

## Парадоксы ряда Магнуса при исследовании равновесной намагниченности и запутанности в многоимпульсном спиновом локинге

Е.И. Кузнецова, Э.Б. Фельдман, Д.Э. Фельдман

*Расходимость разложения Магнуса ведёт к парадоксам в спиновой динамике ядерного магнитного резонанса в твёрдом теле, а также в квантовой информатике. Приводятся результаты исследования квазиравновесной намагниченности в системе спинов, связанных диполь-дипольными взаимодействиями (ДДВ) при временах  $T_2 \ll t \ll T_{1\rho}$  ( $T_2$  — время поперечной спиновой релаксации,  $T_{1\rho}$  — время спин-решётчатой релаксации во вращающейся системе координат) в многоимпульсном спин-локинге. Показано, как устранить противоречия между результатами, полученными с помощью разложения Магнуса, и экспериментальными данными. Рассмотрены системы с двумя и тремя спинами с ДДВ в многоимпульсном спин-локинге и исследована эволюция запутанности как с помощью разложения Магнуса, так и на основе полученного точного решения. Найдена критическая температура, при которой в системе возникает запутанное состояние.*

**Ключевые слова:** теорема Флоке, гамильтониан Флоке, разложение Магнуса, парадокс Магнуса, многоимпульсный спин-локинг, теория среднего гамильтониана, согласованность, квантовая запутанность

PACS numbers: 03.65. – w, 03.67.Mn, 76.60. – k

DOI: 10.3367/UFNr.2016.02.037753

### Содержание

1. Введение (647).
  2. Термодинамические квазиравновесные состояния систем спинов, связанных диполь-дипольными взаимодействиями, в многоимпульсном спин-локинге (649).
  3. Запутанность в системе двух (трёх) спинов, связанных диполь-дипольными взаимодействиями, в многоимпульсном спин-локинге (651).
  4. Заключение (652).
- Список литературы (652).

### 1. Введение

Во многих случаях физические проблемы могут описываться системами линейных дифференциальных уравнений с периодически изменяющимися во времени коэффициентами [1] (в квантовой механике — с периодически изменяющимися во времени гамильтонианом). В 1883 г.

А.М. Гастон Флоке доказал замечательную теорему, утверждающую, что существует периодическое унитарное преобразование, которое переводит систему нормальных дифференциальных уравнений с периодическими коэффициентами в систему дифференциальных уравнений с постоянными коэффициентами [2]. Хорошо известным примером такой процедуры является переход во вращающуюся систему координат (ВСК) при исследовании системы с диполь-дипольными взаимодействиями (ДДВ) в постоянном и перпендикулярном к нему циркулярно поляризованном (гармоническом) магнитных полях [3]. Теорема Флоке позволяет записать решение эволюционного уравнения Лиувилля (в частотных единицах)

$$i \frac{d\rho}{dt} = [\mathcal{H}(t), \rho(t)] \quad (1)$$

для матрицы плотности  $\rho(t)$  в виде

$$\rho(t) = P(t) \exp(-i\mathcal{H}_F t) \rho_0 \exp(i\mathcal{H}_F t) P^+(t). \quad (2)$$

В (1)  $\mathcal{H}(t)$  является периодическим гамильтонианом системы ( $\mathcal{H}(t + t_c) = \mathcal{H}(t)$ , где  $t_c$  – период),  $\mathcal{H}_F$  — не зависящий от времени гамильтониан (гамильтониан Флоке),  $P(t)$  — унитарный периодический оператор,  $P(t + t_c) = P(t)$ ,  $\rho_0$  — начальная матрица плотности.

К сожалению, кроме приведённого выше примера с ВСК, невозможно точно определить гамильтониан Флоке для многоспиновых систем, и приходится использо-

Е.И. Кузнецова, Э.Б. Фельдман.

Институт проблем химической физики РАН,  
просп. Академика Семёнова 1, 142432 Черноголовка,

Московская область, Российская Федерация

E-mail: kuznets@icp.ac.ru, efeldman@icp.ac.ru

Д.Э. Фельдман. Department of Physics, Brown University,

Providence, Rhode Island 02912, USA

E-mail: dmitri\_feldman@brown.edu

Статья поступила 29 февраля 2016 г.

вать приближённые методы [4–8]. Мы подробно обсудим метод [4], который известен как теория среднего гамильтониана.

Пусть гамильтониан  $\mathcal{H}(t)$  системы состоит из двух частей:

$$\mathcal{H}(t) = \mathcal{H}_p(t) + \mathcal{H}_{in}, \quad (3)$$

где  $\mathcal{H}_{in}$  описывает внутренние взаимодействия (например, ДДВ), а  $\mathcal{H}_p(t)$  ( $\mathcal{H}_p(t + t_c) = \mathcal{H}_p(t)$ ) описывает воздействие на систему внешних полей (например, периодическую последовательность высокочастотных (ВЧ) импульсов). Эволюцию матрицы плотности удобно представить с помощью оператора эволюции,

$$\rho(t) = U(t)\rho_0 U^+(t), \quad (4)$$

причём оператор  $U(t)$  удовлетворяет уравнению

$$i \frac{dU(t)}{dt} = \mathcal{H}(t)U(t), \quad U(0) = 1. \quad (5)$$

Для того чтобы исключить из гамильтониана (3) внешние воздействия, мы перейдём в представление взаимодействия по  $\mathcal{H}_p(t)$ . Тогда оператор эволюции  $U(t)$  может быть записан следующим образом:

$$U(t) = U_p(t)L(t), \quad (6)$$

где

$$U_p(t) = \text{Texp} \left( -i \int_0^t \mathcal{H}_p(t') dt' \right). \quad (7)$$

