

КОГЕРЕНТНОЕ ПОДАВЛЕНИЕ НУТАЦИОННОГО СИГНАЛА ЭПР В КВАРЦЕ**В. С. Кузьмин****Институт физики твердого тела и полупроводников
Национальной академии наук Беларуси
220072, Минск, Беларусь*

Поступила в редакцию 31 декабря 1997 г.

В рамках уравнений Блоха получено аналитическое выражение для скорости интегрального затухания нутационного сигнала в двухуровневой квантовой системе. Показано, что при учете неоднородного уширения линии временной спад отклика обусловлен не только когерентным подавлением и необратимой релаксацией, но и дополнительным затуханием, скорость которого зависит от соотношения между частотой Раби и неоднородной шириной линии. Полученные результаты привлечены для объяснения аномального (зависящего от частоты Раби) затухания нутационного сигнала ЭПР, обнаруженного недавно экспериментально [2] в кварце. В противовес утверждению авторов о неблоховском характере данного затухания показано, что оно вполне описывается уравнениями Блоха без каких-либо их модификаций.

1. ВВЕДЕНИЕ

Явление переходных нутаций, наблюдающихся в различных диапазонах электромагнитного спектра, отражает временную эволюцию квантовой системы, находящейся до момента возбуждения в термодинамическом равновесии, к новому состоянию под действием резонансного электромагнитного поля. Если система представляет собой ансамбль одинаковых частиц, то затухание нутаций происходит со скоростью дефазировки T_2^{-1} . Если же под действием поля находится ансамбль частиц, отличающихся друг от друга частотами переходов, то затухание нутаций даже в отсутствие каких-либо необратимых релаксационных процессов обусловлено так называемым эффектом когерентного подавления, суть которого состоит в том, что статистика разброса значений частот переходов (неоднородное уширение) приводит к затуханию когерентных осцилляций средней по ансамблю наблюдаемой (поляризованность, намагниченность) квантовой системы [1]. (Кроме неоднородного уширения к когерентному подавлению нутаций приводит неоднородность возбуждающего поля по объему образца, а также разброс ориентаций дипольных моментов переходов [1].) В большинстве работ по нутациям рассматриваются две предельные ситуации, а именно: случаи широкой и узкой неоднородно уширенной линии. В первом случае когерентное подавление описывается функцией Бесселя, а необратимое затухание происходит по экспоненциальному закону. Во втором случае затухание обусловлено лишь необратимой релаксацией. В промежуточном случае, когда необходимо учитывать конечную величину ширины линии, закон затухания более сложен по сравнению с рассмотренными выше предельными случаями.

*E-mail: lttt@ifftp.bas-net.by

Несмотря на простоту и общность нутационного эффекта, работ по изучению его затухания сравнительно немного. В первую очередь это связано с экспериментальными трудностями выделения того или иного механизма затухания. С другой стороны, изучение затухания нутаций представляет интерес с точки зрения проверки справедливости уравнений Блоха при описании когерентных явлений в сильных полях. Недавно этот аспект рассматривался в работе [2] на примере ЭПР-нутаций $[\text{AlO}_4]^{0-}$ - и E^1 -центров в кварце. В экспериментальных условиях [2] актуальным источником когерентного подавления было неоднородное уширение, которое авторы рассмотрели в приближении широкой линии. После выделения осциллирующей части сигнала, описываемой функцией Бесселя нулевого порядка, авторы получили следующий результат. Оказалось, что огибающая сигнала затухает по экспоненциальному закону с декрементом

$$\beta = \frac{1}{2T_2} + \alpha\chi, \quad (1)$$

где α — постоянный коэффициент, χ — частота Раби.

