Письма в ЖЭТФ, том 121, вып. 7, с. 600 – 604 © 2025 г. 10 апреля

Квантовая запутанность в квазиравновесных состояниях в многоимпульсном спиновом локинге ЯМР

Г. А. Бочкин[1)], *С. Г. Васильев*, *Е. И. Кузнецова*, *Э. Б. Фельдман*

Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 18 февраля 2025 г.
После переработки 26 февраля 2025 г.
Принята к публикации 26 февраля 2025 г.

Квантовая запутанность изучена в многоимпульсном спиновом локинге ядерного магнитого резонанса, когда система спинов, связанных диполь-дипольным взаимодействием в сильном магнитном поле, облучается периодической многоимпульсной последовательностью резонансных высокочастотных φ-импульсов с одинаковыми задержками 2τ между последовательными импульсами. При временах $t \sim T_2$ ($T_2 \approx \omega_{\rm loc}^{-1}$, $\omega_{\rm loc}$ определяется диполь-дипольным взаимодействием) в системе устанавливается квазиравновесие, структура которого зависит от соотношения импульсного поля $\omega_1 = \varphi/2\tau$ и $\omega_{\rm loc}$. При $\omega_1 \lessapprox \omega_{\rm loc}$ устанавливается однотемпературное квазиравновесное состояние, а при $\omega_1 \gg \omega_{\rm loc}$ возникает квазиравновесие с дипольной и зеемановской температурами. Исследована зависимость запутанности от температуры в случае $\omega_1 \lessapprox \omega_{\rm loc}$. При $\omega_1 \gg \omega_{\rm loc}$ дальнейшая эволюция системы определяется уравнениями Провоторова и ведет к выравниванию дипольной и зеемановской температур. Показано, что в этом случае запутанность отсутствует.

DOI: 10.31857/S0370274X25040096, EDN: ARBZBW

1. Введение. Многоимпульсный спиновый локинг [1, 2] является одним из эффективных методов исследования спин-решеточной релаксации в твердых телах. От начального состояния, задаваемого поляризацией, происходит эволюция системы к квазиравновесию связанных диполь-дипольным взаимодействием (ДДВ) спинов, которое устанавливается на временах порядка $\omega_{\rm loc}^{-1}$, определяемых ДДВ. Структура установившегося квазиравновесия зависит от соотношения между эффективным полем $\omega_1 = \varphi/2\tau$ и ω_{loc}, где φ – угол, на который поворачиваются спины во вращающейся с ларморовской частотой системе координат (ВСК) [3] в результате действия резонансного φ-импульса, а 2τ – задержка между последовательными импульсами. При $\omega_1 \lessapprox \omega_{\rm loc}$ установившееся квазиравновесие описывается одной температурой [2, 4], а при $\omega_1 \gg \omega_{\rm loc}$ квазиравновесное состояние определяется двумя температурами, зеемановской и дипольной [4]. При этом при временах $t \gg \omega_{\rm loc}^{-1}$ изменение температур описывается уравнениями Провоторова [5], которые ведут к их выравниванию при больших временах.

Следует отметить, что начальное состояние системы, определяемое только поляризацией, является сепарабельным [6]. Однако в процессе установления квазиравновесия возникают квантовые корреляции [7] и появляется возможность их исследования. В частности, можно исследовать квантовую запутанность, анализируя квазиравновесные состояния. Не исключается также проявление квантовой запутанности в многоспиновых процессах, ведущих к выравниванию зеемановской и дипольной температур согласно уравнениям Провоторова.

Квазитермодинамический подход к задаче многоимпульсного спинового локинга основан на применении методов статистической физики [4, 8]. Следует, однако, подчеркнуть, что термодинамические свойства многоспиновых систем тесно связаны с квантовой динамикой системы. Современные идеи квантовой информатики позволяют рассматривать многочастичную квантовую динамику на более глубоком уровне, используя понятие запутанности [6].

Настоящее письмо организовано следующим образом. В разделе 2 изучена запутанность в квазиравновесном состоянии при $\omega_1 \lessapprox \omega_{\rm loc}$ и найдена критическая температура, при которой возникает квантовая запутанность. В разделе 3 исследована запутанность в квазиравновесном состоянии при $\omega_1 \gg \omega_{\rm loc}$ и показано, что она отсутствует. В заключении (раздел 4) сформулированы основные полученные результаты.