Оператор  $L(t)$  в (6) определяется формулой

$$L(t) = \text{Texp} \left( -i \int_0^t \tilde{\mathcal{H}}(t') dt' \right), \quad (8)$$

где  $\text{Texp}$  — упорядоченная по времени экспонента,

$$\tilde{\mathcal{H}}(t) = U_p^+(t)\mathcal{H}_{in}U_p(t). \quad (9)$$

Предположим теперь, что гамильтониан  $\mathcal{H}_p(t)$  является не только периодическим, но и удовлетворяет условию цикличности, т.е.

$$U_p(Nt_c) = \text{Texp} \left( -i \int_0^{Nt_c} \mathcal{H}_p(t) dt \right) = 1, \quad (10)$$

где  $N$  — натуральное число. Тогда из формул (6), (9) получаем

$$\rho(Nt_c) = L(Nt_c)\rho_0 L^+(Nt_c), \quad (11)$$

$$L(Nt_c) = [L(t_c)]^N. \quad (12)$$

Таким образом, для того чтобы описать состояние системы в моменты времени, кратные периоду  $t_c$ , достаточно найти её эволюцию только на одном периоде [4]. Этот вывод является очень важным и полезным для исследования многоспиновой динамики в периодических магнитных полях.

Проблема, однако, усложняется присутствием в формулах (8), (12) упорядоченных по времени экспонент (Т-операторов), которые ведут к трудоёмким вычисле-

ниям. В 1954 г. У. Магнус предложил преобразование Т-оператора в простой экспоненциальный оператор [9]. У. Магнус показал, что

$$\begin{aligned} L(t_c) &= \text{Texp} \left( -i \int_0^{t_c} \tilde{\mathcal{H}}(t') dt' \right) = \\ &= \exp \left[ -i(\bar{\mathcal{H}}^{(0)} + \bar{\mathcal{H}}^{(1)} + \bar{\mathcal{H}}^{(2)} + \dots)t_c \right], \end{aligned} \quad (13)$$

где средний гамильтониан  $\bar{\mathcal{H}}^{(0)}$  имеет вид

$$\bar{\mathcal{H}}^{(0)} = \frac{1}{t_c} \int_0^{t_c} \tilde{\mathcal{H}}(t') dt', \quad (14)$$

а поправки  $\bar{\mathcal{H}}^{(1)}$ ,  $\bar{\mathcal{H}}^{(2)}$  к среднему гамильтониану определяются формулами

$$\bar{\mathcal{H}}^{(1)} = \frac{1}{2t_c} \int_0^{t_c} dt_2 \int_0^{t_2} dt_1 [\tilde{\mathcal{H}}(t_2), \tilde{\mathcal{H}}(t_1)], \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \bar{\mathcal{H}}^{(2)} &= \frac{1}{6t_c} \int_0^{t_c} dt_3 \int_0^{t_3} dt_2 \int_0^{t_2} dt_1 \{ [\tilde{\mathcal{H}}(t_3), [\tilde{\mathcal{H}}(t_2), \tilde{\mathcal{H}}(t_1)]] + \\ &+ [\tilde{\mathcal{H}}(t_1), [\tilde{\mathcal{H}}(t_2), \tilde{\mathcal{H}}(t_3)]] \} \end{aligned} \quad (16)$$

и т.д.

Пусть порядок гамильтониана  $\tilde{\mathcal{H}}(t)$  равен  $\omega_{loc}$ . Порядки поправок к среднему гамильтониану пропорциональны степеням малого параметра  $\varepsilon = \omega_{loc}t_c \ll 1$ . В частности, во многих случаях для исследования многоспиновой динамики можно ограничиться средним гамильтонианом. Например, средний гамильтониан полностью описывает систему, если значения гамильтониана в различные моменты времени коммутируют между собой. Важно, что все члены ряда (13) пропорциональны числу спинов и этот ряд может быть использован для исследования динамики и термодинамики спиновых систем. Разложение (13) может быть применено для определения эволюции системы в моменты времени, кратные периоду внешних магнитных полей. Этого достаточно для описания экспериментов при стробоскопическом наблюдении намагниченности.

Разложение Магнуса (13) позволяет существенно упростить анализ поведения спиновых систем в периодических внешних полях. Однако ряд в уравнении (13) является расходящимся [10] даже для односпиновой системы в постоянном и перпендикулярном к нему циркулярно поляризованном (гармоническом) магнитных полях [10]. Экспериментальные исследования [11, 12] спиновой динамики в многоимпульсном спин-локинге (от англ. spin-locking — спиновый захват, запираание спинов) [13, 14] выявили противоречия между теорией среднего гамильтониана [4] и экспериментальными данными при временах  $T_2 < t \leq T_{1\rho}$  ( $T_2$  — время поперечной спиновой релаксации,  $T_{1\rho}$  — время спин-решёточной релаксации в ВСК [3]). Эти противоречия были названы в [15] парадоксом Магнуса. В [10] показано, что парадокс Магнуса тесно связан со сходимостью разложения (13). Сходимость ряда Магнуса исследовалась ранее во многих работах [10, 16–18] и продолжает исследоваться в настоящее время [19].

В настоящей статье мы рассматриваем парадокс Магнуса в многоспиновой и малоспиновых задачах. Показано, как устранить противоречия теории среднего гамильтониана [4] с экспериментальными данными [11, 12]

в многоимпульсном спин-локинге. Мы также исследовали в многоимпульсном спин-локинге эволюцию запутанности в системе, состоящей из двух и трёх дипольно связанных спинов. Запутанность в двухспиновой системе исследована на основе полученного точного решения двухспиновой задачи, а также с помощью теории среднего гамильтониана. В заключении приведён краткий перечень наших основных результатов.

