

# МНОГОФОТОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ СПИНОВОЙ СИСТЕМЫ В СИЛЬНОМ БИХРОМАТИЧЕСКОМ ПОЛЕ

А. П. Сайко<sup>a,\*</sup>, Г. Г. Федорук<sup>b,c</sup>, С. А. Маркевич<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Объединенный институт физики твердого тела и полупроводников Национальной академии наук Беларуси  
220072, Минск, Беларусь

<sup>b</sup>Institute of Physics, University of Szczecin  
70-451, Szczecin, Poland

<sup>c</sup>Институт прикладных физических проблем им. А. Н. Севченко  
220064, Минск, Беларусь

Поступила в редакцию 21 февраля 2007 г.

Методом нестационарной ЭПР-нутаии измерено эффективное поле многофотонных переходов, возбуждаемых в двухуровневой спиновой системе бихроматическим излучением — поперечным микроволновым (МВ) и продольным радиочастотным (РЧ). Установлены особенности поведения амплитуды эффективного поля в случае достаточно интенсивного МВ-поля, когда при построении эффективного гамильтониана нельзя ограничиться теорией возмущений первого порядка по параметру  $\omega_1/\omega_{rf}$  ( $\omega_1$  — частота Раби для МВ-поля,  $\omega_{rf}$  — частота РЧ-поля). Экспериментальные результаты хорошо описываются при учете вкладов второго и третьего порядков по параметру  $\omega_1/\omega_{rf}$  в рамках метода усреднения Крылова–Боголюбова–Митропольского. Показано, что в случае неоднородного уширения линии ЭПР вклад кубической поправки приводит к изменению частоты нутаии, а квадратичная поправка, вызывающая сдвиг типа Блоха–Зигерта, проявляется в изменении амплитуды нутаии.

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

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время вызывают интерес исследования методами импульсного ЭПР динамики многофотонных переходов в двухуровневых спиновых системах при их бихроматическом возбуждении [1–6]. Бихроматическое излучение, созданное поперечным микроволновым (МВ) и продольным радиочастотным (РЧ) полями, трансформирует двухуровневую спиновую систему в динамическую многоуровневую систему. Значительное различие частот МВ- и РЧ-полей обеспечивает повышенную эффективность возбуждения многофотонных переходов, а изменение параметров бихроматического излучения позволяет управлять свойствами динамической спиновой системы. С одной стороны, можно задавать кратность многофотонных переходов, а также за счет изменения амплитуды РЧ-поля ослаблять взаимодействие МВ-поля со спиновой системой вплоть

до реализации режима полной прозрачности среды [2]. С другой стороны, можно создать условия для замедления релаксационных процессов за счет подавления диполь-дипольных взаимодействий и тем самым увеличить время существования когерентных спиновых состояний [7–9]. Это открывает новые возможности для повышения разрешающей способности регистрации магнитного резонанса и разделения перекрывающихся спектров.

Эффективное поле многофотонных переходов пропорционально амплитуде МВ-поля и сложным образом зависит от соотношения величин амплитуды и частоты РЧ-поля. Выполненные разными методами расчеты [3, 6, 10] и экспериментальные данные ЯМР [10] и ЭПР [3, 6] по эффективному полю хорошо согласуются между собой в случае, когда отношение частоты Раби  $\omega_1$  для МВ-поля к частоте  $\omega_{rf}$  РЧ-поля много меньше единицы и при вычислениях можно ограничиться первым порядком по параметру  $\omega_1/\omega_{rf}$ . По мере увеличения амплитуды

\*E-mail: saiko@iftt.p.bas-net.by

МВ-поля и нарушении условия  $\omega_1/\omega_{rf} \ll 1$  необходимо учитывать следующие порядки теории возмущений. Квадратично по амплитуде МВ-поля растет сдвиг частоты многофотонного резонанса (сдвиг типа Блоха–Зигерта), обусловленный нерезонансными гармониками РЧ-поля, а также становится существенной кубическая поправка к амплитуде эффективного поля многофотонных переходов. Расчеты этих эффектов в рамках разных теоретических подходов приводят к формально различающимся математическим выражениям [3, 6]. Эффекты, возникающие под действием сильного МВ-поля, насколько нам известно, пока не измерены. Поэтому экспериментальное изучение поправок высшего порядка и их адекватное теоретическое описание остаются актуальной задачей, представляющей интерес не только для ЭПР и ЯМР, но и для нелинейной оптики. С целью ее решения в настоящей работе экспериментально и теоретически исследуется эффективное поле многофотонных переходов, возбуждаемых сильным бихроматическим полем ( $\omega_1/\omega_{rf} \leq 0.43$ ).

**2. ТЕОРИЯ**

Гамильтониан электронной спиновой системы (спин  $s = 1/2$ ), находящейся в линейно поляризованном МВ-поле, направленном вдоль оси  $x$  лабораторной системы координат, а также в линейно поляризованном РЧ и статическом магнитном полях, направленных вдоль оси  $z$ , можно записать в виде

$$H(t) = \omega_0 s^z + 2\omega_1 \cos(\omega_{mw}t + \varphi) s^x + 2\omega_2 \cos(\omega_{rf}t + \psi) s^z \equiv H_0 + H_1(t) + H_2(t), \quad (1)$$

где  $\omega_0 = \gamma B_0$  — резонансная частота спиновых переходов в магнитном поле  $B_0$ ,  $\gamma$  — гиромагнитное отношение для электрона,  $\omega_1 = \gamma B_1$  и  $\omega_2 = \gamma B_2$  — частоты Раби,  $B_1, B_2, \omega_{mw}, \omega_{rf}$  и  $\varphi, \psi$  — соответственно амплитуды, частоты и фазы МВ- и РЧ-полей.

