

Спиновое эхо, порождаемое резонансными переходами между уровнями ЛСК и уровнями квазиэнергии

© А.Р. Кессель, Р.Э. Зинатуллин, И.С. Донская

Казанский физико-технический институт Российской академии наук,
420029 Казань, Россия

E-mail: kessel@dionis.kfti.kcn.ru

(Поступила в Редакцию 15 февраля 2000 г.
В окончательной редакции 25 апреля 2000 г.)

Сформулированы общие правила перехода к новому представлению, в котором гамильтониан взаимодействия с переменным полем содержит постоянные члены. Диагонализация этого гамильтониана приводит к квазистационарным уровням энергии. Отдельно рассмотрен случай существования температуры на уровнях квазиэнергии. На примере спиновой трехуровневой системы показано, что другое специальным образом подобранное переменное магнитное поле может возбуждать резонансные переходы между уровнями лабораторной системы и уровнями энергии нового представления. Рассчитаны выражения для сигналов свободной прецессии и спинового эха, несущие информацию о квазистационарных уровнях энергии.

Редфильд [1] обратил внимание на интересный факт: если переменное поле настолько велико, что взаимодействие с ним намного превосходит взаимодействие с источниками ширины энергетических уровней, то возникает новый эффект — квантование спина в переменном поле. С этим квантованием связаны так называемые спиновые уровни квазистационарной энергии.

Формально можно сопоставить статическому во вращающейся системе координат (ВСК) полю $H_{ef} = \sqrt{H_1^2 + (H_0 - \omega/\gamma)^2}$ (H_0 — постоянное магнитное поле, H_1 — амплитуда переменного магнитного поля, которое перпендикулярно H_0 и вращается с частотой ω в направлении прецессии) зеэмановы квазистационарные уровни энергии, разделенные интервалом $\hbar\omega_{ef} = \hbar\gamma H_{ef}$ [1,2].

Было экспериментально доказано [1], что уровни квазиэнергии действительно существуют в том смысле, что на них можно наблюдать магнитный резонанс с помощью соответствующим образом подобранного второго переменного тока. Спиновые уровни в ВСК получили признание и в термодинамическом смысле: для них были введены спиновая температура и каноническое распределение [1]. Теоретически и экспериментально изучались адиабатическое размагничивание [3,4] и времена спин-спиновой и спин-решеточной релаксаций [5] во ВСК. В работе [6] доказано существование квантования спинов в поле сильной акустической волны и связанного с этим захвата недиагональных компонент электрического квадрупольного момента ядер. Интересно, что при квантовании в акустическом поле спектр квазиэнергии ядер имеет вид спектра ядерного квадрупольного резонанса (ЯКР), хотя в лабораторной системе координат (ЛСК) ядра обладают зеэмановским спектром. Эффект квантования спинов в сильном переменном магнитном поле изучался подробно и в случае, когда спин-система в ЛСК обладает спектром ЯКР [7–11].

В случае неэквидистантного спектра переход в ВСК заменяется переходом в новое представление, в котором

гамильтониан взаимодействия с переменным полем содержит члены, не зависящие явно от времени. Удобно перейти к новому представлению только по определенной части гамильтониана ЛСК, в результате чего становится очевидной возможность возбуждать спиновые переходы не только между уровнями квазиэнергии, но и между уровнями ЛСК и квазиэнергии.

В данной работе излучаются переходные процессы в неэквидистантной трехуровневой двукратно вырожденной спиновой системе (спины $I = 5/2$ помещены в электрическое поле аксиальной симметрии), в которой посредством возбуждения отдельного резонансного перехода два уровня энергии переведены в квазистационарное состояние, а оставшийся принадлежит ЛСК. Изучаемые переходные процессы возникают при импульсном возбуждении резонансных переходов между квазистационарными уровнями и уровнями ЛСК.

1. Спектр спиновой системы в представлении переменного поля

В соответствии с поставленной задачей по изучению влияния на спиновую систему резонансных переходов между уровнями ЛСК и уровнями квазиэнергии следует рассматривать спиновую систему с тремя и более неэквидистантными уровнями энергии. На двух из них стационарным переменным резонансным полем будут создаваться уровни квазиэнергии, тогда как остальные уровни эффективно не затрагиваются этим полем. Переходные процессы порождаются радиочастотными (РЧ) импульсами, резонансными для одного из уровней ЛСК и одного из уровней квазиэнергии.

Рассмотрим спектр ЯКР ядер со спином $I \geq 5/2$. Три двукратно вырожденных уровня энергии ЯКР спина $I = 5/2$ обладают требуемым неэквидистантным спектром (усложнение, связанное с двукратным вырождением в динамике не проявляется).

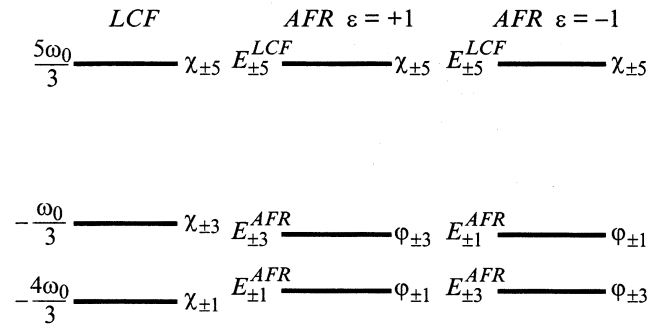


Рис. 1. Энергетический спектр и волновые функции в ЛСК и ПСП.

В случае неэквидистантного спектра удобно пользоваться операторами проектирования \hat{P}_{mn} , обладающими в \hat{I}_z -представлении матричными элементами $\langle \chi_{m'} | \hat{P}_{mn} | \chi_{n'} \rangle = \delta_{mm'} \delta_{nn'}$ и связанным с этим свойством правилом умножения $\hat{P}_{mn} \hat{P}_{kl} = \delta_{nk} \hat{P}_{ml}$. В представлении операторов проектирования гамильтониан ЯКР спина $I = 5/2$ в аксиально-симметричном электрическом кристаллическом поле имеет вид

$$\hat{H}_0 = \frac{\hbar\omega_0}{3} [5(\hat{P}_{5,5} + \hat{P}_{-5,-5}) - (\hat{P}_{3,3} - \hat{P}_{-3,-3}) - 4(\hat{P}_{1,1} + \hat{P}_{-1,-1})], \quad \omega_0 = \frac{6e^2Qq}{4I(2I-1)}, \quad (1)$$

где eq — градиент электрического поля на ядре, ω_0 — резонансная частота нижнего перехода, eQ — электрический квадрупольный момент ядра. Уровни энергии ЯКР и соответствующие волновые функции χ_m изображены на рис. 1.