Этот результат, по мнению авторов, является неожиданным, поскольку после выделения когерентного подавления, обязанного неоднородному уширению, затухание отклика в приближении широкой линии должно происходить лишь за счет необратимой релаксации. Такое поведение сигнала не описывается уравнениями Блоха, что побудило авторов работы [2] сделать вывод о том, что дополнительное затухание нутаций, зависящее от амплитуды поля, присуще однородным системам вообще. Недавно в [3] была проведена экспериментальная проверка этого утверждения в ЯМР на протонах в глицерине. Оказалось, что в большом диапазоне изменения амплитуды поля затухание нутаций обусловлено только необратимой релаксацией и не зависит от амплитуды поля. Расчеты затухания в рамках сильнополевого приближения Торри [4] также не смогли удовлетворительно объяснить наблюдаемую аномалию [5]. В настоящей работе предпринята попытка изучения затухания нутаций в общем случае без использования какого-либо приближения. По нашему мнению, приближение широкой линии, использованное в [2], неоправданно, поскольку отношение χ/σ (σ — неоднородная полуширина линии) в [2] достигало величины 1.4. В таких условиях необходимо учитывать конечность ширины линии, которая может привести к «дополнительному» затуханию отклика. Иными словами, предстояло выяснить, достаточно ли в условиях эксперимента [2] приближения широкой линии для расчета столь тонкого эффекта, как затухание нутаций.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Рассмотрим выражение для V -компоненты намагниченности спиновой системы ($S = 1/2$) с учетом необратимой релаксации [4]:

$$V(t, \Delta) = V_0 \frac{\chi \sin(t\sqrt{\Delta^2 + \chi^2})}{\sqrt{\Delta^2 + \chi^2}} \exp\left(-\frac{t}{2T_2}\right), \quad (2)$$

где V_0 — равновесное значение намагниченности, Δ — разброс частот спиновых пакетов неоднородно уширенной линии, $t > 0$.

Для дальнейшего анализа (2) необходимо усреднить по контуру неоднородно уширенной линии:

$$\langle V(t) \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} V(t, \Delta) g(\Delta) d\Delta. \quad (3)$$

Принимая формфактор $g(\Delta)$ в виде лоренциана, воспользуемся интегральным представлением [6]:

$$\frac{\sin(t\sqrt{\Delta^2 + \chi^2})}{\sqrt{\Delta^2 + \chi^2}} = \int_0^t J_0(\chi\sqrt{t^2 - x^2}) \cos \Delta x dx.$$

После повторного интегрирования (3) принимает вид

$$\langle V(t) \rangle = V_0 \chi t \int_0^1 J_0(\chi t \sqrt{1 - x^2}) \exp \left[-t \left(\sigma x + \frac{1}{2T_2} \right) \right] dx, \quad (4)$$

где $J_0(z)$ — функция Бесселя нулевого порядка.

В полученном выражении отчетливо просматривается роль конечности ширины линии в затухании сигнала. Для выяснения этой роли нами был проведен численный расчет (4) без учета необратимой релаксации при различных отношениях χ/σ (рис. 1). Для сравнения на этих же рисунках показан нутационный сигнал в приближении широкой линии [4]:

$$\langle V(t) \rangle = V_0 \frac{\chi}{\sigma} J_0(\chi t). \quad (5)$$

Видно, что при $\chi/\sigma \leq 1$ сигналы (4) и (5) хорошо совпадают везде, кроме начального участка (рис. 1а), но при $\chi/\sigma > 1$ совпадение ухудшается, и при возрастании χ область несовпадения увеличивается (рис. 1б и 1в). Начальный участок все более напоминает затухающую синусоиду, причем декремент затухания зависит от отношения χ/σ .

