arXiv:2603.08522v1 [physics.atom-ph] 9 Mar 2026

由经典力学阐明的复合脉冲鲁棒性。II. 初始态不完美性的作用

JonathanBerkheim，David J.Tannor魏茨曼科学研究所化学与生物物理系，*76100*，雷霍沃特，以色列

在核磁共振（NMR）中，复合脉冲（CPs）被广泛用于校正脉冲不完美性，例如射频场不均匀性和共振偏移。尽管多年来已开发出鲁棒的脉冲序列，但初始态的不完美性作为额外的系统误差，在文献中尚未得到广泛讨论。在先前研究中，我们建立了一个经典正则框架来进行稳定性分析，并将其用作衡量CPs鲁棒性的指标。在该研究中，允许单一初始条件在各种脉冲不完美性作用下演化。本研究将该方法扩展至布洛赫球上初始条件的 $2D$ 分布；目标是最小化面积以保持相干性，同时最大化整个分布的布居反转。作为案例研究，我们考察了存在初始条件展宽时Levitt的90(x)180(y)90(x)脉冲序列。该正则框架使我们能够评估Levitt脉冲序列的鲁棒性，我们发现即使考虑初始条件的展宽，其鲁棒性在很大程度上仍得以保持。尽管如此，通过进行数值优化，我们已识别出Levitt脉冲序列的若干变体，它们在存在初始条件展宽时能产生更大的相干布居反转。

I. 引言：初始条件集合

A. 主要目标

复合脉冲（CPs）广泛应用于涉及布居反转的物理实验，例如核磁共振（NMR）、光谱学、最优控制实验和量子信息处理。[1–7] 它们能够对多种脉冲不完美性进行集体校正，例如射频场不均匀性和共振偏移。[8–10]

除了脉冲不完美性，初始条件几乎总是存在一定分布。例如，在固态核磁共振中，晶格畸变等结构缺陷会导致哈密顿量出现空间不均匀性；[11] 在玻尔兹曼统计下，这种不均匀性会使系统的初始态产生分布，如 $\rho_0 \propto \exp(-H/k_BT)$。此外，一个脉冲段中由非均匀哈密顿量产生的末态条件，会导致下一个脉冲段的初始条件出现分布。[12] 各种方法都曾间接探讨对初始条件的敏感性。早期的一种几何方法提出了对脉冲不均匀性具有鲁棒性、且与初始条件无关的 CPs。[4] 后来，这项工作扩展到了可任意提高精度的序列，这些序列源自系统控制原理。[13] 与此同时，人们建立并分类了宽带、窄带和通带复合脉冲的设计原理，并考察了在考虑多种初始态时它们对脉冲不均匀性的鲁棒性。[14]

尽管上述方法取得了成功，但初始条件的不完美性尚未被作为一种独立的系统误差加以处理，即布洛赫球上的有限初始分布。在我们近期工作中定义的正则坐标 $(\phi,\ \eta) = (\tan^{-1}(y/x)\ z)$ 框架下，[12] 处理初始条件的 $2D$ 分布是自然的拓展。我们将使用正则坐标和稳定性分析，研究初始条件分布下 CPs 的鲁棒性。作为案例研究，我们将考察 Levitt 的 90(x)180(y)90(x) 脉冲序列。在先前研究中，我们证明，对于共振偏移，该脉冲会收缩系综有效长度，这意味着考虑初始条件分布时可能会观察到收缩。尽管几何上不允许面积收缩，我们将表明，即使存在初始条件分布，Levitt 脉冲序列的鲁棒性在很大程度上仍能保持。

Levitt 的原创研究从单个初始条件开始，即从 $0D$ 初始区域 $\mathbf{r}_0 = (0,0,1)$ 出发，在各种脉冲不完美性的作用下演化，得到一个 $1D$ 最终区域。本研究则从一组围绕$\mathbf{r}_0 = (0,0,1)$分布的 $2D$ 初始条件开始。每个初始条件都会在各种脉冲不完美性的作用下演化——这些不完美性可以是射频场不均匀性，也可以是共振偏移——从而得到一个 $2D$ 最终分布。将这些分布叠加在一起，便形成一个 $2D$ 最终区域，

该区域通过系综的投影面积来表示。初始条件域依次在不同的不完美性取值下演化，这与单个初始条件依次在整个不完美性取值范围内演化、再取所有演化后分布的并集，完全等价。前一种方法利用了稳定性矩阵的性质，从而避免了我们在先前研究中采用的平均过程。[12]

对初始条件的鲁棒性将通过双尺度评估框架来衡量：（1）“宏观”方法，直接计算系综的投影面积；（2）“微观”方法，对剪切系数进行定性评估。后者基于扩展相空间中的稳定性矩阵元素，其中将不完美性视为一个额外坐标。余面积公式优雅地将这两种度量联系起来。

尽管对于初始条件，Levitt脉冲序列通常在 η方向上具有鲁棒性，但我们表明，它在 ϕ方向上仍可改进。为此，我们进行与之前相同的实验，但扫描一系列脉冲；这些脉冲的区别在于不同的持续时间 τ 和每个脉冲段的旋转轴$\hat{\mathbf{n}}_k$ 。我们将展示 Levitt脉冲序列的几种变体，它们能够提高相对于初始条件在 ϕ方向上的鲁棒性。

B. 投影面积的演化

关于CPs的开创性研究仅考虑哈密顿量不完美性；在此，状态不完美性也纳入考虑。在本研究中，我们分别考虑通常的脉冲不完美性 $w = \{\Omega_1,\ \Delta\}$ ——射频场不均匀性Ω_1 或共振偏移 Δ ——此外，还考虑初始条件分布。只要忽略弛豫效应，初始条件分布就不需要采用混合态处理，而可以通过一组互不相关的纯态来处理。

在哈密顿动力学中，刘维尔定理指出，任意 $2N$ 维相空间体积（对于 $N = 1$，即面积）在正则变换下保持不变。[15,16] 特别是，初始区域在哈密顿流作用下的时间演化保持面积不变。在我们的情形中，如果射频场幅值 Ω_1 和共振偏移 Δ确定，那么在 CP 的作用下，分布 $\rho_{\mathrm{i}} = \rho_{\mathrm{i}}(\phi_{\mathrm{i}},\ \eta_{\mathrm{i}}; w)$ 的面积必须保持不变。先前研究未考虑这种情况，只考察了单一条件。用数学形式表示，刘维尔定理为

$$\frac{d\rho(\phi,\eta;w)}{dt} = \frac{\partial\rho(\phi,\eta;w)}{\partial t} - \{H(\phi,\eta;w),\rho(\phi,\eta;w)\} = 0, \tag{1}$$

