

УДК 539.285

ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРА АСИММЕТРИИ НА ДВУХЧАСТОТНОЕ КВАДРУПОЛЬНОЕ СПИНОВОЕ ЭХО

Н. Е. Айнбиндер, Г. А. Волгина, В. С. Гречишким

Впервые эксперимент по импульсному двухчастотному воздействию на многоуровневую квадрупольную спин-систему выполнен в работе [1]. Недавно в работе [2] была развита теория двухчастотного спинового квадрупольного эха для случая аксиальной симметрии градиента электрического поля. Указанное явление было впервые нами экспериментально обнаружено [3] в кристалле BiCl_3 на ядрах Bi^{209} (параметр асимметрии градиента поля $\eta=58\%$).

В настоящем сообщении даны результаты расчета амплитуд и положений сигналов двухчастотного спинового эха в случае, когда аксиальная симметрия градиента электрического поля отсутствует, т. е. параметр асимметрии $\eta \neq 0$.

В ядерном квадрупольном резонансе (ЯКР) система не взаимодействующих друг с другом спинов при наложении радиочастотного поля описывается гамильтонианом

$$H = H_Q + H_1 = \frac{eQq_{zz}}{4J(2J-1)} \left[3I_z^2 - I_x^2 + \eta (I_x^2 - I_y^2) \right] - \gamma \hbar I_x H_1(t), \quad (1)$$

где eQq_{zz} — константа квадрупольного взаимодействия; γ — гиромагнитное отношение ядра; I_x , I_y и I_z — операторы компонент спинового момента ядра; J — спиновое квантовое число; $H_1(t) = 2H_1 [\cos(\omega_1^0 t) + \cos(\omega_2^0 t)]$ — радиочастотное поле при двухчастотном воздействии, H_1 — амплитуда поля, ω_1^0 и ω_2^0 — частоты двух соседних чисто квадрупольных переходов (при $J \geq 5/2$).

Среднее значение намагниченности после двух пар импульсов вычислялось из соотношения

$$\langle M_x \rangle = - \frac{N\gamma\hbar}{(2J+1)kT} \operatorname{Sp} (S H_Q S^{-1} I_x). \quad (2)$$

Мы не приводим здесь громоздких расчетов двухчастотного воздействия на многоуровневую спин-систему в случае произвольного спина $J \geq 5/2$. Методика вычислений аналогична описанной ранее в [2] с той лишь разницей, что в данном случае необходимо переходить к энергетическому представлению, в котором гамильтониан H_Q диагонален.

Результаты расчета амплитуд сигналов индукции и спиновых эхо для произвольного спина $J (\geq 5/2)$ приведены в таблице 1. В таблице 2 даны аналитические выражения для частот и матричных элементов соответствующих переходов, полученные для спинов $J=5/2$ и $7/2$ с учетом второго порядка теории возмущений по параметру асимметрии $\eta < 0,20$. Вообще говоря, матричные элементы оператора I_x в энергетическом представлении могут быть вычислены для любого значения η численным методом.

Из таблицы 1 видно, что для всех спинов в случае $\eta \neq 0$ положение основного эха при $t=2\tau$ не зависит от η . На частоте нижнего из двух соседних возбуждаемых переходов ω_1^0 дополнительные эхо должны возникать при $t = (1 + \omega_2^0/\omega_1^0)\tau$ и $t = (2 + \omega_2^0/\omega_1^0)\tau$. Например, в случае $J=5/2$ и малых η фазовая когерентность спинов, а также сигналы эхо возникают при $t=(3-70\eta^2/27)\tau$ и $t=(4-70\eta^2/27)\tau$. Аналогично на частоте верхнего перехода ω_2^0 положение дополнительных эхо определяется временами $t = (1 + \omega_1^0/\omega_2^0)\tau$ и $t = (2 + \omega_1^0/\omega_2^0)\tau$, а для вышеупомянутого частного случая — $t = (3/2 + 35\eta^2/54)\tau$ и $t = (5/2 + 35\eta^2/54)\tau$. Таким образом, параметр асимметрии на положение эха для верхних переходов влияет в 4 раза меньше, чем для нижних.

В случае $J=7/2$, когда двухчастотное возбуждение осуществляется для переходов $(1/2 \rightarrow 3/2)$ и $(3/2 \rightarrow 5/2)$, сигнал эхо на частоте ω_1^0 возникает при $t=2\tau$, $(3-42\eta^2/5)\tau$ и $(4-42\eta^2/5)\tau$, а на частоте ω_2^0 — при $t=2\tau$, $(3/2+21\eta^2/10)\tau$ и $(5/2+21\eta^2/10)\tau$.

