

Phasenmodulierte Anregung eines optisch gepumpten Spinsystems

Von U. CAPPELLER und H. MÜLLER

Fachbereich Physik der Philipps-Universität Marburg

Herrn Prof. Dr. W. Walcher zum 75. Geburtstag gewidmet

Inhaltsübersicht. Unter der Einwirkung von larmorfrequenten phasenmodulierten magnetischen Wechselfeldern treten in einem Spinsystem resonante „Kollektiv-Rabi-Bewegungen“ auf; diese Bewegungsformen sind besonders ausgeprägt, wenn der Phasenhub, die Wechselfeldstärke und die Phasenmodulationsfrequenz eine weitere charakteristische Bedingung (hier als „Rabi-Resonanzbedingung“ bezeichnet) erfüllen.

Phasemodulated Excitation of a Spinsystem

Abstract. Resonancelike Rabi-oscillations are observed in a spinsystem acted upon by phase-modulated larmorfrequency magnetic fields. This dynamical behaviour is especially marked, if the magnitude of the phase modulation, the field strength and the modulation frequency fulfil a second characteristic resonance condition.

1. Einleitung

Systematische Untersuchungen zur Kernresonanz-Bewegung in einem optisch gepumpten Spinsystem unter der Einwirkung von magnetischen Gleich- und Wechselfeldern legen es nahe, u. a. auch die Bewegung unter der Einwirkung von phasenmodulierten Wechselfeldern zu betrachten [1...4]. In einem solchen Falle sollte es möglich sein, die beim Einschalten eines Wechselfeldes in dem Spinsystem auftretenden, nach Art von Rabi-Schwingungen verlaufenden Einschaltsschwingungen dauernd aufrecht zu erhalten und so — wie bei NMR-Impulsverfahren — Gesamtspinbewegungen mit großen, weit über dem Rauschen liegenden Amplituden zu erzeugen.

Die analytische Durchführung dieser Aufgabenstellung im nachfolgenden Abschn. 2 zeigt, daß diese Erwartungen zu Recht bestehen und daß es bei Einhalten von im einzelnen noch anzugebenden Bedingungen („Rabi-Resonanzbedingung“) möglich ist, in einem Spinsystem neuartige für verschiedene Anwendungen interessante Bewegungsformen des Gesamtspins zu erzeugen. Diese neuen — hier unter dem Begriff „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ eingeführten — Bewegungsformen sind überdies noch dadurch ausgezeichnet, daß sie durch einen ganzen Satz von charakteristischen Verhaltensgrößen des Systems (zeitliche Modulation der longitudinalen Komponente des Gesamtspins mit der doppelten Phasenmodulationsfrequenz 2Ω ; zeitliche Modulation der ω_L -Larmor-Bewegung mit der einfachen Modulationsfrequenz Ω) gekennzeichnet sind und demzufolge bei einer entsprechenden Beobachtungstechnik (Korrelationsverfahren usw.) mit erhöhter Sicherheit gegenüber dem Rauschen des Systems nachgewiesen werden können.

Die in Abschn. 3 beschriebenen Messungen an einem optisch gepumpten System von ^{199}Hg -Kernen bestätigen die Erwartungen und zeigen, daß es sich bei dem hier herausgestellten Verfahren neben anderem noch um eine interessante Methode zur Präparation von Spinsystemen mit einem in mehrfacher Weise spezifischen Zeitverhalten handelt.

2. Analytische Behandlung der Bewegung eines Spinsystems unter der Einwirkung eines phasenmodulierten Wechselfeldes

2.1. Allgemeine Form der Bewegungsgleichungen

Zur analytischen Behandlung der Bewegungen in einem durch optisches Pumpen orientierten Spinsystem unter der Einwirkung von magnetischen Gleich- und Wechselfeldern geht man zweckmäßig von der dynamischen Grundgleichung für den statistischen Operator $\varrho(t)$ des Gesamtspins

$$\frac{d}{dt}\varrho = (i\hbar)^{-1}[\mathcal{H}, \varrho] + \left(\frac{d}{dt}\varrho\right)_{\text{incoh.}} \quad (1.1)$$

aus [5–7], wobei

$$\mathcal{H} = -\mu_0\gamma_K \mathbf{I} \cdot \mathbf{H}$$

den Hamilton-Operator beschreibt und in dem Ausdruck

$$\left(\frac{d}{dt}\varrho\right)_{\text{incoh.}}$$

die Einwirkung der inkohärenten Einflüsse (optisches Pumpen und Relaxation gegen das thermische Gleichgewicht) zusammengefaßt ist. Dabei bezeichnen: \mathbf{I} den Drehimpulsoperator, γ_K den gyromagnetischen Faktor, μ_0 die Induktionskonstante und $\mathbf{H} = (H_z, H_x \pm iH_y) = (H_0, H_0 f_{\pm}(t))$ mit $f_{\pm}(t) = \frac{1}{\sqrt{2}} e^{\mp i(\omega t + \varphi(t))}$ das resultierende

Magnetfeld für den Fall einer Zirkularpolarisation. Diese Grundgleichung nimmt in einer Irreduzibel-Tensor-Darstellung [8, 9] in dem hier betrachteten Fall ($I = 1/2$) die Form eines Systems von zwei miteinander verkoppelten Differentialgleichungen für die Irreduzibel-Tensor-Komponenten $\varrho_{1,0}(t)$ und $\varrho_{1,1}(t)$ des statistischen Operators $\varrho(t)$ zum Spin $I = 1/2$ an:

$$\begin{aligned} \dot{\varrho}_{1,0} &= P - \frac{1}{\tau_0}\varrho_{1,0} - \frac{i\omega_1}{2}[\varrho_{1,1}e^{-i(\omega t + \varphi(t))} - \varrho_{1,-1}e^{i(\omega t + \varphi(t))}], \\ \dot{\varrho}_{1,1} &= -\left(\frac{1}{\tau_1} + i\omega_0\right)\varrho_{1,1} - \frac{i\omega_1}{2}\varrho_{1,0}e^{i(\omega t + \varphi(t))}; \quad \varrho_{1,\kappa}^* = (-1)^{\kappa}\varrho_{1,-\kappa}, \end{aligned} \quad (1.2)$$

wobei P die durch das Pumplicht bewirkte Polarisation, $\tau_0 \approx \tau_1 = \tau$ die Relaxationszeitkonstanten¹⁾, $\omega_L = \gamma_K\mu_0 H_0$ die Larmorfrequenz und $\omega_1 = \gamma_K\mu_0 H_1^0$ die der Anregungsamplitude zugeordnete Frequenz bedeuten und

$$\varphi(t) = \eta \cos \Omega t$$

$$(\eta := \text{Phasenhub}, \Omega := \text{Phasenmodulationsfrequenz})$$

die Phasenmodulation des zirkularen Wechselfeldes beschreibt. Aus den Lösungen $\varrho_{1,0}(t)$ und $\varrho_{1,1}(t)$ dieses Differentialgleichungssystems kann der Erwartungswert $\langle Q \rangle$

¹⁾ Die annähernde Gleichheit der Relaxationszeitkonstanten τ_0 (longitudinal) und τ_1 (transversal) gilt bei gasförmigen oder stark verdünnten Spinsystemen [10].

für jede an dem System vorgenommene Meßoperation \hat{Q} in der Form von:

$$\langle Q \rangle = \sum_{\kappa=-1}^1 q_{1,\kappa}^*(t) q_{1,\kappa} \quad (1.3)$$

unmittelbar angegeben werden [6, 11], wobei die $q_{1,\kappa}$ die Irreduzibel-Tensor-Komponenten des Meßoperators beschreiben.