其中 $\{H,\rho\}$ 是哈密顿量与分布的泊松括号，两者都是正则坐标的函数；不完美性 w 固定为某一特定值。面积保持不变，是因为哈密顿流是辛的；换言之，变换 $\mathcal{M} = \partial(\phi_{\mathrm{f}},\ \eta_{\mathrm{f}})/\partial(\phi_{\mathrm{i}},\ \eta_{\mathrm{i}})$ 满足 $\det(\mathcal{M}) = 1$。由于无论如何选择 w，面积都保持不变，因此广义体积 $V_{\mathrm{i}} \equiv \mu_3(\rho_{\mathrm{i}}(\phi_{\mathrm{i}},\ \eta_{\mathrm{i}}))$ 也保持不变，其中 w 视为一个附加坐标，而 μ_3 表示体积测度。由于刘维尔定理（式 1）对每个切片都独立成立，由切片并集构成的体积也必然保持不变。然而，尽管广义体积保持不变，下文定义的系综投影面积通常并不保持不变。

系综的投影面积 A 定义为与集合 $\{w\}$相关的分布所张成的面积的并集，即：

$$A \equiv \mu_2\left(\bigcup_{w\in[w_{\min},w_{\max}]} \rho(\phi,\eta;w)\right), \tag{2}$$

其中 μ_2 表示面积测度。该定义存在一个问题：并不存在一种封闭的函数形式，能够计算并集的面积，同时确保占据相空间中的每个点只计算一次。图1 展示了体积元经过辛变换后，投影面积如何变化。与先前研究类似，本研究考察$\Omega_1 \in [0.8, 0.9]$ 和 $\Delta \in [0.4, 0.6]$，[3,12] 每种情况下均取 11 个不完美性值。

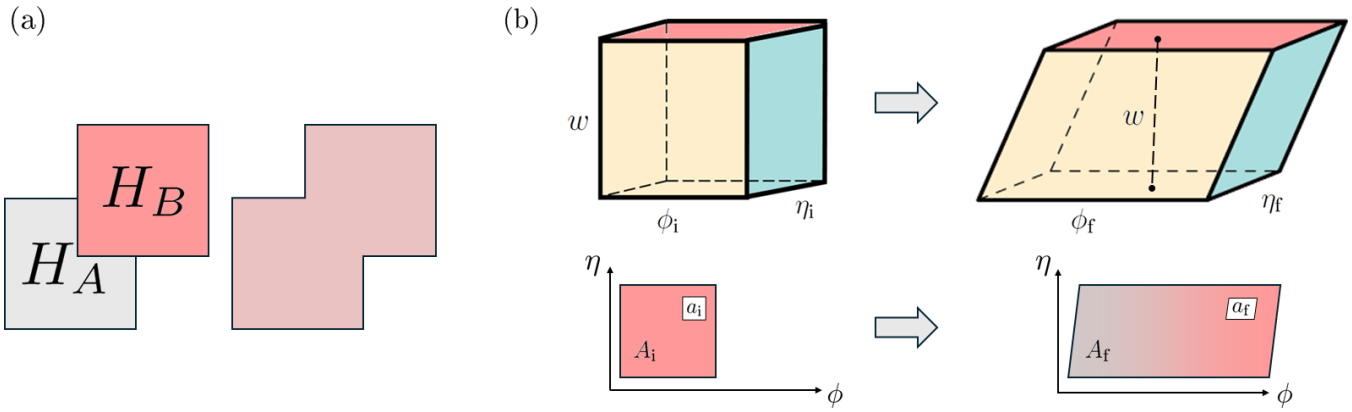


图1：扩展相空间 $(\phi,\ \eta,\ w)$ 中体积的保持不一定伴随着投影面积的保持：(a) 初始区域的两个投影，各自按照单个哈密顿量演化，H_A 和 H_B。阴影面积定义为两个区域的并集；(b) (a) 的连续版本，其中许多集合堆叠在一起。左侧显示初始区域为一个立方体，其投影面积为 A_{i}，由许多彼此完全重叠的正方形层组成。右侧显示最终区域为一个平行六面体，其投影面积为 A_{f}，由许多彼此并未完全重叠、而是略微错开的平行四边形组成。 A_{i} 和 A_{f} 也可视为对无穷小面积（白色部分） $a_{\mathrm{i}} = d\phi_{\mathrm{i}} d\eta_{\mathrm{i}}$ 和$a_{\mathrm{f}} = d\phi_{\mathrm{f}} d\eta_{\mathrm{f}}$的积分。总体而言，最终区域的投影面积更大。

II. 推　导与方法：双尺度评估框架 K

A. 宏观度量：投影面积的比率系数

宏观视角指的是对总 $2D$ 面积的测量。我们不追踪特定轨迹，而是将整个初始条件域作为整体，不考虑其中各点的内部排列，并着眼于宏观问题：面积究竟会扩大多少?

根据式 2 的定义，时刻 t 的投影面积必然大于或等于初始投影面积。我们以最紧凑的投影面积作为所有模拟的初始状态，此时所有初始分布完全重叠，因此分布 $\rho(\phi,\ \eta;\ w)$ 作为域$\{\rho(\phi,\ \eta;\ w)\}_{w\in[w_{\min},w_{\max}]}$的横向截面，彼此完全相同。我们将考虑 $\phi_0 \in [0, 2\pi]$ 和 $\eta_0 \in [0.9, 1]$：正则框架中的矩形初始条件分布，即以布洛赫球北极为中心的穹顶。我们为每个坐标考虑200 个网格点。

由于所有分布都由同一个矩形界定，该矩形由所有点 $(\phi_0,\ \eta_0)$ 张成，因此投影面积与单个分布的面积严格相等。对 $\{\rho(\phi,\ \eta;\ w)\}_{w\in[w_{\min},w_{\max}]}$施加的任何辛变换都会保持或扩大其投影面积，因此投影面积的并集相对于时刻 $t = 0$ 的初始面积绝不可能收缩。尽管如此，仍可能出现以下层级关系：

$$A(t_1) > A_0; \qquad A(t_2) > A_0; \qquad A(t_2) < A(t_1) \tag{3}$$

使得 $A(t_2)/A(t_1) < 1$，这意味着沿线段 $[t_1, t_2]$ 发生收缩。不过， $A(t)/A_0 \geq 1,\ \forall t$，即禁止投影面积发生整体收缩。

我们定义比率系数

$$R_{\mathrm{fi}} \equiv A_{\mathrm{f}}/A_{\mathrm{i}}, \tag{4}$$

其中 $(\mathrm{f}, \mathrm{i}) = (0, 1, 2, 3)$。标签 0 表示 $t = 0$ 面积，标签 1, 2, 3 分别表示脉冲第一段、第二段和第三段之后的面积。我们旨在最小化由系数 R_{30} 表示的整体扩张。面积计算采用 α形状技术进行数值计算。[17] 该计算

受收缩因子 $\alpha \in [0,1]$ 控制，其中 0 对应于凸包，1 对应于尽可能紧密的边界，即凹包；我们采用了默认值 $\alpha = 0.5$。尽管数值收敛性已得到验证，我们仍允许任何此类计算存在 $\pm 3\%$ 的误差范围。特别是，我们认为$R_{\mathrm{fi}} \in [0.97, 1.03]$ 代表实质性的面积保持。我们将 R_{f0}称为主系数，并将所有其他 R_{fi}（$\mathrm{i} \neq 0$）称为次级系数。

B. 微观测度：剪切系数

微观视角关注的是将初始区域变换为最终区域的变换的稳定性分析。我们不再将整个初始条件域视为一个分布来追踪，而是探究更细微的问题：分布发生宏观变化的机制是什么?