При наличии малого параметра  $\omega_1/\omega_{rf}$  (или  $\omega_2/\omega_{rf}$ ) эволюция спиновой системы с зависящим от времени гамильтонианом (1) может быть описана в рамках теории возмущений с использованием процедуры усреднения по быстрым осцилляциям, разработанной Крыловым – Боголюбовым – Митропольским [11].

Реализация метода Крылова – Боголюбова – Митропольского в каноническом формализме [11] (см. также [12]) состоит в исключении быстроосциллирующих слагаемых в гамильтониане  $H_1(t)$  в любом порядке теории возмущений по параметру  $\omega_1/\omega_{rf}$ . Это приводит к эффективному гамильтониану

системы, не зависящему от времени, и существенно упрощает задачу определения эволюции ее динамических переменных. Например, вплоть до третьего порядка по взаимодействию эффективный гамильтониан приобретает вид

$$H_{eff} = H_{eff}^{(1)} + H_{eff}^{(2)} + H_{eff}^{(3)}, \quad (2)$$

$$H_{eff}^{(1)} = \langle \tilde{H}_1(t) \rangle, \quad (3)$$

$$H_{eff}^{(2)} = \frac{i}{2} \left\langle \left[ \int_0^t d\tau (\tilde{H}_1(\tau) - \langle \tilde{H}_1(\tau) \rangle), \tilde{H}_1(t) \right] \right\rangle, \quad (4)$$

$$H_{eff}^{(3)} = -\frac{1}{3} \left\langle \left\{ \int_0^t d\tau (\tilde{H}_1(\tau) - \langle \tilde{H}_1(\tau) \rangle), \left[ \int_0^t d\tau \times (\tilde{H}_1(\tau) - \langle \tilde{H}_1(\tau) \rangle), \left( \tilde{H}_1(t) + \frac{1}{2} \langle \tilde{H}_1(t) \rangle \right) \right] \right\} \right\rangle, \quad (5)$$

где

$$\tilde{H}_1(t) = \exp(iH_0t) \exp \left[ i \int_0^t dt' H_2(t') \right] \times H_1(t) \exp \left[ -i \int_0^t dt' H_2(t') \right] \exp(-iH_0t), \quad (6)$$

$$\langle A(t) \rangle = \frac{1}{T} \int_0^T A(t) dt, \quad T = \frac{2\pi}{\omega_{rf}},$$

а  $[\dots, \dots]$  — коммутатор.

При нахождении  $H_{eff}$  будем предполагать, что выполняется условие резонанса

$$\omega_0 - \omega_{mw} - r\omega_{rf} + \delta = 0, \quad (7)$$

где  $r$  — целое (положительное или отрицательное) число поглощаемых или испускаемых квантов РЧ-поля,  $\delta$  — некоторая отстройка от резонанса, причем  $\delta \ll \omega_{rf}$ , а  $\omega_{mw}, \omega_0 \gg \omega_{rf}$ . Подставляя уравнения (1) и (6) в (3)–(5), получаем

$$H_{eff}(r, \delta t) = H_{eff}^{(1)}(r, \delta t) + H_{eff}^{(2)}(r) + H_{eff}^{(3)}(r, \delta t),$$

где

$$H_{eff}^{(1)}(r, \delta t) = \frac{1}{2} \omega_1^{(1)}(r) e^{-i\delta t} e^{-i(\varphi+r\psi)} s^+ + \text{H.c.}, \quad (8)$$

$$H_{eff}^{(2)}(r) = \Delta_{BS}(r)s^z, \quad (9)$$

$$H_{eff}^{(3)}(r, \delta t) = \frac{1}{2}\omega_1^{(3)}(r)e^{-i\delta t}e^{-i(\varphi+r\psi)}s^+ + \text{H.c.}, \quad (10)$$

$$\omega_1^{(1)}(r) = \omega_1 J_{-r}(z), \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \omega_1^{(3)}(r) = & -\frac{1}{6}\omega_1^3 \left\{ \sum_{n,n' \neq -r} \frac{J_n(z)J_{n'}(z)}{(r+n)\omega_{rf} - \delta} \times \right. \\ & \times \frac{J_{n+n'+r}(z) + J_{n'-n-r}(z)}{(r+n')\omega_{rf} - \delta} - \\ & - \frac{1}{2} \sum_{n \neq -r} \frac{J_n(z)J_{-n-2r}(z)J_{-r}(z)}{(r+n)^2\omega_{rf}^2 - \delta^2} + \\ & \left. + \frac{1}{2} \sum_{n \neq -r} \frac{J_n^2(z)J_{-r}(z)}{((r+n)\omega_{rf} - \delta)^2} \right\}, \quad (12) \end{aligned}$$

$$\Delta_{BS}(r) = \frac{1}{2} \sum_{n \neq r} \frac{\omega_1^2}{(r-n)\omega_{rf} - \delta} J_n^2(z), \quad (13)$$