2. Запутанность в квазиравновесии при $\omega_1 \lessapprox \omega_{\rm loc}$. Рассмотрим простейший многоимпульсный эксперимент [1, 2], в котором система спинов

[1)]e-mail: bochkin.g@yandex.ru

($s = 1/2$), связанных ДДВ, облучается импульсной последовательностью $90^\circ_y - \tau - (\varphi - 2\tau)^n$, где φ означает импульс, поворачивающий спины на угол φ вокруг оси x во вращающейся с ларморовской частотой системе координат (ВСК) [3], а 2τ – задержка между импульсами. Уравнение для матрицы плотности системы $\rho(t)$ имеет вид

$$i\frac{d\rho}{dt} = \left[-f(t)I_x + H_{dz}, \rho(t)\right], \tag{1}$$

где $f(t)$ – импульсная функция, определяемая формулой

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

а H_{dz} – секулярная часть ДДВ относительно оси z, которую удобно выразить через секулярную часть H_{dx} и несекулярные части $H_d^{(2)}$ и $H_d^{(-2)}$ относительно оси x ВСК, которая далее рассматривается как новая ось квантования [8]:

$$H_{dz} = -\frac{1}{2}H_{dx} + H_d^{(2)} + H_d^{(-2)}. \tag{3}$$

В формуле (3)

$$H_{dx} = \sum_{k<j}\left[d_{kj}[2I_{kx}I_{jx} - \frac{1}{2}(I_k^+ I_j^- + I_k^- I_j^+)]\right],$$
$$H_d^{(\pm 2)} = -\frac{3}{4}\sum_{k<j} d_{kj} I_k^{\pm} I_j^{\pm}, \tag{4}$$

где $I_{k\alpha}$ – оператор проекции спинового момента ядра k на ось α ($\alpha = x, y, z$), $I_k^{\pm} = I_{zk} \pm iI_{yk}$, $I_x = \sum_k I_{xk}$, d_{kj} – константа ДДВ спинов k и j. Переходя в представление взаимодействия по импульсной части (1) [4, 8]

$$\rho^*(t) = \exp\left\{-i\left(\int_0^t f(t')dt' - \omega_1 t\right) I_x\right\}\rho(t) \times$$
$$\times \exp\left\{i\left(\int_0^t f(t')dt' - \omega_1 t\right) I_x\right\}, \tag{5}$$

и пренебрегая быстро осциллирующими членами с частотами $\frac{\pi n}{\tau}$ ($n = \pm 1, \pm 2, \ldots$), получим уравнение для матрицы плотности $\rho^*(t)$:

$$i\frac{d\rho^*(t)}{dt} = [H_{qe}, \rho^*(t)], \tag{6}$$

где

$$H_{qe} = -\omega_1 I_x - \frac{1}{2}H_{dx} + \frac{\sin\varphi}{\varphi}\left(H_d^{(2)} + H_d^{(-2)}\right). \tag{7}$$

При $\omega_1 \lessapprox \omega_{\text{loc}}$, где ω_{loc} – локальная частота ДДВ, и $\varphi \neq \pi/2$ [9] на временах $t \sim \frac{1}{\omega_{\text{loc}}}$ в системе устанавливается квазиравновесие, определяемое квазиравновесной матрицей плотности

$$\rho_{qe} = \frac{1}{Z}e^{-\alpha_{qe}H_{qe}}, \tag{8}$$

где α_{qe} обратно пропорциональна температуре.

Матрица плотности начального состояния определяется только зеемановскими взаимодействиями и является сепарабельной [7]. Квантовые корреляции, включая запутанность, в системе в начальный момент времени отсутствовали и возникают в процессе формирования квазиравновесного состояния на временах $t \sim \frac{1}{\omega_{\text{loc}}}$.

Для исследования квантовой запутанности квазиравновесного состояния (8) проведем редукцию [10] матрицы плотности (8) по всем спинам, кроме спинов 1 и 2. Квантовая запутанность в двухкубитной матрице $\overline{\rho}_{qe}$ может быть исследована стандартными методами [7]. Нетрудно найти, что собственные числа двухкубитного гамильтониана $\overline{H}_{qe}$, полученного в результате редукции (7), равны

$$\lambda_1 = -a + \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2},\ \lambda_2 = -a - \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2},$$
$$\lambda_3 = 2a, \lambda_4 = 0, \tag{9}$$