2.2. Analytische Lösung der Bewegungsgleichungen

2.2.1. Verfahren zur Lösung des Differentialgleichungssystems

Mit dem Lösungsansatz:

$$q_{1,0} = a(t) \quad (2.1)$$

$$q_{1,1} = g(t) e^{i(\omega t + \varphi(t))} \text{ (Transformation auf ein phasenmoduliert mitrotierendes System)} \quad (2.2)$$

gehen die Ausgangsgleichungen (1.2) für den Fall der Kernresonanz mit $\omega_L + \omega = 0$ (Larmoresonanzbedingung) über in:

$$\dot{a} + \frac{a}{\tau_0} = P - \frac{i\omega_1}{2} (g - g^*), \quad (2.3)$$

$$i\dot{\varphi}g + \dot{g} + \frac{g}{\tau_1} = -\frac{i\omega_1}{2} a. \quad (2.4)$$

Durch Einsetzen von a und \dot{a} aus Gl. (2.4) in Gl. (2.3) erhält man eine Dgl. zweiter Ordnung für die komplexe Größe $g(t)$:

$$-\frac{i\omega_1}{2} P - \frac{\omega_1^2}{4} (g - g^*) = \ddot{g} + \dot{g} \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_0} + i\dot{\varphi} \right) + g \left(i \left(\ddot{\varphi} + \frac{\dot{\varphi}}{\tau_0} \right) + \frac{1}{\tau_1 \tau_0} \right). \quad (2.5)$$

Mit dem Ansatz:

$$g(t) = G_1(t) + iG_2(t); \quad G_1(t), G_2(t) \text{ reelle Funktionen} \quad (3.0)$$

läßt sich Gl. (2.5) umschreiben in ein System von zwei gekoppelten Dgl. zweiter Ordnung für die reellen Größen $G_1(t)$ und $G_2(t)$:

$$0 = \ddot{G}_1 + \dot{G}_1 \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_0} \right) - G_1 \frac{1}{\tau_1 \tau_0} - \dot{G}_2 \dot{\varphi} - G_2 \left(\ddot{\varphi} + \frac{\dot{\varphi}}{\tau_0} \right), \quad (3.1)$$

$$-\frac{\omega_1}{2} P - \frac{\omega_1^2}{2} G_2 = \ddot{G}_2 + \dot{G}_2 \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_0} \right) + G_2 \frac{1}{\tau_1 \tau_0} + \dot{G}_1 \dot{\varphi} + G_1 \left(\ddot{\varphi} + \frac{\dot{\varphi}}{\tau_0} \right). \quad (3.2)$$

Der Fourierreihenansatz für stationäre, mit $2\pi/\Omega$ periodische Lösungen:

$$G_1(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A_n e^{in\Omega t}, \quad A_n = A_n^*, \quad (4.1)$$

$$G_2(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} B_n e^{in\Omega t}, \quad B_n = B_n^* \quad (4.2)$$

führt mit den Definitionen:

$$K_n := -n^2 \Omega^2 + in\Omega \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_0} \right) + \frac{1}{\tau_1 \tau_0} \quad \text{und} \quad L_n := \left(\frac{n\eta\Omega^2}{2} + \frac{\eta\Omega}{2i\tau_0} \right)$$

zu folgenden Rekursionsgleichungen für die Koeffizienten A_n und B_n :

$$A_n K_n = -L_n B_{n-1} + L_n B_{n+1}, \quad (4.3)$$

$$B_n \left(K_n + \frac{\omega_1^2}{2} \right) = L_n A_{n-1} - L_n A_{n+1} - \delta_{n,0} \frac{\omega_1}{2} P. \quad (4.4)$$

Einsetzen von Gl. (4.3) in Gl. (4.4) führt zur Rekursionsgleichung:

$$B_n \left(K_n + \frac{\omega_1^2}{2} \right) = L_n \frac{L_{n-1}}{K_{n-1}} (B_n - B_{n-2}) - L_n \frac{L_{n+1}}{K_{n+1}} (B_{n+2} - B_n) - \delta_{n,0} \frac{\omega_1}{2} P \quad (4.5)$$

die zunächst die rekursive Berechnung der B_n ($n = \text{gerade}$; $B_n = 0$ für $n = \text{ungerade}$) ermöglicht, aus denen sich anschließend mittels Gl. (4.3) die A_n ($n = \text{ungerade}$) bestimmen lassen.

Mit den bekannten Koeffizienten A_n und B_n lassen sich sofort die Lösungen $G_1(t)$ und $G_2(t)$ des Dgl.-Systems (3.1), (3.2) angeben. Über die Beziehung $G_1(t) + iG_2(t) = g(t)$ sind dann auch die Lösungen $\varrho_{1,0}(t) = u_{1,0}(t)$ und $\varrho_{1,1}(t) = u_{1,1}(t) + iv_{1,1}(t)$ der Ausgangsgleichungen (1.2) bestimmt. Aus der Beziehung (2.4) erhält man nämlich:

$$u_{1,0}(t) = a(t) = -\frac{2}{\omega_1} \left(\dot{\varphi} G_1(t) + \frac{1}{\tau_1} G_2(t) + \dot{G}_2(t) \right) \quad (5.1)$$

und aus den Ansätzen (2.2) und (3.0) folgt unmittelbar:

$$u_{1,1}(t) + iv_{1,1}(t) = g(t) e^{i(\omega t + \varphi(t))} = (G_1(t) + iG_2(t)) e^{i(\omega t + \varphi(t))}. \quad (5.2)$$

2.2.2. Näherungsweise Berechnung der Lösungen

Eine Übersichtsuntersuchung des Dgl.-Systems mit Hilfe eines Analogrechners zeigt, daß im Falle einer phasenmodulierten Anregung die Frequenzspektren der resultierenden longitudinalen und transversalen Spinbewegungskomponente im wesentlichen keine höheren Frequenzkomponenten $n\Omega$ bzw. $\omega_L \pm n\Omega$ aufweisen. Daher kann in der nachfolgenden Rechnung von der Näherung $B_n = 0$ für $|n| > 2$ ausgegangen werden.