$s^{\pm} = s^x \pm is^y$ ; у функций Бесселя аргументом является выражение  $z = 2\omega_2/\omega_{rf}$ , а аргумент  $\delta t$  в выражении для  $H_{eff}(r, \delta t)$  отражает медленную зависимость от времени благодаря наличию «медленных» множителей  $\exp(\pm i\delta t)$ . От них можно избавиться, если перейти в систему координат, вращающуюся с частотой  $\delta$ , см. выражение (7):

$$\begin{aligned} H_{eff}(r, \delta t) \rightarrow H_{eff}(r) = \\ = [\omega_0 + \Delta_{BS}(r) - \omega_{mw} - r\omega_{rf}]s^z + \\ + H_{eff}^{(1)}(r) + H_{eff}^{(3)}(r), \quad (14) \end{aligned}$$

где

$$H_{eff}^{(1),(3)}(r) \equiv H_{eff}^{(1),(3)}(r, \delta t = 0).$$

Согласно уравнениям (8), (10) и (14), амплитуда эффективного поля вплоть до третьего порядка по параметру  $\omega_1/\omega_{rf}$  равна

$$\omega_{eff}(r) = \omega_1^{(1)}(r) + \omega_1^{(3)}(r), \quad (15)$$

где  $\omega_1^{(1)}(r)$  и  $\omega_1^{(3)}(r)$  определены формулами (11) и (12).

Отметим, что в выражениях для  $\omega_1^{(3)}$  и  $\Delta_{BS}$ , приведенных в работе [6] (соответственно формулы (18) и (19)), был утерян множитель  $1/4$ .

Гамильтониан  $H_{eff}^{(1)}(r)$  описывает процессы поглощения (испускания) одного кванта МВ-поля и  $r$

квантов РЧ-поля, причем из-за присутствия в эффективной амплитуде бихроматического поля функции Бесселя аргумента  $2\omega_2/\omega_{rf}$  указанные процессы сопровождаются множественными фотонными переходами. Например, одновременно с поглощением одного кванта МВ-поля и  $r$  квантов РЧ-поля может виртуально поглощаться (испускаться)  $m$  квантов и испускаться (поглощаться)  $m$  квантов РЧ-поля ( $m$  — произвольное целое число). Член  $H_{eff}^{(3)}(r)$  является поправкой третьего порядка по  $\omega_1/\omega_{rf}$  к эффективной амплитуде поля, заметной для не слишком малых значений  $\omega_1/\omega_{rf}$ . Величина  $\Delta_{BS}(r)$  в выражении (9) для  $H_{eff}^{(2)}(r)$  представляет собой смещение резонансной частоты многофотонного перехода — сдвиг типа Блоха–Зигерта, обусловленный взаимодействием спиновой системы с нерезонансными гармониками РЧ-поля. Из соотношения (13) видно, что для  $r = 0, \delta = 0$  сдвиг равен нулю.

Для описания абсорбционной компоненты многофотонной нутации, возбуждаемой бихроматическим полем, необходимо модифицировать выражение для однофотонной нутации, возбуждаемой МВ-полем в случае отдельного спинового пакета [13, 14]. При этом частота Раби  $\omega_1$  для МВ-поля заменяется эффективной амплитудой  $\omega_{eff}(r)$  бихроматического поля, даваемой формулой (15). Кроме того, в отстройке от резонанса следует учесть сдвиг Блоха–Зигерта и стохастическую составляющую отстройки. В результате при  $\omega_1 \gg 1/T_2 \gg 1/T_1$  получаем следующее выражение для амплитуды сигнала многофотонной нутации:

$$\begin{aligned} v(t) \propto \frac{\omega_{eff}(r)}{\Omega(\Delta, r)} \exp \left\{ -\frac{1}{T_2} \left( 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_{eff}^2(r)}{\Omega^2(\Delta, r)} \right) t \right\} \times \\ \times \sin(\Omega(\Delta, r)t), \quad (16) \end{aligned}$$

где

$$\begin{aligned} \Omega(\Delta, r) = \sqrt{\omega_{eff}^2(r) + \delta^2(\Delta, r)}, \\ \delta(\Delta, r) = -\delta + \Delta_{BS}(r) + \Delta, \quad (17) \end{aligned}$$

$\delta(\Delta, r)$  — отстройка от резонанса, состоящая из отстройки  $\delta$  от центра линии и стохастической компоненты  $\Delta$ , а также сдвига Блоха–Зигерта  $\Delta_{BS}(r)$ ,  $T_2$  — время спин-спиновой релаксации,  $T_1$  — время спин-решеточной релаксации,  $\Omega$  — частота нутации. В случае медленных флуктуаций величина  $\Delta$  описывает неоднородное уширение спинового перехода.

Сигнал нутаций (16) должен быть усреднен по  $\Delta$  с весовой функцией гауссовского вида  $g(\Delta) = (T_2^*/\sqrt{\pi}) \exp(-\Delta^2 T_2^{*2})$ :

$$\langle v(t) \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} g(\Delta) v(t) d\Delta, \quad (18)$$

где  $T_2^*$  — время обратимой фазовой релаксации. При этом зависимостью от  $\Delta$  (через  $\delta$ ) в выражениях (11)–(13) можно пренебречь.

Аналитическое выражение интеграла (18) можно получить лишь в случае, когда для ширины неоднородно уширенной линии справедливо неравенство  $1/\pi T_2^* \gg \omega_1$ :

$$\langle v(t) \rangle \propto \omega_{eff} f(\omega_{mw}) J_0(\omega_{eff} t) \exp\left(-\frac{t}{2T_2}\right), \quad (19)$$

где  $f(\omega_{mw})$  — значение нормированной функции формы линии вблизи ее центра. Для ширины  $1/\pi T_2^* \sim \omega_1$  необходимо проводить численное интегрирование.

