

# КВАНТОВАЯ ЗАПУТАННОСТЬ В НИТРОЗИЛЬНЫХ КОМПЛЕКСАХ ЖЕЛЕЗА

*С. М. Алдошин, Э. Б. Фельдман\*, М. А. Юрищев*

*Институт проблем химической физики Российской академии наук  
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 28 апреля 2008 г.

Показано, что недавние измерения магнитной восприимчивости поликристаллических образцов биядерных нитрозильных комплексов железа  $[\text{Fe}_2(\text{C}_3\text{H}_3\text{N}_2\text{S})_2(\text{NO})_4]$  (I) и  $[\text{Fe}_2(\text{SC}_3\text{H}_5\text{N}_2)_2(\text{NO})_4]$  (II) свидетельствуют о существовании в этих соединениях квантово-механической запутанности спиновых степеней свободы. Запутанность  $E$  существует ниже температуры  $T_E$ , которая по полученным нами оценкам для комплекса I составляет 80–90 К, а для комплекса II равна 110–120 К. Используя для гейзенберговского димера выражение запутанности через магнитную восприимчивость, мы находим температурный ход запутанности комплекса II. Возникнув при температуре  $T_E$ , запутанность монотонно возрастает с понижением температуры и при  $T = 25$  К, когда еще мало влияние побочных факторов, достигает в этом комплексе 90–95 %.

PACS: 03.67.Mn, 75.10.Jm, 75.50.Xx

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Запутанность является одним из наиболее интригующих феноменов квантовой механики. Примером, где проявляется данное явление, может служить система из двух спинов в состоянии с волновой функцией

$$|\psi\rangle = (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}.$$

Эту функцию, описывающую когерентную суперпозицию кубитов, невозможно представить в виде произведения волновых функций отдельных составных частей системы (состояние не сепарабельно). С другой стороны, именно это свойство — свойство запутанности — приводит к тому, что измерение состояния одной частицы позволяет мгновенно редуцировать состояние второй частицы как бы далеко или близко она не находилась от первой.

В настоящее время запутанность и связанные с ней возможности осуществления квантовых вычислений, криптографии, телепортации и т. д. исследуют не только теоретически, но и экспериментально. Более того, сейчас уже есть реальные предпосылки для того чтобы использовать эти уникальные возможности квантовой механики на практике. Литера-

тура по данной тематике весьма обширна и разнообразна; укажем для определенности, например, на обзоры и книги [1–5], а также на сайты [www.qubit.org](http://www.qubit.org) и [xxx.arxiv.ru](http://xxx.arxiv.ru).

В последнее время были установлены важные соотношения, позволяющие по измеряемым на опыте таким характеристикам, как корреляционные функции, внутренняя энергия или магнитная восприимчивость, делать предсказания о существовании запутанности в системах [6–9] (см. также обзор [10] и диссертацию [11]).

Эти теоретические результаты открыли возможность находить температуру возникновения запутанности  $T_E$  в реальных веществах. Начало было положено в [12], где показано, что в парамагнитных кристаллах  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5 \text{H}_2\text{O}$  и  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5 \text{D}_2\text{O}$  температура  $T_E \approx 5$  К. В другой совсем недавней работе [13] были предъявлены свидетельства, указывающие на возникновение квантовой запутанности в кристаллах  $\text{Na}_2\text{Cu}_5\text{Si}_4\text{O}_{14}$ , содержащих цепочки пятиядерных спиновых кластеров меди, при температурах ниже  $T_E \approx 200$ –240 К.

В предлагаемой работе рассмотрены не так давно синтезированные нитрозильные комплексы железа (НКЖ) I [14] и II [15]. Их физические свойства были изучены различными методами, включая

\*E-mail: [efeldman@icp.ac.ru](mailto:efeldman@icp.ac.ru)

рентгеноструктурный анализ, мессбауэровскую и инфракрасную спектроскопии. Кроме того, (для дальнейшего это особенно важно) с помощью СКВИД-магнитометров для этих НКЖ были получены зависимости магнитных восприимчивостей от температуры [14, 15].

В своей работе мы определяем для названных веществ не только температуру возникновения внутримолекулярной запутанности, но и в случае НКЖ II находим зависимость величины (меры) запутанности от температуры, используя для этого формулу Вуттерса (см. ниже).

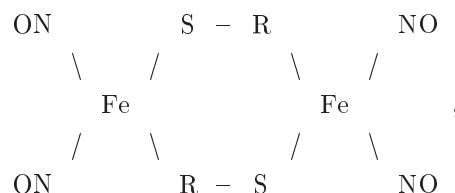
Кроме данного Введения, настоящая работа содержит следующий материал. В разд. 2 описано строение и физические характеристики НКЖ. Затем в разд. 3 статьи мы строим модель и даем вывод формул для расчета квантовой запутанности по магнитной восприимчивости. Раздел 4 посвящен обсуждению и интерпретации результатов. В заключительном разд. 5 кратко подведены итоги проделанной работы и сделаны выводы.

