

Влияние сдвига Блоха–Зигерта на амплитудно-частотные характеристики осцилляций Раби при нутационном резонансе

А. П. Сайко¹⁾, Г. Г. Федорук[†]

Объединенный институт физики твердого тела и полупроводников НАН Беларуси, 220072 Минск, Беларусь

[†]Institute of Physics, University of Szczecin, 70-451 Szczecin, Poland

Поступила в редакцию 12 декабря 2007 г.

Исследуется динамика двухуровневой спиновой системы, “одетой” бихроматическим излучением, в условиях двойного резонанса, когда частота одного, микроволнового, поля равна ларморовой частоте спиновой системы, а частота другого, радиочастотного, поля ω_{rf} близка к частоте Раби ω_1 в микроволновом поле. Теоретически показано, что происходящие с частотой ε осцилляции Раби на “одетых” спиновых состояниях сопровождаются осцилляциями с высокими частотами $n\omega_{rf}$, $n\omega_{rf} \pm \varepsilon$ ($n = 1, 2, \dots$), наиболее интенсивными из которых являются сигналы с $n = 1$. Антивращающиеся (“антирезонансные”) компоненты радиочастотного поля приводят к смещению энергии “одетых” состояний – частотному сдвигу типа Блоха–Зигерта. Это проявляется, в частности, в зависимости частоты осцилляций Раби ε от знака отстройки от резонанса $\omega_1 - \omega_{rf}$, а при двойном резонансе – в асимметрии амплитуд осцилляций: амплитуда на суммарной частоте $\omega_{rf} + \varepsilon$ увеличивается, а на разностной частоте $\omega_{rf} - \varepsilon$ уменьшается. Предсказываемые эффекты подтверждены наблюдением нутаций сигналов ЭПР E_1' -центров в кварце и их необходимо учитывать при реализации в твердых телах кубитов с малой частотой Раби.

PACS: 32.80.Wr, 33.35+g, 42.50.Gy

Описание резонансного взаимодействия когерентного электромагнитного излучения с квантовыми системами чаще всего дается в приближении вращающейся волны. В этом случае только одна из двух противоположно вращающихся компонент линейно поляризованного электромагнитного поля эффективно взаимодействует с квантовой системой, а влиянием второй компоненты можно пренебречь. В случае сильного электромагнитного поля противоположно вращающаяся – “антирезонансная” – компонента становится эффективной, и приближение вращающейся волны не может быть использовано. Следствием нарушения приближения вращающейся волны является эффект Блоха–Зигерта [1]. Этот эффект, приводящий к сдвигу резонансной частоты, пренебрежимо мал в оптических переходах, однако проявляется в прецизионных ЯМР экспериментах [2]. Эффект Блоха–Зигерта может приводить также к изменениям, существенным в функционировании квантовых компьютеров [3]. В то же время, благодаря интерференции противоположно вращающихся компонент электромагнитного поля, эффект Блоха–Зигерта дает замечательную возможность измерения не только амплитуды, но и абсолютной фазы монохроматического электромагнитного поля [4].

В последнее время возрос интерес к изучению взаимодействия двухуровневых квантовых систем как со стационарным [5, 6], так и импульсным [7] бихроматическим излучением, образованным полями с сильно различающимися частотами. Такой интерес обусловлен важностью и общностью получаемых результатов для широкого круга физических объектов, таких, как ядерные и электронные спины в ЯМР и ЭПР, двухъямные квантовые точки, потоковые и зарядовые кубиты в сверхпроводящих системах и др. При описании указанных систем используется подход “одетых” состояний, а рассматриваемым эффектом являются осцилляции Раби, частота которых отражает эффективность взаимодействия бихроматического излучения с квантовой системой, а затухание – время существования когерентности квантовых состояний. При изучении квантовых состояний, “одетых” электромагнитным полем, избежать нарушения приближения вращающейся волны не удастся, если амплитуда электромагнитного поля, возбуждающего переходы между “одетыми” состояниями, сопоставима с амплитудой “одевающего” поля. В дальнейшем будем рассматривать электронные двухуровневые спиновые системы, “одетые” бихроматическим излучением, созданным поперечным микроволновым (МВ) и продольным радиочастотным (РЧ) полями. Как известно [7], “одевание” двухуровневой системы электромагнитным полем превращает ее в