2.2.2.1. Berechnung der Koeffizienten B_n (n gerade)

Für $n = 2$ ergibt sich mit den Näherungen $B_4 = 0$, $\Omega \gg \frac{1}{\tau}$ und der Def.:

$$R := \left(\frac{\omega_1^2}{2} - \left(4 - \frac{2}{3} \eta^2 \right) \Omega^2 + 2i\Omega \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_0} \right) + \frac{1}{\tau_1 \tau_0} \right)^2 \quad (6.1)$$

aus der Rekursionsformel (4.5) folgende Beziehung zwischen B_2 und B_0 :

$$B_2 = \frac{1}{R} \frac{\eta^2 \Omega^2}{2} B_0. \quad (6.2)$$

Für $n = 0$ ergibt sich aus der Rekursionsformel (4.5) für $\Omega \gg \frac{1}{\tau}$ durch Einsetzen von B_2 mit der Definition:

$$S := \left(\frac{\omega_1^2}{2} + \frac{1}{\tau_1 \tau_0} + \frac{\eta^2}{2\tau_1 \tau_0} + \operatorname{Re} \left(\frac{i}{R} \frac{\eta^4 \Omega^3}{4\tau_0} \right) \right)^2 \quad (6.3)$$

²⁾ Die nachfolgende Rechnung zeigt, daß der Ausdruck R für das Resonanzverhalten und der Ausdruck S für das Sättigungsverhalten des dauererregten neuartigen Gesamts spinbewegungszustands von entscheidender Bedeutung ist.

folgender Ausdruck für B_0 :

$$B_0 = -\frac{1}{S} \frac{\omega_1}{2} P. \quad (6.4)$$

2.2.2.2. Berechnung der Koeffizienten A_n (n ungerade)

Sind die Koeffizienten B_n bekannt, so lassen sich die Koeffizienten A_n nach der Rekursionsgleichung (4.3) bestimmen. Für die hier betrachtete Näherung $B_n = 0$ für $|n| > 2$ ist nur der Koeffizient A_n für $n=1$ von Bedeutung. Man erhält:

$$A_1 = \frac{\eta}{2} B_0 \left(1 - \frac{B_2}{B_0}\right). \quad (6.5)$$

2.2.3. Näherungsweise Angabe und Diskussion der Lösung $q_{1,0}(t) = u_{1,0}(t)$

2.2.3.1. Näherungsweise Angabe der Lösung $u_{1,0}(t)$

Aus der Beziehung (5.1) erhält man mit dem näherungsweisen Ansatz:

$$\begin{aligned} G_1(t) &= A_1 e^{i\Omega t} + A_{-1} e^{-i\Omega t} = 2\operatorname{Re}(A_1 e^{i\Omega t}), \\ G_2(t) &= B_0 + B_2 e^{i2\Omega t} + B_{-2} e^{-i2\Omega t} = B_0 + 2\operatorname{Re}(B_2 e^{i2\Omega t}) \end{aligned} \quad (7.1)$$

durch Einsetzen der unter der Annahme $B_n = 0$ für $|n| > 2$ berechneten Koeffizienten B_2 , B_0 und A_1 folgende Lösung für $u_{1,0}(t)$:

$$\begin{aligned} u_{1,0} = & \underbrace{\frac{P}{S} \frac{1}{\tau_1}}_{\text{„Sättigung“}} + \underbrace{\frac{P}{S} \frac{\eta^2 \Omega}{2} \operatorname{Im}\left(1 - \frac{1}{R} \frac{\eta^2 \Omega^2}{2}\right)}_{\text{„Entsättigung“}} \\ & - \underbrace{\frac{P}{S} \frac{\eta^2 \Omega}{2} \operatorname{Im}\left(\left(1 - \left(1 - \frac{8}{\eta^2}\right) \frac{1}{R} \frac{\eta^2 \Omega^2}{2}\right) e^{2i\Omega t}\right) + \frac{P}{S} \frac{2}{\tau_1} \operatorname{Re}\left(\frac{1}{R} \frac{\eta^2 \Omega^2}{2} e^{2i\Omega t}\right)}_{\text{stationäre longitudinale Spinbewegung}} \end{aligned} \quad (7.2)$$

2.2.3.2. Diskussion der Näherungslösung $u_{1,0}(t)$

2.2.3.2.1. Betrachtung der Grenzfälle $\eta = 0$ und $\eta \neq 0$

Für $\eta = 0$ enthält die obige Lösung nur den zeitunabhängigen Term:

$$u_{1,0} = \frac{P}{S} \frac{1}{\tau_1} \text{ der mit } S(\eta = 0) = \frac{\omega_1^2}{2} + \frac{1}{\tau_1 \tau_0} \text{ und } u_{1,0}^0 := \tau_0 P$$

den für harmonische Anregungen üblichen Sättigungsverlauf bestimmt:

$$u_{1,0} = \frac{u_{1,0}^0}{\frac{\omega_1^2}{2} \tau_1 \tau_0 + 1}. \quad (7.3)$$

Die für $\eta \neq 0$ in der Lösung zusätzlich erscheinenden Terme beschreiben die bei phasenmodulierter Anregung auftretenden neuartigen Phänomene: die „Entsättigung“ und die stationäre longitudinale Gesamtspinbewegung. Diese für die dauererregte „Kollek-

tiv-Rabi-Bewegung³⁾ charakteristischen Erscheinungen werden maximal, wenn der Ausdruck $1/R$ seinen größten Wert annimmt.

Dazu muß (vgl. Gl. (6.1) für $\omega_1^2 \tau \gg 1$) die Beziehung

$$\frac{\omega_1^2}{2} = \left(1 - \frac{2}{3} \eta^2\right) \Omega^2 \quad (7.4)$$

erfüllt sein, so daß der Ausdruck $1/R$ rein imaginär wird⁴⁾. Dann aber tritt bei phasenmodulierter Anregung in Abhängigkeit von den Wechselfeldparametern ein Amplituden- und Phasengang der „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ auf, der, es in Analogie zu den herkömmlichen Resonanzerscheinungen nahelegt, die Beziehung (7.4) als „Rabi-Resonanzbedingung“ zu bezeichnen⁵⁾. Die Darstellung dieser „Rabi-Resonanzbedingung“ liefert für verschiedene fest vorgegebene Phasenmodulationsfrequenzen Ω in einer $\omega_1 - \eta$ -Ebene unterschiedliche ellipsenförmige „Rabi-Resonanzkurven“ (vgl. Abb. 1), die sich

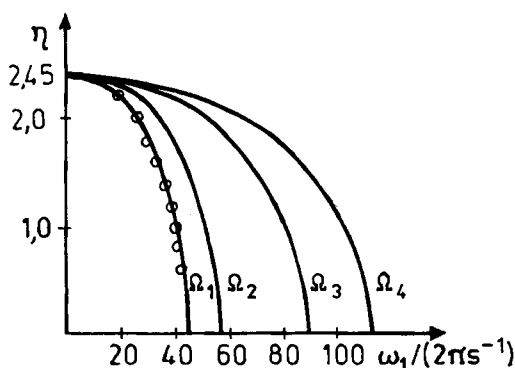


Abb. 1. „Rabi-Resonanzkurven“ für verschiedene Phasenmodulationsfrequenzen Ω ($\Omega_1 = 2\pi \cdot 16 \text{ s}^{-1}$, $\Omega_2 = 2\pi \cdot 20 \text{ s}^{-1}$, $\Omega_3 = 2\pi \cdot 32 \text{ s}^{-1}$, $\Omega_4 = 2\pi \cdot 40 \text{ s}^{-1}$). Die zusätzlich eingezeichneten Meßpunkte beschreiben den an der Apparatur (vgl. Abschn. 3.) experimentell gefundenen Verlauf der „Rabi-Resonanzkurve“ für $\Omega = 2\pi \cdot 16 \text{ s}^{-1}$.