## 2. ДИМЕРНАЯ МАГНИТНАЯ СТРУКТУРА БИЯДЕРНЫХ НКЖ

Нитрозильные комплексы являются носителями монооксида азота NO, который выполняет роль сигнальной молекулы в целом ряде метаболических и физиологических процессов, происходящих в биологических системах и организмах, включая человека. НКЖ были открыты в живых тканях в 1960-е годы [16]. По характерному сигналу ЭПР с  $g = 2.03$  они получили название «комплексов 2.03».

В живых клетках НКЖ существуют в моноядерной и биядерной формах, соответственно с одним и двумя ионами железа в молекуле. Природные биядерные НКЖ неустойчивы и их изучение физическими методами крайне ограничено. Начиная с 2000-х годов были разработаны методы синтеза ряда устойчивых искусственных НКЖ, которые позволяют косвенным образом определять (моделировать) характеристики естественных НКЖ, а также открывают возможность для создания препаратов с нужными медико-биологическими и фармакологическими свойствами [17].

Структура интересующих нас биядерных НКЖ имеет вид



где R есть имидазол-2-тиолат (для комплекса I) или имидазолидин-2-тиолат (для комплекса II). Лиганды R представляют собой пятичленные гетероциклы, которые состоят из трех атомов углерода и двух атомов азота, разделенных углеродом.

Данные рентгеноструктурного анализа, мессбауэровской спектроскопии, а также измерений магнитной восприимчивости приводят к следующему [14, 15, 18].

Магнитоактивные центры образованы ионами железа, каждый из которых связан с двумя нитрозильными группами. Спин отдельного центра равен  $S = 1/2$ . (Механизм формирования магнитоактивного центра из одного Fe и двух NO-групп на примере моноядерного НКЖ рассмотрен в [19].)

Молекулы имеют centrosymmetricную структуру, в которой оба атома железа соединены между собой двумя мостиками S-C-N, где C-N является фрагментом гетероцикла R. В результате образуется парамагнитный димер. Взаимодействие в нем подчиняется гейзенберговскому закону и носит антиферромагнитный характер. Расстояние Fe-Fe в комплексе I равно 0.4102 нм, а в комплексе II составляет 0.4030 нм. (Меньшее расстояние способствует увеличению силы взаимодействий в магнитном димере комплекса II.)

Кристаллы обсуждаемых НКЖ имеют слоистую структуру. Внутри слоя между молекулами в одном направлении существуют межмолекулярные контакты атома серы и фрагмента N-N в кольце лиганда R. Наличие таких контактов если и ведет к существованию междимерных взаимодействий, то они слабы из-за большой протяженности этих суперобменных связей. Молекулы из разных слоев ориентированы друг к другу NO-группами. Слои связаны между собой лишь электростатическими силами, что тоже способствует изоляции магнитных димеров друг от друга.

В результате выполненные исследования позволяют заключить, что, во-первых, магнитная структура биядерных НКЖ I и II представляет собой достаточно уединенные димеры. Данное обстоятельство выделяет обсуждаемые вещества среди других материалов, проявляющих квазидимерные магнитные свойства (см. обзоры [20, 21] и имеющиеся там

ссылки). Во-вторых, измерения магнитной восприимчивости свидетельствуют о том, что комплексы I и II антиферромагнитны и взаимодействия в димерах являются гейзенберговскими.

### 3. МОДЕЛЬ И РАСЧЕТ ЗАПУТАННОСТИ

Гамильтониан спинового магнитного димера Гейзенберга имеет вид

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} J \sigma_1 \sigma_2. \quad (1)$$

В этом равенстве  $J$  — константа обменного взаимодействия,  $\sigma_1 = \sigma \otimes e$  и  $\sigma_2 = e \otimes \sigma$ , причем  $e$  — единичная матрица размером  $2 \times 2$ , а  $\sigma = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$  — вектор матриц Паули

$$\begin{aligned} \sigma_x &= \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, & \sigma_y &= \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \\ \sigma_z &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (2)$$

Компоненты магнитного момента димера равны

$$M_\nu = \frac{1}{2} g_\nu \mu_B (\sigma_1^\nu + \sigma_2^\nu), \quad \nu = x, y, z. \quad (3)$$

Здесь  $g_\nu$  — компоненты  $g$ -фактора и  $\mu_B$  — магнетон Бора.

Магнитная восприимчивость моля димеров (1)–(3) удовлетворяет уравнению Блيني–Бауэрса [22, 23]

$$\chi(T) = \frac{2N_A g^2 \mu_B^2}{k_B T (3 + \exp(-2J/k_B T))}, \quad (4)$$

где  $N_A$  — число Авогадро,  $k_B$  — постоянная Больцмана и  $T$  — температура;  $g$  — соответствующая компонента  $g$ -фактора, если измерения проводятся на монокристалле, либо

$$g^2 = (g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)/3 \quad (5)$$

при выполнении измерений на поликристаллическом образце. Уравнение Блيني–Бауэрса нам будет нужно при установлении связи запутанности с магнитной восприимчивостью.