最终时刻由所有点（ϕ_{f}, η_{f}）张成的投影面积 A_{f}，体现了许多分布的并集；每个分布均由初始条件（ϕ_{i}, η_{i}）和不完美性 w 经由变换 u 生成

$$u : (\phi_{\mathrm{i}}, \eta_{\mathrm{i}}, w) \to (\phi_{\mathrm{f}}, \eta_{\mathrm{f}}). \tag{5}$$

也就是说，只要我们将不完美性视为一个附加坐标，投影面积就是由一个 $3D$ 到 $2D$ 的变换生成的；也就是说，投影面积代表向低维空间的约化。该变换的雅可比矩阵记作 $\mathcal{J}$，其 2×3 为

$$\mathcal{J}(\phi, \eta, w) = \begin{pmatrix} \partial\phi_{\mathrm{f}}/\partial\eta_{\mathrm{i}} & \partial\phi_{\mathrm{f}}/\partial\phi_{\mathrm{i}} & \partial\phi_{\mathrm{f}}/\partial w \\ \partial\eta_{\mathrm{f}}/\partial\eta_{\mathrm{i}} & \partial\eta_{\mathrm{f}}/\partial\phi_{\mathrm{i}} & \partial\eta_{\mathrm{f}}/\partial w \end{pmatrix}. \tag{6}$$

注意，左侧的 2×2 子矩阵是 $\mathcal{M}$，即通常所说的稳定性矩阵。如果我们希望同时考虑两个不完美性 w_1, w_2（例如 Ω_1 和 Δ），那么 $\mathcal{J}$ 将成为一个 2×4 矩阵。对于矩阵表示为非方阵的变换，通常定义其局部体积缩放因子:

$$\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}(\phi, \eta, w) \equiv \sqrt{\det\left(\mathcal{J}\mathcal{J}^T\right)} = \sqrt{\sum_{\substack{I \subset \{1,2,3\} \\ |I|=2}} \det\left(\mathcal{J}\mathcal{J}^T\right)_I^2}, \tag{7}$$

在最后一步变换中，我们使用了柯西-比内公式；求和遍历了 $\mathcal{J}$ 的所有 2×2 子矩阵的行列式。如前所述，第一个子矩阵是 $\mathcal{M}$，且由于 $\det(\mathcal{M}) = 1$，我们得到 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}} \geq 1$，其中当 $\partial\phi_{\mathrm{f}}/\partial w = \partial\eta_{\mathrm{f}}/\partial w = 0$ 时取等号。我们将 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}$ 称为剪切系数，因为它们编码了扩展相空间中体积元剪切的微观局部信息。这些系数还涵盖了 $\mathcal{J}$ 列向量之间的所有内积。这类量通常称为格拉姆行列式或格拉姆矩阵。

方程 6 中的导数采用卫星轨迹法进行数值计算[18]，并验证了确实有 $\det(\mathcal{M}) = 1$ 对每个网格都成立。与先前研究不同，卫星轨迹不被视为一个独立的虚拟群，因为它们本身已属于所考察的系综。关于 w的导数采用对称微分公式 $f'(x) \approx \frac{1}{2h}[f(x+2h) - f(x-2h)]$计算。我们发现，边缘效应对分布的贡献很小，因此在下面的直方图分析中可以忽略不计。

考虑宏观和微观描述之间的对应关系是很有意义的。余面积公式是 Fubini 定理的推广，也是几何测度论中的核心结果，它提供了一种方法，将高维初始域 Ω（维数为 $\dim(n)$）上的积分与低维终域（维数为 $\dim(k)$）上的积分联系起来。[19]

我们从初始集合 $\Omega \in \mathbb{R}^n$ 开始。每个点 x 都有一个特定的权重，用 $g(x)$ 表示。将这些点通过变换 $y = u(x)$ 映射到新点 y 时，某些区域会被拉伸或压缩。该变换的雅可比 $|\mathcal{J}_k| = \sqrt{\det\left(\mathcal{J}\mathcal{J}^T\right)}$ 起到缩放因子的作用，确保我们将这种拉伸计算在内，从而保持总密度不变。下标 k 表示最终区域的维数。总之，我们关注的积分为

$$I = \int_{\Omega} g(x)|\mathcal{J}_k|dx. \tag{8}$$

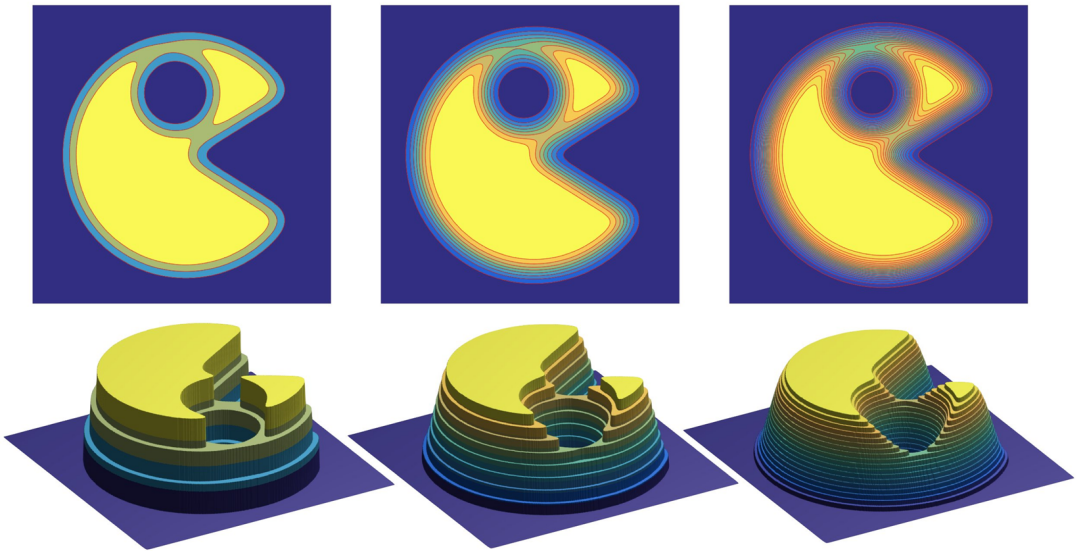


图2：余面积公式的直观示意图。上图显示标量函数 $g(x)$，其中$x = (x_1, x_2)$， g 表示色标。下图通过其水平集 $u(x) = y$展示 $g(x)$。总积分 $\int g(x)|\mathcal{J}_2|dx$ 被分解为这些水平集边界长度为 dH_1 时的各项贡献。这一序列展示了连续曲面如何从越来越密集的水平集切片堆叠中涌现，即黎曼和不断细化，其和逐渐趋近于连续的余面积积分。C