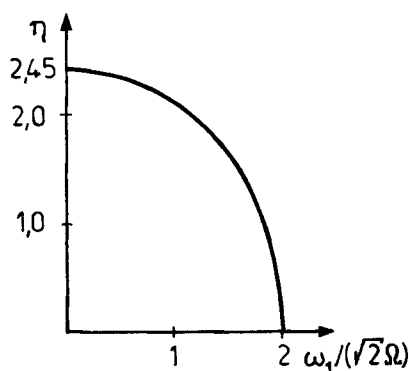


Abb. 2. Darstellung der Gesamtheit der „Rabi-Resonanzkurven“ durch eine einzige „Rabi-Resonanzkurve“ in der $\omega_1/(\sqrt{2} \Omega) - \eta$ -Ebene

³⁾ Die „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ ist eine aus der statistischen Überlagerung der Einzelspin-Rabi-Bewegungen unter den hier betrachteten Anregungsbedingungen resultierende Gesamtspinbewegung. — Während bei der freien Rabi-Bewegung wie auch bei der abklingenden Bewegung des Einschaltvorgangs für $\omega_1^2 \tau \gg 1$ die Frequenz der longitudinalen Spinbewegung mit der Modulationsfrequenz der transversalen Spinbewegung (Rabifrequenz) übereinstimmt, weist im hier betrachteten stationär angeregten „Kollektiv-Rabi-Bewegungszustand“ die longitudinale Spinbewegungskomponente (in erster Näherung) die doppelte Phasenmodulationsfrequenz auf, wohingegen die transversale Spinbewegung (in erster Näherung) mit der einfachen Phasenmodulationsfrequenz moduliert ist.

⁴⁾ Der Ausdruck $1/R$ geht vgl. Abschn. 2.2.4. Gl. (8.2) in ähnlicher Weise auch in den Amplituden- und Phasengang der resultierenden transversalen Gesamtspinbewegung ein.

⁵⁾ Diese, hier als „Rabi-Resonanz-Bedingung“ bezeichnete, neben der Larmor-Resonanzbedingung zusätzlich einzuhaltende Bedingung ist es, die bei phasenmodulierter Anregung die Aufrechterhaltung eines dreidimensionalen stationären Bewegungszustandes in einem Spinsystem ermöglicht.

in ihrer Gesamtheit auch in der Form:

$$\frac{\omega_1^2}{2\Omega^2} = \left(1 - \frac{2}{3}\eta^2\right)$$

durch eine einzige „Rabi-Resonanzkurve“ in einer $\omega_1(\sqrt{2}\Omega) - \eta$ -Ebene darstellen lassen (vgl. Abb. 2).

2.2.3.2.2. Das „Entsättigungsverhalten“ entlang der „Rabi-Resonanzkurve“

Das „Entsättigungsverhalten“ ist besonders ausgeprägt entlang der „Rabi-Resonanzkurve“. Es wird durch den zeitunabhängigen Anteil („Restorientierung“) $\bar{u}_{1,0}$ von $u_{1,0}(t)$ beschrieben, der sich aus dem „Sättigungs-“ und dem „Entsättigungs“-Term (Gl. (7.2)) zusammensetzt:

$$\bar{u}_{1,0} := \frac{P}{S} \frac{1}{\tau_1} + \frac{P}{S} \frac{\eta^2 \Omega}{2} \operatorname{Im} \left(1 - \frac{1}{R} \frac{\eta^2 \Omega^2}{2}\right). \quad (7.5)$$

Bei erfüllter „Rabi-Resonanzbedingung“ Gl. (7.4) ergibt sich aus Gl. (7.5) für $\tau_0 = \tau_1 = \tau$ mit den Näherungen $\omega_1^2 \tau \gg 1$ sowie $1 + \frac{\eta^2}{2} \ll \frac{\eta^4 \Omega^2 \tau}{16}$:

$$\begin{aligned} \bar{u}_{1,0} &\approx \frac{(P\tau)}{\left(4 - \frac{2}{3}\eta^2\right)\Omega^2\tau + \frac{\eta^4\Omega^2\tau}{16}} + \frac{(P\tau)}{\left(4 - \frac{2}{3}\eta^2\right)\Omega^2\tau + \frac{\eta^4\Omega^2\tau}{16}} \left(\frac{\eta^4\Omega^2\tau}{16}\right) \\ &=: \bar{u}_{1,0}^{(1)} + \bar{u}_{1,0}^{(2)} \end{aligned} \quad (7.6)$$

Für hinreichend großes η ist $\bar{u}_{1,0}^{(1)} \ll \bar{u}_{1,0}^{(2)}$, so daß mit $P\tau = u_{1,0}^0$ folgt:

$$\bar{u}_{1,0} \approx u_{1,0}^0 \frac{\eta^4}{16 \left(4 - \frac{2}{3}\eta^2\right) + \eta^4}. \quad (7.7)$$

Der durch Gl. (7.7) beschriebene Sättigungsverlauf ist in Abb. 3 über einer $\omega_1/(\sqrt{2}\Omega) - \eta$ -Ebene als Raumkurve dargestellt.

2.2.3.2.3. Die Amplituden- und Phasenabhängigkeit der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“

Die Amplituden- und Phasenabhängigkeit der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ $u_{1,0}(2\Omega)$ von den Wechselfeldparametern wird durch die Summe $\tilde{u}_{1,0}$ der beiden zeitabhängigen Terme in Gl. (7.2) bestimmt. Man erhält:

$$\tilde{u}_{1,0} = \frac{P}{S} \frac{\eta^2 \Omega}{2} \left(\operatorname{Im} \left(\left(-1 + (\eta^2 - 8) \frac{\Omega^2}{2} \frac{1}{R} \right) e^{2i\Omega t} \right) + \operatorname{Re} \left(\frac{2\Omega}{\tau} \frac{1}{R} e^{2i\Omega t} \right) \right). \quad (7.8)$$

Zur Berechnung der maximalen in Abhängigkeit von ω_1 und η ($\Omega = \text{const.}$) auftretenden Amplituden der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ ist der Amplitudenverlauf entlang der „Rabi-Resonanzkurve“ zu betrachten.

Bei erfüllter „Rabi-Resonanzbedingung ergibt sich abhängig von η :

$$\begin{aligned} \tilde{u}_{1,0} = & \frac{P\tau}{\left(4 - \frac{2}{3}\eta^2\right)\Omega^2\tau\tau + \frac{\eta^4\Omega^2\tau\tau}{16}} \\ & \times \frac{\eta^2\Omega\tau}{2} \left(\left(1 - \frac{\eta^2}{8}\right)\Omega\tau \cos 2\Omega t - \frac{1}{2} \sin 2\Omega t \right). \end{aligned} \quad (7.9)$$

Da $\Omega\tau \gg 1/2$ kann für $\eta < 2,5$ der $\sin 2\Omega$ -Term in Gl. (7.9) vernachlässigt werden. Mit