¹⁾e-mail: saiko@ifftp.bas-net.by

динамическую многоуровневую систему. Бихроматическое излучение в силу значительного различия частот МВ и РЧ полей обеспечивает возбуждение интенсивных многофотонных переходов в ЭПР. Прямое изучение динамики многофотонных переходов методом нестационарной нутации позволило измерить амплитуды эффективных полей многофотонных переходов между спиновыми состояниями, одетыми РЧ полем, и выявить особенности эффекта типа Блоха–Зигерта [8–11]. В случае двойного резонанса, когда частота МВ поля равна ларморовой частоте спиновой системы, а частота РЧ поля близка к эффективной частоте Раби в МВ поле (частоте однофотонной нутации), РЧ поле возбуждает нутацию (осцилляцию Раби) на “одетых” МВ полях спиновых состояниях [12, 13]. При этом существенным образом изменяется также взаимодействие спиновой системы с окружением. Увеличение времени спиновой когерентности в условиях двойного резонанса обнаружено недавно методом нестационарных нутаций на “одетых” МВ полях состояниях E_1' -центров в кварце и P_1 -центров в алмазе [12–14]. Поскольку амплитуда РЧ поля в этих исследованиях не слишком мала по сравнению с амплитудой МВ поля, приближение вращающейся волны для РЧ поля нарушается и влияние противоположно вращающейся составляющей РЧ поля в динамике “одетых” спиновых состояний становится ощутимым. Однако проявление нарушения приближения вращающейся волны в работах [12–14] не исследовалось, хотя в полученных экспериментальных зависимостях были замечены особенности, не объяснимые в рамках приближения вращающейся волны. Следует отметить, что еще в первой работе по стационарному наблюдению переходов между “одетыми” спиновыми состояниями в ЯМР (rotary saturation) была замечена асимметрия зависимости наблюдаемого сигнала от частоты РЧ поля [15]. В работе [16] также была отмечена асимметрия фурье-спектра нутации на “одетых” электронных спиновых состояниях, причина которой осталась неясной.

В настоящей работе особенности динамики “одетых” спиновых состояний при нарушении приближения вращающейся волны исследуются теоретически и экспериментально в ЭПР на примере нутаций на “одетых” спиновых состояниях E_1' -центров в кристаллическом кварце.

Теория. Гамильтониан H спина электрона $S = 1/2$, находящегося в МВ поле, направленном вдоль оси x лабораторной системы координат, а также в РЧ и статическом магнитном полях, направленных вдоль оси z , можно записать в виде

$$H = H_0 + H_x(t) + H_z(t). \quad (1)$$

Здесь $H_0 = \omega_0 S^z$ – гамильтониан зеемановской энергии спина в магнитном поле B_0 , $\omega_0 = \gamma B_0$, γ – гиромагнитное отношение электрона; $H_x(t) = 2\omega_1 \cos(\omega_{mw}t + \varphi) S^x$ и $H_z(t) = 2\omega_2 \cos(\omega_{rf}t + \psi) S^z$ – гамильтонианы взаимодействия спина с линейно поляризованными МВ и РЧ полями, соответственно, $B_1, B_2, \omega_{mw}, \omega_{rf}$ и φ, ψ – амплитуды, частоты и фазы МВ и РЧ полей, а $\omega_1 = \gamma B_1$ и $\omega_2 = \gamma B_2$ – частоты Раби; $S^{x,y,z}$ – компоненты спинового оператора.

Сначала запишем (1) в системе координат, вращающейся вокруг оси z с частотой ω_{mw} , а затем, устраняя из преобразованного гамильтониана быстро осциллирующие члены ($e^{\pm i\omega_{rf}t}$) с помощью применения процедуры усреднения Крылова–Боголюбова–Митропольского [10], получим эффективный гамильтониан, описывающий k -квантовые ($k = 1, 2, 3, \dots$) переходы между “одетыми” состояниями:

$$H^{(k)} = (\Omega - k\omega_{rf} + \Delta_{BS})S^z + \frac{\omega_1\omega_2 k(-1)^k}{2\Delta} J_k(a)(S^+ e^{-k\psi} + \text{h.c.}), \quad (2)$$