## 2. Термодинамические квазиравновесные состояния систем спинов, связанных диполь-дипольным взаимодействием, в многоимпульсном спин-локинге

Рассмотрим систему спинов  $s = 1/2$ , связанных ДДВ, в сильном внешнем магнитном поле, направленном вдоль оси  $z$  лабораторной системы координат. Секулярная часть ДДВ относительно поля  $\mathbf{H}_0$  может быть выражена следующим образом:

$$\mathcal{H}_{dz} = \sum_{i < j} d_{ij} (3I_{iz}I_{jz} - \mathbf{I}_i \mathbf{I}_j), \quad (17)$$

где  $I_{ix}$  ( $\alpha = x, y, z$ ) — проекция углового момента спина  $i$  на ось  $\alpha$ ,  $\mathbf{I}_i \mathbf{I}_j = I_{ix}I_{jx} + I_{iy}I_{jy} + I_{iz}I_{jz}$ ,  $d_{ij}$  — константа ДДВ спинов  $i$  и  $j$ .

В многоимпульсном спин-локинге ВЧ-импульс  $P_{-y}^{90^\circ}$  поворачивает в начальный момент времени спины на  $90^\circ$  относительно оси  $y$  ВСК. Затем последовательность резонансных эквидистантных импульсов  $P_x^\varphi$  поворачивает спины на угол  $\varphi$  относительно оси  $x$  ВСК. Схема используемой в эксперименте многоимпульсной последовательности может быть представлена как [20, 21]

$$P_{-y}^{90^\circ} - \tau - (P_x^\varphi - 2\tau)^N. \quad (18)$$

Здесь  $\tau$  и  $2\tau$  — временные интервалы между последовательными импульсами. Экспериментально показано [13, 14, 22, 23], что при  $\varphi = \pi/2$  последовательность (18) создаёт длинную цепочку сигналов эха, затухающую со временем  $T_{2e} \sim T_2/(\omega_{loc}\tau)^4$ . Это время превышает время затухания сигнала свободной индукции (ССИ) на несколько порядков.

Гамильтониан системы в многоимпульсном спин-локинге имеет вид

$$\mathcal{H} = \omega_0 I_z - f(t) (I_x \cos(\omega_0 t) + I_y \sin(\omega_0 t)) + \mathcal{H}_{dz}, \quad (19)$$

где  $\omega_0 = \gamma H_0$  — частота Лармора ( $\gamma$  — гиромагнитное отношение),  $I_\alpha = \sum_i I_{i\alpha}$  — полная проекция углового спинового момента на ось  $\alpha$  ( $\alpha = x, y, z$ ),  $f(t)$  — импульсная функция,

$$f(t) = \varphi \sum_{k=0}^{\infty} \delta(\tau + 2k\tau - t), \quad (20)$$

где  $\delta(t)$  — дельта-функция Дирака. Уравнение Лиувилля для матрицы плотности  $\rho(t)$  рассматриваемой системы может быть записано в ВСК следующим образом:

$$i \frac{d\rho}{dt} = [-f(t)I_x + \mathcal{H}_{dz}, \rho(t)]. \quad (21)$$

Можно проверить, что

$$\mathcal{H}_{dz} = -\frac{1}{2} \mathcal{H}_{dx} + \mathcal{H}^{(2)} + \mathcal{H}^{(-2)}, \quad (22)$$

где  $\mathcal{H}_{dx}$  получается из  $\mathcal{H}_{dz}$  (17) заменой индекса  $z$  индексом  $x$ , а

$$\mathcal{H}^{(2)} = \frac{3}{4} \sum_{i < j} d_{ij} I_i^+ I_j^+, \quad \mathcal{H}^{(-2)} = \frac{3}{4} \sum_{i < j} d_{ij} I_i^- I_j^-. \quad (23)$$

Заметим, что в левой части (22) осью квантования является ось  $z$ , а в правой — ось  $x$ . Проводя преобразование

$$\rho(t) = L(t) \bar{\rho} L^+(t), \quad (24)$$

где

$$L(t) = \exp \left[ i \left( \int_0^t f(t') dt' - \omega_c t \right) I_x \right], \quad (25)$$

можно получить уравнение для матрицы плотности  $\bar{\rho}(t)$ :

$$i \frac{d\bar{\rho}(t)}{dt} = \left[ \omega_c I_x - \frac{1}{2} \mathcal{H}_{dx} + \Phi(t) \mathcal{H}^{(2)} + \Phi^*(t) \mathcal{H}^{(-2)}, \bar{\rho}(t) \right]. \quad (26)$$

В уравнении (26) эффективное поле  $\omega_c = \varphi/(2\tau)$ ,  $\Phi(t)$  — периодическая функция со средним значением  $(1/\varphi) \sin \varphi$ . Средний гамильтониан  $\bar{\mathcal{H}}$  может быть представлен (с точностью до членов порядка  $\varepsilon \omega_{loc}$ , где  $\varepsilon = 2\tau \omega_{loc}$ ,  $\omega_{loc} \sim T_2^{-1}$ ) в виде

$$\bar{\mathcal{H}} = \omega_c I_x - \frac{1}{2} \mathcal{H}_{dx} + \frac{\sin \varphi}{\varphi} (\mathcal{H}^{(2)} + \mathcal{H}^{(-2)}). \quad (27)$$

Полный гамильтониан содержит кроме среднего гамильтониана (27) малые быстроосциллирующие члены, которыми можно пренебречь при временах  $t \leq T_2$ . К моменту  $t \sim T_2$  спиновая система достигает квазиравновесного состояния, описываемого матрицей плотности  $\rho_{eq}$ , которую в высокотемпературном приближении [24, 25] можно представить как

$$\rho_{eq} = Z^{-1} (1 - \beta \bar{\mathcal{H}}), \quad Z = \text{Tr}(1), \quad (28)$$