Взаимодействие с переменными полями имеет вид

$$\hat{H}_a^t = -\gamma \mathbf{H}_a(t) \hat{\mathbf{I}} = \hbar \sum_m f_m (\hat{P}_{m+1,m} + \hat{P}_{m,m+1}) \cos(\omega_a t + \theta_a), \quad (2)$$

$$\hat{H}_b^t = -\gamma \mathbf{H}_b(t) \hat{\mathbf{I}} = i\hbar \sum_m g_m (\hat{P}_{m+1,m} + \hat{P}_{m,m+1}) \cos(\omega_b t + \theta_b), \quad (3)$$

$$\theta_a = \varphi_a - \omega_a t_{0a}, \quad \theta_b = \varphi_b - \omega_b t_{0b},$$

где $f_m = \gamma H_a \langle \chi_m | \hat{I}_x | \chi_{m+1} \rangle$, $g_m = \gamma H_b \langle \chi_m | \hat{I}_x | \chi_{m+1} \rangle$, t_{0a} и t_{0b} — моменты включения переменных полей $\mathbf{H}_a(t)$ и $\mathbf{H}_b(t)$ соответственно, а H_a , H_b и φ_a , φ_b — их амплитуды и начальные фазы. Магнитные поля $\mathbf{H}_a(t)$ и $\mathbf{H}_b(t)$ направлены вдоль осей x и y ЛСК. Их частоты близки к резонансным частотам гамильтониана (1) $\omega_a \approx \omega_0$, $\omega_b \approx 2\omega_0$.

Переменное магнитное поле $\mathbf{H}_a(t)$ будет служить для создания квазистационарных уровней энергии, а поле $\mathbf{H}_b(t)$ — для исследования этих уровней посредством возбуждения между ними резонансных переходов.

Для нахождения уровней квазиэнергии, связанных с амплитудой переменного поля $\mathbf{H}_a(t)$, надо перейти к новому представлению таким образом, чтобы I) унитарный оператор преобразования к новому представлению $\exp\left(\frac{i\hat{H}_1 t}{\hbar}\right)$ коммутировал с гамильтонианом \hat{H}_0 ; II) гамильтониан $\hat{H}_a^t(t)$ содержал члены, не зависящие явно от времени; III) сохранился "центр тяжести" оператора, т. е. выполнялось условие $Sp(\hat{H}_1) = 0$.

В общем случае условию I) удовлетворяет оператор $\hat{H}_1 = \sum_m a_m \hat{P}_{mm}$, на коэффициенты которого благодаря условию II) налагается требование $a_{\pm 3} - a_{\pm 1} = \hbar\omega_a$, а условие III) приводит к соотношению $\sum_m a_m = 0$. Эти равенства не определяют полностью коэффициенты a_m .

Из физических соображений вводим дополнительные требования: IV) уровни энергии гамильтониана (1) двукратно вырождены, и переменное поле возбуждает одинаковые по интенсивности переходы между состояниями $\chi_m \leftrightarrow \chi_{m+1}$ и $\chi_{-m} \leftrightarrow \chi_{-(m+1)}$, поэтому и в новом представлении естественно сохранить двукратное вырождение спиновых уровней, положив $a_m = a_{-m}$; V) переменное поле $\mathbf{H}_a(t)$ вызывает резонансные переходы между состояниями $\chi_{\pm 1} \leftrightarrow \chi_{\pm 3}$ на резонансной частоте $\omega_a \approx \omega_0$ и не затрагивает состояний $\chi_{\pm 5}$; естественно потребовать, чтобы переход в новое представление, связанное с $\mathbf{H}_a(t)$, не затрагивал $\chi_{\pm 5}$, т. е. чтобы выполнялись равенства $a_{\pm 5} = 0$.

С учетом требований IV) и V) оператор \hat{H}_1 определяется с точностью до знака. Из физических соображений выберем положительные знаки

$$\hat{H}_1 = \frac{\hbar\omega_a}{2} (\hat{P}_{3,3} + \hat{P}_{-3,-3} - \hat{P}_{1,1} - \hat{P}_{-1,-1}). \quad (4)$$

Для любого оператора \hat{A} переход в обобщенное представление взаимодействия (ОПВ) осуществляется при помощи соотношения

$$\hat{A}(t) = \exp\left(i\frac{\hat{H}_1}{\hbar}t\right) \hat{a} \exp\left(-i\frac{\hat{H}_1}{\hbar}t\right). \quad (5)$$

Перейдем к оператору \hat{H}_1 в ОПВ, в котором гамильтониан спина записывается как

$$\hat{H} = \hat{H}_2 + \hat{H}_a^t(t) + \hat{H}_b^t(T), \quad (6)$$

где

$$\hat{H}_2 = \hat{H}_0 - \hat{H}_1 = \frac{5\hbar\omega_0}{3} \hat{P}_{\pm 5, \pm 5} - \left(\frac{\hbar\omega_0}{3} + \frac{\hbar\omega_a}{2}\right) \hat{P}_{\pm 3, \pm 3} - \left(\frac{4\hbar\omega_0}{3} - \frac{\hbar\omega_a}{2}\right) \hat{P}_{\pm 1, \pm 1}. \quad (7)$$

Гамильтониан взаимодействия спина с переменным магнитным полем $H_a(t)$ в ОПВ можно представить как

$$\hat{H}_a^t(t) = \hat{H}_a^{\text{const}}(t) + \hat{H}_a^{2t}(t), \quad (8)$$

где

$$\hat{H}_a^{\text{const}}(t) = \frac{\hbar f_1}{2} [\hat{P}_{3,1} \exp(-i\theta_a) + \hat{P}_{1,3} \exp(i\theta_a)], \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_a^{2t}(t) = & \frac{\hbar f_1}{2} (\hat{P}_{3,1} \exp[i(2\omega_a t + \theta_a)] + \hat{P}_{1,3} \exp[-i(2\omega_a t + \theta_a)]) \\ & + \hbar f_3 \left[\hat{P}_{5,3} \exp\left(-i\frac{\omega_a}{2}t\right) + \hat{P}_{3,5} \exp\left(i\frac{\omega_a}{2}t\right) \right] \cos(\omega_a t + \theta_a). \end{aligned} \quad (10)$$