Для оценки затухания вычислим скорость интегрального затухания сигнала (4):

$$\Gamma = \langle V(0) \rangle / \int_0^{\infty} \langle V(t) \rangle dt. \quad (6)$$

В качестве $\langle V(0) \rangle$ возьмем величину сигнала $\langle V(t_m) \rangle$ в момент начального выброса нулевой t_m . Интеграл в знаменателе (6)

$$\langle \langle V(t) \rangle \rangle = \int_0^{\infty} \langle V(t) \rangle dt = V_0 \chi \int_0^{\infty} t dt \int_0^1 J_0(\chi t \sqrt{1 - x^2}) \exp \left[-t \left(\frac{1}{2T_2} + \sigma x \right) \right] dx$$

после повторного интегрирования становится равным

$$\langle \langle V(t) \rangle \rangle = \chi \left[\sqrt{\chi^2 + \frac{1}{4T_2^2}} \left(\sigma + \sqrt{\chi^2 + \frac{1}{4T_2^2}} \right) \right]^{-1}. \quad (7)$$

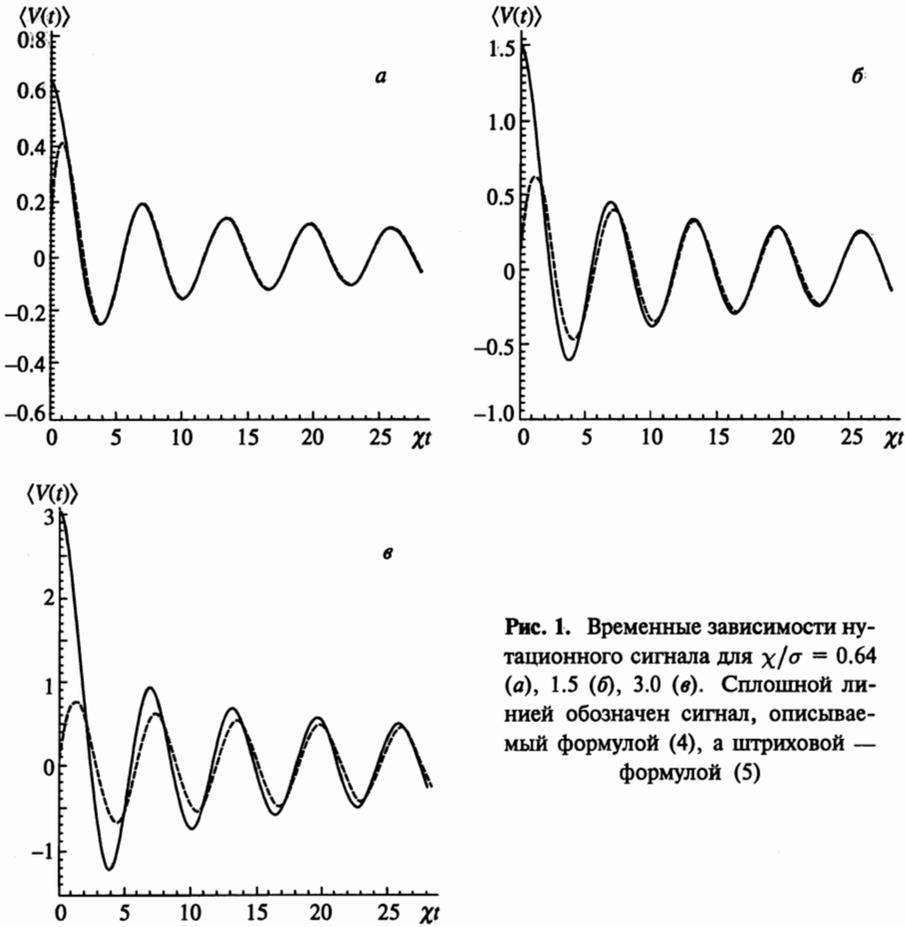


Рис. 1. Временные зависимости ну-
тационного сигнала для $\chi/\sigma = 0.64$
(а), 1.5 (б), 3.0 (в). Сплошной ли-
нией обозначен сигнал, описываемый
формулой (4), а штриховой —
формулой (5)

Тогда скорость интегрального затухания будет

$$\Gamma = \langle V(t_m) \rangle \sqrt{\chi^2 + \frac{1}{4T_2^2}} \left(\sigma + \sqrt{\chi^2 + \frac{1}{4T_2^2}} \right) \chi^{-1}. \quad (8)$$