来源： f *Gabriel* 佩雷 *(CNRS).*

现在，我们不再对整体进行积分，而是逐个考察输出值 y 。我们将所有映射到特定 y的点 x 归为一组。这组点称为切片或纤维。由于这些切片的维数低于原空间（例如， $2D$ 平面内的一条 $1D$ 曲线），我们使用豪斯多夫测度，记为 dH_{n-k}，来表示该特定切片的广义体积。下标 $n-k$ 反映了积分维数的补足。

综合以上各项，我们利用豪斯多夫测度，沿每个单独的切片 $u^{-1}(y)$计算 $g(x)$ 的值，然后在最终空间中对所有输出值 y 处的横截面密度求和，

$$I = \int_\Omega g(x)|\mathcal{J}_k|dx = \int_{\mathbb{R}^k} \left(\int_{u^{-1}(y)} g(x) dH_{n-k} \right) dy. \tag{9}$$

图2直观地展示了余面积公式。在我们的系统中，式5意味着 $x = (\phi_\mathrm{i}, \eta_\mathrm{i}, w)$ $n = 3$且 $y = (\phi_\mathrm{f}, \eta_\mathrm{f})$ $k = 2$，因此 $dH_1 = dw$。我们将 I 与 $A_\mathrm{f} = \iint$并集 $d\phi_\mathrm{f} d\eta_\mathrm{f}$ （见图1b）关联起来，并将 g 与逆重数函数 $\mathcal{N}(\phi, \eta, w) = 1/\ell \leq 1$关联起来，后者用于补偿并集中 ℓ 重叠层的重复计数；雅可比为 $\mathcal{G}_\mathrm{fi} = \sqrt{\det(\mathcal{J}\mathcal{J}^T)}$。将所有这些变量和函数代入式8，得到

$$A_\mathrm{f} = \iint_{\text{union}} d\phi_\mathrm{f} d\eta_\mathrm{f} = \iint \left(\int_{u^{-1}} \mathcal{N}(\phi_\mathrm{f}, \eta_\mathrm{f}, w) dw \right) d\phi_\mathrm{f} d\eta_\mathrm{f} = \iiint \mathcal{N}(\phi_\mathrm{i}, \eta_\mathrm{i}, w) \sqrt{\det(\mathcal{J}\mathcal{J}^T)} d\phi_\mathrm{i} d\eta_\mathrm{i} dw, \tag{10}$$

其中，由 ~~$da_\mathrm{f} = d\phi_\mathrm{f} d\eta_\mathrm{f}$~~ 到 $da_\mathrm{i} = d\phi_\mathrm{i} d\eta_\mathrm{i}$ 的变换会导致出现 $\sqrt{\det(\mathcal{J}\mathcal{J}^T)}$。

根据方程 10，最终面积 A_f以及比率系数 $R_\mathrm{fi} = A_\mathrm{f}/A_\mathrm{i}$由剪切系数 $\mathcal{G}_\mathrm{fi} = \sqrt{\det(\mathcal{J}\mathcal{J}^T)} \geq 1$与逆重数函数 $\mathcal{N}(\phi, \eta, w) \leq 1$之间的竞争所决定。我们将根据 $\mathcal{G}_\mathrm{fi}$ 分布区分三种情形：1）当 $\mathcal{G}_\mathrm{fi}$的取值趋于较高水平，并占据主导地位，超过 $\mathcal{N}$时，会发生扩张；2）当 $\mathcal{G}_\mathrm{fi}$的分布适度集中于 1 附近，且 $\mathcal{N}$的取值也如此时，面积得以保持；3）当 $\mathcal{G}_\mathrm{fi}$的分布高度集中于 1 附近，且 $\mathcal{N}$ 成为主导因素时，会发生收缩。

C. 面积优化

有了上述工具，我们来考察 Levitt 脉冲序列应用于 IC 集合时能否得到改进。衡量面积整体变化的比率系数 R_{30} 是我们的目标函数；我们希望将其最小化，使其尽可能接近 1。然而，保持系综面积并非唯一目标：我们还希望实现成功的布居反转，这正是 CPs 的初衷。可控参数包括所有片段的持续时间 $\boldsymbol{\tau} = \{\tau_k\}_{k=1}^{N}$ 以及它们的旋转轴 $\hat{\mathbf{n}} = \{\hat{\mathbf{n}}_k\}_{k=1}^{N}$，因此我们旨在求解以下优化问题：

$$\left(\boldsymbol{\tau}, \underline{\hat{\mathbf{n}}}\right)_{\mathrm{opt}} = \arg\min R_{30}\left(\boldsymbol{\tau}, \underline{\hat{\mathbf{n}}}\right), \tag{11}$$

其中，在笛卡尔表示中，$\hat{\mathbf{n}}_k = (\sin\vartheta_k\cos\varphi_k, \sin\vartheta_k\sin\varphi_k, \cos\vartheta_k)$。请注意，此时脉冲不完美性和初始条件分布并未被视为控制参数；它们被假定为给定值。实际上，采用解析方法处理公式 11 注定会失败，因为 R_{30} 是初始条件、不完美性w 以及控制集 $\boldsymbol{\tau}$ 和$\hat{\mathbf{n}}$的复杂非线性函数，无法写成闭式。相反，我们以数值方式进行优化，并将研究范围限制为形如 $\tau_1(\hat{\mathbf{n}}_1)\tau_2(\hat{\mathbf{n}}_2)\tau_1(\hat{\mathbf{n}}_1)$的三段对称脉冲。