Может показаться естественным, что спиновый спектр в ОПВ должен определяться гамильтонианом \hat{H}_2 — оставшейся после перехода в ОПВ частью гамильтониана \hat{H}_0 , который определяет энергетический спектр в ЛСК (рис. 1). Примем, однако, что спиновый спектр в ОПВ определяют все не зависящие от времени члены гамильтониана (6)

$$\hat{H}_3 = \hat{H}_0 - \hat{H}_1 + \hat{H}_a^{\text{const}}(t) \equiv \hat{H}_2 + \hat{H}_a^{\text{const}}(t). \quad (11)$$

Это предположение развивает идею Редфильда о квантовании во ВСК в направлении амплитуды переменного поля. Следовательно, гамильтониан \hat{H}_3 в ОПВ принимает вид

$$\begin{aligned} \hat{H}_3 = & \frac{5\hbar\omega_0}{3} \hat{P}_{5,5} - \left(\frac{\hbar\omega_0}{3} + \frac{\hbar\omega_a}{2} \right) \hat{P}_{3,3} - \left(\frac{4\hbar\omega_0}{3} - \frac{\hbar\omega_a}{2} \right) \\ & \times \hat{P}_{1,1} + \frac{\hbar f_1}{2} [\hat{P}_{3,1} \exp(-i\theta_a) + \hat{P}_{1,3} \exp(i\theta_a)]. \end{aligned} \quad (12)$$

Представление, в котором гамильтониан \hat{H}_3 , содержащий эффективное взаимодействие с переменным полем $\mathbf{H}_a(t)$, диагонален, назовем представлением переменного поля (ППП).

Обобщенные квазистационарные уровни, или уровни энергии в ППП, определяются следующим образом:

$$\begin{aligned} E_5^{AFR} = \frac{5\hbar\omega_0}{3}, \quad E_3^{AFR} = -\frac{5\hbar\omega_0 - 3\varepsilon\hbar\kappa}{6}, \\ E_1^{AFR} = -\frac{5\hbar\omega_0 + 3\varepsilon\hbar\kappa}{6}, \end{aligned} \quad (13)$$

где введены обозначения

$$\begin{aligned} \Delta = |\omega_a - \omega_0|, \quad \varepsilon = \text{sgn}(\omega_a - \omega_0), \\ \kappa = \sqrt{\Delta^2 + f_1^2}, \quad \omega_a = \omega_0 - \varepsilon\Delta. \end{aligned}$$

Им соответствуют собственные функции

$$\begin{aligned} \varphi_5 = \chi_5, \quad \varphi_3 = \chi_3 \cos \lambda + \varepsilon \chi_1 \exp(i\theta_a) \sin \lambda, \\ \varphi_1 = \chi_1 \cos \lambda - \varepsilon \chi_3 \exp(-i\theta_a) \sin \lambda, \end{aligned} \quad (14)$$

в которых параметр λ определяется из соотношения $\text{tg } 2\lambda = \frac{f_1}{\Delta}$.

Введем теперь для удобства операторы проектирования \hat{R}_{mm} в базе волновых функций φ_m

$$\langle \varphi_{m'} | \hat{R}_{mm} | \varphi_{n'} \rangle = \delta_{mm'} \delta_{nn'}.$$

Связь между операторами \hat{R}_{mm} и \hat{P}_{mm} дается простыми линейными соотношениями, используя которые можно

получить следующее выражение для оператора \hat{H}_3 в ППП, где он диагонален:

$$\hat{H}_3 = \sum_m E_m^{AFR} \hat{R}_{mm}. \quad (15)$$

Резонансные частоты в ППП равны (рис. 1)

$$\Omega_{5,3} = \frac{5\omega_0 - \varepsilon\kappa}{2}, \quad \Omega_{5,1} = \frac{5\omega_0 + \varepsilon\kappa}{2}, \quad \Omega_{3,1} = \varepsilon\kappa. \quad (16)$$

В ПП оператор \hat{H}_3 играет роль гамильтониана \hat{H}_0 в ЛСК.

В соответствии с требованием V), предъявляемым к оператору \hat{H}_1 , получаем

$$E_5^{AFR} = E_5^{LCF} \equiv \frac{5\hbar\omega_0}{3}, \quad \varphi_5 = \chi_5. \quad (17)$$

Данный факт позволяет считать, что при переходе в ППП этот энергетический уровень остается уровнем ЛСК, а уровни E_3^{AFR} и E_1^{AFR} и есть уровни энергии ППП.

Выпишем резонансные члены гамильтониана $\hat{H}_b^t(t)$, соответствующие переходам между уровнями ЛСК и квазиэнергии на частотах $\Omega_{5,3}$ и $\Omega_{5,1}$,

$$\begin{aligned} \hat{H}_b^{\text{res}}(t) = & \frac{i\hbar g_3}{2} \left[\exp\left(-i\left[\left(\omega_b + \frac{\omega_a}{2}\right)t + \theta_b\right]\right) \right. \\ & \times (\hat{R}_{5,3} \cos \lambda - \varepsilon \hat{R}_{5,1} \exp(-i\theta_a) \sin \lambda) \\ & - \exp\left(i\left[\left(\omega_b + \frac{\omega_a}{2}\right)t + \theta_b\right]\right) \\ & \left. \times (\hat{R}_{3,5} \cos \lambda - \varepsilon \hat{R}_{1,5} \exp(i\theta_a) \sin \lambda) \right]. \end{aligned} \quad (18)$$

Взаимодействие с любым другим полем, амплитуда которого меньше энергий E_m^{AFR} , тоже можно представить через проективные операторы \hat{R}_{mm} в резонансном приближении.