### 3. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Нестационарная нутация сигналов ЭПР регистрировалась на созданном нами импульсном ЭПР-спектрометре 3-сантиметрового диапазона [4]. При этом использовались непрерывные МВ- и РЧ-поля, а скачкообразное установление их резонансного взаимодействия со спиновой системой осуществлялось импульсом продольного магнитного поля (методика зеемановских импульсов [4, 6]). Для улучшения отношения сигнал/шум использовалось многоканальное цифровое суммирование сигналов. Привязка фазы РЧ-поля к началу импульса магнитного поля отсутствовала.

Частота Раби  $\omega_1$  для МВ-поля измерялась по частоте нутаций абсорбционного сигнала ЭПР, регистрируемых при  $\omega_{mw} = \omega_0$  в отсутствие РЧ-поля. Частота Раби  $\omega_2$  для РЧ-поля калибровалась по частоте нутации на «одетых» спиновых состояниях, наблюдавшейся при  $\omega_{mw} = \omega_0$  и частоте РЧ-поля  $\omega_{rf} = \omega_1$  [9]. Прямое измерение  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , выполненное в условиях проведенных ниже экспериментов, обеспечило абсолютное измерение (с точностью не хуже 2%) параметров, требующихся для количественного сопоставления с теорией и выявления эффектов сильного МВ-поля.

Эксперименты выполнены при комнатной температуре на  $E'_1$ -центрах ( $s = 1/2$ ) в кристаллическом кварце, облученном нейтронами. Статическое магнитное поле было параллельным оптической оси кристалла. Спектр ЭПР  $E'_1$ -центров при данной ориентации состоит из одиночной линии шириной  $\Delta B_{pp} = 0.016$  мТл. Длительность импульсов

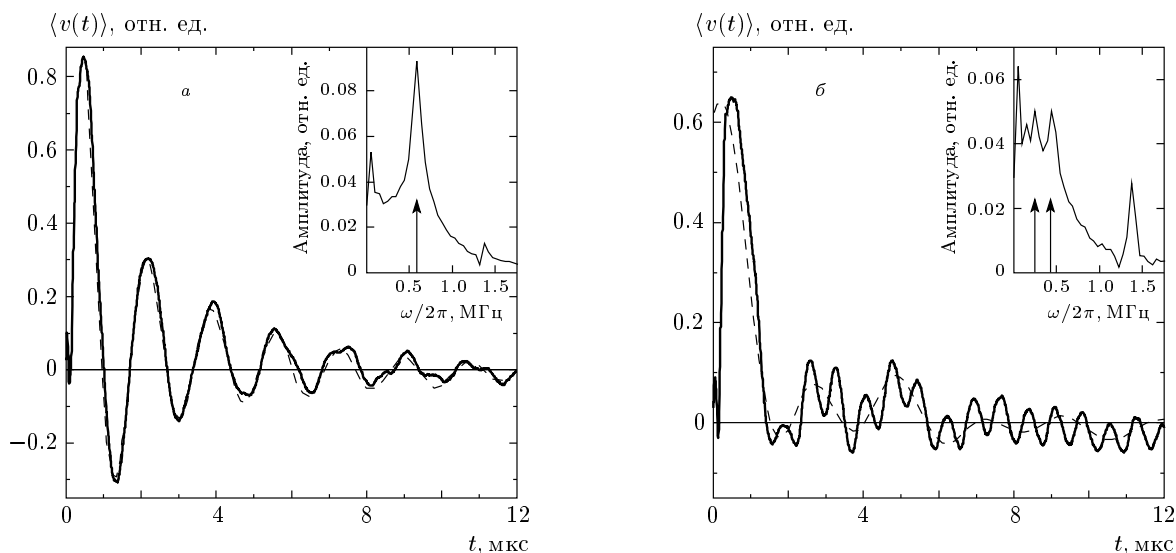
магнитного поля составляла 12 мкс, их амплитуда  $\Delta B = 0.12$  мТл, а период повторения импульсов был равен 1.25 мс.