где $\Delta = \omega_0 - \omega_{mw}$, $\Omega = \sqrt{\Delta^2 + \omega_1^2}$, $a = 2\omega_2\Delta/\omega_{rf}\Omega$, $\Delta_{BS} \approx \omega_2^2/4\omega_{rf}$ – частотный сдвиг типа Блоха–Зигерта. Сигнал поглощения $v(t) = \frac{1}{2i} \text{Sp}\{\rho(t)(S^+ - S^-)\}$ определяется с помощью уравнения Лиувилля для матрицы плотности ρ : $i\partial\rho/\partial t = [H^{(k)}, \rho]$. В лабораторной системе координат после усреднения по равномерному распределению фаз ψ на интервале от 0 до 2π получаем следующее выражение для $v(t)$ в случае $k = 1$:

$$v(t) \sim \frac{1}{2} \cos\theta \sin\xi J_{-1}(a) e^{-\Gamma t} \sin\epsilon t + \frac{1}{8} \sin\theta J_0^2(a) e^{-\Gamma t} [2\sin^2\xi \sin\omega_{rf}t + (1 - \cos\xi)^2 \sin(\omega_{rf} - \epsilon)t + (1 + \cos\xi)^2 \sin(\omega_{rf} + \epsilon)t]. \quad (3)$$

При получении (3) пренебрежено вкладом малых членов, осциллирующих на частотах $n\omega_{rf}$, $n\omega_{rf} \pm \epsilon$ ($n = 2, 3, \dots$), и введены обозначения:

$$\epsilon = [(\Omega - \omega_{rf} + \Delta_{BS})^2 + \tilde{\omega}_2^2]^{1/2}, \quad (4)$$

$\tilde{\omega}_2 = -(\omega_1\omega_{rf}/\Delta)J_1(a)$, $\sin\xi = \tilde{\omega}_2/\epsilon$, $\cos\xi = (\Omega - \omega_{rf} + \Delta_{BS})/\epsilon$, $\sin\theta = \omega_1/\Omega$, $\cos\theta = \Delta/\Omega$. Даваемая формулой (4) частота ϵ является эффективной частотой осцилляций Раби на “одетых” МВ полях спиновых состояниях. Экспоненциальное затухание сигнала со скоростью Γ введено в (3) феноменологически. При сравнении теории с экспериментом выражение для сигнала нутаций (3) должно быть усреднено по неоднородному разбросу частот Δ (от Δ зависят па-

параметры $a, \Omega, \Theta, \xi, \tilde{\omega}_2, \varepsilon$ с весовой функцией гауссовского вида $g(\Delta) = (T_2^*/\sqrt{\pi}) \exp(-\Delta^2 T_2^{*2})$:

$$\langle v(t) \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} d\Delta g(\Delta) v(t), \quad (5)$$

где T_2^* – время обратимой фазовой релаксации.

Из (3) видно, что осцилляции Раби на “одетых” спиновых состояниях, происходящие на частоте ε , сопровождаются тремя высокочастотными осцилляциями на частотах ω_{rf} и $\omega_{rf} \pm \varepsilon$. Частота осцилляций Раби зависит от сдвига типа Блоха–Зигерта. При $\Delta = 0$ и $\Delta_{BS} \ll \omega_1, \omega_{rf}, \omega_2$

$$\varepsilon \approx \varepsilon_0 \left[1 + \frac{(\omega_1 - \omega_{rf}) \Delta_{BS} + \Delta_{BS}^2/2}{(\omega_1 - \omega_{rf})^2 + \omega_2^2} \right], \quad (6)$$

где $\varepsilon_0 = [(\omega_1 - \omega_{rf})^2 + \omega_2^2]^{1/2}$. Если $|\omega_1 - \omega_{rf}| > \Delta_{BS}$, частота ε зависит от сдвига типа Блоха–Зигерта линейно. В случае реализации нутационного резонанса, когда $\omega_{rf} = \omega_1$, эта зависимость квадратичная, поэтому, ввиду малости Δ_{BS}^2 , выражена слабо. Отношение амплитуд сигналов на частотах $\omega_{rf} - \varepsilon$ и $\omega_{rf} + \varepsilon$ при нутационном резонансе напрямую связано со сдвигом Блоха–Зигерта приближенным равенством:

$$(1 - \cos \xi)^2 / (1 + \cos \xi)^2 \approx 1 - 4\Delta_{BS}/\omega_2. \quad (7)$$

Из (7) следует, что амплитуда сигнала на суммарной частоте превалирует над амплитудой сигнала на разностной частоте при наличии сдвига Блоха–Зигерта, и эта асимметрия исчезает с исчезновением последнего.