Проанализируем (8) при различных величинах амплитуды поля. При малых амплитудах величина $\langle V(t_m) \rangle$ изменяется примерно по линейному закону $\langle V(t_m) \rangle \simeq \chi/\sigma$, а при больших — асимптотически стремится к единице (рис. 2). Поэтому при небольших значениях χ скорость интегрального затухания равна

$$\Gamma = \sqrt{\chi^2 + \frac{1}{4T_2^2}} + \frac{\chi^2 + 1/4T_2^2}{\sigma} = \left[\int_0^\infty J_0(\chi t) \exp\left(-\frac{t}{2T_2}\right) dt \right]^{-1} + \frac{\chi}{\sigma} \left[\int_0^\infty \sin(\chi t) \exp\left(-\frac{t}{2T_2}\right) dt \right]^{-1}, \quad (9)$$

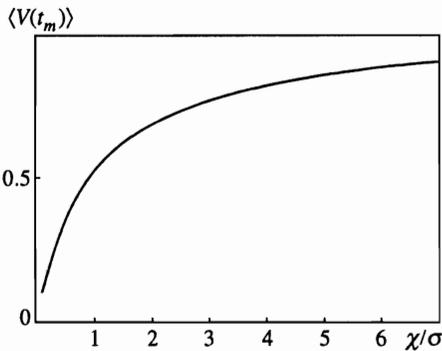


Рис. 2. Полевая зависимость амплитуды $\langle V(t_m) \rangle$ начального выброса нутации

т. е. суммарная скорость интегрального затухания складывается из двух скоростей: первая отражает затухание сигнала в приближении широкой линии, а вторая — узкой. При $\chi < \sigma$ доминирует затухание, обусловленное когерентным подавлением и необратимой релаксацией, а затухание, соответствующее второму слагаемому, играет роль небольшой добавки, «вес» которой по мере увеличения χ возрастает. При выполнении неравенства $\chi > (2T_2)^{-1}$ (условие наблюдения нутаций) $\Gamma \sim \chi(1 + \chi/\sigma)$. Экстраполяция (9) в область очень малых χ дает скорость затухания $(2T_2)^{-1}$ необратимой релаксации, которую можно определить из экспериментов по электромагнитному эхо-сигналу. В противоположном случае $\chi \gg \sigma$ ($\langle V(t_m) \rangle \rightarrow 1$)

$$\Gamma = \frac{\sigma}{\chi} \sqrt{\chi^2 + \frac{1}{4T_2^2}} + \frac{\chi^2 + 1/4T_2^2}{\chi} = \frac{\sigma}{\chi} \left[\int_0^\infty J_0(\chi t) \exp\left(-\frac{t}{2T_2}\right) dt \right]^{-1} + \left[\int_0^\infty \sin(\chi t) \exp\left(-\frac{t}{2T_2}\right) dt \right]^{-1}, \quad (10)$$

т. е. роли составляющих результирующей скорости интегрального затухания меняются: основной вклад в затухание вносит второе слагаемое, а вклад первого определяется отношением σ/χ . При $\chi \gg (2T_2)^{-1}$ получается $\Gamma \simeq \chi(1 + \sigma/\chi)$.

Полученные оценки нетрудно проверить посредством прямого вычисления скорости интегрального затухания сигнала (4) без учета необратимой релаксации:

$$\Gamma_+ = \langle V(t_m) \rangle \left[\chi \int_0^\infty t dt \int_0^1 \exp(-\sigma x t) J_0(\chi t \sqrt{1-x^2}) dx \right]^{-1} = \langle V(t_m) \rangle (\sigma + \chi), \quad (11)$$