### 4. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

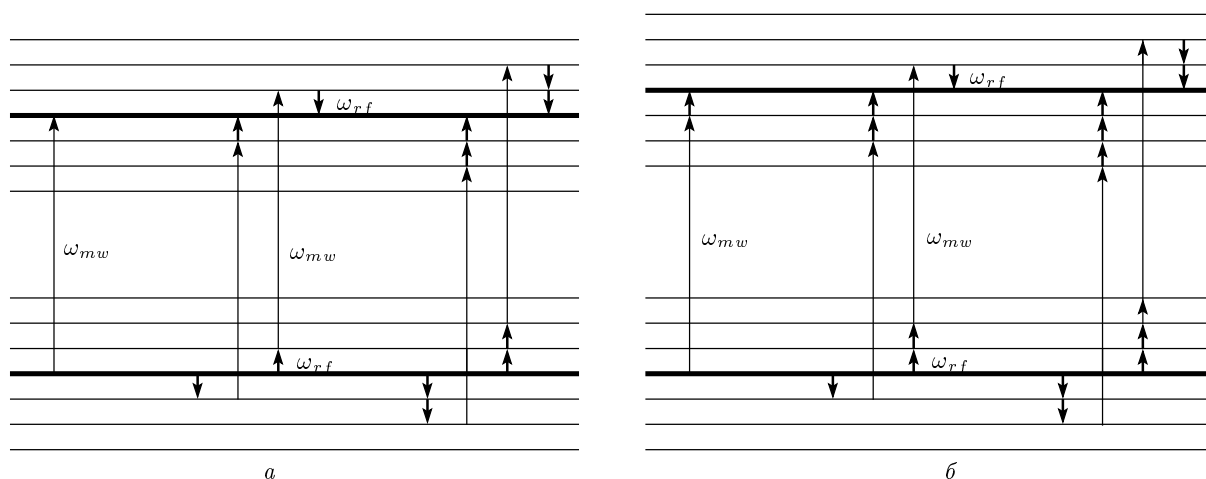
На рис. 1 представлены типичные сигналы многофотонных нутаций ЭПР  $E'_1$ -центров. Как показывает фурье-преобразование наблюдаемых сигналов (см. вставки на рис. 1), при малой амплитуде РЧ-поля ( $z = 0.30$ ) в нутации преобладает одна частота  $\omega_{eff}(0)/2\pi = 0.585$  МГц, соответствующая многофотонным переходам с  $r = 0$ . При увеличении амплитуды РЧ-поля ( $z = 0.97$ ) в сигнале проявляется две частоты нутаций,  $\omega_{eff}(0)/2\pi = 0.45$  МГц и  $\omega_{eff}(1)/2\pi = 0.25$  МГц, соответствующие многофотонным переходам с  $r = 0$  и  $|r| = 1$ . Несколько частот в нутационном сигнале регистрируется из-за того, что частота РЧ-поля сопоставима с шириной неоднородно уширенной линии ЭПР, в результате чего одновременно с многофотонными переходами с  $r = 0$  возбуждаются также переходы с  $|r| \geq 1$ . Наибольший вклад в наблюдаемые сигналы дают переходы с  $r = 0$  и  $r = \pm 1$ . В качестве примера на рис. 2 представлены переходы с  $r = 0$  и  $r = 1$ . Частоты нутаций многофотонных переходов с различающимися значениями  $r$  неодинаковым образом зависят от нормированной амплитуды  $z$  РЧ-поля, что позволяет легко их идентифицировать. В наших экспериментальных условиях сигналы переходов с  $|r| > 1$  имели малую интенсивность и малую частоту нутаций, поэтому здесь не анализируются. Частоты нутаций отмечены на вставках к рис. 1 стрелками. Проявляющийся на осциллограммах сигнал на частоте РЧ-поля имеет значительно большую частоту, чем частоты нутаций и не влияет на их определение. Аппроксимация наблюдаемых сигналов с помощью соотношения (18) представлена на рис. 1 штриховыми линиями при указанных значениях  $\omega_{eff}$ ,  $T_2 = 4$  мкс и  $T_2^* = 1$  мкс.

Точность определения частот многофотонных нутаций составляла около 2% для частот 0.4–0.6 МГц и уменьшалась при их уменьшении. В силу используемой длительности импульсов применение преобразования Фурье ограничено со стороны низких частот нутаций (менее 0.15 МГц). В этом случае частоты нутаций определялись аппроксимацией наблюдаемых сигналов с помощью соотношения (18).

На рис. 3 приведены частоты нестационарных нутаций, возбуждаемых бихроматическим излучением, в зависимости от нормированной амплитуды



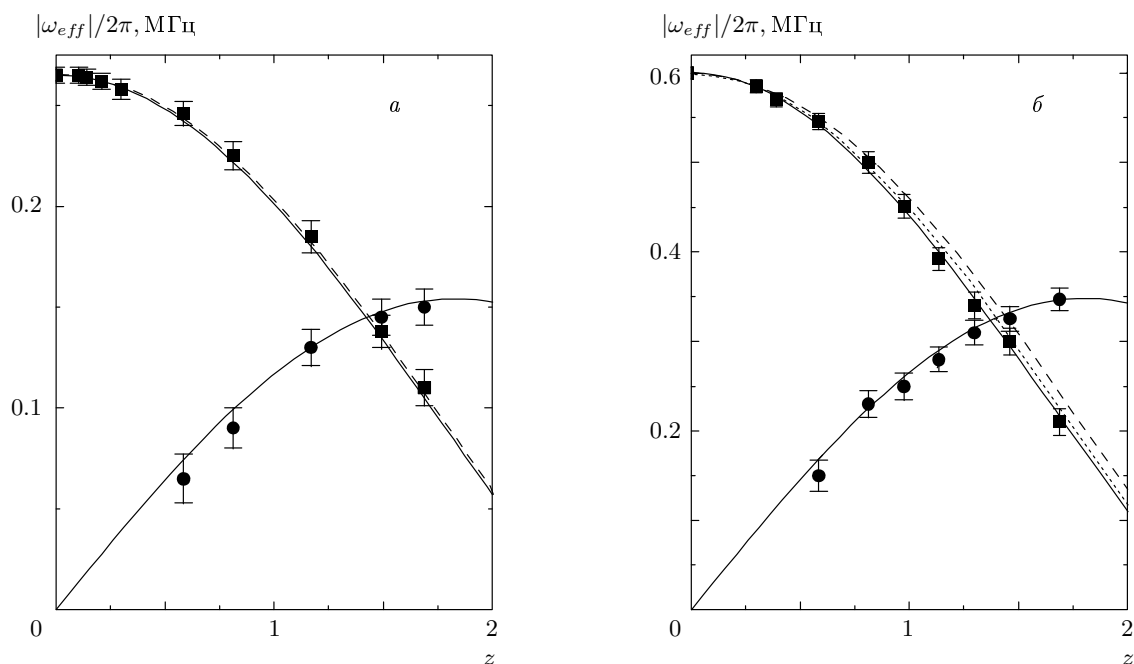
**Рис. 1.** Типичные сигналы многофотонных нутаций ЭПР  $E_1^1$ -центров, зарегистрированные при  $\omega_{mw} = \omega_0$ ,  $\omega_1/2\pi = 0.60$  МГц и  $\omega_{rf}/2\pi = 1.38$  МГц для двух значений нормированной амплитуды РЧ-поля  $z = 0.30$  (а) и  $z = 0.97$  (б) (штриховые линии — аппроксимация). Стрелками отмечены частоты нутаций, соответствующие многофотонным переходам с  $r = 0$  (а) и с  $r = 0$  и  $|r| = 1$  (б)