2. Описание переходных процессов в ППП

Результат действия электромагнитного импульса на частоте ω_b существенным образом зависит от заселенности уровней квазиэнергии в ППП N_m^{AFR} . Примем момент включения радиочастотного поля $\mathbf{H}_a(t)$ за начало отсчета времени, тогда воздействие электромагнитным полем $\mathbf{H}_b(t)$ начинается с момента времени $\tau_1 \geq 0$. Общая схема включения стационарного РЧ-поля $\mathbf{H}_a(t)$ и импульсов поля $\mathbf{H}_b(t)$ изображена на рис. 2. Здесь τ_2 -временной интервал между моментами включения первого и второго импульсов поля $\mathbf{H}_b(t)$, а t_1 и t_2 — их длительности соответственно. В зависимости от исходного вида матрицы плотности существуют два интересных предельных случая.

1) Начало переходных процессов много меньше времени спин-решеточной релаксации $\tau_1 \ll T_2$. В этом случае

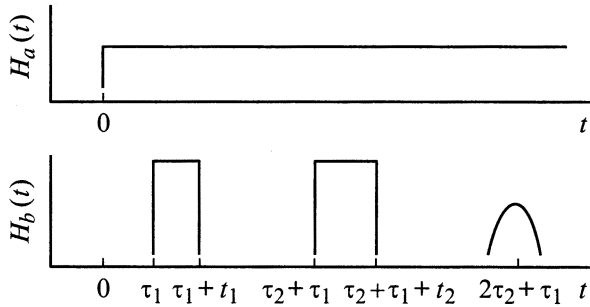


Рис. 2. Схема включения стационарного РЧ-поля $H_a(t)$ и импульсов поля $H_b(t)$ (указан также предполагаемый момент появления сигнала эха).

начальное значение матрицы плотности соответствует термодинамическому равновесию на уровнях ЛСК

$$\hat{\rho}^0 = \hat{\rho}(t=0) = \sum_m \frac{1}{6} \left(1 - \frac{E_m}{kT}\right) \hat{P}_{mm}, \quad (19)$$

а в ППП матрица плотности (19) имеет вид

$$\begin{aligned} \hat{\rho}^0 = & \frac{1}{6} \left(1 - \frac{E_5}{kT}\right) \hat{R}_{5,5} + \frac{1}{6} \left[\left(1 - \frac{E_3}{kT}\right) \cos^2 \lambda \right. \\ & + \left. \left(1 - \frac{E_1}{kT}\right) \sin^2 \lambda \right] \hat{R}_{3,3} + \frac{1}{6} \left[\left(1 - \frac{E_3}{kT}\right) \sin^2 \lambda \right. \\ & + \left. \left(1 - \frac{E_1}{kT}\right) \cos^2 \lambda \right] \hat{R}_{1,1} + \frac{E_3 - E_1}{6kT} \varepsilon \frac{\sin 2\lambda}{2} \\ & \times \left[\exp(-i\varphi_a) \hat{R}_{3,1} + \exp(i\varphi_a) \hat{R}_{1,3} \right]. \quad (20) \end{aligned}$$

2) К началу переходных процессов в спиновой системе успело установиться термодинамическое равновесие на уровнях квазиэнергии в ППП ($\tau_1 \gg T_2$). Тогда начальная для переходных процессов матрица плотности дается соотношением

$$\hat{\rho}^0 = \frac{1}{6} \sum_m \left(1 - \frac{E_m^{AFR}}{kT_{AFR}}\right) \hat{R}_{mm} \quad (21)$$

с некоторой температурой T_{AFR} отличной, вообще говоря, от температуры решетки.

В данном параграфе сосредоточим внимание на первом случае. Таким образом будет решаться задача спиновой динамики в ППП, в общем виде совпадающая с расчетом спинового эха в ЛСК, но с гамильтонианом (15), начальным значением матрицы плотности (20) и взаимодействием с "внешним" переменным резонансным полем в форме (18).

Перейдем еще раз в представление взаимодействия по гамильтониану \hat{H}_3

$$\begin{aligned} \hat{\rho}' &= \exp\left(i\frac{\hat{H}_3}{\hbar}t\right) \hat{\rho} \exp\left(-i\frac{\hat{H}_3}{\hbar}t\right), \\ \hat{H}_b^{res'}(t) &= \exp\left(i\frac{\hat{H}_3}{\hbar}t\right) \hat{H}_b^{res}(t) \exp\left(-i\frac{\hat{H}_3}{\hbar}t\right). \end{aligned}$$

Изменение матрицы плотности под влиянием гамильтониана (18) дается уравнением фон Неймана

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle m | \hat{\rho}' | n \rangle &= \sum_r \left[\langle r | \hat{\rho}' | n \rangle \langle m | \hat{H}_b^{res}(t) | r \rangle \exp(i\Omega_{mr}t) \right. \\ &\quad \left. - \langle m | \hat{\rho}' | r \rangle \langle r | \hat{H}_b^{res}(t) | n \rangle \exp(i\Omega_{rn}t) \right]. \end{aligned}$$

Здесь и далее матричные элементы берутся по волновым функциям φ_m . Отсюда можно получить полную систему уравнений движения для элементов матрицы плотности.

Эта система уравнений допускает общее решение в резонансном приближении ($g_3 \ll \kappa, 2\omega_0$) в случаях, когда возбуждающие импульсы захватывают оба перехода $E_5^{AFR} \leftrightarrow E_3^{AFR}$, $E_5^{AFR} \leftrightarrow E_1^{AFR}$ (что имеет место при $\kappa t_i \ll 1$, где t_i — длительность i -го импульса), а также когда захватывается только один из этих переходов ($\kappa t_i \gg 1$). Например, когда в условиях резонанса на частоте

$$\omega_b = \omega_b^+ \equiv 2\omega_0 + \frac{\varepsilon}{2}(\Delta + \kappa) \quad (22)$$