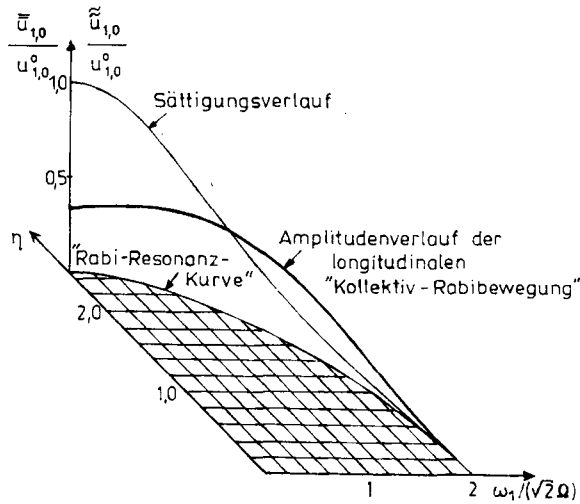


Abb. 3. Sättigungsverlauf $(\bar{u}_{1,0})/(u_{1,0}^0)$ und Amplitudenverlauf $(\tilde{u}_{1,0})/(u_{1,0}^0)$ entlang der „Rabi-Resonanzkurve“

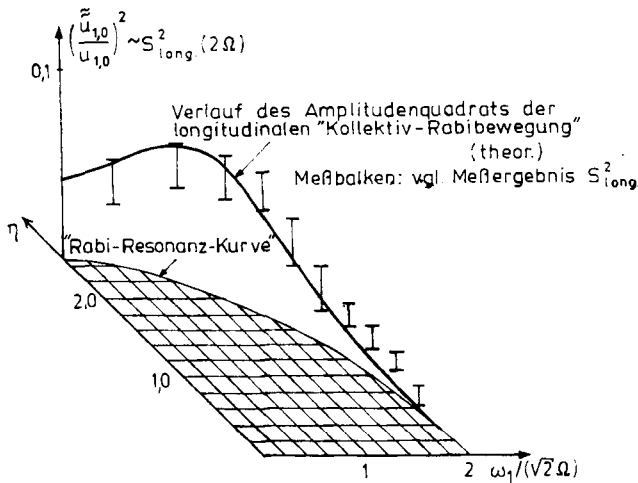


Abb. 4. Verlauf des berechneten Amplitudenquadrats $(\tilde{u}_{1,0})^2/(u_{1,0}^0)$ und des dazu direkt proportionalen gemessenen Signals $S_{\text{long}}^2(2\Omega)$ (vgl. Abschn. 3. und insbesondere Abb. 10) entlang der „Rabi-Resonanzkurve“

$P\tau = u_{1,0}^0$ folgt für den Amplitudenverlauf $\tilde{u}_{1,0}^0$:

$$\tilde{u}_{1,0}^0 \approx \frac{\eta^4}{16 \left(4 - \frac{2}{3} \eta^2 \right) + \eta^4} \left(\frac{8}{\eta^2} - 1 \right) (u_{1,0}^0) \cos 2\Omega t =: \tilde{u}_{1,0}^0 \cos 2\Omega t. \quad (7.10)$$

Der nach Gl. (7.10) berechnete Amplitudenverlauf ist in Abb. 3 zusätzlich zur Raumkurve für das „Entsättigungsverhalten“ eingezeichnet. Der über der „Rabi-Resonanzkurve“ aufgetragene Verlauf des Amplitudenquadrats der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ macht die Abhängigkeit des „Rabi-Resonanzzustands“ von den Wechselfeldparametern besonders deutlich und läßt sich zudem unmittelbar mit dem Meßergebnis an der Kernresonanzapparatur (vgl. Abschn. 3) vergleichen (vgl. Abb. 4).

Zur Diskussion des Phasengangs der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegungskomponente“ läßt sich Gl. (7.8) mit den Definitionen:

$$\begin{aligned} \frac{1}{R} &= \frac{1}{\frac{\omega_1^2}{2} - \left(4 - \frac{2}{3} \eta^2 \right) \Omega^2 + 2i\Omega \left(\frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau} \right)} =: \frac{1}{x + iy} = \frac{x - iy}{x^2 + y^2}; \\ f_1 &:= (\eta^2 - 8) \frac{\Omega^2}{2}, \quad f_2 := \frac{2\Omega}{2}; \\ X &:= \frac{f_2 x - f_1 y}{x^2 + y^2}, \quad Y := \frac{f_1 x - f_2 y}{x^2 + y^2} - 1 \end{aligned} \quad (7.11)$$

wie folgt schreiben:

$$\tilde{u}_{1,0}^0 = \frac{P}{S} \frac{\eta^2 \Omega}{2} (X \cos 2\Omega t + Y \sin 2\Omega t). \quad (7.12)$$

Man erkennt, daß der Phasengang durch die Abhängigkeit der Größen X und Y von ω_1 bzw. η ($\Omega\tau$ vorgegeben) bestimmt wird.

Die Abhängigkeit der Größen X und Y von ω_1 bei konstantem Phasenhub η bzw. von η bei konstanter Anregungsamplitude ω_1 ist in Abb. 5 bzw. Abb. 6 jeweils an einem Beispiel dargestellt.

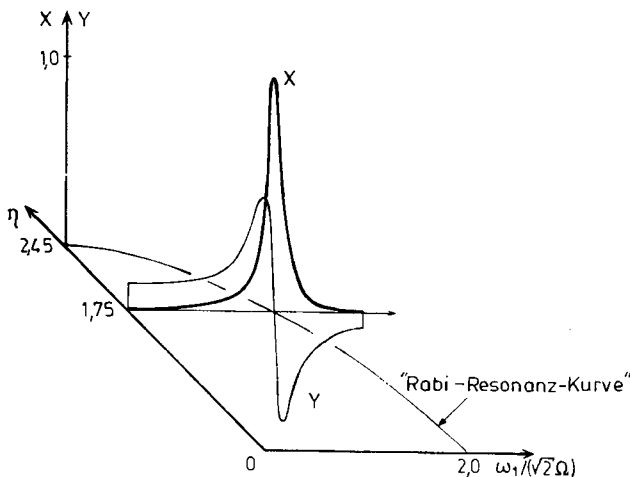


Abb. 5. Abhängigkeit der für den Phasengang der „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ wesentlichen Größen X und Y von ω_1 bei konstantem Phasenhub η ($\Omega\tau = 20$; $\Omega\tau$ bestimmt die „Rabi-Resonanzbreite“)

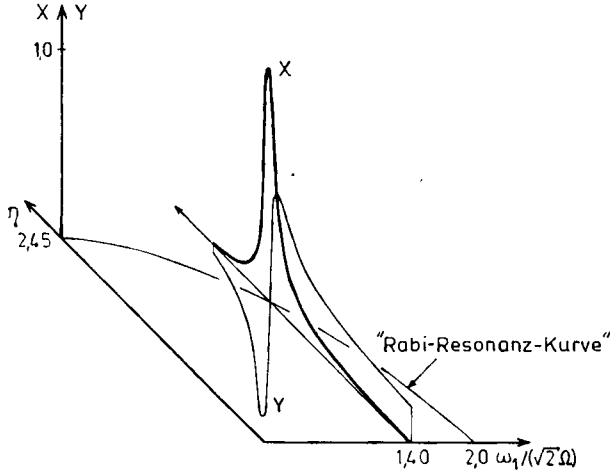


Abb. 6. Abhängigkeit der für den Phasengang der „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ wesentlichen Größen X und Y von η bei konstanter Anregungsamplitude ω_1 ($\Omega\tau = 20$, vgl. Abb. 5)

Es wird deutlich, daß für kleine ω_1 - bzw. η -Werte der Y -Term, im „Rabi-Resonanz-fall“ der X -Term und für größere ω_1 - bzw. η -Werte wiederum der Y -Term jedoch mit umgekehrten Vorzeichen dominiert. Somit ist mit dem Durchlaufen der „Rabi-Resonanz“ eine 180° -Änderung der Phasenlage (bezüglich der Phasenmodulierschwingung) verbunden.