что формально можно представить как результат вычисления декремента затухания некоторой экспоненциальной функции $\exp[-(\sigma + \chi)t]$, нормированной на фактор $\langle V(t_m) \rangle$. Можно также определить и скорость интегрального затухания за счет механизма когерентного подавления:

$$\Gamma_1 = \left[\int_0^\infty J_0(\chi t) dt \right]^{-1} = \chi, \quad (12)$$

что также можно трактовать как декремент затухания некоторой экспоненциальной функции. В этом представлении выражение (8) для скорости интегрального затухания (8) можно аппроксимировать как

$$\Gamma \simeq \frac{1}{2T_2} + \langle V(t_m) \rangle (\sigma + \chi). \quad (13)$$

Такая запись для Γ позволяет проделанную в [2] процедуру выделения осциллирующей части отклика, описываемой функцией Бесселя, воспроизвести посредством вычитания (12) из (13). Если из (13) вычесть (11), то имеем естественный результат теории Блоха: в отсутствие неоднородного уширения нутации затухают лишь за счет необратимой релаксации.

Таким образом, учет конечности неоднородной ширины линии приводит к дополнительному затуханию нутаций. Как видно из приведенных выше оценок, это затухание при малых χ квадратично зависит от амплитуды поля, а при больших χ асимптотически стремится к σ .

Вернемся к уже упоминавшемуся выше эксперименту [2], в котором затухание нутаций исследовалось на второй гармонике. Для этого случая полученные выше выражения необходимо модифицировать, что, как показано в [7], делается тривиально: необходимо провести замену $\chi \rightarrow \chi J_1(\chi/\omega) = \tilde{\chi}$, где ω — несущая частота генератора.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для сопоставления полученных в настоящей работе результатов с экспериментальными данными [2] мы вычисляли скорости интегрального затухания $\Gamma_2 = \Gamma - \Gamma_1$ и $\Gamma - \Gamma_+$ в зависимости от частоты Раби. Приведенные на рис. 3 данные эксперимента [2] и наши результаты по затуханию нутаций в образцах № 1 ($T_2 = 120 \cdot 10^{-6}$ с, $\sigma = 0.125 \cdot 10^6 \cdot 2\pi$ Гц) и № 2 ($T_2 = 8.7 \cdot 10^{-6}$ с, $\sigma = 0.625 \cdot 10^6 \cdot 2\pi$ Гц), изученных в [2], показывают, что при сравнительно небольших амплитудах поля теория удовлетворительно согласуется с экспериментом, причем область совпадения для образца № 2 больше, чем для образца № 1. Это объясняется тем, что неоднородная ширина линии у образца № 2 в пять раз

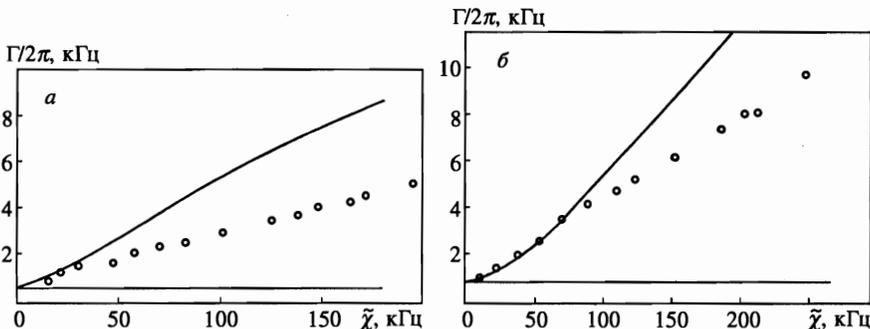


Рис. 3. Полевые зависимости скорости интегрального затухания нутационного сигнала для образцов № 1 (а) и № 2 (б). Сплошная линия — теория, точки — экспериментальные данные [2]