захватывается только уровень E_3^{AFR} , решения для элементов матрицы к концу первого импульса при $t = \tau_1 + t_1$ и вплоть до следующего возбуждения при $t = \tau_2 + \tau_1$ есть

$$\begin{aligned} \rho'_{5,5}(t) &= -\frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{1}{2} (2 + \cos^2 \lambda) \cos 2\alpha_1 + \frac{1}{2} (\rho_{5,5}^0 + \rho_{3,3}^0), \\ \rho'_{3,3}(t) &= \rho_{3,3}^0, \\ \rho'_{1,1}(t) &= \frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{1}{2} (2 + \cos^2 \lambda) \cos 2\alpha_1 + \frac{1}{2} (\rho_{5,5}^0 + \rho_{3,3}^0), \\ \rho'_{5,3}(t) = \rho'_{3,5}(t) &= -\frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{\sin 2\lambda}{2} \sin 2\alpha_1 \exp[i(\omega_b^+ \tau_1 - \varphi_b)], \\ \rho'_{5,1}(t) = \rho'_{1,5}(t) &= -\frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{\varepsilon}{2} (2 + \cos^2 \lambda) \sin 2\alpha_1 \\ &\quad \times \exp[i(\omega_b^+ \tau_1 - \varphi_b - \varphi_a)], \\ \rho'_{3,1}(t) = \rho'_{1,3}(t) &= \frac{\hbar\omega_0}{6kT} \varepsilon \frac{\sin 2\lambda}{2} \cos \alpha_1 \exp(-i\varphi_a), \\ \alpha_1 &= \frac{\sin \lambda}{2} g_3 t_1. \quad (23) \end{aligned}$$

После воздействия вторым импульсом ($t \geq \tau_2 + \tau_1 + t_2$) элементы матрицы плотности оказываются равными

$$\begin{aligned} \rho'_{5,3}(t) = \rho'_{3,5}(t) &= -\frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{\sin 2\lambda}{2} \exp[-i\varphi_b] \\ &\quad \times \left(\sin \alpha_1 \cos \alpha_2 \exp[i\omega_b^+ \tau_1] + \cos \alpha_1 \sin \alpha_2 \right. \\ &\quad \left. \times \exp[i(\omega_b^+ [\tau_2 + \tau_1] - \varphi_b)] \right), \\ \rho'_{5,1}(t) = \rho'_{1,5}(t) &= -\frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{\varepsilon}{2} (2 + \cos^2 \lambda) \\ &\quad \times \exp[-i(\varphi_b + \varphi_a)] \left(\sin 2\alpha_1 \cos^2 \alpha_2 \exp[i\omega_b^+ \tau_1] \right. \\ &\quad + \cos 2\alpha_1 \sin 2\alpha_2 \exp[i\omega_b^+ (\tau_2 + \tau_1)] \\ &\quad \left. - \sin 2\alpha_1 \sin^2 \alpha_2 \exp[i\omega_b^+ (2\tau_2 + \tau_1)] \right), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \rho'_{3,1}(t) &= \rho'_{1,3}{}^*(t) = \frac{\hbar\omega_0}{6kT}\varepsilon \frac{\sin 2\lambda}{2} \exp(-i\varphi_a) \\ &\quad \times (\cos \alpha_1 \cos \alpha_2 - \sin \alpha_1 \sin \alpha_2 \exp[i\omega_b^+ \tau_2]), \\ \rho'_{5,5}(t) &= \frac{\hbar\omega_0}{6kT} \frac{1}{2} (2 \cos^2 \lambda) [\sin 2\alpha_1 \sin 2\alpha_2 \cos(\omega_b^+ \tau_2) \\ &\quad - \cos 2\alpha_1 \cos 2\alpha_2] + \frac{1}{2} (\rho_{5,5}^0 + \rho_{1,1}^0), \\ \rho'_{1,1}(t) &= -\rho'_{5,5}(t) + \rho_{5,5}^0 + \rho_{1,1}^0, \\ \rho'_{3,3}(t) &= \rho_{3,3}^0, \quad \alpha_2 = \frac{\sin \lambda}{2} g_3 t_2. \end{aligned} \quad (24)$$

Сходные результаты получены в случае возбуждения другой частоты

$$\omega_b = \omega_b^- \equiv 2\omega_0 + \frac{\varepsilon}{2} (\Delta - \kappa) \quad (25)$$

и в случае, когда в одинаковой мере возбуждаются переходы на обоих резонансных частотах ω_b^+ и ω_b^- .

3. Отклик спиновой системы на один и два импульса

Для того чтобы захватывались все спины, вносящие вклад в неоднородно уширенную резонансную линию, при возбуждении переходных процессов импульсы переменного поля должны быть настолько короткими, чтобы выполнялось условие $t_i \sigma < 1$, где σ — неоднородная ширина линии стационарного резонанса. Благодаря этому волновой пакет импульса захватывает (при настройке на центр линии) практически все ядерные спины. В этом случае каждый спин находится в условиях точного резонанса на собственной частоте

$$\omega_0 = \omega_Q + \delta, \quad (26)$$

где ω_Q — среднее значение резонансной частоты, а δ — случайное отклонение от ω_Q , обусловленное несовершенством кристаллического поля около данного спина.

Ранее не была конкретизирована частота переменного поля $\mathbf{H}_a(t)$. Далее будем рассматривать случай, когда поле раздвижки настроено на центр резонансной линии

$$\omega_a = \omega_Q. \quad (27)$$

При этом $\Delta = |\delta|$ и $\varepsilon = \text{sgn}(\delta)$.

Вычислим у-компоненту намагниченности образца, которая определяет сигналы свободной прецессии и спинового эха,

$$M_y(t) = \sum_k M_k^y(t) = \gamma \hbar \sum_k \langle \hat{I}_k^y(t) \rangle = \gamma \hbar \sum_k S p(\hat{\rho}_k(t) \hat{I}_k^y), \quad (28)$$

где операторы $\hat{\rho}_k(t)$ и \hat{I}_k^y должны быть взяты в каком-либо одном представлении, проще всего в представлении взаимодействия по \hat{H}_3 .

Введем обозначение $M_\omega^y(\omega_1, \omega_2, \dots)$ для той части $M_y(t)$, которая осциллирует на частоте ω после облучения спиновой системы импульсами переменного поля, содержащего частоты $\omega_1, \omega_2, \dots$. Из соотношений (23) и (24), а также из аналогичных соотношений для случаев, когда $\omega_b = \omega_b^-$ и ω_b -импульс захватывает обе частоты ω_b^\pm , следует, что величина $M_y(t)$ может быть представлена в виде суммы двух слагаемых

$$M_y(t) = M_{2\omega_Q}^y(\omega_1, \omega_2, \dots) + M_{\omega_Q}^y(\omega_1, \omega_2, \dots), \quad (29)$$

осциллирующих на собственных частотах ЯКР $2\omega_Q$ и ω_Q .