每个 $\hat{\mathbf{n}}_k$ 将由 ϑ_k、φ_k确定，其中[10]

$$\vartheta_k = \tan^{-1}(\Omega_1/\Delta), \tag{12}$$

并且 φ_k 由研究人员通过改变射频发射器的相位预先确定。在 Levitt脉冲序列中，只要射频与拉莫尔频率共振 ($\Delta = 0$)，$\hat{\mathbf{n}}_k$ 就位于赤道平面内。我们将人为引入一个自由参数 $\Delta\vartheta_k$，使每个 $\hat{\mathbf{n}}_k$ 即使系统处于共振状态也能够倾斜，因此 $\vartheta_k = \vartheta_k^{(0)} + \Delta\vartheta_k$ 与 $\vartheta_k^{(0)}$ 由公式 12确定。为简化记号，今后我们将使用 $\Delta\varphi_k$代替 φ_k，于是修改后的旋转轴写为

$$\hat{\mathbf{n}}_k = \left(\sin(\vartheta_k^{(0)} + \Delta\vartheta_k)\cos\Delta\varphi_k, \sin(\vartheta_k^{(0)} + \Delta\vartheta_k)\sin\Delta\varphi_k, \cos(\vartheta_k^{(0)} + \Delta\vartheta_k)\right). \tag{13}$$

显然，完整的控制参数空间为 $6D$，这是一个过大且不必要、难以处理和分析的参数空间。我们将做出一些简化假设：（1）任意固定第一旋转轴$\hat{\mathbf{n}}_1 = \hat{\mathbf{x}}$ （$\vartheta_1^{(0)} = \pi/2, \Delta\vartheta_1 = 0, \Delta\varphi_1 = 0$）；（2）假定脉冲总时长 T保持恒定，即 $2\tau_1 + \tau_2 = T$。这些简化使我们能够扫描 $3D$ 参数空间（$\Delta\vartheta_2, \Delta\varphi_2, \tau_1$），以寻找与Levitt相比具有更好 R_{30} 的脉冲。为量化布居反转是否可与Levitt的原始脉冲相比，我们定义平均末端布居 $\bar{\eta}_3$，它在第三段结束时测得（$t = T$），

$$\bar{\eta}_3 \equiv \frac{\sum_j \eta_3^{(j)}}{||\eta_3||}. \tag{14}$$

此处，j 用于枚举终端集合 η_3的成员，$||\eta_3||$ 是该集合的基数，即构成该分布的点的总数。在我们的模拟中，基数将为 $200 \times 200 \times 11 = 440{,}000$。成功的布居反转由 $\bar{\eta}_3 \to -1$反映。

III. 数值结果与分析

A. 射频场不均匀性的系综

1. 比率系数

图3 展示了 $2D$ Levitt 的$90(x)180(y)90(x)$ 脉冲序列在四个不同时间点的射频场不均匀性系综分布，既以正则坐标(ϕ, η) 表示，也在布洛赫球上表示。虽然初始分布$(t = 0)$ 分布在狭窄的 η 值带内以及所有 ϕ 值上，但在第一段结束时$(t = T/4)$，面积沿 η方向拉伸，并且在 ϕ方向上更加局部化。第二段结束时（$t = 3T/4$）也是如此，只是分布中心在相空间中略有偏移。到

第三段结束时（$t = T$），分布遍布所有 ϕ 值以及相对狭窄的 η 值带，尽管带宽并不均匀，在 $\phi = 0$附近更宽。

总体而言，对于在射频场不均匀性作用下演化的初始条件分布，Levitt脉冲序列在 η方向上具有鲁棒性，且不影响 ϕ方向。比率系数列于表I中，其中可以看到主系数 $R_{\mathrm{f0}} \geq 1.20$，表明面积显著扩张；次级系数约为 1，表明面积保持。在射频场不均匀性的情况下，Levitt脉冲序列相对于不断演化的分布的准幺正性在第二段和第三段中得以保持。这一发现拓展了我们先前的研究，[12] 在该研究中，我们通过解析和数值方法证明，当考虑单个初始条件时，分布的标准差沿第二段和第三段几乎保持不变。在当前情况下，$\bar{\eta}_3 = -0.94$，表明即使存在初始条件分布，Levitt脉冲序列在布居反转方面仍具有相对较高的效率。这应与以下情况进行比较：$\bar{\eta}_3 = -0.99$ 若仅考虑$\mathbf{r}_0 = (0,0,1)^T$。

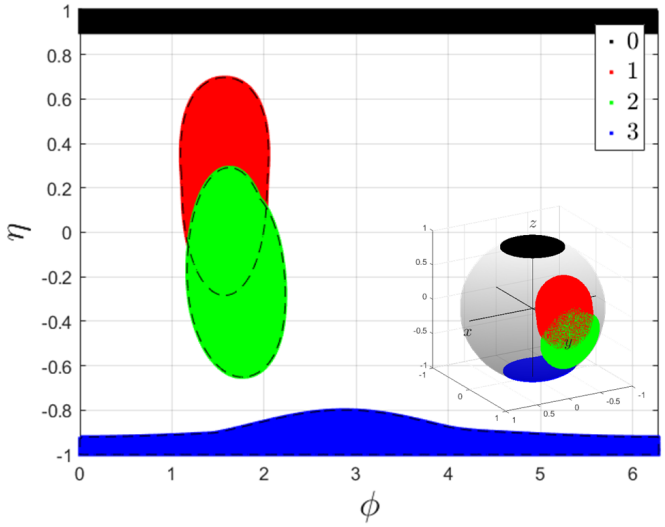


图 3：射频场不均匀性系综的投影面积随时间的演化。初始分布是顶部的黑色条带。第一个脉冲段使分布在 η 方向上散焦，在 ϕ 方向上聚焦；第二个脉冲段主要改变中心位置，而不会显著改变形状；第三个脉冲段使分布在 η 方向上重新聚焦，在 ϕ 方向上散焦。将单个初始条件上的整体效果应用于整个初始条件分布时，该效果在很大程度上得以保持。虚线标出了每个分布的 α形状。插图：在布洛赫球上呈现的相同分布。

比率系数值解释		
R_{10}	1.21	扩张
R_{21}	1.02	保持
R_{32}	0.97	保持
R_{20}	1.26	扩张
R_{31}	0.97	保持
R_{30}	1.20	整体扩张

表 I：比率系数 R_{fi} 及其物理解释。总体而言，在 $t = T$ 处，面积相对于 $t = 0$扩张了20%。

2. 剪切系数

图 4 展示了剪切系数的分布 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}$，以直方图的形式描绘 $N(\mathcal{G}_{\mathrm{fi}})$。每个分布的形状列于表 II中。与主系数相关的所有分布 $\mathcal{G}_{\mathrm{f0}}$ 都偏移至较高值，我们将其解释为面积扩张。相比之下，次级系数适度集中在