где  $\beta$  — обратная температура. Принимая во внимание, что начальная матрица плотности  $\rho_0$  в многоимпульсном спин-локинге (см. (18)) имеет вид

$$\rho_0 = Z^{-1} (1 - \beta_0 \omega_0 I_x), \quad Z = \text{Tr}(1), \quad (29)$$

где  $\beta_0$  — начальная обратная температура, из закона сохранения энергии

$$\text{Tr} \{ \rho_0 \bar{\mathcal{H}} \} = \text{Tr} \{ \rho_{eq} \bar{\mathcal{H}} \} \quad (30)$$

можно вывести соотношение

$$\frac{\beta}{\beta_0} = \omega_c \omega_0 \left[ \omega_c^2 + \left( \frac{1}{4} + \frac{3}{4} \frac{\sin^2 \varphi}{\varphi^2} \right) \omega_{loc}^2 \right]^{-1}. \quad (31)$$

В формуле (31)  $\omega_{loc}^2 = \text{Tr}(\mathcal{H}_{dx}^2)/\text{Tr}(I_x^2)$ , и из (22) следует

$$\frac{\text{Tr}(\mathcal{H}^{(2)} \mathcal{H}^{(-2)})}{\text{Tr}(I_x^2)} = \frac{3}{8} \omega_{loc}^2. \quad (32)$$

Обозначая начальную и квазиравновесную намагниченности как  $M_0$  и  $M_{eq}$ , из уравнений (28), (30), (31) можно

получить

$$\frac{M_{\text{eq}}}{M_0} = \frac{\text{Tr}(\rho_{\text{eq}} I_x)}{\text{Tr}(\rho_0 I_x)} = \omega_c^2 \left[ \omega_c^2 + \left( \frac{1}{4} + \frac{3}{4} \frac{\sin^2 \varphi}{\varphi^2} \right) \omega_{\text{loc}}^2 \right]^{-1}. \quad (33)$$

Теоретический результат (33) хорошо согласуется с экспериментальными данными [11] при временах  $t \sim T_2$ .

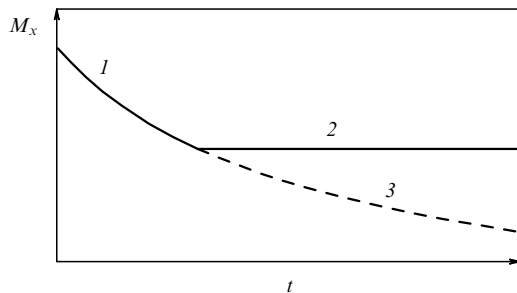
Поправки (13) к гамильтониану (27), не зависящему от времени, пропорциональны степеням малого параметра  $\varepsilon = 2\tau\omega_{\text{loc}} \ll 1$  и являются малыми. Поэтому можно полагать, что гамильтониан (27) приближённо определяет гамильтониан Флоке (см. (2)). Обобщая гипотезу Редфильда о спиновой температуре в ВСК [26], можно предположить, что в конечном счёте в системе устанавливается термодинамическое равновесие, определяемое гамильтонианом Флоке  $\mathcal{H}_F$ . Равновесная матрица плотности в высокотемпературном приближении [24, 25] имеет вид

$$\rho_{\text{eq}} = Z^{-1}(1 - \beta_{\text{eq}} \mathcal{H}_F), \quad Z = \text{Tr}(1), \quad (34)$$

где  $\beta_{\text{eq}}$  — обратная спиновая температура в равновесном состоянии. Если средний гамильтониан (27) представляет собой приближённое выражение для гамильтониана Флоке  $\mathcal{H}_F$ , то мы можем заключить, что равновесная намагниченность  $M_{\text{eq}}$ , определяемая как

$$M_{\text{eq}} = \text{Tr}\{\rho_{\text{eq}} I_n\}, \quad (35)$$

не равна нулю. (В (35)  $\mathbf{n}$  — ось квантования для гамильтониана  $\mathcal{H}_F$ .) Однако экспериментальные данные [12] показывают, что при временах  $T_2 \ll t \ll T_{1\rho}$  квазиравновесная поляризация уменьшается до нуля. Теоретический анализ, основанный на уравнениях Провоторова [27], приводит к тому же результату. Схематически эволюция намагниченности, согласно уравнениям (34), (35), и соответствующие экспериментальные данные [12] представлены на рисунке. Теоретические результаты, основанные на описании спиновой динамики в периодическом магнитном поле и термодинамических соображениях, противоречат экспериментальным данным. Этот результат впервые был получен в нашей работе [21], и в книге Абрагама и М. Гольдмана [15] он был назван парадоксом Магнуса. Такое название парадокса связано с приближённым методом определения гамильтониана Флоке с помощью разложения (13).



**Рисунок.** Схематичное изображение зависимости намагниченности  $M_x$  от времени: 1 — изменение  $M_x$  на временном интервале, предшествующем установлению равновесия (34); 2 — равновесная намагниченность (35); 3 — изменение намагниченности согласно экспериментальным данным [12].