Одна часть у-компоненты $M_{\omega_Q}^y(\omega_1, \omega_2, \dots)$ осциллирует на частоте ω_Q , на которой действует сильное переменное поле $\mathbf{H}_a(t)$. Поэтому достаточно сложно наблюдать переходные процессы на данной частоте ЯКР. Из-за нелинейных эффектов в аппаратуре происходит наложение поля раздвижки на сигнал и искажение последнего. По этой причине можно ограничиться расчетами только $M_{2\omega_Q}^y(\omega_1, \omega_2, \dots)$.

Используя результат (23) для матрицы плотности после действия одного возбуждающего импульса в выражении (28), приходим к следующим значениям у-компоненты намагниченности в ЛСК:

$$M_{2\omega_Q}^y(\omega) = \frac{\sqrt{5}N\gamma\hbar^2\omega_Q}{6kT} \sin[2\omega_Q(t - \tau_1) + \varphi_b] \overline{W(\omega)}. \quad (30)$$

Черта над огибающей сигнала свободной прецессии $W(\omega)$ обозначает ее усреднение по разбросу резонансных частот δ . Будем считать, что распределение сдвигов δ дается нормальным законом

$$\begin{aligned} \overline{W(\omega)} &= \frac{1}{N} \sum_{k=1}^n W(\omega_k) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{\delta^2}{2\sigma^2}\right) W(\omega, \delta) d\delta. \end{aligned} \quad (31)$$

В общем случае выражения для $W(\omega, \delta)$ громоздки и мы их не приводим.

В отсутствии поля раздвижки ($f_1 = 0$) сигналы на частоте ω_Q пропадают, так как в этом случае $\rho_{3,1}(t) = \rho_{1,3}(t) = 0$ в ЛСК, а выражение (30), где

$$W(\omega_b^+) = 0,$$

$$W(\omega_b^-) = W(\omega_b^+, \omega_b^-) = \sin(2\xi_1) \cos[2\delta(t - \tau_1)],$$

$$(\xi_1 = g_3 t_1 / 2),$$

переходит в выражение для обычного сигнала свободной прецессии на частоте $2\omega_Q$, следующего после одного импульса.

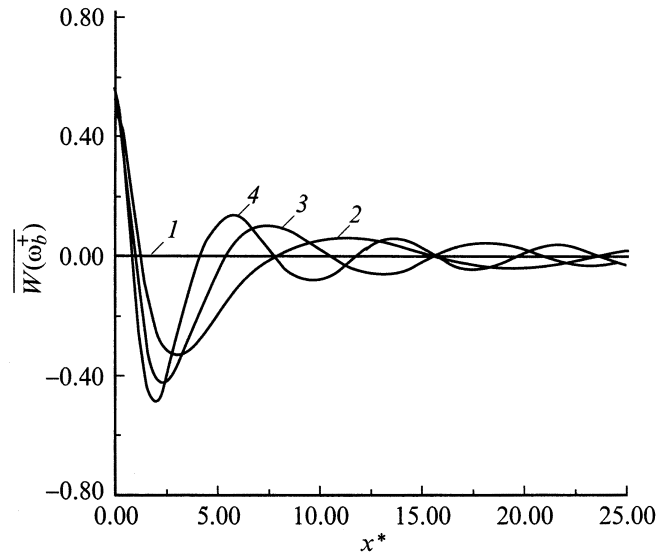


Рис. 3. Огибающая сигнала свободной прецессии для возбуждающей частоты ω_b^+ при $b = 0$ (1), $b = 2$ (2), $b = 3$ (3), $b = 4$ (4); $X^* = X - X_1$, $X_1 = 5\pi$.

В противоположном предельном случае, когда f_1 велико ($\lambda = \frac{\pi}{4}$, $\kappa = f_1$)

$$\begin{aligned} \overline{W(\omega_b^\pm)} &= \frac{5\sqrt{2}}{8} \sin(\sqrt{2}\xi_1) K^\pm \left(x - x_1, b, \frac{x - x_1}{5} \right) \\ &\quad - \frac{\sqrt{2}}{4} \sin\left(\frac{\xi_1}{\sqrt{2}}\right) K^\mp \left(x - x_1, b, \frac{x + x_1}{5} \right), \\ \overline{W(\omega_b^+, \omega_b^-)} &= \frac{5}{8} \sin 2\xi_1 K \left(x - x_1, b, \frac{x - x_1}{5} \right) \\ &\quad + \frac{1}{4} \sin^2\left(\frac{\xi_1}{2}\right) \sin \xi_1 K \left(x - x_1, b, \frac{x - 3x_1}{5} \right) \\ &\quad - \frac{1}{4} \cos^2\left(\frac{\xi_1}{2}\right) \sin \xi_1 K \left(x - x_1, b, \frac{x + x_1}{5} \right), \\ K &= K^+ + K^-, \end{aligned} \quad (32)$$

где

$$\begin{aligned} K^\pm(x, b, z) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{+\infty} \exp\left(-\frac{y^2}{2}\right) \cos(xy \pm zb) dy \\ &= \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) A(x) \sin[zb + \Phi(x)], \\ A(x) &= \sqrt{\frac{1}{4} + \frac{x^2}{2\pi} \left\{ {}_1F_1\left(\frac{1}{2}; \frac{3}{2}; \frac{x^2}{2}\right) \right\}^2}, \\ \Phi(x) &= \text{arctg} \left[\pm \sqrt{\frac{2}{\pi} x {}_1F_1\left(\frac{1}{2}; \frac{3}{2}; \frac{x^2}{2}\right)} \right], \end{aligned} \quad (33)$$

${}_1F_1(\alpha; \gamma; z)$ — конфлюэнтная гипергеометрическая функция [12].

Здесь сделан переход к безразмерным величинам

$$y = \frac{\delta}{\sigma}, \quad x = \frac{5\sigma t}{2}, \quad x_1 = \frac{5\sigma\tau_1}{2}, \quad b = \frac{f_1}{\sigma}. \quad (34)$$

На рис. 3 изображены огибающие спада свободной прецессии как функции амплитуды b поля накачки. Видно, что при $b = 0$ и возбуждении на частоте ω_b^+ отклик спин-системы обращается в нуль. Отклик, связанный с возбуждением на частоте ω_b^- , как и следует из результата Лоу и Норберга [13], совпадает с Фурье-образом принятой нами формы линии стационарного резонанса. С ростом b сигнал свободной прецессии испытывает биения с частотами постепенно меняющимися с ростом b .