Таким образом, по расположению дополнительных эхо можно оценить величину параметра асимметрии η . Кроме того, ясно, что разброс значений параметра асимметрии в разных местах кристаллической решетки должен приводить к уширению сигналов дополнительных эхо. Однако теоретический расчет таких уширений, из которого можно было бы извлечь полезную информацию при изучении дефектов решетки, в настоящее время не представляется возможным.

На рис. 1 представлены результаты конкретного расчета амплитуд эха для случая кристалла BiCl_3 (резонанс ядер Bi^{209} , $J=9/2$, $\eta=0,58$), на котором был

Амплитуды и положения двухчастотного спинового эха

	На частоте нижнего перехода ω_1^0	На частоте верхнего перехода ω_2^0
Индукция после 1-го импульса	$\frac{a^2}{(a^2+b^2)^{5/2}} [b^2 \omega_3^0 - (b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos x] \times$ $\times \sin x (a^2 \cos x' + b^2) \cos x' \sin (\omega_1^0 t)$	$\frac{-b^2}{(a^2+b^2)^{5/2}} [a^2 \omega_3^0 + (b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos x] \times$ $\times \sin x (b^2 \cos x' + a^2) \cos x' \sin (\omega_2^0 t)$
Основное эхо	$\frac{a^4}{(a^2+b^2)^{5/2}} [b^2 \omega_3^0 - (b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos x] \times$ $\times \sin x \sin^2 x' \sin [\omega_1^0 (t - 2\tau)]$	$\frac{b^4}{(a^2+b^2)^{5/2}} [a^2 \omega_3^0 + (b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos x] \times$ $\times \sin x \sin^2 x' \sin [\omega_2^0 (t - 2\tau)]$
Дополнительное эхо	$\frac{a^2 b^2}{(a^2+b^2)^{5/2}} [a^2 \omega_3^0 + (b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos x] \times$ $\times \sin x (\cos x' - 1) \cos x' \sin \left\{ \omega_1^0 \left[t - \left(1 + \frac{\omega_2^0}{\omega_1^0} \right) \tau \right] \right\}$	$\frac{a^2 b^2}{(a^2+b^2)^{5/2}} [b^2 \omega_3^0 - (b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos x] \times$ $\times \sin x (\cos x' - 1) \cos x' \sin \left\{ \omega_2^0 \left[t - \left(1 + \frac{\omega_1^0}{\omega_2^0} \right) \tau \right] \right\}$
Запрещенное эхо	$\frac{a^4 b^2}{(a^2+b^2)^{7/2}} [(b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0) \cos^2 x + (a^2 - b^2) \omega_3^0 \cos x -$ $- (a^2 \omega_2^0 - b^2 \omega_1^0)] (\cos x' - 1) \sin x' \sin \left\{ \omega_1^0 \left[t - \left(2 + \frac{\omega_2^0}{\omega_1^0} \right) \tau \right] \right\}$	$-\frac{a^2 b^4}{(a^2+b^2)^{7/2}} [b^2 \omega_2^0 - a^2 \omega_1^0] \cos^2 x + (a^2 - b^2) \omega_3^0 \cos x -$ $- (a^2 \omega_2^0 - b^2 \omega_1^0)] (\cos x' - 1) \sin x' \times$ $\times \sin \left\{ \omega_2^0 \left[t - \left(2 + \frac{\omega_1^0}{\omega_2^0} \right) \tau \right] \right\}$
	$x = \sqrt{a^2 + b^2} \frac{\gamma H_1 t_w}{2}$	$x' = \sqrt{a^2 + b^2} \frac{\gamma H_1 t'_w}{2}$

Таблица 2

Значения a и b при двухчастотном возбуждении двух соседних переходов для $J = 5/2$ и $J = 7/2$

Спин	Частота переходов („захват“)	a	b
5/2	$\omega_1^0 (\pm 1/2 \rightarrow \pm 3/2) = \frac{3}{20} \left(1 + \frac{59}{54} \eta^2\right) eQq_{zz},$ $\omega_2^0 (\pm 3/2 \rightarrow \pm 5/2) = \frac{3}{10} \left(1 - \frac{11}{54} \eta^2\right) eQq_{zz},$ $\omega_3^0 = \omega_1^0 + \omega_2^0$	$\sqrt{8} \left(1 + \frac{11}{18} \eta - \frac{329}{324} \eta^2\right)$	$\sqrt{5} \left(1 + \frac{2}{9} \eta - \frac{8}{81} \eta^2\right)$
7/2	$\omega_1^0 (\pm 1/2 \rightarrow \pm 3/2) = \frac{1}{14} \left(1 + \frac{109}{30} \eta^2\right) eQq_{zz},$ $\omega_2^0 (\pm 3/2 \rightarrow \pm 5/2) = \frac{1}{7} \left(1 - \frac{17}{30} \eta^2\right) eQq_{zz},$ $\omega_3^0 = \omega_1^0 + \omega_2^0$	$\sqrt{15} \left(1 + \eta - \frac{1519}{450} \eta^2\right)$	$\sqrt{12} \left(1 + \frac{3}{10} \eta - \frac{323}{900} \eta^2\right)$
	$\omega_1^0 (\pm 3/2 \rightarrow \pm 5/2) = \frac{1}{7} \left(1 - \frac{17}{30} \eta^2\right) eQq_{zz},$ $\omega_2^0 (\pm 5/2 \rightarrow \pm 7/2) = \frac{3}{14} \left(1 - \frac{1}{10} \eta^2\right) eQq_{zz},$ $\omega_3^0 = \omega_1^0 + \omega_2^0$	$\sqrt{12} \left(1 + \frac{3}{10} \eta - \frac{323}{900} \eta^2\right)$	$\sqrt{7} \left(1 + \frac{1}{5} \eta + \frac{1}{450} \eta^2\right)$