单位值附近，这与面积保持相关。这些观察结果与上一小节中比率系数的观察结果R_{fi} 完全一致；余面积公式（式 10）解释了这种对应关系。

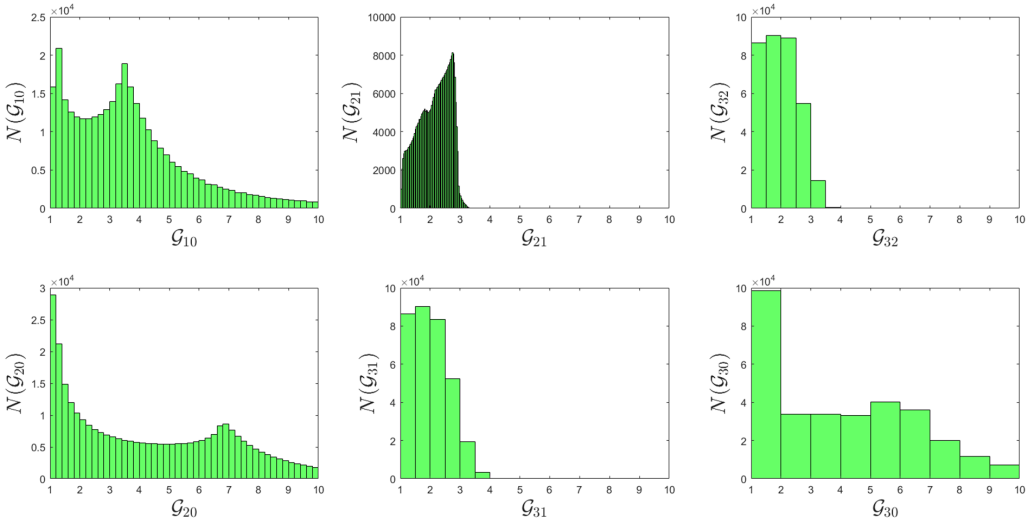


图4：射频场不均匀性系综的剪切系数分布 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}$ 。

剪切系数	**形状**	**解释**
$\mathcal{G}_{10}$	偏移至较高值	扩张
$\mathcal{G}_{21}$	适度集中于1附近	保持
$\mathcal{G}_{32}$	适度集中于1附近	保持
$\mathcal{G}_{20}$	偏移至较高值	扩张
$\mathcal{G}_{31}$	适度集中在 1 附近	保持
$\mathcal{G}_{30}$	偏移至较高值	整体扩张

表 II：剪切系数 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}$ 及其定性解释。

3. 面积优化

对 $3D$ 参数 $(\Delta\vartheta_2、\ \Delta\varphi_2、\ \tau_2)$ 的扫描相较于Levitt脉冲序列带来了显著改进。不出所料，在 z分量的 $\mathbf{\Omega}$ 中引入该分量后，情况类似于共振偏移系综；这使我们回到了先前研究，[12] 其中，系综之间的主要差异体现在 ϕ方向上的再聚焦。图 5 展示了在四个具有不同 $(\boldsymbol{\tau}、\ \hat{}\mathbf{n})$（见式 11）的脉冲序列作用下，初始分布的时间演化；对于 R_{30}，这些序列的表现优于Levitt脉冲序列，且 $\bar{\eta}_3$与Levitt的表现相当。

在最小值处，我们得到 $R_{30}=1.08$；对于具有相同参数的共振偏移情况，这一结果与Levitt的表现相当（见下一小节）。Levitt脉冲序列的结构有时仍得以保留，此时$\hat{}\mathbf{n}_2$ 仍接近赤道；然而，相对角 $\Delta\varphi_2-\Delta\varphi_1$ 较小（0.44π 而非 0.5π）。

B. 共振偏移系综

1. 比率系数

图6 展示了 $2D$ Levitt$90(x)180(y)90(x)$ 脉冲序列中，共振偏移系综在四个不同时刻的分布，分别以正则坐标$(\phi,\ \eta)$ 和布洛赫球表示。初始分布（$t=0$）分布在一条狭窄的 η 值带上，并涵盖所有 ϕ 值；到第一段结束时（$(t=T/4)$,

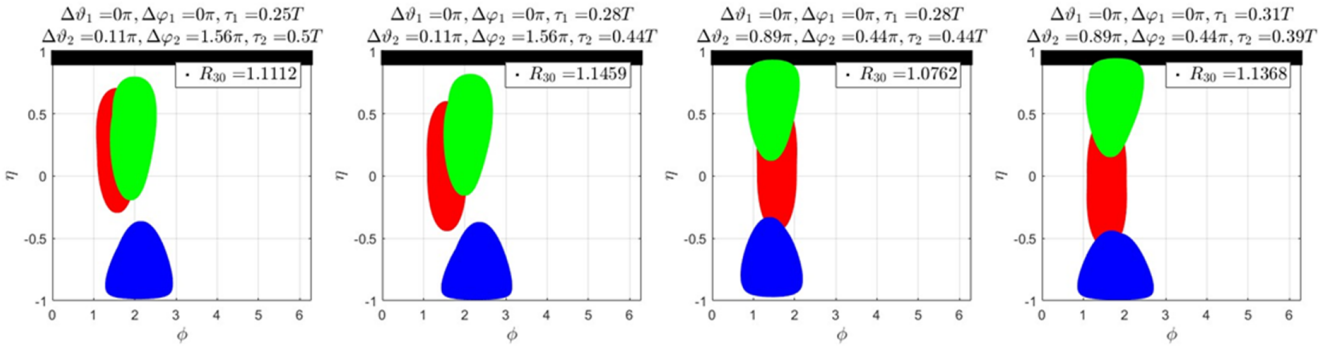


图5：通过 $3D$ 数值扫描得到的四组参数，在受射频场不均匀性影响的 IC 集合上，表现优于 Levitt脉冲序列。各子图展示了系综的时间演化，分别对应$t = 0$， τ_1， $\tau_1 + \tau_2$， T，颜色编码与前文相同。如各子图上方所示，优化参数使比率系数 R_{30} 小于采用 Levitt脉冲序列时的比率系数。

面积沿 η方向拉伸，而在 ϕ方向则更加集中。第二段结束时（$t = 3T/4$）也同样如此，此时分布中心在相空间中略有偏移。到第三段结束时（$t = T$），分布覆盖一狭窄的 ϕ 值区域和相对宽广的 η值区域，因而呈现出边缘圆润的三角形。总体而言，对于在共振偏移作用下演化的初始条件分布，Levitt脉冲序列在 η方向和 ϕ方向上都具有鲁棒性。比率系数列于表III中，其中主系数 $R_{\mathrm{f}0} > 1$ （尤其是两种情况下的 $R_{\mathrm{f}0} \geq 1.27$ ）表明面积显著扩张；两个次级系数 R_{31} 和 R_{32}远小于1，表明面积收缩；另有一种情况下， R_{21}则观察到轻微扩张。在共振偏移情况下，相对于不断演化的分布，Levitt脉冲序列并非幺正变换，因为该分布会交替收缩或膨胀。这一发现拓展了我们在先前研究中的论断:[12] 我们通过解析和数值方法证明，在脉冲序列中，每施加一个新脉冲，分布的标准差都会显著变化（考虑单个初始条件时）。