Экспериментальные результаты и обсуждение. Нестационарная нутация сигналов ЭПР регистрировалась на импульсном спектрометре ЭПР 3-сантиметрового диапазона [9]. Использовались непрерывные МВ и РЧ поля, а скачкообразное установление их резонансного взаимодействия со спиновой системой осуществлялось импульсом продольного магнитного поля (методика зеемановских импульсов [9]).

Эксперименты выполнены при комнатной температуре и резонансном значении статического магнитного поля ($\omega_{mw} = \omega_0$), что соответствовало максимальному абсорбционному сигналу нутаций “голой” спиновой системы, происходящих с частотой ω_1 . Статическое магнитное поле было параллельным оптической оси кристалла. В этом случае спектр ЭПР E'_1 -центров состоит из одиночной линии с шириной $\Delta B_{pp} = 0.016$ мТл. Длительность импульсов магнитного поля составляла 10 мкс, их амплитуда $\Delta B = 0.12$ мТл, а период повторения – 1.25 мс. Частоты Раби ω_1 и ω_2 калибровались с точностью около 2% по частотам обычной (в отсутствие РЧ поля) и многофо-

тонной (в бихроматическом поле при $\omega_{mw} + \omega_{rf} = \omega_0$ [11]) нутаций.

Для улучшения отношения сигнал/шум использовалось цифровое суммирование нутационных сигналов, получаемых во время каждого импульса. Привязка фазы РЧ поля к началу импульса магнитного поля отсутствовала. Поэтому наблюдаемый сигнал является результатом усреднения большого числа (до 10^3) нутационных сигналов с равномерным распределением случайных фаз ψ РЧ поля на интервале от 0 до 2π . Именно такое усреднение использовалось при получении выражения (3).

На рис.1 представлены нутационные сигналы E'_1 -центров в кристаллическом кварце, зарегистрированные для различных частот радиочастотного поля при фиксированных амплитудах МВ и РЧ полей.

Следует отметить, что частота однофотонной нутации E'_1 -центров, возбуждаемой в отсутствие РЧ поля, из-за неоднородного уширения не зависит от отстройки от резонанса $\omega_{mw} - \omega_0$ и равна ω_1 . При воздействии РЧ поля и приближении его частоты к ω_1 реализация нутационного резонанса приводит к заметному изменению наблюдаемого нутационного сигнала и обогащению его спектрального состава. Фитирование зарегистрированных сигналов с помощью формул (3)–(5), представленное на рис.1 пунктирными линиями, показывает хорошее согласие теории и эксперимента и подтверждает наличие многокомпонентной структуры нутационного сигнала с частотами ε, ω_{rf} и $\omega_{rf} \pm \varepsilon$.

Как видно из представленных на рис.1 сигналов и как следует из формулы (4), эффективная частота Раби ε для одетых спиновых состояний зависит от отстройки от нутационного резонанса $|\omega_{rf} - \omega_1|$. При точном резонансе ($\omega_{rf} = \omega_1$) величина ε минимальна и растет при отстройке в одну и другую стороны. Кроме того, из формулы (4) следует, что величина ε зависит также от частотного сдвига типа Блоха–Зигерта. Поскольку амплитуда РЧ поля не пренебрежимо мала по сравнению с амплитудой МВ, влияние сдвига Блоха–Зигерта в нутационном резонансе становится наблюдаемым. Этот сдвиг является нерезонансным эффектом, поэтому различным образом проявляется при отстройке от резонанса в одну и другую стороны, как видно, например, из сопоставления осциллограмм, полученных при $\omega_{rf}/2\pi = 0.9$ МГц и 1.2 МГц ($|\omega_{rf} - \omega_1| = 0.15$ МГц).