**Рис. 2.** Схема многофотонных переходов, возбуждаемых бихроматическим излучением, в случаях  $r = 0$  (а) и  $r = 1$  (б). Жирные линии соответствуют уровням исходной, немодифицированной излучением, спиновой системы

ды  $z$  РЧ-поля. Сигналы нутации регистрировались при резонансном возбуждении спиновой системы, когда частота МВ-поля совпадает с центром линии ЭПР. В процессе измерений частота РЧ-поля оставалась неизменной,  $\omega_{rf}/2\pi = 1.38$  МГц. Изменение параметра  $z$  осуществлялось изменением амплитуды РЧ-поля. Представлены данные, полученные для двух амплитуд (частот Раби) МВ-поля. Увеличение при этом величины  $\omega_1/\omega_{rf}$  от 0.19 до 0.43 дает возможность однозначно выявить вклад кубической по-

правки в амплитуду эффективного поля многофотонных переходов с  $r = 0$ . Именно для переходов такого типа ожидается наибольшее влияние кубической поправки  $\omega_1^{(3)}(r)$ . В силу неоднородного уширения линии ЭПР амплитуда эффективного поля  $\omega_{eff}(r)$  соответствует частоте нутаций (см. формулу (18)). Эффективные поля многофотонных переходов, рассчитанные без учета поправок высшего порядка, представлены на рис. 3 штриховыми линиями, а с их учетом с помощью формулы (15) — сплош-



**Рис. 3.** Зависимости частот нестационарных нутаций, возбуждаемых бихроматическим излучением, от нормированной амплитуды РЧ-поля  $z = 2\omega_2/\omega_{rf}$ . Частота МВ-поля совпадает с центральной частотой линии ЭПР;  $\omega_{rf}/2\pi = 1.38$  МГц,  $\omega_1/2\pi = 0.26$  МГц (а) и  $\omega_1/2\pi = 0.60$  МГц (б); экспериментальные данные для  $r = 0$  (квадраты) и  $r = \pm 1$  (кружки). Эффективные поля многофотонных переходов, рассчитанные без учета поправок высшего порядка (штриховые линии) и с их учетом с помощью формулы (15) нашей работы (сплошные линии), а также формулы (7) работы [3] (пунктирная линия)

ными линиями. На рис. 3б пунктирная линия соответствует расчету на основе формулы (7) работы [3].

Представленные на рис. 3 результаты показывают, что при  $\omega_1/\omega_{rf} = 0.19$  вклад кубической поправки в амплитуду эффективного поля многофотонных переходов с  $r = 0$  незначителен. При двукратном увеличении отношения  $\omega_1/\omega_{rf}$  этот вклад становится заметным.

Сопоставление поправок третьего порядка к эффективному полю многофотонных переходов с  $r = 0$ , рассчитанных с помощью формулы (12) нашей работы и формулы (7) работы [3], приведено на рис. 4а. Как видно, расчет двумя разными методами приводит к качественно похожему поведению поправки  $\omega_1^{(3)}$  в зависимости от  $z$ ; количественные же различия достигают 27%.

Для  $|r| \geq 1$  в силу неоднородного уширения линии ЭПР изменения эффективной амплитуды многофотонных переходов могли бы проявиться в частоте нутаций непосредственно через вклад третьего порядка, но этот вклад оказывается слишком малым. Как видно из рис. 3б, рассчитанные для  $|r| = 1$  зависимости эффективной амплитуды от  $z$  с учетом и

без учета кубической поправки практически совпадают. Таким образом, эффект кубической поправки значительно сильнее проявляется для переходов с  $r = 0$  и непосредственно фиксируется экспериментально.

Следует отметить, что разные теоретические подходы дают для кубической поправки в случае многофотонных переходов с  $|r| \geq 1$  различающиеся значения, в особенности в области  $z < 2$  (рис. 4б). Однако из-за малости данной поправки это различие трудно зарегистрировать.

В отличие от многофотонных переходов с  $r = 0$ , где сдвиг Блоха–Зигерта не проявляется, в случае многофотонных переходов с  $|r| \geq 1$  такой сдвиг, вызывая отстройку от резонанса, должен приводить к изменению частоты многофотонной нутации. В соответствии с формулой (13) наибольшее значение сдвига Блоха–Зигерта реализуются для  $|r| = 1$ . Отметим, что выражение (6) работы [3] для сдвига Блоха–Зигерта, очевидно, в четыре раза превышает правильный результат.