больше, чем у образца № 1. Поэтому для второго образца приближение широкой линии $\tilde{\chi}/\sigma \ll 1$ выполняется на большем интервале изменения амплитуды поля, чем для первого. При $\tilde{\chi}/\sigma \leq 1$ наблюдается превышение теоретической скорости интегрального затухания над экспериментальной, которое можно оценить, если воспользоваться тем обстоятельством, что на обеих теоретических зависимостях $\Gamma = \Gamma(\tilde{\chi})$ можно выделить линейные участки. Угловые коэффициенты данных линейных зависимостей равны $K_1 = 5.5 \cdot 10^{-2}$ и $K_2 = 6.45 \cdot 10^{-2}$ соответственно. Величины этих коэффициентов примерно в два раза превышают экспериментальные значения [2] $K_1 = (2.4 \pm 0.1) \cdot 10^{-2}$ и $K_2 = (3.3 \pm 0.2) \cdot 10^{-2}$ соответственно.

Таким образом, наблюдавшееся в [2] «дополнительное» (по сравнению с затуханием функции Бесселя нулевого порядка) зависящее от χ затухание нутационного сигнала в противовес утверждению авторов работы [2] на качественном уровне вполне описывается уравнениями Блоха и связано с конечным значением неоднородной ширины линии. Последнее обстоятельство авторами работы [2] не было учтено, поскольку они на всем интервале изменения $\tilde{\chi}$ пользовались приближением широкой линии. В свете полученных выше результатов следует отметить, что при оценке столь тонкого эффекта как затухание нутаций приближением широкой линии надо пользоваться с большой осторожностью. Приведенные результаты были получены с помощью вычисления скорости интегрального затухания, в то время как в [2] затухание определялось на конечном временном интервале эволюции отклика. Поэтому согласие теории и эксперимента имеет место на качественном уровне. В недавно появившейся работе [8] была предпринята попытка объяснения «аномального» затухания нутаций в [2] в рамках стохастической модели возбуждающего поля. Однако, поскольку в [2] процедура выделения вклада в затухание за счет конечного значения неоднородной ширины линии не была выполнена, данная попытка, по нашему мнению, является преждевременной. Для полного выявления роли неоднородного уширения линии в затухании отклика нам представляется целесообразным проведение экспериментов по затуханию нутаций в однофотонном режиме. В таких экспериментах область изменения χ можно существенно расширить и изучить нутации в области $\chi/\sigma > 1$. Кроме того, постановка эксперимента в этом режиме позволит избавиться от различного рода искажений, присущих двухфотонной методике. Очевидно, что полученные в работе результаты справедливы не только для магнитного, но и для оптического резонанса.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе установлено, что в рамках уравнений Блоха неоднородное уширение спектральной линии приводит не только к когерентному подавлению нутационного сигнала в двухуровневой квантовой системе, но и к экспоненциальному затуханию отклика, зависящему от соотношения между частотой Раби и неоднородной шириной линии. Декремент этого затухания при небольших амплитудах поля зависит от частоты Раби по квадратичному закону, а в сильных полях асимптотически стремится к значению, равному неоднородной ширине линии.

В рамках настоящего рассмотрения получило объяснение обнаруженное в слабых полях «аномальное» затухание нутационного сигнала ЭПР в кварце [2].

Работа выполнена при частичной поддержке Фонда фундаментальных исследований Беларуси.

Литература

1. В. М. Акулин, Н. В. Карлов, *Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике*, Наука, Москва (1987).
2. R. Boscaino, F. M. Gelardi, and J. P. Korb, *Phys. Rev. B* **48**, 7077 (1993).
3. Г. Г. Федорук, *ЖЭТФ* **111**, 1207 (1997).
4. Н. С. Тогге, *Phys. Rev.* **76**, 1059 (1949).
5. В. С. Кузьмин, *ФТТ* **38**, 2704 (1996).
6. И. С. Градштейн, И. М. Рыжик, *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений*, Наука, Москва (1971).
7. В. С. Кузьмин, А. Н. Яшин, *Опт. и спектр.* **62**, 1312 (1987).
8. R. N. Shakhmuratov, F. M. Gelardi, and M. Cannas, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2963 (1997).