Зависимости частоты нутации “одетых” спиновых состояний от частоты радиочастотного поля для различных амплитуд этого поля приведены на рис.2. Сплошными линиями изображены теоретические зависимости ε от ω_{rf} с учетом сдвига Блоха–Зигерта

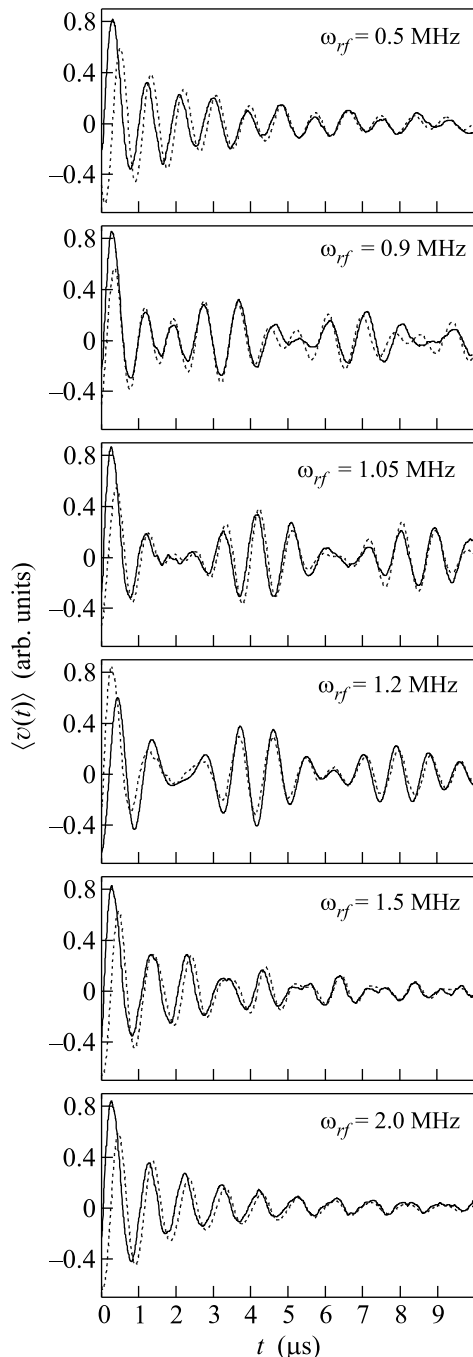


Рис.1. Нутационные сигналы ЭПР E'_1 -центров в кварце для различных частот РЧ поля; $\omega_{mw} = \omega_0$, $\omega_1/2\pi = 1.05$ МГц, $\omega_2/2\pi = 0.24$ МГц. Сплошные линии – эксперимент, пунктирные – теория

согласно формуле (4). Для сравнения пунктирными линиями представлены эти же зависимости без учета сдвига Блоха–Зигерта. Приведенные данные показывают, что в результате эффекта Блоха–Зигерта зависимости частоты нутации “одетых” спиновых состояний от частоты РЧ поля имеют несимметричный

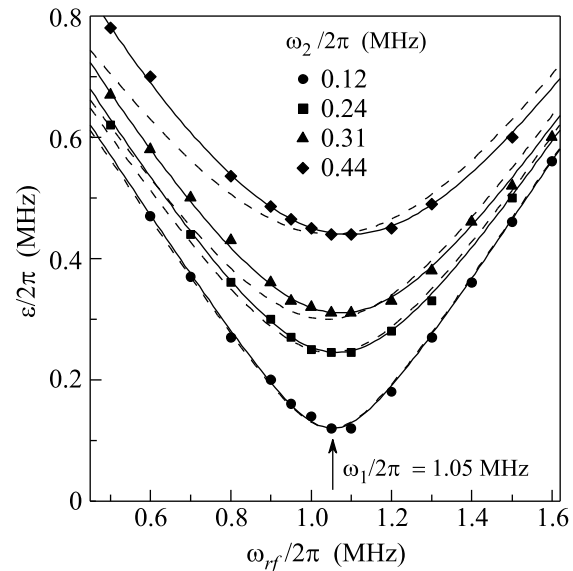


Рис.2. Зависимости частоты нутации “одетых” спиновых состояний от частоты РЧ поля для различных амплитуд этого поля; $\omega_{mw} = \omega_0$, $\omega_1/2\pi = 1.05$ МГц. Сплошные линии – теория с учетом сдвига Блоха–Зигерта, пунктирные – без учета этого сдвига

относительно $\omega_{rf} = \omega_1$ характер и эта асимметрия растет с увеличением амплитуды РЧ поля.