где $a = \frac{1}{4}d_{12} = \frac{1}{4}d$, $b = 3\frac{\sin\varphi}{\varphi}$. Редуцированная матрица плотности может быть записана в виде:

$$\overline{\rho}_{qe} = \frac{1}{\overline{\overline{Z}}}\begin{bmatrix} x_1^2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_1^2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_2} & 0 & 0 & x_1x_2e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_1y_2e^{-\alpha_{qe}\lambda_2} \\ 0 & \frac{1}{2}(e^{-2\alpha_{qe}a} + 1) & \frac{1}{2}(e^{-2\alpha_{qe}a} - 1) & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}(e^{-2\alpha_{qe}a} - 1) & \frac{1}{2}(e^{-2\alpha_{qe}a} + 1) & 0 \\ x_1x_2e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_1y_2e^{-\alpha_{qe}\lambda_2} & 0 & 0 & x_2^2e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_2^2e^{-\alpha_{qe}\lambda_2}, \end{bmatrix} \tag{10}$$

где

$$\overline{Z} = e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + e^{-\alpha_{qe}\lambda_2} + e^{-2\alpha_{qe}a} + 1. \qquad (11)$$

Параметры x_1, x_2, y_1, y_2 определяются следующим образом:

$$\begin{aligned} x_1 &= \frac{ab}{\sqrt{a^2b^2 + (\omega_1 + \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2})^2}}, \\ x_2 &= \frac{\omega_1 + \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2}}{\sqrt{a^2b^2 + (\omega_1 + \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2})^2}}, \\ y_1 &= \frac{ab}{\sqrt{a^2b^2 + (\omega_1 - \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2})^2}}, \\ y_2 &= \frac{\omega_1 - \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2}}{\sqrt{a^2b^2 + (\omega_1 - \sqrt{\omega_1^2 + a^2b^2})^2}}. \end{aligned} \qquad (12)$$

Для определения согласованности [11, 12], описывающей квантовую запутанность [7], в состоянии с матрицей плотности (8) необходимо исследовать спектр оператора

$$R = (\sigma_{1y} \otimes \sigma_{2y})\overline{\rho}_{qe}(\sigma_{1y} \otimes \sigma_{2y})\overline{\rho}_{qe}, \qquad (13)$$

где σ_{ky} – матрицы Паули спина k $(k = 1, 2)$, а также учтено, что матрица плотности $\overline{\rho}_{qe}$ – действительна. Стандартные вычисления позволяют найти спектр оператора R, который можно представить следующим образом:

$$\begin{aligned} \sqrt{\mu_1} &= \sqrt{a_1a_3} + a_2, \\ \sqrt{\mu_2} &= \left|\sqrt{a_1a_3} - a_2\right|, \\ \sqrt{\mu_3} &= e^{-2\alpha_{qe}a}, \sqrt{\mu_4} = 1, \end{aligned} \qquad (14)$$

где

$$\begin{aligned} a_1 &= x_1^2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_1^2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_2}, \\ a_2 &= x_1x_2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_1y_2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_2}, \\ a_3 &= x_2^2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_1} + y_2^2 e^{-\alpha_{qe}\lambda_2}. \end{aligned} \qquad (15)$$

Квантовая запутанность определяется формулой Вуттерса [12] для согласованности C:

$$C = \max\{0, 2\sqrt{\mu_{\max}} - \sqrt{\mu_1} - \sqrt{\mu_2} - \sqrt{\mu_3} - \sqrt{\mu_4}\}, \quad (16)$$

где $\mu_{\max} = \max\{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4\}$.

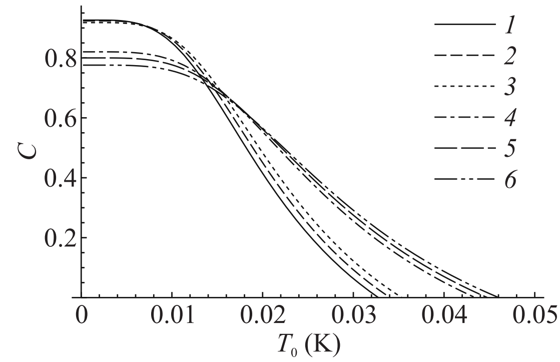

Рис. 1. Зависимость согласованности от температуры при различных значениях угла поворота φ спинов импульсами и безразмерной частоты ω_1/d ($d = 4a$ – константа ДДВ соседних спинов). *1* – $\varphi = \frac{\pi}{8}$, $\frac{\omega_1}{a} = 1$; *2* – $\varphi = \frac{\pi}{4}$, $\frac{\omega_1}{a} = 1$; *3* – $\varphi = \frac{\pi}{3}$, $\frac{\omega_1}{a} = 1$; *4* – $\varphi = \frac{\pi}{8}$, $\frac{\omega_1}{a} = 2$; *5* – $\varphi = \frac{\pi}{4}$, $\frac{\omega_1}{a} = 2$; *6* – $\varphi = \frac{\pi}{3}$, $\frac{\omega_1}{a} = 2$