2.2.4. Näherungsweise Angabe und Diskussion der Lösung $\varrho_{1,1}(t)$

2.2.4.1. Näherungsweise Angabe der Lösung $\varrho_{1,1}(t) = u_{1,1}(t) + iv_{1,1}(t)$

Mit den durch die Angabe der Koeffizienten B_2 (Gl. (6.2)), B_0 (Gl. (6.4)) und A_1 (Gl. (6.5)) bestimmten Näherungslösungen für $G_1(t)$ und $G_2(t)$ (vgl. Gl. (7.1)) lassen sich mit Hilfe der Beziehung (5.2) $u_{1,1}(t)$ und $v_{1,1}(t)$ berechnen:

$$\begin{aligned} u_{1,1} &= G_1 \cos(\omega t + \varphi(t)) - G_2 \sin(\omega t + \varphi(t)), \\ v_{1,1} &= G_1 \sin(\omega t + \varphi(t)) + G_2 \cos(\omega t + \varphi(t)). \end{aligned} \quad (8.1)$$

Im folgenden wird der Imaginärteil $v_{1,1}(t)$ von $\varrho_{1,1}(t)$ betrachtet. (Dieser unterscheidet sich vom Realteil $u_{1,1}(t)$ nur durch einen konstanten Phasenwinkel.) Man erhält:

$$\begin{aligned} v_{1,1} &\approx -\frac{1}{S} \frac{\omega_1}{2} P \\ &\left[\operatorname{Im} \left(\frac{\eta}{2} \left(1 - \frac{\eta^2 \Omega^2}{2} \frac{1}{R} \right) (\cos((\omega + \Omega)t + \varphi) + i \sin((\omega + \Omega)t + \varphi) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \cos((\omega - \Omega)t + \varphi) + i \sin((\omega - \Omega)t + \varphi) \right) \right] \\ &+ \operatorname{Re} \left(\frac{\eta^2 \Omega^2}{2} \frac{1}{R} (\cos((\omega + 2\Omega)t + \varphi) + i \sin((\omega + 2\Omega)t + \varphi) \right. \\ &\quad \left. + \cos((\omega - 2\Omega)t + \varphi) - i \sin((\omega - 2\Omega)t + \varphi) \right) \Bigg] \\ &- \frac{1}{S} \frac{\omega_1}{2} P \cos(\omega t + \varphi). \end{aligned} \quad (8.2)$$

2.2.4.2. Diskussion der Näherungslösung $v_{1,1}(t)$

In dieser Lösung ist für $\eta = 0$ der Grenzfall einer harmonischen Anregung mit dem üblichen Anregungs-/Sättigungsverhalten enthalten, das durch die Gleichung (8.3) beschrieben wird.

$$v_{1,1}(t) = - \frac{1}{S(\eta=0)} \frac{\omega_1}{2} P \cos \omega t = - \frac{1}{\frac{\omega_1^2}{2} \tau \tau + 1} \frac{\omega_1 \tau}{2} P \tau \cos \omega t. \quad (8.3)$$

Für $\eta \neq 0$, den Fall einer phasenmodulierten Anregung, folgt aus Gl. (8.2) unter Berücksichtigung der Beziehungen:

$$\begin{aligned} \cos \varphi &= \cos(\eta \cos \Omega t) = \sum_{\nu} J_{\nu}(\eta) \cos \nu \Omega t, \nu = 2n; \\ \sin \varphi &= \sin(\eta \cos \Omega t) = \sum_{\nu} J_{\nu}(\eta) \cos \nu \Omega t, \nu = 2n + 1, \end{aligned} \quad (8.4)$$

daß die transversale Bewegung $v_{1,1}(t)$ Bewegungskomponenten mit den Frequenzen $\omega_L \pm n\Omega$ aufweisen muß, deren Amplitude und Phase sowohl vom Resonanzverhalten des Ausdrucks $1/R$ als auch vom Verlauf der Besselfunktionen $J_{\nu}(\eta)$ abhängt. Aus dem Resonanzverhalten von $1/R$ folgt unmittelbar, daß die durch das Auftreten der Komponenten $\omega_L \pm n\Omega$ verursachte Modulation von $v_{1,1}(t)$ entlang der „Rabi-Resonanzkurve“ maximal wird. (Vgl. hierzu den an der Meßapparatur in Abhängigkeit von $H_1^0 \sim \omega_1$ und η (Ω konstant vorgegeben) aufgezeichneten Verlauf des Amplitudenquadrats der Spektralkomponente $\omega_L \pm \Omega$ des transversalen Resonanzsignals (Abb. 11).)

3. Der experimentelle Nachweis der Kollektiv-Rabi-Bewegung in einem System von optisch gepumpten ^{199}Hg -Atomen

3.1. Aufbau der Meßapparatur

Der experimentelle Aufbau der Meßapparatur (vgl. Abb. 7) entspricht den üblichen Anordnungen zum longitudinalen optischen Pumpen von Hg.

Das von der elektrodenlos betriebenen, mit einem geeigneten Isotopengemisch gefüllten Hg-Lampe ausgehende Licht fällt nach dem Durchgang einer Zirkular-Polarisations-Anordnung auf die Streuzelle und führt dort zu einer Polarisation der zusammen mit anderen Isotopen vorhandenen ^{199}Hg -Atome.

Zwei Helmholtz-Spulenarrangierungen liefern die zur Durchführung des Kernresonanzexperiments benötigten Gleich- und Wechselfelder⁶⁾. Die unter ihrem Einfluß sich zeitlich ändernde Polarisation wird mit einem Taststrahl abgefragt.

Weiterhin wird auch das durch die Streuzelle transmittierte Pumplicht registriert.

Dabei sind die Wechsellichtanteile der auf die Photomultiplier auffallenden Lichtströme den jeweiligen Spinbewegungskomponenten direkt proportional.

⁶⁾ Der experimentelle Nachweis der „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ bei einer phasenmodulierten Anregung des Spinsystems wurde mit einem linearpolarisierten magnetischen Wechselfeld durchgeführt, während bei den vorangegangenen analytischen Betrachtungen von einem zirkularpolarisierten Wechselfeld ausgegangen wurde. Da (abgesehen von subharmonischen Resonanzen und Oberwellenmodulationseffekten [12]) für die hier betrachteten Erscheinungen kein wesentlicher Unterschied zwischen linearer und zirkularer Anregung besteht, können die Ergebnisse der analytischen Betrachtungen Abschn. 2. unmittelbar mit den Meßergebnissen Abschn. 3.3. verglichen werden.