Рассмотрим теперь причины парадокса Магнуса. Прежде всего заметим, что заданная эволюция спиновой системы в периодическом магнитном поле может быть описана разными не зависящими от времени гамильтонианами. В самом деле, пусть мы нашли по формуле (13) не зависящий от времени гамильтониан  $\mathcal{H}$ . Тогда эволюция системы на одном периоде определяется следующим образом:

$$L(t_c) = \exp(-i\tilde{\mathcal{H}}t_c). \quad (36)$$

Для произвольного направления  $\mathbf{m}$  ( $|\mathbf{m}| = 1$ ) в спиновом пространстве для спинов 1/2 имеем  $\exp(-4\pi i N \mathbf{m} \hat{S}) = 1$ , где  $N$  — целое число. Из уравнений (6)–(9) находим

$$\exp(-4\pi i N \mathbf{m} \hat{S}) \exp(-i\tilde{\mathcal{H}}t_c) = \exp\left[-i\left(\frac{4\pi N}{t_c}(\mathbf{m} \hat{S}) + \tilde{\mathcal{H}}\right)t_c\right], \quad (37)$$

где гамильтониан  $\tilde{\mathcal{H}}$  удовлетворяет уравнению

$$\text{Tr} \exp\left[-i \int_0^{t_c} \exp\left(\frac{4i\pi N}{t_c} \mathbf{m} \hat{S} t\right) \tilde{\mathcal{H}} \exp\left(-\frac{4i\pi N}{t_c} \mathbf{m} \hat{S} t\right) dt\right] = \exp(-i\tilde{\mathcal{H}}t_c). \quad (38)$$

Другая причина парадокса Магнуса связана с расхождением ряда Магнуса [10]. Можно предположить, что ряд Магнуса, который был использован для получения среднего гамильтониана (27), расходится на временах  $T_2 \ll t \ll T_{1\rho}$ . Для упрощения дальнейшего анализа предположим также, что  $\varphi \approx 2\pi/n$ , где  $n$  — чётное число, и  $|\varphi - 2\pi/n| \lesssim \varepsilon$ . При этих условиях разогрев системы при  $t \gg T_2$  в основном определяется  $n$ -спиновым резонансным процессом, когда одновременный переворот  $n$  дипольно связанных спинов ведёт к поглощению энергии, определяемой гармоникой периодического внешнего поля. Избыток (недостаток) энергии при таком перевороте  $n$  спинов компенсируется передачей части энергии в дипольный резервуар [25]. Вероятность этого процесса выражается как [20]

$$W \sim \varepsilon^n \omega_{\text{loc}} \exp\left[-\frac{(2\pi - n\varphi)^2}{6\varepsilon^2}\right]. \quad (39)$$

Из формулы (39) следует, что указанным резонансным  $n$ -спиновым процессом можно пренебречь при временах  $t \lesssim T_2$ , и гамильтониан (27) при этих временах даёт адекватное приближение гамильтониана Флоке.

Однако  $n$ -спиновым резонансным процессом нельзя пренебречь при  $t \sim W^{-1} \gg T_2$ . С другой стороны, такой резонансный процесс нельзя учесть, добавляя в (27) члены высших порядков в (13), ввиду расходимости разложения Магнуса.

Для получения приближённого не зависящего от времени гамильтониана, описывающего динамику системы при временах  $t \sim W^{-1}$ , перейдём в систему координат, вращающуюся с частотой  $\pi/(n\tau)$  вокруг оси  $x$  использованной выше ВСК, и проведём усреднение согласно предыдущей схеме. Тогда средний гамильтониан  $\mathcal{H}'_0$  примет вид

$$\mathcal{H}'_0 = \left(\frac{\varphi}{2\tau} - \frac{\pi}{n\tau}\right) I_x - \frac{1}{2} \mathcal{H}_{dx}. \quad (40)$$

К моменту  $t \sim W^{-1}$  спиновая система достигает квазиравновесного состояния,

$$\rho'_{qe} = \frac{1}{Z}(1 - \alpha'_{qe} \mathcal{H}'_0), \quad Z = \text{Tr}(1), \quad (41)$$

где  $\alpha'_{qe}$  — соответствующая обратная спиновая температура. Легко проверить, что квазиравновесное состояние (41) приводит к меньшей квазиравновесной намагниченности, чем квазиравновесное состояние (28). Поэтому медленное затухание намагниченности при временах  $T_{1\rho} \geq t \geq T_2$ , которое легко объясняется уравнениями Провоторова [27], может быть также описано с помощью гамильтониана Флоке. В этом подходе затухание намагниченности объясняется перестройкой квазиравновесных состояний. В частности, квазиравновесное состояние (28) в системе при временах  $t \approx T_2$  в рассматриваемом случае перестраивается при  $t \approx W^{-1}$  в квазиравновесное состояние (41).

### 3. Запутанность в системе двух (трёх) спинов, связанных диполь-дипольным взаимодействием, в многоимпульсном спин-локинге

С другим примером парадокса Магнуса мы сталкиваемся при исследовании запутанности [28] в системе, состоящей из двух (трёх) спинов, связанных ДДВ, в многоимпульсном спин-локинге [13, 14]. Вместо импульсной последовательности (18) мы рассмотрим здесь такую последовательность:

$$P_{-y}^{90^\circ} - \tau - (P_x^{90^\circ} - a\tau - P_x^{90^\circ} - 2\tau)^N, \quad (42)$$

где  $a$  — свободный параметр. В стандартном базисе  $|00\rangle, |01\rangle, |10\rangle, |11\rangle$ , используемом для решения задач квантовой информатики в двухспиновых системах [28], матричное представление гамильтониана (17) имеет вид

$$\mathcal{H}_{dz} = \frac{d_{12}}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & -1 & 0 \\ 0 & -1 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (43)$$

После подготовительного импульса в момент времени  $t = 0$  матрица плотности системы  $\rho_0$  для произвольной температуры приобретает вид

$$\rho_0 = \frac{1}{Z} \exp(\beta I_x), \quad \beta = \frac{\hbar\omega_0}{k_B T}, \quad Z = 4 \cosh^2 \frac{\beta}{2}. \quad (44)$$