На рис.3 представлены фурье-спектры нутационных сигналов, зарегистрированных для двух амплитуд РЧ поля в условиях нутационного резонанса $|\omega_{rf} - \omega_1| = 0$. Из-за наличия сдвига Блоха–Зигерта даже в условиях нутационного резонанса амплитуды этих сигналов на частотах $\omega_{rf} - \varepsilon$ и $\omega_{rf} + \varepsilon$ не одинаковы, как это видно из фурье-спектров зарегистрированных сигналов и как следует из формулы (7). Отметим, что аналогичная асимметрия боковых компонент имела место в трехфотонной нутации на “одетых” ядерных спиновых состояниях в ЯМР [17]. Причины ее появления в [17] не анализировались; по нашему мнению, ее следует связать с нарушением приближения вращающейся волны. Этим же можно объяснить и асимметрию формы линии нутационного резонанса при его стационарной регистрации [15]. Более того, как показано теоретически [18], с нарушением приближения вращающейся волны может быть связана также асимметрия интенсивности дублета Аутлера–Таунса (Autler–Townes) при оптической регистрации “одетых” ядерных спиновых состояний.

Как видно из рис.1, при нутационном резонансе $\omega_{rf} = \omega_1$ имеет место необычное поведение релаксации “одетых” спиновых состояний. Сравнение скоростей затухания нутаций показывает, что “оде-

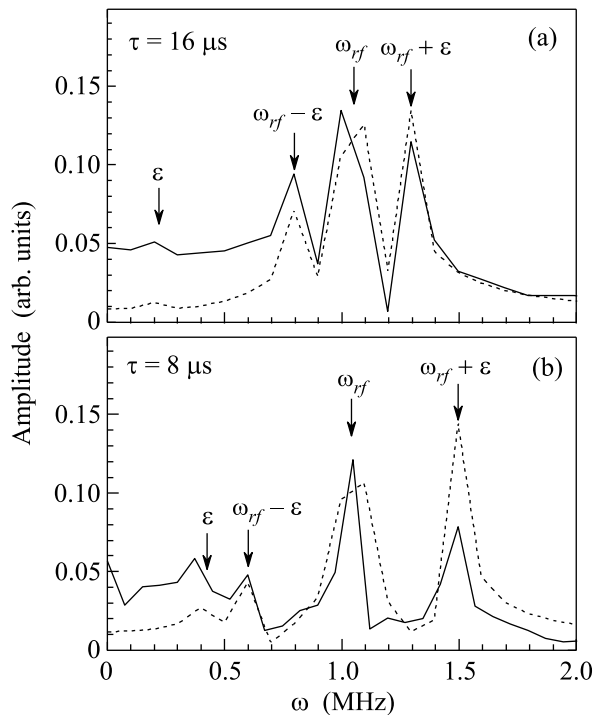


Рис.3. Фурье-спектры нутационных сигналов, зарегистрированных при $\omega_1/2\pi = \omega_{rf}/2\pi = 1.05$ МГц; $\omega_2/2\pi = 0.24$ МГц (а), 0.44 МГц (б). Сплошные линии – эксперимент, пунктирные – теория. Стрелками показаны теоретически рассчитанные частоты осцилляций

тые” состояния заметно слабее взаимодействуют с окружением, чем “голые”. Аппроксимация затухания наблюдавшихся сигналов экспонентой со скоростью затухания Γ показывает, что величина Γ зависит от отстройки $|\omega_{rf} - \omega_1|$ от нутационного резонанса: минимальна при $\omega_{rf} = \omega_1$ (время затухания $\tau = 1/\Gamma = 16 \pm 2$ мкс) и при увеличении отстройки увеличивается до значения, характерного для обычной однофотонной нутации, равного $\tau = 2T_2$, где время спин-спиновой релаксации $T_2 = 3.6 \pm 0.4$ мкс. Так, при фитировании наблюдаемых сигналов, представленных на рис.1, $\tau = 7, 14, 16, 14, 10$ и 7 мкс для $\omega_{rf} = 0.5, 0.9, 1.05, 1.2, 1.5$ и 2.0 МГц, соответственно. Отметим, что именно увеличение времени затухания нутационного сигнала (сужение линии) приводит к тому, что даже в неоднородно уширенной системе регистрируется зависимость частоты осцилляций Раби ϵ на спиновых “одетых” состояниях от величины отстройки от резонанса $|\omega_{rf} - \omega_1|$. Как уже отмечалось, частота обычной нутации, регистрируемой для этой же спиновой системы в отсутствие РЧ поля, равна ω_1 и не зависит от величины отстройки $|\omega_{mw} - \omega_0|$.