Проведены аналогичные расчеты намагниченности спин-системы после двух импульсов. Эхо-отклик описывается выражением

$$M_{2\omega_Q}^y(\omega) = -\frac{\sqrt{5}N\gamma\hbar^2\omega_Q}{6kT} \sin[2\omega_Q(t-2\tau_2-\tau_1) + \varphi_b] \overline{W_3(\omega)}. \quad (35)$$

В пределе сильных полей

$$\begin{aligned} \overline{W_3(\omega_b^\pm)} &= \frac{5\sqrt{2}}{8} \sin(\sqrt{2}\xi_1) \sin^2\left(\frac{\xi_2}{\sqrt{2}}\right) \\ &\quad \times K^\pm \left(x - 2x_2 - x_1, b, \frac{x - 2x_2 - x_1}{5} \right), \end{aligned} \quad (36)$$

где

$$\xi_2 = \frac{g_3 t_2}{2}, \quad x_2 = \frac{2\sigma\tau_2}{5}.$$

Огибающая эха испытывает биения как и сигнал свободной прецессии (рис. 4). Из рис. 3 и 4 видно, что существует некоторая точка x^{**} , в которой графики нескольких переходных сигналов пересекают ось абсцисс

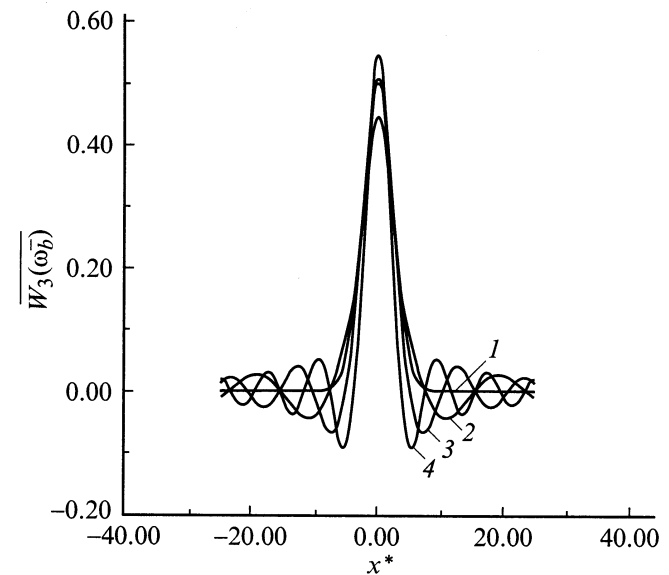


Рис. 4. Огибающая сигнала эха для возбуждающей частоты в ω_b^- при $b = 0$ (1), $b = 2$ (2), $b = 3$ (3), $b = 4$ (4); $X^* = X - 2X_2 - X_1$.

(ось времени). Интересно понять смысл этих точек. Для этой цели используем аналитические выражения (32), (36) в пределе сильного поля. Тогда сигналы свободной индукции и спинового эха схематически можно представить как

$$\overline{W_n(\omega)} = \sum_{i=0} B_i K(x, b, z_i), \quad z_i = \frac{x}{5} + C_i, \quad (37)$$

где B_i — некоторые константы, не зависящие от параметра b (34), C_i — линейная комбинация интервалов между началом первого и второго импульсов, x отсчитывается от центра сигнала эха.

Заметим, что на рис. 3, 4 $|x^{**}| \geq 15$, что вполне отвечает приближению больших значений x . При $x \rightarrow \infty$ можно использовать соотношения (33) в их предельном виде

$$\begin{aligned} \Phi^\pm(x) &\rightarrow \frac{\pi}{2}(1 \mp \operatorname{sgn} x), K^\pm(x, b, z) \\ &\rightarrow \operatorname{sgn} x \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) A(x) \sin(zb). \end{aligned}$$

В этом случае выражение (37) является суперпозицией синусоид. Хорошо известно, что при наложении нескольких синусоид с разными фазами и амплитудами, но с одной частотой образуется одна синусоида с той же частотой и модифицированными значениями амплитуды и фазы

$$\overline{W_n(\omega)} \rightarrow \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) A(x) B(b) \sin\left[\frac{bx}{2} + \varphi(b)\right], \quad (38)$$

где $B(b)$ и $\varphi(b)$ — некоторые функции B_i и bC_i .

Из выражения (38) видно, что различные кривые $\overline{W_n(\omega)}|_{b=b_k}$ для сигналов $\overline{W_n(\omega)}$, соответствующих различным значениям b_k параметра b , должны пересечь ось абсцисс в точках x_n^{**} , если удовлетворяются условия

$$x_n^{**} = \frac{5}{b_k} [\pi n - \varphi(b_k)] \quad (n — \text{целое число}).$$

Можно найти амплитуду поля накачки b путем измерения расстояния между ближайшими точками пересечения кривыми переходных сигналов оси абсцисс (рис. 3, 4): $b_k = 5\pi (x_{n+1}^{**} - x_n^{**})^{-1}$.

4. Переходные процессы в условиях существования спиновой температуры на уровнях квазиэнергии

В тех случаях, когда интервал времени τ_1 между включениями поля накачки $\mathbf{H}_a(t)$ и началом действия первого импульса поля $\mathbf{H}_b(t)$ достаточно велик ($\tau_1 > T_1, T_2$), возникает возможность существования спиновой температуры на уровнях квазиэнергии [5].