При воздействии на систему импульсной последовательности (42), как и в [13, 14], анизотропные ДДВ описываются гамильтонианами  $\mathcal{H}_{dz}$  и  $\mathcal{H}_{dy}$ ,

$$\mathcal{H}_{dy} = d_{12}(3I_{1y}I_{2y} - \mathbf{I}_1\mathbf{I}_2). \quad (45)$$

В результате оператор эволюции системы за один период импульсной последовательности  $U((a+2)\tau)$  примет вид

$$U((a+2)\tau) = \exp(-i\tau\mathcal{H}_{dz}) \exp(-a\tau\mathcal{H}_{dy}) \exp(-i\tau\mathcal{H}_{dz}), \quad (46)$$

а матрица плотности системы  $\rho((a+2)\tau)$  после эволюции может быть представлена как

$$\rho((a+2)\tau) = U((a+2)\tau)\rho_0U^+((a+2)\tau). \quad (47)$$

Аналогично матрица плотности  $\rho((a+2)M\tau)$  после  $M$  периодов импульсной последовательности (42) может быть выражена в виде

$$\rho((a+2)M\tau) = U((a+2)M\tau)\rho_0U^+((a+2)M\tau). \quad (48)$$

Простые вычисления позволяют найти, что

$$\exp(-i\tau\mathcal{H}_{dz}) = \begin{pmatrix} e^{-it/2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1+e^{it}}{2} & \frac{e^{it}-1}{2} & 0 \\ 0 & \frac{e^{it}-1}{2} & \frac{1+e^{it}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-it/2} \end{pmatrix},$$

$$\exp(-ia\tau\mathcal{H}_{dy}) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} e^{-iat/2} + e^{iat} & 0 & 0 & e^{iat} - e^{-iat/2} \\ 0 & 1 + e^{-iat/2} & e^{-iat/2} - 1 & 0 \\ 0 & e^{-iat/2} - 1 & 1 + e^{-iat/2} & 0 \\ e^{iat} - e^{-iat/2} & 0 & 0 & e^{-iat/2} + e^{iat} \end{pmatrix}. \quad (49)$$

В матрицах (49)  $t = \tau d_{12}$  — безразмерное время. Используя (49), можно получить матричное представление оператора эволюции  $U((a+2)\tau)$ :

$$U((a+2)\tau) = \frac{1}{2} \times \begin{pmatrix} e^{-i\frac{a+2}{2}t} + e^{i(a-1)t} & 0 & 0 & -e^{-i\frac{a+2}{2}t} + e^{i(a-1)t} \\ 0 & 1 + e^{-i\frac{a-4}{2}t} & e^{-i\frac{a-4}{2}t} - 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{a-4}{2}t} - 1 & 1 + e^{-i\frac{a-4}{2}t} & 0 \\ -e^{-i\frac{a+2}{2}t} + e^{i(a-1)t} & 0 & 0 & e^{-i\frac{a+2}{2}t} + e^{i(a-1)t} \end{pmatrix}. \quad (50)$$

Матрица (50) является центрально-симметричной (ЦС) ( $u_{ij} = u_{5-i,5-j}$ ,  $i, j = 1, 2, 3, 4$ ) [29], и с помощью ортогонального преобразования

$$G = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (51)$$

она может быть разбита на два блока размерностью  $2 \times 2$ . В результате можно получить аналитическое выражение для матричного представления  $\rho((a+2)M\tau)$  после  $M$  периодов импульсной последовательности (42),

$$\rho((a+2)M\tau) = U((a+2)M\tau)\rho_0U^+((a+2)M\tau) = \frac{1}{8 \cosh^2(\beta/2)} \times \begin{pmatrix} 2 \cosh^2 \frac{\beta}{2} & \sinh \beta e^{i\frac{3a-6}{2}M\tau} & \sinh \beta e^{i\frac{3a-6}{2}M\tau} & 2 \sinh^2 \frac{\beta}{2} \\ \sinh \beta e^{-i\frac{3a-6}{2}M\tau} & 2 \cosh^2 \frac{\beta}{2} & 2 \sinh^2 \frac{\beta}{2} & \sinh \beta e^{-i\frac{3a-6}{2}M\tau} \\ \sinh \beta e^{-i\frac{3a-6}{2}M\tau} & 2 \sinh^2 \frac{\beta}{2} & 2 \cosh^2 \frac{\beta}{2} & \sinh \beta e^{-i\frac{3a-6}{2}M\tau} \\ 2 \sinh^2 \frac{\beta}{2} & \sinh \beta e^{i\frac{3a-6}{2}M\tau} & \sinh \beta e^{i\frac{3a-6}{2}M\tau} & 2 \cosh^2 \frac{\beta}{2} \end{pmatrix}. \quad (52)$$

Матрица плотности (52) также является ЦС-матрицей. Запутанность в системе существует, если согласованность [30] положительна. Для вычисления согла-

сованности надо найти матрицу  $\tilde{\rho}((a+2)M\tau) = (\sigma_y \otimes \sigma_y) \rho^* (\sigma_y \otimes \sigma_y)$ , где  $\sigma_y$  — матрица Паули. Согласованность определяется [30] с помощью квадратных корней из собственных чисел произведения матриц  $\rho((a+2)M\tau)\tilde{\rho}((a+2)M\tau)$ . Учитывая, что произведение ЦС-матриц снова даёт ЦС-матрицу, можно получить [29] для квадратных корней из её собственных чисел следующие формулы:

$$\lambda_1 = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2} \sqrt{\left(1 + \tanh^2 \frac{\beta}{2}\right)^2 - 4 \tanh^2 \frac{\beta}{2} \cos^2 \left(\frac{3a-6}{2} Mt\right)} + \tanh \frac{\beta}{2} \left| \sin \left(\frac{3a-6}{2} Mt\right) \right| \right\}, \quad (53)$$

$$\lambda_2 = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{2} \sqrt{\left(1 + \tanh^2 \frac{\beta}{2}\right)^2 - 4 \tanh^2 \frac{\beta}{2} \cos^2 \left(\frac{3a-6}{2} Mt\right)} - \tanh \frac{\beta}{2} \left| \sin \left(\frac{3a-6}{2} Mt\right) \right| \right\}, \quad (54)$$

$$\lambda_3 = \lambda_4 = \frac{1 - \tanh^2(\beta/2)}{4}. \quad (55)$$

Используя формулы (53)–(55), получаем для согласованности [30]

$$C = \max \{0, 2\lambda_{\max} - \lambda_1 - \lambda_2 - \lambda_3 - \lambda_4\}, \quad (56)$$