На рис. 5 приведена зависимость сдвига Блоха–Зигерта от  $z$  при  $r = -1$  для параметров РЧ-

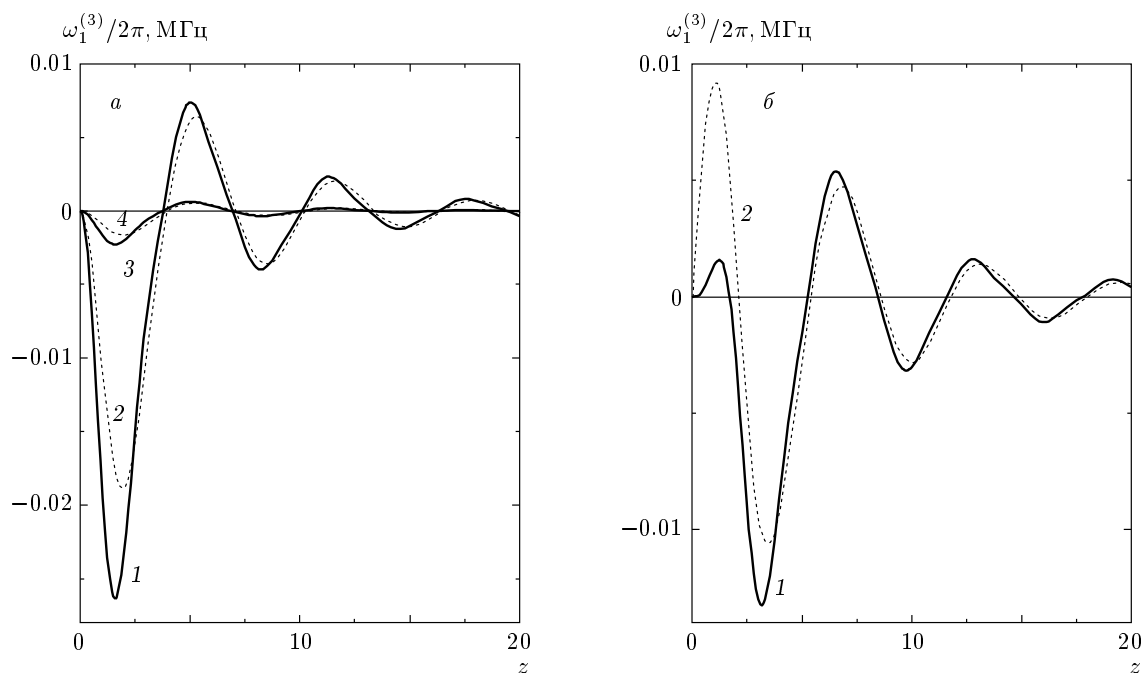


Рис. 4. Поправки третьего порядка к эффективному полю многофотонных переходов с  $r = 0$  (а) и  $r = -1$  (б), рассчитанные с помощью формулы (12) нашей работы (сплошные линии) и формулы (7) работы [3] (пунктирные линии);  $\omega_{rf}/2\pi = 1.38$  МГц,  $\omega_1/2\pi = 0.60$  МГц (1, 2) и  $\omega_1/2\pi = 0.26$  МГц (3, 4)

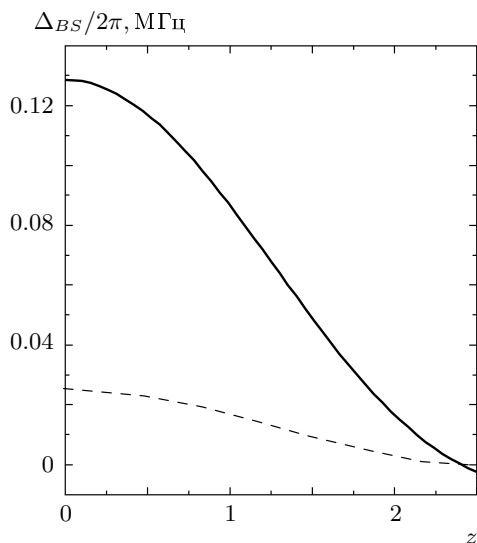


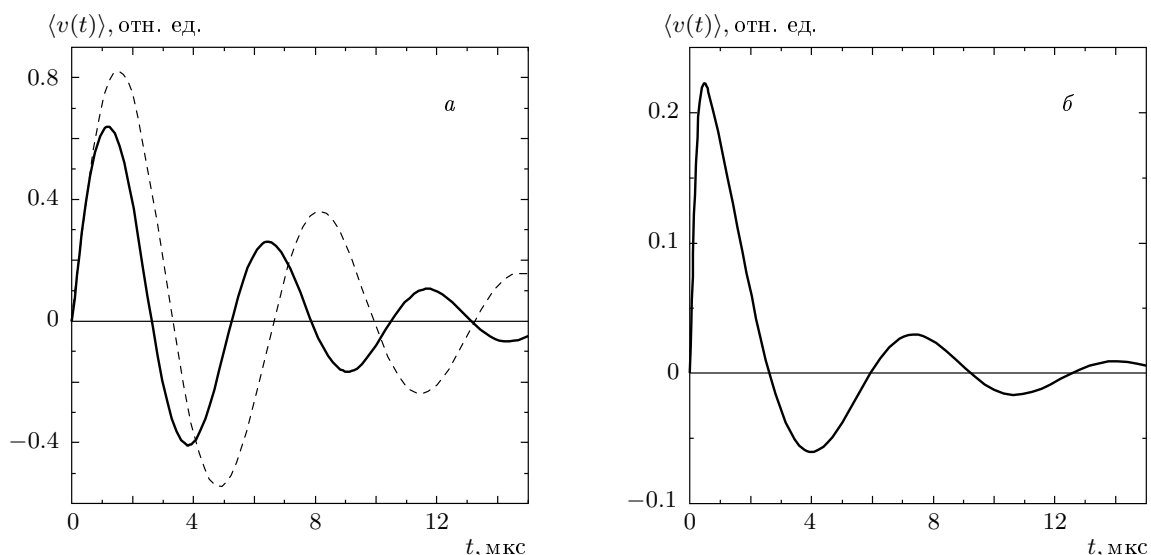
Рис. 5. Рассчитанный сдвиг типа Блоха–Зигерта для  $r = -1$  при  $\omega_{rf}/2\pi = 1.38$  МГц,  $\omega_1/2\pi = 0.26$  МГц (штриховая линия) и  $\omega_1/2\pi = 0.60$  МГц (сплошная линия)

