейся решением уравнения Неймана [8]

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [\mathcal{H}, \rho] = \mathcal{H}\rho - \rho\mathcal{H}. \quad (4)$$

После действия трех РЧ импульсов (по программе на рисунке) отклик спин-системы имеет вид

$$\begin{aligned} V(t) &= 2(I'_x)_{m,m-1} \left\{ -A(z_i, x) \cdot \omega_{m+1,m-1} \times \right. \\ &\times \sin \omega_{m,m-1} \left\{ t - \left[\left(1 + \frac{\omega_{m+1,m-1}}{\omega_{m,m-1}} \right) \tau_1 + \tau_2 \right] \right\} + \\ &+ 2(I'_x)_{m+1,m} \left\{ B(z_i, x) \cdot \omega_{m+1,m-1} \times \right. \\ &\times \cos \omega_{m+1,m} \left\{ t - \left[\left(1 - \frac{\omega_{m+1,m-1}}{\omega_{m+1,m}} \right) \tau_2 + \right. \right. \\ &\left. \left. + \left(1 + \frac{\omega_{m+1,m-1}}{\omega_{m+1,m}} \right) \tau_1 \right] \right\} + \\ &+ 2(I'_x)_{m+1,m-1} \left\{ C(z_i, x) \cdot \omega_{m+1,m-1} \times \sin \omega_{m+1,m-1} \{ t - 2\tau_1 \} \right. \end{aligned}$$

при

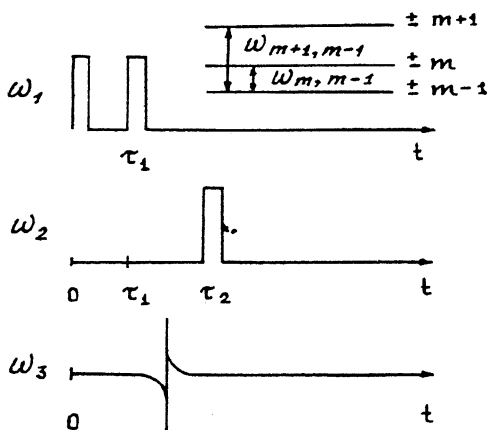
$$Z_i = \frac{1}{2} (I'_x)_{m+1,m-1} \gamma H_1^{c(i)} t_w^{c(i)},$$

$$x = \frac{1}{2} (I'_x)_{m,m-1} \gamma H_1^{a(i)} t_w^{a(i)},$$

где $(I'_x)_{m,m-1}$, $(I'_x)_{m+1,m}$, $(I'_x)_{m+1,m-1}$ — элементы оператора I_x в представлении квадрупольного гамильтониана \mathcal{H}_Q ; i нумерует порядок импульсов; индексы a и s относятся соответственно к переходам $m \leftrightarrow m-1$ и $m+1 \leftrightarrow m-1$. Функции $A(z_i, x)$, $B(z_i, x)$, $C(z_i, x)$ являются тригонометрическими функциями угловых длительностей РЧ импульсов; τ_1 и τ_2 — временные интервалы между возбуждающими РЧ импульсами, которые выбираются меньше времен поперечной релаксации T_2 возбуждаемых переходов.

Как видно из (5), отклик спин-системы содержит часть выражения с комбинационной (в данном случае разностной) частотой $\omega_{m+1,m}$, что является следствием нелинейности многоуровневой квадрупольной спин-системы. На рисунке указаны только амплитуда и местоположение сигнала на смешанной частоте, так как формирование сигналов на возбуждаемых переходах рассматривались ранее в [1-6]. Амплитуды откликов на всех частотах пропорциональны $\omega_{m+1,m-1}$, т. е. частоте заполнения первого (по времени воздействия) РЧ импульса.

Рассмотрим один из вариантов. В качестве вещества используется кристаллический BiCl_3 (резонанс ^{209}Bi , $J = 9/2$, $T = 77\text{K}$). Частоты возбуждения $\nu_3 = 90.629\text{ МГц}$, $\nu_1 = 37.887\text{ МГц}$, сигнал наблюдается на смешанной частоте $\nu_2 = 52.742\text{ МГц}$. За счет изменения импульсной программы возможно регулирование коэффициента усиления (полосы пропускания), местоположения и количества наблюдаемых сигналов на смешанной частоте.



Импульсная программа возбуждения многоуровневой спин-системы.

Для такого квантового смесителя необходимы мощности сигнала и гетеродина порядка 0.5–1.5 кВт (в импульсе). Потери при преобразовании составляют ~ 60–70 Дб.

Таким образом, при исследовании многоуровневой квадрупольной спин-системы кроме линейных свойств ее необходимо учитывать еще нелинейные свойства.

Список литературы

- [1] Гречишкин В.С., Айнбиндер Н.Е. // Письма в ЖЭТФ. 1967. Т. 5. С. 87–90.
- [2] Айнбиндер Н.Е., Гречишкин В.С. // Изв. вузов. Радиофизика. 1967. Т. 10. № 2. С. 186–190.
- [3] Гречишкин В.С., Шишкин Е.М. // ФТТ. 1974. Т. 16. N 5. С. 1542–1544.
- [4] Айнбиндер Н.Е., Ким А.С. // Радиоспектроскопия. Пермь. 1979. № 12. С. 148–151.
- [5] Ким А.С. // Радиоспектроскопия. Пермь. 1989. № 19. С. 153–157.
- [6] Айнбиндер Н.Е., Ким А.С. // Изв. вузов. Радиофизика. 1979. Т. 22. № 11. С. 1403–1405.
- [7] Абрагам А. Ядерный магнетизм. Л.: ИЛ, 1963.
- [8] Das T.P., Hahn E.L. // Solid State Physics. Suppl. 1. 1958. Acad. Press.

Пермский государственный
университет

Поступило в Редакцию
4 апреля 1995 г.