Начальная матрица плотности в этом случае определяется выражением (21), используя которое проделаем все необходимые операции, описанные в предыдущем параграфе, и получим

$$M_{2\omega_Q}^y(\omega) = \frac{5\sqrt{5}N\gamma\hbar^2\omega_Q}{24kT_{AFR}} \sin(2\omega_Q t + \varphi_b) \overline{W(\omega)}. \quad (39)$$

В сильном переменном поле ($f_1 \gg \sigma$) выражения для $\overline{W(\omega)}$ приобретают компактную форму

$$\begin{aligned} \overline{W(\omega_b^\pm)} &= \frac{\sqrt{2}}{2} \sin(\sqrt{2}\xi_1) K^\pm\left(x, b, \frac{x}{5}\right), \\ \overline{W(\omega_b^+, \omega_b^-)} &= \frac{1}{2} \sin 2\xi_1 K\left(x, b, \frac{x}{5}\right). \end{aligned} \quad (40)$$

Сигналы переходных процессов на частоте $2\omega_Q$ после двухимпульсного воздействия равны

$$\begin{aligned} M_{2\omega_Q}^y(\omega) &= \frac{5\sqrt{5}N\gamma\hbar^2\omega_Q}{24kT_{AFR}} \left(\sin[2\omega_Q t + \varphi_b] \overline{W_1(\omega)} \right. \\ &\quad + \sin[2\omega_Q(t - \tau_2) + \varphi_b] \overline{W_2(\omega)} \\ &\quad \left. - \sin[2\omega_Q(t - 2\tau_2 - \tau_1) + \varphi_b] \overline{W_3(\omega)} \right), \end{aligned} \quad (41)$$

где

$$\begin{aligned} \overline{W_1(\omega_b^\pm)} &= \frac{\sqrt{2}}{2} \sin(\sqrt{2}\xi_1) \cos^2\left(\frac{\xi_2}{\sqrt{2}}\right) K^\pm\left(x, b, \frac{x}{5}\right), \\ \overline{W_2(\omega_b^\pm)} &= \frac{\sqrt{2}}{2} \cos(\sqrt{2}\xi_1) \sin(\sqrt{2}\xi_2) \\ &\quad \times K^\pm\left(x - x_1, b, \frac{x - x_1}{5}\right), \\ \overline{W_3(\omega_b^\pm)} &= \frac{\sqrt{2}}{2} \sin(\sqrt{2}\xi_1) \sin^2\left(\frac{\xi_1}{\sqrt{2}}\right) \\ &\quad \times K^\pm\left(x - 2x_2, b, \frac{x - 2x_2}{5}\right). \end{aligned} \quad (42)$$

Следует отметить, что $M_{\omega_Q}^y(\omega_1, \omega_2, \dots)$ отлична от нуля только когда ω_b — импульсы захватывают одновременно обе резонансные частоты ω_b^\pm .

Из сравнения результатов этого и предыдущего параграфов видно, что характер огибающих сигналов переходных процессов не меняется из-за существования спиновой температуры на уровнях квазиэнергии. Расчет показывает лишь различие в амплитуде

$$\frac{M_{2\omega_Q}^y(\omega)|_{T=T_{LCF}}}{M_{2\omega_Q}^y(\omega)|_{T \rightarrow T_{AFR}}} = \frac{4T_{AFR}}{T_{LCF}}.$$

Таким образом, следует ожидать различия в амплитудах, определяемое отношением температур. Это дает возможность исследовать кинетику достижения равновесия и установления спиновой температуры на уровнях квазиэнергии в описанных выше экспериментах при условии изменения интервала между началом накачки и возбуждающих импульсов.

Во введении были процитированы работы [1–11], в которых экспериментально осуществлены и теоретически объяснены разнообразные опыты на уровнях квазиэнергии. Поскольку уровни энергии любого представления можно воспринимать только косвенно, через их влияние на наблюдаемые величины, то можно придти к выводу, что уровни квазиэнергии так же реальны, как и уровни энергии ЛСК.

Однако оставалась нерешенной задача о возбуждении резонансных переходов между уровнями ЛСК и ППП. Результатом этой работы является доказательство возможности и формулировка условий существования таких процессов, а также расчет некоторых эффектов, связанных с квантованием в сильном переменном поле, вызывающем такие переходы. Рассмотрена схема, в которой сильное резонансное поле создает уровни энергии на одном переходе неэквидистантного спектра спина ядра, а другое РЧ-поле возбуждает переходы между этими уровнями и уровнем, не участвующим в создании квазиэнергетического спектра, т. е. уровнем энергии ЛСК. Показан факт проявления квантования в сильном РЧ-поле в сигналах переходных процессов, порожденных вторым РЧ-полем. Оказалось, что огибающие этих сигналов подвержены биениям с частотой, определяемой интервалом между уровнями квазиэнергии. Измерение периода биений даст, в частности, возможность определять амплитуду переменного поля в образце. Интерес представляет возможность изучать в предложенной схеме эксперимента кинетику установления равновесия и спиновой температуры на уровнях квазиэнергии.

Список литературы

- [1] A. Redfield. *Phys. Rev.* **98**, 6, 1787 (1955).
- [2] I.I. Rabi, N.F. Ramsay, J. Schwinger. *Rev. Mod. Phys.* **26**, 1, 167 (1954).
- [3] C.P. Slichter, W.C. Holton. *Phys. Rev.* **122**, 6, 1701 (1961).
- [4] A.G. Anderson, S.R. Hartman. *Phys. Rev.* **128**, 5, 2023 (1966).
- [5] М. Гольдман. Спиновая температура и ЯМР в твердых телах. Мир, М. (1972).
- [6] А.Р. Кессель, М.М. Шакирзянов. *Акуст. журн.* **23**, 3, 469 (1977).
- [7] А.Р. Кессель, М.М. Шакирзянов. *ЖЭТФ* **83**, 3(9), 1100 (1982).
- [8] В.А. Голенищев-Кутузов, В.А. Кирсанов, В.Ф. Тарасов. *Письма в ЖЭТФ* **39**, 9, 407 (1984).
- [9] В.А. Кирсанов, В.Ф. Тарасов, М.М. Шакирзянов. *ФТТ* **27**, 5, 1554 (1985).
- [10] A.R. Kessel, O.S. Zueva. *Physica* **19**, 1, 205 (1977); *Phys. Lett.* **68A**, 4, 347 (1978); *ЖЭТФ* **73**, 6(12), 2169 (1977).
- [11] Н.Е. Айнбиндер, Г.Б. Фурман. *ЖЭТФ* **85**, 3(9), 988 (1983); N.E. Ainbinder, G.A. Volgina, A.N. Osipenko, G.B. Furman. *J. Mol. Struct.* **64**, 214 (1983).
- [12] И.С. Градштейн, И.М. Рыжик. *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений.* Наука, М. (1971).
- [13] I.J. Low, R.E. Norberg. *Phys. Rev.* **107**, 1, 46 (1957).