где  $\lambda_{\max} = \max \{\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \lambda_4\}$ , следующее выражение:

$$C = \max \left\{ 0, \tanh \frac{\beta}{2} \left| \sin \left(\frac{3a-6}{2} Mt\right) \right| - \frac{1 - \tanh^2(\beta/2)}{2} \right\}. \quad (57)$$

Запутанность в рассматриваемой задаче возникает при критической температуре  $T_{cr}$ ,

$$T_{cr} = \frac{\hbar\omega_0}{k_B |\ln(\sqrt{2}-1)|}, \quad (58)$$

и появляется в моменты времени

$$t = \frac{\pi + 2\pi n}{3|a-2|}, \quad (59)$$

где  $n$  — неотрицательное число. Подчеркнём, что в начальный момент времени  $t = 0$  запутанность в системе отсутствует.

До сих пор анализ запутанности проводился точными методами, без каких-либо приближений. Однако решение этой задачи можно провести методом, изложенным в разделе 2, опираясь на приближённое вычисление гамильтониана Флоке (среднего гамильтониана). Средний гамильтониан для этой системы при  $2\pi/(a+2)\tau \gg \omega_{loc}$  имеет вид

$$\bar{\mathcal{H}} = \frac{2}{2+a} \mathcal{H}_{dz} + \frac{a}{2+a} \mathcal{H}_{dy}. \quad (60)$$

В случае  $N = 2$  гамильтонианы  $\mathcal{H}_{dz}$  и  $\mathcal{H}_{dy}$  коммутируют, следовательно, все поправки (15), (16) к гамильтониану (60) обращаются в нуль. Поэтому вычисления, использующие средний гамильтониан (60) (гамильтониан Флоке), дают те же результаты, что и полученные с помощью приведённого выше точного решения.

Однако при  $N > 2$  гамильтонианы  $\mathcal{H}_{dz}$  и  $\mathcal{H}_{dy}$ , вообще говоря, уже не коммутируют и поправочные члены (15), (16) к среднему гамильтониану (60) не обращаются в нуль. К сожалению, при  $N > 2$  исследовать запутанность аналитическими методами не удаётся. Проведённое нами численное исследование запутанности двухспиновой и односпиновой подсистем в трёхспиновой системе ( $N = 3$ ) показывает, что результаты, полученные без использования среднего гамильтониана (60), отличаются от результатов с его использованием. В частности, в последнем случае при эволюции системы запутанные состояния возникают при временах, которые отличаются от полученных при вычислениях без использования среднего гамильтониана (60). Эти результаты могут рассматриваться как проявление того же парадокса Магнуса, исследованного в разделе 2.

#### 4. Заключение

Разложение Магнуса [9] для гамильтониана Флоке позволяет эффективно исследовать задачи спиновой динамики в периодических магнитных полях. Из многих важных результатов, полученных с помощью разложения Магнуса [9], мы особо отметим создание методов ядерного магнитного резонанса (ЯМР) высокого разрешения в твёрдых телах [31, 32], результаты экспериментов с обращением времени [33], а также создание многоквантового ЯМР-метода [34, 35]. Недавние работы [36, 37] указывают на связь рассмотренных в статье идей с физикой топологических материалов.

В то же время расходимость разложения Магнуса [10] и неоднозначность гамильтониана Флоке ведут к парадоксам, которые необходимо учитывать при теоретическом анализе динамики спиновых систем в периодических магнитных полях. В настоящей статье выявлены физические причины этих парадоксов. Они связаны с многоспиновыми резонансными процессами поглощения энергии внешних магнитных полей. Эти процессы ведут к перестройкам квазиравновесных состояний в процессе эволюции системы.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант 16-03-00056) и программой 1.26 президиума РАН "Электронный спиновый резонанс, спин-зависимые электронные эффекты и спиновые технологии" (грант 0089-2015-0191).

#### Список литературы

1. Боголюбов Н Н, Митропольский Ю А *Асимптотические методы в теории нелинейных колебаний* (М.: Физматгиз, 1958); Пер. на англ. яз.: Bogoliubov N N, Mitropolsky Yu A *Asymptotic Methods in the Theory of Non-Linear Oscillations* (New York: Gordon and Breach, 1961)
2. Floquet A-M *G Ann. Sci. Ecole Norm. Super.* 2 **12** 47 (1883)
3. Slichter C P *Principles of Magnetic Resonance, with Examples from Solid State Physics* (New York: Happer and Row, 1963)
4. Haeblerlen U, Waugh J S *Phys. Rev.* **175** 453 (1968)
5. Провоторов Б Н, Фельдман Э Б *ЖЭТФ* **79** 2206 (1980); Provotorov B N, Fel'dman E B *Sov. Phys. JETP.* **52** 1116 (1980)
6. Буишвили Л Л, Волжан Е Б, Менабде М Г *ТМФ* **46** 251 (1981); Buishvili L L, Volzhan E B, Menabde M G *Theor. Math. Phys.* **46** 166 (1981)
7. Maricq M M *Phys. Rev. B* **25** 6622 (1982)
8. Боднева В Л, Милютин А А, Фельдман Э Б *ЖЭТФ* **92** 1376 (1987); Bodneva V L, Milyutin A A, Fel'dman E B *Sov. Phys. JETP* **65** 773 (1987)
9. Magnus W *Commun. Pure Appl. Math.* **7** 649 (1954)