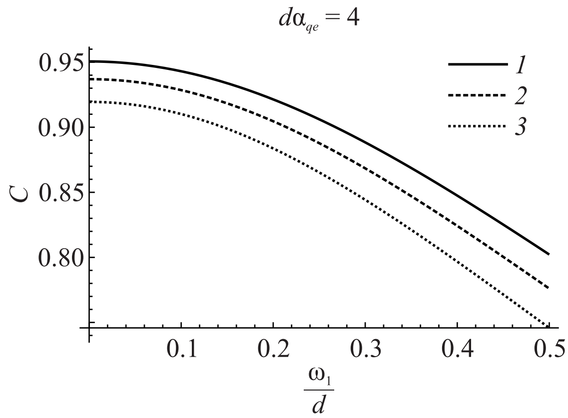

Рис. 2. Зависимость согласованности от безразмерной частоты ω_1/d (d – константа ДДВ соседних спинов) при различных углах поворота φ. *1* – $\varphi = \frac{\pi}{8}$; *2* – $\varphi = \frac{\pi}{4}$; *3* – $\varphi = \frac{\pi}{3}$

Простой анализ формул (14), (16) дает:

$$C = \begin{cases} 2a_2 - e^{-2\alpha_{qe}a} - 1, \\ \text{если } \sqrt{a_1a_3} + a_2 > 1 \text{ и } \sqrt{a_1a_3} > a_2 \\ 2\sqrt{a_1a_3} - e^{-2\alpha_{qe}a} - 1, \\ \text{если } \sqrt{a_1a_3} + a_2 > 1 \text{ и } \sqrt{a_1a_3} < a_2 \\ 1 - 2\sqrt{a_1a_3} - e^{-2\alpha_{qe}a}, \\ \text{если } \sqrt{a_1a_3} + a_2 < 1 \text{ и } \sqrt{a_1a_3} > a_2 \\ 1 - 2a_2 - e^{-2\alpha_{qe}a}, \\ \text{если } \sqrt{a_1a_3} + a_2 < 1 \text{ и } \sqrt{a_1a_3} < a_2. \end{cases} \qquad (17)$$

В рассматриваемой задаче гамильтониан H_{qe} (7) является интегралом движения:

$$\mathrm{Tr}\{H_{qe}\rho_0\} = \mathrm{Tr}\{H_{qe}\rho_{qe}\}, \qquad (18)$$

где ρ_0 – начальная матрица плотности при $t = 0$:

$$\rho_0 = \frac{1}{Z_0} e^{\alpha_0 \omega_0 I_x},\ Z_0 = \mathrm{Tr} e^{\alpha_0 \omega_0 I_x}. \tag{19}$$

Численное решение (18) при известных параметрах φ, ω_1 и ω_0 в системе, состоящей из 14 спинов, позволяет найти параметр α_{qe} и определить согласованность C, а значит, и квантовую запутанность. Рассматриваемая 14-спиновая система представляет собой однородную цепочку спинов, ориентированную вдоль внешнего магнитного поля, что дает максимальную константу ДДВ ближайших соседей d. Дипольная частота ω_{loc}, определяемая формулой $\omega_{\mathrm{loc}}^2 = Tr(H_{dz}^2)/Tr(I_z^2)$, для этой системы равна приблизительно $1.19d$. На рисунке 1 представлена температурная зависимость согласованности при различных значениях φ, ω_1 и $\omega_0 = 2\pi \cdot 500 \cdot 10^6\,\mathrm{c}^{-1}$. Важнейший результат рис. 1 состоит в том, что существует критическая температура, слабо зависящая от параметров φ и ω_1, приблизительно равная $T_{cr} \approx 40$ мК, выше которой согласованность (запутанность) отсутствует. Полученная критическая температура исчезновения запутанности близка к оценке T_{cr} в многоквантовом эксперименте ядерного магнитного резонанса (ЯМР), где $T_{cr} \approx 27$ мК [13]. На рисунке 2 представлена зависимость согласованности от частоты ω_1 при различных значениях угла поворота φ спинов импульсами. Все параметры выбраны так, чтобы выполнялось условие $\omega_1 \lessapprox \omega_{\mathrm{loc}}$. Из рисунка 2 видно, что запутанность незначительно изменяется при уменьшении угла φ.