Таким образом, теоретически и экспериментально показано, что импульсное бихроматическое воз-

буждение спиновой системы в условиях двойного резонанса (обычного ЭПР, $\omega_{mw} = \omega_0$, и нутационного резонанса, $\omega_{rf} = \omega_1$) приводит к возникновению осцилляций Раби с частотой ϵ на спиновых состояниях, “одетых” МВ полем. Этим осцилляциям сопутствуют осцилляции на частотах $n\omega_{rf}$, $n\omega_{rf} \pm \epsilon$ ($n = 1, 2, \dots$). Антирезонансное воздействие РЧ поля и, как следствие, нарушение приближения вращающейся волны проявляются в асимметричной зависимости частоты осцилляций Раби ϵ на спиновых “одетых” состояниях от ω_{rf} , а также в асимметрии амплитуд сигналов на частотах $\omega_{rf} - \epsilon$ и $\omega_{rf} + \epsilon$ при точном ($\omega_{rf} = \omega_1$) нутационном резонансе. Эти особенности обусловлены частотным сдвигом типа Блоха–Зигерта энергии “одетых” состояний. Отмеченные эффекты с неизбежностью необходимо учитывать при реализации в твердых телах кубитов с малой частотой Раби (двухъямные квантовые точки, потоковые и зарядовые кубиты в сверхпроводящих системах и др.) в случае их бихроматического возбуждения [6]. Обнаруженное увеличение времени когерентности “одетых” состояний в условиях двойного резонанса будет рассмотрено отдельно.

1. F. Bloch and A. Siegert, *Phys. Rev.* **57**, 522 (1940).
2. У. Хеберлен, М. Меринг, *ЯМР высокого разрешения в твердых телах*, М.: Мир, 1980.
3. M. S. Shahriar, P. Pradhan, and J. Morzinski, *Phys. Rev. A* **69**, 032308(2004).
4. G. C. Cardoso, P. Pradhan, J. Morzinski, and M. S. Shahriar, *Phys. Rev. A* **71**, 063408(2005).
5. Ya. S. Greenberg, E. П'ichev, and A. Izmalkov, *Europhys. Lett.* **72**, 880 (2005).
6. Ya. S. Greenberg, *Phys. Rev. B* **76**, 104520 (2007).
7. M. Kälin, M. Fedin, I. Gromov, and A. Schweiger, in “*Lecture Notes in Physics*”, **684**, 2006, p. 143.
8. M. Kälin, I. Gromov, and A. Schweiger, *Phys. Rev. A* **69**, 033809 (2004).
9. Г. Г. Федорук, *ЖЭТФ* **127**, 1216 (2005).
10. А. П. Сайко, Г. Г. Федорук, С. А. Маркевич, *Письма в ЖЭТФ* **84**, 159 (2006); *cond-mat/0610063*.
11. А. П. Сайко, Г. Г. Федорук, С. А. Маркевич, *ЖЭТФ* **132**, 1026 (2007); *cond-mat/0712.1898*.
12. G. Jeschke, *Chem. Phys. Lett.* **301**, 524 (1999).
13. Г. Г. Федорук, *ФТТ* **46**, 1581 (2004).
14. R. Fedaruk, *Rev. on Adv. Materials Science* **12**, 84 (2006).
15. A. G. Redfield, *Phys. Rev.* **98**, 1787 (1955).
16. R. Fedaruk, and P. Żukowski, *Vacuum* **78**, 473 (2005).
17. H. Hatanaka, M. Sugiyama, and N. Tabuchi, *J. Magn. Res.* **165**, 293 (2003).
18. C. Wei, S. A. Holmstrom, N. B. Manson et al., *J. of Physics B* **30**, 2735 (1997).