10. Fel'dman E B *Phys. Lett. A* **104** 479 (1984)
11. Ерофеев Л Н, Шумм Б А *Письма в ЖЭТФ* **27** 161 (1978); Erofeev L N, Shumm B A *JETP Lett.* **27** 149 (1978)
12. Ерофеев Л Н, Шумм Б А, Манелис Г Б *ЖЭТФ* **75** 1837 (1978); Erofeev L N, Shumm B A, Manelis G B *Sov. Phys. JETP* **48** 925 (1978)
13. Ostroff E D, Waugh J S *Phys. Rev. Lett.* **16** 1097 (1966)
14. Mansfield P, Ware D *Phys. Lett.* **22** 133 (1966)
15. Abragam A, Goldman M *Nuclear Magnetism: Order and Disorder* (Oxford: Clarendon Press, 1982)
16. Blanes S et al. *J. Phys. A* **31** 259 (1998)
17. Fernández F M *Phys. Rev. A* **41** 2311 (1990)
18. Klarsfeld S, Oteo J A *Phys. Lett. A* **142** 393 (1989)
19. Mananga E S, Charpentier T *Chem. Phys.* **450–451** 83 (2015)
20. Иванов Ю Н, Провоторов Б Н, Фельдман Э Б *ЖЭТФ* **75** 1847 (1978); Ivanov Yu N, Provotorov B N, Fel'dman E B *Sov. Phys. JETP* **48** 930 (1978)
21. Иванов Ю Н, Провоторов Б Н, Фельдман Э Б *Письма в ЖЭТФ* **27** 164 (1978); Ivanov Y N, Provotorov B N, Feldman E B *JETP Lett.* **27** 153 (1978)
22. Waugh J S, Wang C H *Phys. Rev.* **162** 209 (1967)
23. Mansfield P, Ware D *Phys. Rev.* **168** 318 (1968)
24. Abragam A *The Principles of Nuclear Magnetism* (Oxford: Clarendon Press, 1961)
25. Goldman M *Spin Temperature and Nuclear Magnetic Resonance in Solids* (Oxford: Clarendon Press, 1970)
26. Redfield A G *Phys. Rev.* **98** 1787 (1955)
27. Провоторов Б Н *ЖЭТФ* **41** 1582 (1962); Provotorov B N *Sov. Phys. JETP* **14** 1126 (1962)
28. Nielsen M A, Chuang I L *Quantum Computation and Quantum Information* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2000)
29. Fel'dman E B, Kuznetsova E I, Yurishchev M A *J. Phys. A* **45** 475304 (2012)
30. Wootters W K *Phys. Rev. Lett.* **80** 2245 (1998)
31. Haeberlen U *High Resolution NMR in Solids. Selective Averaging* (New York: Academic Press, 1976)
32. Mehring M *High Resolution NMR Spectroscopy in Solids* (Berlin: Springer-Verlag, 1976)
33. Rhim W-K, Pines A, Waugh J S *Phys. Rev. B* **3** 684 (1971)
34. Vaum J et al. *J. Chem. Phys.* **83** 2015 (1985)
35. Доронин С И, Максимов И И, Фельдман Э Б *ЖЭТФ* **118** 687 (2000); Doronin S I, Maksimov I I, Fel'dman E B *JETP* **91** 597 (2000)
36. Lindner N H, Refael G, Galitski V *Nature Phys.* **7** 490 (2011)
37. Rechtsman M C et al. *Nature* **496** 196 (2013)

### Magnus expansion paradoxes in the study of equilibrium magnetization and entanglement in multi-pulse spin locking

E.I. Kuznetsova, E.B. Fel'dman

*Institute of Problems of Chemical Physics, Russian Academy of Sciences, prosp. Akademika Semenova 1, 142432 Chernogolovka, Moscow region, Russian Federation*  
E-mail: kuznets@icp.ac.ru, efeldman@icp.ac.ru

D.E. Feldman

*Department of Physics, Brown University, Providence, Rhode Island 02912, USA*  
E-mail: dmitri\_feldman@brown.edu

Divergence of the Magnus expansion leads to paradoxes in the spin dynamics of solid-state NMR and in quantum informatics. This review presents results on quasi-equilibrium magnetization in a system of dipole-dipole (DD) coupled spins at times  $T_2 \ll t \ll T_{1\rho}$  in multiple pulse spin locking ( $T_2$  is the transverse spin relaxation time, and  $T_{1\rho}$  is the rotating-frame spin-lattice relaxation time). It is shown how the contradictions between the results obtained with the Magnus expansion and experimental data can be removed. Systems of two and three DD coupled spins in multi-pulse spin locking are considered and the entanglement evolution is investigated using both the Magnus expansion and the exact solution obtained. The critical temperature for an entangled state is also found.

**Keywords:** Floquet theorem, Floquet Hamiltonian, Magnus expansion, Magnus paradox, multi-pulse spin locking, average Hamiltonian theory, concurrence, quantum entanglement

PACS numbers: **03.65**, – w, **03.67**.Mn, **76.60**, – k

Bibliography — 37 references

Received 29 February 2016

*Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **186** (6) 647–653 (2016)

*Physics – Uspekhi* **59** (6) (2016)

DOI: 10.3367/UFNr.2016.02.037753

DOI: 10.3367/UFNe.2016.02.037753