выполнен эксперимент [3]. Согласие между экспериментом и теорией получилось хорошее. Действительно, если второй импульс взять 90-градусным, то амплитуда дополнительного эха при $t=1,7\tau$ (переход $7/2 \rightarrow 9/2$) очень мала, тогда как сигнал эха при $t=2,7\tau$ легко наблюдается. Знание аналитического вида амплитуд и положений двухчастотных эхо позволяет легко отыскивать оптимальные условия их наблюдения в различных подходящих кристаллических соединениях.

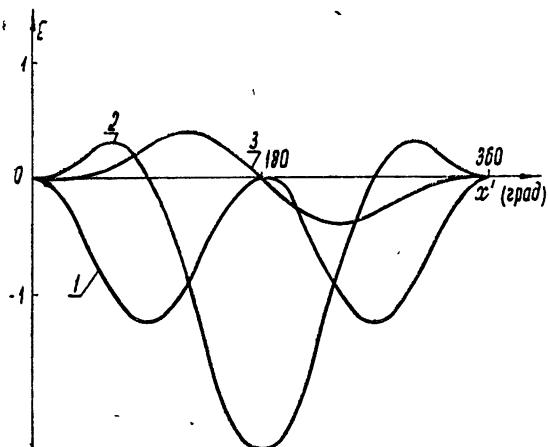


Рис. 1. Зависимость относительных амплитуд двухчастотного квадрупольного спинового эха от длительности второго импульса при максимуме индукции после первого импульса (случай $J=9/2$, $\eta=0,58$). Переход $7/2 \rightarrow 9/2$ при одновременном возбуждении перехода $5/2 \rightarrow 7/2$ $x' = 2,814 \gamma H_1 t_w$; $1 - t = 2\tau$, $2 - t = 1,7\tau$, $3 - t = 2,7\tau$.

Метод двухчастотного эха представляет также интерес в связи с тем, что он открывает возможность изучения необратимых процессов в многоуровневых системах. В работе [1] показано, что при двухчастотном воздействии в случае $\gamma=0,1$ ($\gamma=w_2/w_1$, w_1 и w_2 — релаксационные вероятности) процесс приближения к равновесию в подсистемах спинов носит немонотонный характер.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. С. Гречишкян, А. Д. Гордеев, Н. Е. Айнбinder, Изв. высш. уч. зав.—Радиофизика, 9, № 3, 507 (1966).
2. Н. Е. Айнбinder, В. С. Гречишкян, Изв. высш. уч. зав.—Радиофизика, 10, № 2, 186 (1967).
3. В. С. Гречишкян, Н. Е. Айнбinder, Письма в ЖЭТФ, 5, 87 (1967).

Пермский государственный университет

Поступила в редакцию
7 декабря 1966 г.

УДК 621.378.33

ОТПЯННЫЙ СУБМИЛЛИМЕТРОВЫЙ ЛАЗЕР НА $\text{H}_2\text{O} + \text{H}_2$

A. Ф. Крупнов, В. А. Скворцов, Л. А. Синегубко

В освоении субмиллиметрового диапазона длин волн важную роль играют недавно разработанные квантовые генераторы этого диапазона на молекулярных газах [1,2]. Существующие в настоящее время субмиллиметровые лазеры представляют собой проточные системы, в которых осуществляется постоянная смена рабочего вещества, что усложняет установку и затрудняет работу с ней. Преимущества отпаянных систем, широко применявшихся в видимой и инфракрасной областях спектра, общеизвестны. Однако попытки запуска субмиллиметровых лазеров в отпаянном режиме пока не увенчались успехом.

В работе [2] отмечается, что при прекращении прокачки рабочего вещества лазер на парах воды ($\lambda \approx 119$ микрон) генерировал лишь в течение нескольких минут; затем генерация пропадала и не возобновлялась даже при длительном «отдыхе» отработанного вещества без разряда. Авторы [2] высказали предположение, что это происходит