и МВ-полей, реализуемых в нашем эксперименте. В случае однородно уширенной линии получающиеся

величины сдвига Блоха–Зигерта приводят к существенному изменению амплитуды эффективного поля (рис. 6а), поэтому легко могут быть зарегистрированы. Однако в нашем эксперименте из-за неоднородного уширения линии ЭПР  $E'_1$ -центров в кварце сдвиг Блоха–Зигерта не изменял частоту наблюдаемой нутации. Этот сдвиг приводит лишь к изменениям амплитуды нутаций, но, как видно из рис. 6б, эти изменения в условиях нашего эксперимента слишком малы (менее 1%) и не выявляются. Если бы выражение (6) для сдвига Блоха–Зигерта работы [3] было верно, то этот сдвиг, превосходя в четыре раза нашу оценку (формула (13)), можно было бы зафиксировать экспериментально. В действительности же этого не происходит, что, по-видимому, дополнительно говорит в пользу справедливости формулы (13) нашей работы.

### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, методом нестационарной нутации экспериментально определена эффективная амплитуда многофотонных переходов при бихроматическом возбуждении двухуровневой спиновой системы. Экспериментальные данные хорошо описыва-



**Рис. 6.** Сигналы нутаций (расчет) для однородного (а) и неоднородного (б) уширений линии ЭПР для  $r = -1$  при  $\omega_1/2\pi = 0.60$  МГц,  $\omega_{rf}/2\pi = 1.38$  МГц,  $z = 0.52$ . Штриховой линией изображен сигнал в отсутствие сдвига Блоха–Зигерта. В случае неоднородного уширения линии ЭПР (б) этот сигнал практически совпадает с основным

ются эффективным гамильтонианом, построенным с помощью метода усреднения Крылова–Боголюбова–Митропольского. Выявлено, что при возрастании амплитуды МВ-поля  $\omega_1$  становится существенным вклад в эффективную амплитуду эффектов, пропорциональных квадрату и кубу параметра  $\omega_1/\omega_{rf}$ . Квадратичный по параметру  $\omega_1/\omega_{rf}$  вклад приводит к частотному сдвигу типа Блоха–Зигерта резонансной линии и легко мог бы быть зарегистрирован по изменению частоты нутации в случае однородно уширенной спектральной линии. Однако если, как в нашем эксперименте, линия уширена неоднородно, этот сдвиг проявляется лишь в изменении амплитуды сигнала нутации и ввиду малости вызываемого эффекта оказывается нефиксируемым. Поэтому в случае неоднородного уширения линии изменение частоты нутации обусловлено исключительно вкладом кубического эффекта сильного поля, что дает простой способ идентификации и выделения этого эффекта. Выражение для кубического вклада в эффективную амплитуду многофотонных переходов, определенного по методу Крылова–Боголюбова–Митропольского, наилучшим образом описывает экспериментальные зависимости.

## ЛИТЕРАТУРА

1. M. Kälin, M. Fedin, I. Gromov, and A. Schweiger, in *Lecture Notes in Physics*, Vol. 684, ed. by J. Dolinsek, M. Vilfan, and S. Zumer, (2006), p. 143.
2. I. Gromov and A. Schweiger, *J. Magn. Res.* **146**, 110 (2000).
3. M. Kälin, I. Gromov, and A. Schweiger, *Phys. Rev. A* **69**, 033809 (2004).
4. Г. Г. Федорук, *ЖЭТФ* **127**, 1216 (2005).
5. R. Fedaruk, *Rev. Adv. Mater. Sci.* **12**, 84 (2006).
6. А. П. Сайко, Г. Г. Федорук, С. А. Маркевич, *Письма в ЖЭТФ* **84**, 159 (2006).
7. G. Jeschke, *Chem. Phys. Lett.* **301**, 524 (1999).
8. H. Hatanaka, M. Sugiyama, and N. Tabuchi, *J. Magn. Res.* **165**, 293 (2003).
9. Г. Г. Федорук, *ФТТ* **46**, 1581 (2004).
10. M. Kunitomo, H. Hatanaka, and T. Hashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **42**, 453 (1977).
11. Н. Н. Боголюбов, Ю. А. Митропольский, *Асимптотические методы в теории нелинейных колебаний*, Наука, Москва (1974).
12. А. П. Сайко, *ФТТ* **35**, 38 (1993).
13. H. C. Torrey, *Phys. Rev.* **76**, 1059 (1949).
14. D. Stehlik, C. H. Bock, and M. C. Thurnauer, in *Advanced EPR*, ed. by A. J. Hoff, Elsevier, Amsterdam (1989), p. 371.