3. Запутанность в квазиравновесной системе при $\boldsymbol{\omega_1 \gg \omega_{\mathrm{loc}}}$. При $\omega_1 \gg \omega_{\mathrm{loc}}$ на временах порядка $T_2 \sim \frac{1}{\omega_{\mathrm{loc}}}$ устанавливается двухтемпературное квазиравновесное состояние

$$\rho_{qe} = \frac{1}{Z} e^{-[-\alpha_{qe}(t)\omega_1 I_x - \frac{1}{2}\beta_{qe}(t) H_{dx}]}, \tag{20}$$

где эволюция зеемановского резервуара $\alpha_{qe}(t)$ и дипольного резервуара $\beta_{qe}(t)$ определяется при $t \gg T_2$ уравнениями Провоторова и ведет, в конечном счете, к выравниванию зеемановской и дипольной температур.

Редуцированную матрицу плотности в рассматриваемом случае можно представить в виде

$$\overline{\rho}_{qe} = \frac{1}{\overline{\overline{Z}}} \begin{bmatrix} e^{\alpha_{qe}(t)\omega_1 + \beta_{qe} a} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}(e^{-2\beta_{qe}(t)a}+1) & \frac{1}{2}(e^{-2\beta_{qe}(t)a}-1) & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}(e^{-2\beta_{qe}(t)a}-1) & \frac{1}{2}(e^{-2\beta_{qe}(t)a}+1) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-\alpha_{qe}(t)\omega_1 + \beta_{qe} a}. \end{bmatrix} \tag{21}$$

Исследование согласованности в этом случае на основе (13) показывает, что в этом случае согласованность всегда равна нулю, т.е. запутанности нет (система сепарабельна). Причина этого – сильное зеемановское поле ω_1, значительно превышающее ω_{loc} и подавляющее запутанность, которая могла бы возникнуть под действием ДДВ.

4. Заключение. В работе изучена квантовая запутанность в квазиравновесных состояниях в многоимпульсном спиновом локинге. Показано, что при $\omega_1 \lessapprox \omega_{\mathrm{loc}}$ в квазиравновесном состоянии возникает запутанность, когда температура системы не превышает $T_{cr} \approx 40$ мК. В случае же $\omega_1 \gg \omega_{\mathrm{loc}}$ в возникающем двухтемпературном квазиравновесном состоянии запутанность отсутствует (система сепарабельна), что связано с действием в этом случае сильного зеемановского поля.

Отметим, что спиновая динамика в многоквантовых экспериментах ЯМР в твердых телах [13–16], как и в рассмотренном случае, позволяет изучать квантовые корреляции (запутанность и квантовый дискорд [7]).

Финансирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Федерального государственного бюджетного учреждения науки Федерального исследовательского центра проблем химической физики и медицинской химии Российской академии наук в рамках государственного задания с регистрационным номером 124013000760-0. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. E. D. Ostroff and J. S. Waugh, Phys. Rev. Lett. **16**, 1097 (1966).
2. W.-K. Rhim, D. P. Burum, and D. D. Elleman, Phys. Rev. Lett. **37**, 1764 (1976).
3. M. Goldman, *Spin Temperature and Nuclear Magnetic Resonance in Solids*, Oxford University Press, Oxford (1970).
4. Yu. N. Ivanov, B. N. Provotorov, and E. B. Fel'dman, JETP Letters **27**, 153 (1978).

5. B. N. Provotorov, ZhETF **41**, 1582 (1961).
6. M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, Cambridge University Press, Cambridge (2001).
7. S. M. Aldoshin, E. B. Fel'dman, and M. A. Yurishchev, Low Temp. Phys. **40**, 3 (2014).
8. Yu. N. Ivanov, B. N. Provotorov, and E. B. Fel'dman, ZhETF **75**, 1847 (1978).
9. В. Е. Зобов, Физика твердого тела **21**(8), 2447 (1979).
10. S. I. Doronin, A. N. Pyrkov, and E. B. Fel'dman, JETP Lett. **85**, 519 (2007).
11. S. Hill and W. K. Wootters, Phys. Rev. Lett. **78**, 5022 (1997).
12. W. K. Wootters, Phys. Rev. Lett. **80**, 2245 (1998).
13. E. B. Fel'dman, A. N. Pyrkov, and A. I. Zenchuk, Phil. Trans. R. Soc. A **370**, 4690 (2012).
14. J. Baum, M. Munowitz, A. N. Garroway, and A. Pines, J. Chem. Phys. **83**, 2015 (1985).
15. S. I. Doronin, I. I. Maksimov, and E. B. Fel'dman, JETP **91**, 597 (2000).
16. V. E. Zobov and A. A. Lundin, JETP Lett. **117**, 932 (2023).