Für die Photomultiplierausgangssignale $S_{\text{trans.}}$ und $S_{\text{long.}}$ gilt:

$$S_{\text{trans.}} \sim u_{1,1} \quad (\text{transmittierter Tastlichtstrahl}),$$

$$S_{\text{long.}} \sim u_{1,0} \quad (\text{transmittierter Pumplichtstrahl}).$$

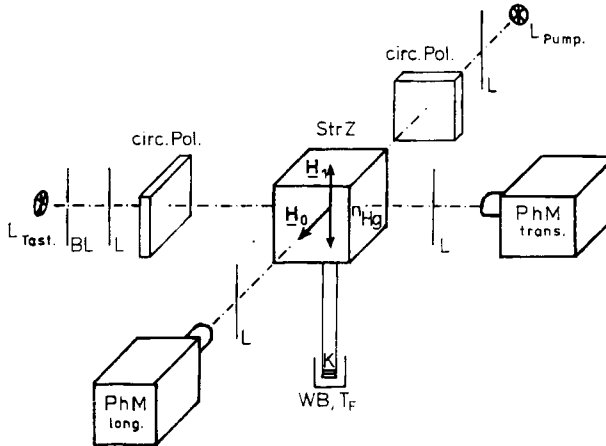


Abb. 7. Schematischer Aufbau der Meßapparatur.

StrZ: Streuzelle; n_{Hg} : Hg-Teilchendichte in der Streuzelle, Isotopenzusammensetzung in der Streuzelle: $^{198}\text{Hg} \approx 0,5\%$, $^{199}\text{Hg} \approx 1,5\%$, $^{200}\text{Hg} \approx 0,3\%$, $^{201}\text{Hg} \approx 1,0\%$ und $^{202}\text{Hg} \approx 96,7\%$; K: Hg-Kondensat im Stutzen der Streuzelle; WB: Wärmebad; die Hg-Teilchendichte wird über die Temperatur T_F des Wärmebads geregelt, typischer Wert: $n_{\text{Hg}} (T_F = 15^\circ\text{C}) \approx 2,5 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^{-3}$; $L_{\text{Pump.}}$ und $L_{\text{Tast.}}$: elektrodenlos betriebene ^{204}Hg -Pumplicht- bzw. Tastlicht-Quelle; Bl: Lochblende; L: Abbildungslinsen; circ. Pol.: Zirkularpolarisator; $\text{PhM}_{\text{long.}}$ und $\text{PhM}_{\text{trans.}}$: Photomultiplier zur Registrierung des transmittierten Pump- bzw. Tastlichtes. Die Magnetfelder H_1^0 und H_0 werden durch Helmholtz Spulenarrangements erzeugt und die Erdfelder durch Zusatzwicklungen kompensiert; typische Feldstärken: $H_1^0 = 0, \dots, 100 \text{ mOe}$; $H_0 = 2,108 \text{ Oe} \triangleq \omega_L = 1,6 \text{ kHz}$

3.2. Erläuterung zum Meßverfahren

Zur experimentellen Bestätigung der im Falle der Kernresonanz bei phasenmodulierter Anregung auftretenden „Rabi-Resonanzerscheinung“ muß die stationäre „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ und deren Abhängigkeit von den Wechselfeldparametern nachgewiesen werden.

Dazu ist es zweckmäßig, für eine fest vorgegebene Phasenmodulationsfrequenz Ω die Wechselfeldstärke H_1^0 ($\sim \omega_1$) für verschiedenen Phasenhubwerte $0 \leq \eta < 2,6$ langsam durchzustimmen und dabei die Amplituden bzw. Amplitudenquadrate der für die „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ charakteristischen Spektralkomponenten der longitudinalen und der transversalen Spinbewegungskomponente aufzuzeichnen.

Da bei erfüllter Larmorresonanzbedingung das Frequenzspektrum der longitudinalen Bewegungskomponente der „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ nur die Frequenzkomponente 2Ω und das der transversalen Bewegungskomponente nur die beiden gleich großen Komponenten $\omega_L \pm \Omega$ aufweist (vgl. Abb. 11), ist die Amplitude der longitudinalen Spinbewegung durch die Amplitude der 2Ω -Spektralkomponente des Signals $S_{\text{long.}}$ und die Modulation der transversalen Spinbewegung durch die Amplitude der Spektralkomponenten $\omega_L \pm \Omega$ des Signals $S_{\text{trans.}}$ bestimmt. Weitere Einzelheiten zur experimentellen Durchführung der Messung entnehme man dem Blockschaltbild Abb. 8.

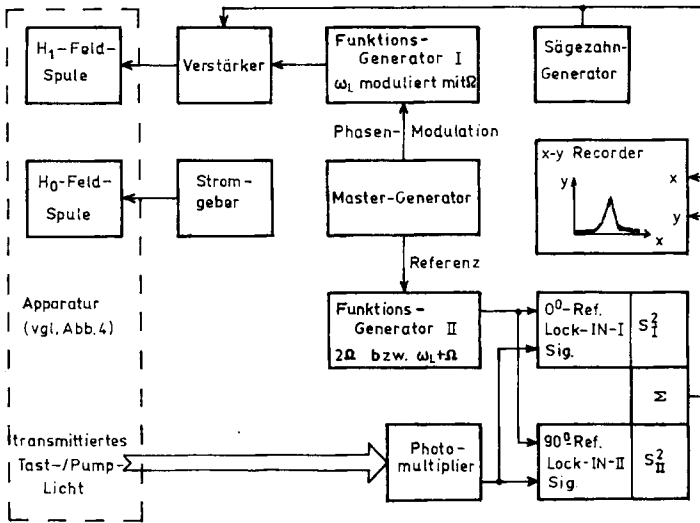


Abb. 8. Blockschaltbild der Ansteuer- und Nachweiselektronik. Das Signal x ist der Wechselfeldstärke H_1^0 und das Signal y dem Signal $S_{\text{long.}}^2(2\Omega)$ bzw. $S_{\text{trans.}}^2(\omega_L \pm \Omega)$ direkt proportional

3.3. Darstellung der Meßergebnisse

Die Phasenmodulation des magnetischen Wechselfeldes ermöglicht die Anregung eines stationären „Kollektiv-Rabi-Bewegungszustandes“ des ^{199}Hg -Spinsystems. Die Signalamplituden dieses neuartigen Kernresonanz-Bewegungszustandes werden für solche Wechselfeldstärken H_1^0 ($\sim \omega_1$) maximal, bei denen man ohne Phasenmodulation des Wechselfeldes bereits im Bereich der Sättigung liegen würde (vgl. Abb. 9). Zum Nachweis der stationär angeregten „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ und deren Abhängigkeit von