对于初始条件集合，Levitt脉冲序列在 ϕ方向上具有鲁棒性，但在η方向上鲁棒性较差；具体而言， η存在离散，但许多初始条件趋近于对跖点$\mathbf{r} = (0,\ 0,\ -1)^T$。值得注意的是，在 Levitt 的原始研究中，无论存在何种脉冲不完美性，都未达到对跖点， Δ。总体而言，面积变化几乎是理想的（$R_{30} \gtrsim 1$）。在这种情况下， $\bar{\eta}_3 = -0.79$，这反映出在考虑系综的布居反转时，Levitt脉冲序列的性能略有下降；若仅考虑$\mathbf{r}_0 = (0,\ 0,\ 1)^T$，则可与之比较。Levitt 注意到了这种次优表现，并提出了一种性能优于其原始序列的五段脉冲。[9]

比率系数 值 解释		
R_{10}	1.27	扩张
R_{21}	1.08	扩张
R_{32}	0.79	收缩
R_{20}	1.37	扩张
R_{31}	0.85	收缩
R_{30}	1.08	整体扩张

表III：比率系数 R_{fi} 及其物理解释。总体而言，在 $t = T$ 处，面积相对于 $t = 0$扩张了8%。

2. 剪切系数

图 7 显示了剪切系数 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}$ 的分布，并以直方图 $N(\mathcal{G}_{\mathrm{fi}})$ 的形式呈现。各分布的形状列于表 IV。与主系数 $\mathcal{G}_{\mathrm{f}0}$ 相关的所有分布均偏移至较高

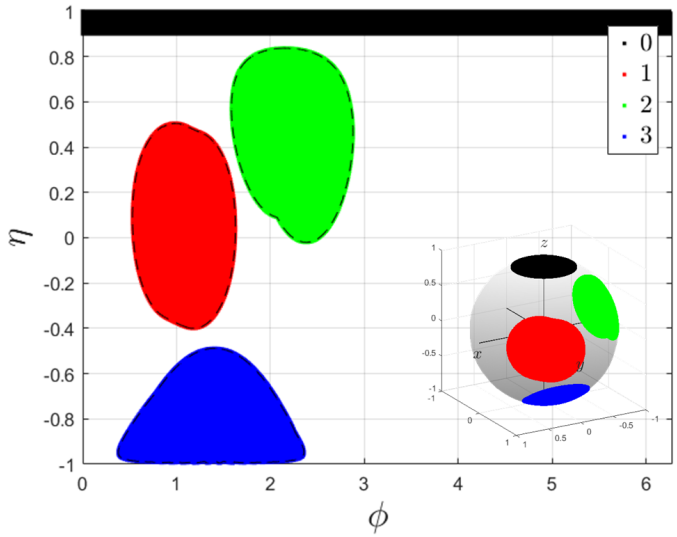
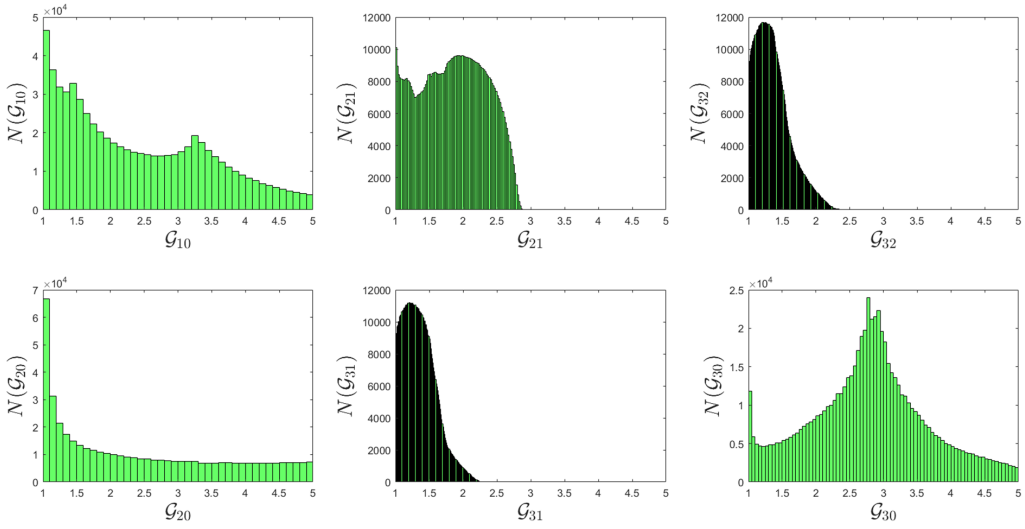


图6：共振偏移系综的投影面积随时间的演化。初始分布是顶部的黑色条带。第一段使分布沿 η 方向发散，并沿 ϕ 方向聚焦；第二段改变中心位置，但不会显著改变形状；第三段使分布沿 η 方向略微重新聚焦，并沿 ϕ 方向略微发散。将这一整体效应应用于整个初始条件分布时，单个初始条件上的效果大体得以保留。虚线标示了每个分布的 α 形状。插图：在布洛赫球上呈现的相同分布。

值，我们将其解释为面积扩张。次级系数 $\mathcal{G}_{32}$ 和 $\mathcal{G}_{31}$ 的分布高度集中于 1 附近，我们将其视为面积收缩。次级系数 $\mathcal{G}_{21}$ 的分布略微偏移至较高值，我们将其与轻微面积扩张相关联。这些观察与上一小节中比率系数 R_{fi} 的结果完全一致；余面积公式，式 10，解释了这种对应关系。



F图7：共振偏移系综的剪切系数 $\mathcal{G}_{\text{fi}}$ 分布。

3. 面积优化

鉴于 $R_{30} = 1.08$ 在 Levitt脉冲序列中的比率系数相对较小，改进空间并不大。图8 展示了 $3D$ 扫描($\Delta\vartheta_2$, $\Delta\varphi_2$, τ_2)的结果，显然，优化后的

剪切系数	形状	解释
$\mathcal{G}_{10}$	偏移至较高值	扩张
$\mathcal{G}_{21}$	偏移至较高值	扩张
$\mathcal{G}_{32}$	高度集中于 1 附近	收缩
$\mathcal{G}_{20}$	偏移至较高值	扩张
$\mathcal{G}_{31}$	高度集中于 1 附近	收缩
$\mathcal{G}_{30}$	偏移至较高值	整体扩张