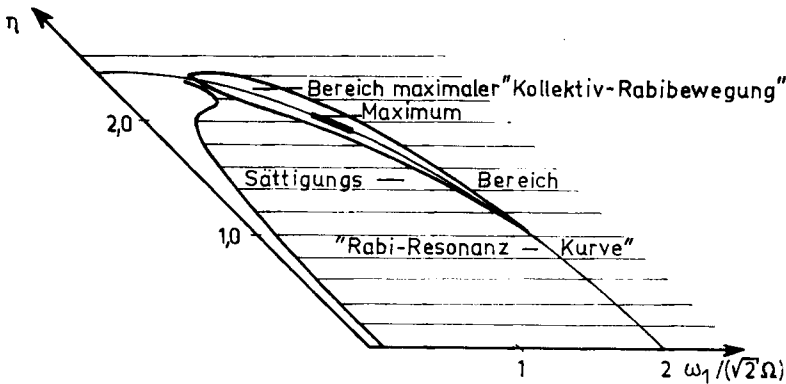


Abb. 9. Übersicht über das „Entsättigungsverhalten“ bei phasenmodulierter Anregung. In den unschraffierten Bereichen der $\omega_1/(\sqrt{2}\Omega) - \eta$ -Ebene können deutlich über dem Rauschen liegende Signale nachgewiesen werden; die horizontale Schraffur bezeichnet den Sättigungsbereich; die Grenzlinien zwischen den beiden Bereichen geben jeweils den Signalabfall um den Faktor $\sqrt{2}$ vom Signalmaximum an

den Wechselfeldparametern sind in den Abb. 10 und 11 die Amplitudenquadrate der Signale $S_{\text{long.}}(2\Omega)$ und $S_{\text{trans.}}(\omega_L \pm \Omega)$ in Abhängigkeit von H_1^0 über einer $H_1^0 - \eta$ -Ebene aufgetragen. Man erkennt, wie die „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ mit zunehmendem Phasenhub η entlang einer ellipsenförmigen Kurve in der $H_1^0 - \eta$ -Ebene maximal wird. Diese ellipsenförmige Kurve bestätigt den in Abschnitt 2.2.3. analytisch bestimmten Verlauf der „Rabi-Resonanzkurve“ (vgl. hierzu auch Abb. 1). Weiterhin zeigt der Verlauf des Amplitudenquadrats der longitudinalen 2Ω -„Kollektiv-Rabi-Bewegungskomponente“ entlang der „Rabi-Resonanzkurve“ eine gute Übereinstimmung mit dem in Abschnitt 2.2.3. berechneten (vgl. Abb. 4).

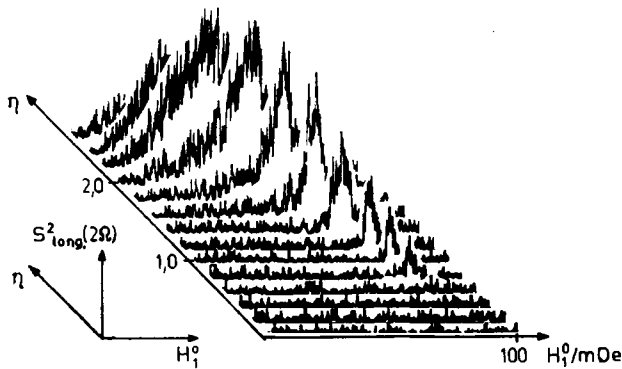


Abb. 10. Abhängigkeit der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ von den Wechselfeldparametern ($\Omega = 2\pi \cdot 16 \text{ s}^{-1}$ vorgegeben). Aufgetragen ist das zum Amplitudenquadrat der longitudinalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ direkt proportionale Signal $S_{\text{long.}}^2(2\Omega)$ über einer $H_1^0 - \eta$ -Ebene

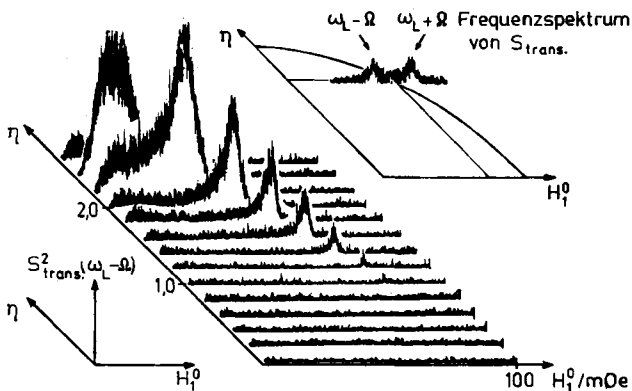


Abb. 11. Abhängigkeit der Modulation der transversalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ von den Wechselfeldparametern ($\Omega = 2\pi \cdot 16 \text{ s}^{-1}$). Aufgetragen ist das zum Quadrat der Modulationsamplitude der transversalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ direkt proportionale Signal $S_{\text{trans.}}^2/(\omega_L \pm \Omega)$ über einer $H_1^0 - \eta$ -Ebene. Ebenso eingezeichnet ist ein Beispiel eines Frequenzspektrums der transversalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ entlang der „Rabi-Resonanzkurve“. Man erkennt, daß die Modulation der transversalen „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ im wesentlichen durch die beiden gleich großen Frequenzkomponenten $\omega_L - \Omega$ und $\omega_L + \Omega$ beschrieben wird

4. Zusammenfassung

Im Falle der magnetischen Kernresonanz ist es durch eine Phasenmodulation des magnetischen Wechselfeldes möglich, einen stationären „Rabi-artigen“ Bewegungszustand — hier als „Kollektiv-Rabi-Bewegung“ bezeichnet — anzuregen. Dazu muß neben der Larmor-Resonanzbedingung noch eine zweite Bedingung, die „Rabi-Resonanzbedingung“ erfüllt sein. Diesen Sachverhalt bestätigen die Meßergebnisse an einer Apparatur zum longitudinalen optischen Pumpen von Hg (Abschn. 3.) in guter Übereinstimmung mit den Folgerungen aus der analytischen Betrachtung in Abschn. 2. Dazu sei allerdings an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen, daß für die hier beschriebenen Phänomene die Relaxationszeitkonstanten für die longitudinale und die transversale Spinbewegung (wie in einem Gas oder sonst stark verdünnten Spingemenge) von der gleichen Größenordnung sein müssen.

Die vorliegende Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft unterstützt.

Literaturverzeichnis

- [1] DULCIC, A.; RAKVIN, B.: J. Magn. Reson. **52** (1983) 323.
- [2] KIM, W.: J. Magn. Reson. **46** (1983) 193.
- [3] ISLAM, T.-U.; MIYAGAWA, I.: J. Magn. Reson. **51** (1983) 383.
- [4] HOULT, D. I.: J. Magn. Reson. **35** (1979) 69.
- [5] ABRAGAM, A.: Principles of Nuclear Magnetism, Oxford: University Press 1961.
- [6] HAPPER, W.: Rev. Mod. Phys. **44** (1972) 169.
- [7] SLICHTER, C. P.: Principles of Magnetic Resonance, New York: Springer 1978.
- [8] FANO, U.: Rev. Mod. Phys. **29** (1959) 74.
- [9] FANO, U.: Irreduzible tensorial sets, New York: Academic Press Inc. 1959.
- [10] HAPPER, W.: Phys. Rev. **B 1** (1970) 2203.
- [11] DELLIT, L.: Fort. d. Phys. **11** (1978) 1.
- [12] CAPPELLER, U.; WEBER, H. G.: Ann. Phys. **7**, Bd. 26 (1971) 359.

Bei der Redaktion eingegangen am 28. Dezember 1984.

Anschr. d. Verf.: Prof. Dr. U. CAPPELLER, Dipl. Phys. H. MÜLLER
FB Physik der Philipps-Universität Marburg
Renthof 5
D-3550 Marburg/Lahn