表 IV：剪切系数 $\mathcal{G}_{\mathrm{fi}}$ 及其直接解释。

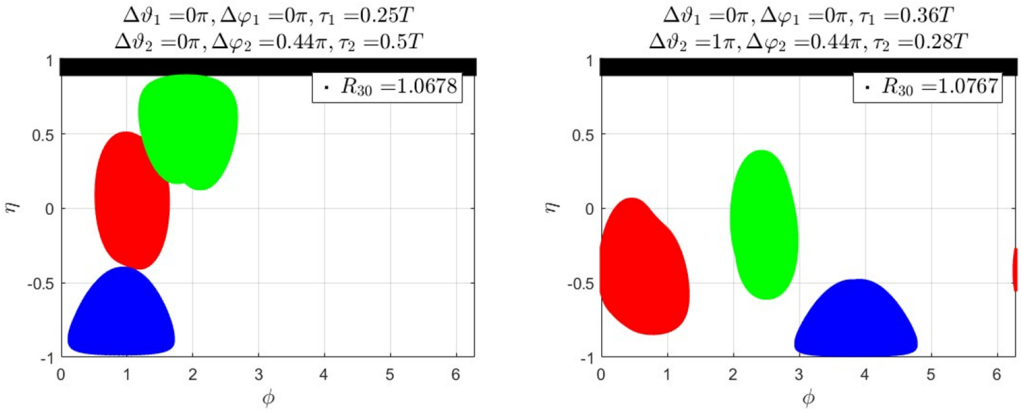


图8：来自 $3D$ 数值扫描的两组参数，可使受共振偏移影响的 IC 集合产生与 Levitt脉冲序列相当的扩张。各子图展示了系综在 $t = 0, \tau_1, \tau_1 + \tau_2, T$处的时间演化，颜色编码与前文相同。各子图上方详列的优化参数使比率系数 R_{30}仅有边际改善。

脉冲序列带来的提升并未超出数值误差范围。因此，我们得出结论：对于受共振偏移影响的 IC 集合，Levitt脉冲序列是一个合理的选择。

IV. 结论

在本研究中，我们将初始态不完美性引入为一种可能伴随常见脉冲不完美性的系统误差。先前研究侧重于正则框架的严格构建及相关稳定性分析；在本研究中，我们展示了如何将这些工具自然地推广到 IC 分布。由于哈密顿流下不允许发生全局面积收缩，即使存在脉冲不完美性也是如此，因此我们将鲁棒性重新定义为保持投影面积的能力。

我们构建了一个双尺度评估框架，用于评估 IC 集合中 CPs 的鲁棒性。除直接进行面积计算外，我们还发现，扩张、保持和收缩均可通过稳定性分析所得剪切系数的行为来理解。剪切系数的变化趋势与表征直接面积计算的比率系数的变化趋势相对应，因为二者通过余面积公式相互关联。令人欣慰的是，Levitt 设计的脉冲序列即使在考虑 IC 集合时仍能保持鲁棒性。如今，我们为这一效率惊人的脉冲序列提供了几何学依据；不过，在存在场不均匀性的情况下，我们可以通过沿 z 方向添加一个场，使该脉冲序列更具鲁棒性。

尽管本文重点讨论的是$90(x)180(y)90(x)$脉冲序列，但我们的方法可应用于任何脉冲序列，而无需对系综结构或脉冲形式作出假设。例如，我们在 Tycko 的$180(0)180(120)180(0)$ 脉冲序列上成功检验了我们的方法，[4] 该序列被称为首个对任意初始条件均能抵抗射频场不均匀性的 CP；我们发现，它的性能优于 Levitt脉冲序列（$R_{30} = 1.05$， $\bar{\eta}_3 = -0.95$）。

V. 致谢

J. B. 将这项工作献给其朋友兼导师、世界知名癌症研究人员 Issac P. Witz教授（1934—2026年）以纪念他；在本文准备期间，这位教授不幸去世。J. B. 和 D. J. T. 感谢 Ilya Kuprov 提供的有益讨论。本研究获得了德以科学研究与发展基金会（GIF）、以色列科学基金会（1094/16号和1404/21号资助）以及 Harold Perlman家族长期慷慨支持所提供的经费资助。

---

[1] E. L. Hahn, 《自旋回波》, 《物理评论》80，580（1950年）。[2]S. Meiboom 和 D. Gill, 《用于测量核弛豫时间的改进自旋回波法》, 《科学仪器评论》29，688（1958年）。[3] M. H. Levitt 和 R. Freeman, 《使用复合脉冲实现核磁共振布居反转》, 《磁共振杂志》（1969）33，473（1979年）。[4] R. Tycko、H. Cho、E. Schneider 和 A. Pines, 《无相位失真的复合脉冲》, 《磁共振杂志》（1969）61，90（1985年）。[5] B. T. Torosov 和 N. V. Vitanov, 《用于高保真量子信息处理的平滑复合脉冲》, 《物理评论A辑》83，053420（2011年）。[6] G. T. Genov、D. Schraft、T. Halfmann 和 N. V. Vitanov, 《利用通用复合脉冲校正量子系统布居反转中的任意场误差》, 《物理评论快报》113，043001（2014年）。[7] E. Kyoseva、H. Greener 和 H. Suchowski, 《用于高保真鲁棒量子控制的失谐调制复合脉冲》, 《物理评论A辑》100，032333（2019年）。[8] M. H. Levitt, 《用于核磁共振布居反转的对称复合脉冲序列。I. 射频场不均匀性的补偿》, 《磁共振杂志》（1969）48，234（1982年）。[9] M. H. Levitt, 《用于核磁共振布居反转的对称复合脉冲序列。II. 共振偏移的补偿》, 《磁共振杂志》（1969）50，95（1982年）。[10] M. H. Levitt, 《复合脉冲》, 《核磁共振波谱学进展》18，61（1986年）。[11] U. Haeberlen, 《固体高分辨核磁共振：选择性平均》（爱思唯尔，1976年）。[12] J. Berkheim 和 D. J. Tannor, 《由经典力学阐明复合脉冲的鲁棒性：全球稳定性》, 《物理化学化学物理》28，764（2026年）。[13] K. R. Brown、A. W. Harrow 和 I. L. Chuang, 《任意精确的复合脉冲序列》, 《物理评论A辑》70，052318（2004年）。[14] S. Wimperis, 《用于高级核磁共振实验的宽带、窄带和通带复合脉冲》, 《磁共振杂志》A辑109，221（1994年）。[15] A. Lichtenberg 和 M. Lieberman, 《规则与混沌动力学》（施普林格，1992年）。[16] E. J. Heller, 《动力学与光谱学的半经典方法》（普林斯顿大学出版社，2018年）。[17] H. Edelsbrunner、D. Kirkpatrick 和 R. Seidel, 《关于平面上一组点的形状》, 《IEEE信息论汇刊》29，551（1983年）。[18] E. J. Heller, 《波包动力学的经典S矩阵极限》, 《化学物理学杂志》65，4979（1976年）。[19] L. C. Evans, 《测度论与函数的精细性质》（Chapman and Hall/CRC出版社，博卡拉顿，2025年）。