Запутанность по формуле

$$\begin{aligned} E &= -\frac{1 + \sqrt{1 - C^2}}{2} \log_2 \left( \frac{1 + \sqrt{1 - C^2}}{2} \right) - \\ &\quad - \frac{1 - \sqrt{1 - C^2}}{2} \log_2 \left( \frac{1 - \sqrt{1 - C^2}}{2} \right) \end{aligned} \quad (6)$$

выражается через так называемую согласованность  $C$  [24–26]. Для ее расчета нужно знать матрицу плотности.

Матрица плотности системы в состоянии теплового равновесия имеет гиббсовский вид

$$\rho = \frac{1}{Z} \exp \left( -\frac{\mathcal{H}}{k_B T} \right), \quad (7)$$

где  $Z$  — статистическая сумма

$$Z = \text{Tr} \exp \left( -\frac{\mathcal{H}}{k_B T} \right). \quad (8)$$

Легко проверить, что

$$\sigma_1 \cdot \sigma_2 = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 2 & 0 \\ 0 & 2 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (9)$$

Как результат, матрица плотности гейзенберговского димера (1) равна

$$\begin{aligned} \rho(T) &= \\ &= \frac{1}{Z} \begin{pmatrix} e^K & & & \\ & e^{-K} \text{ch } 2K & e^{-K} \text{sh } 2K & \\ & e^{-K} \text{sh } 2K & e^{-K} \text{ch } 2K & \\ & & & e^K \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (10)$$

где

$$Z = 3e^K + e^{-3K} \quad (11)$$

и  $K = J/2k_B T$ .

В случае матрицы плотности, обладающей блочно-диагональной структурой вида

$$\rho = \begin{pmatrix} u & & & \\ & x_1 & w & \\ & w^* & x_2 & \\ & & & v \end{pmatrix}, \quad (12)$$

для расчета согласованности служит простая формула [27] (см. также [4, с. 49, 55])

$$C = 2 \max \{ |w| - \sqrt{uv}, 0 \}. \quad (13)$$

Наша матрица плотности (10) как раз имеет форму (12).

Выражение (13) является частным случаем известной формулы Вуттерса [25, 26] (см. также [4, с. 48]), которая позволяет рассчитывать парную согласованность между частицами со спинами  $S = 1/2$

в системе с матрицей плотности  $\rho$  произвольной структуры.

Используя соотношения (10)–(13), нетрудно найти, что в димере (1) с ферромагнитным взаимодействием, когда  $J \geq 0$ , согласованность тождественно равна нулю. В силу (6) запутанность тоже отсутствует при всех температурах:  $E \equiv 0 \forall T$ .

При антиферромагнитном же характере связи в гейзенберговском димере ( $J < 0$ ) согласованность, опять в соответствии с уравнениями (10)–(13), равна [28, 29] (см. также [4, с. 50])

$$C(T) = \frac{1 - 3 \exp(-2|J|/k_B T)}{1 + 3 \exp(-2|J|/k_B T)}, \quad T < T_E, \quad (14)$$

$$C(T) = 0, \quad T \geq T_E,$$

где

$$T_E = \frac{2}{\ln 3} |J|/k_B. \quad (15)$$

Отметим, что формула Вуттерса, из которой получено выражение (14), строго доказана непосредственно из определения запутанности через информационную энтропию фон Неймана [26]. В этом ее преимущество по сравнению с другими, формальными мерами запутанности (см. [10] и имеющиеся там ссылки). Отметим также, что наличие в системе запутанности по Вуттерсу может вести к нарушению неравенств Белла [29].

Принимая во внимание уравнение Блيني–Бауэрс (4), из (14) получаем следующее выражение для согласованности антиферромагнитного димера Гейзенберга (1) при температурах  $T < T_E$ :

$$C(T) = 1 - \frac{3}{2} \frac{\chi(T)}{\chi^{Curie}(T)}, \quad (16)$$

где

$$\chi^{Curie}(T) = \frac{N_A g^2 \mu_B^2}{2k_B T} \quad (17)$$

— закон Кюри для двух спинов с  $S = 1/2$  (уравнение Блيني–Бауэрс (4) при высоких температурах, когда можно считать  $J = 0$ ). Эти соотношения вместе с формулой (6) позволяют определять квантовую запутанность по измеряемой на опыте магнитной восприимчивости системы гейзенберговских димеров.

#### 4. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Магнитная восприимчивость антиферромагнитного димера (4) как функция температуры имеет максимум с координатами

$$\frac{k_B T_{max}^{\chi}}{|J|} = \frac{2}{1 + W(3/e)} = 1.2472 \dots, \quad (18)$$

$$\frac{|J| \chi_{max}}{N_A g^2 \mu_B^2} = \frac{1}{3} W(3/e) = 0.2011 \dots \quad (19)$$

Здесь  $W(x)$  — функция Ламберта [30], определяемая соотношением  $W e^W = x$ . Эта функция под именем Lambert  $W(x)$  включена в пакет Maple.

Из (15) и (18) находим, что

$$\frac{T_E}{T_{max}^{\chi}} = \frac{1 + W(3/e)}{\ln 3} = 1.4596 \dots \quad (20)$$

Таким образом, квантовая запутанность спиновых степеней свободы возникает при температуре, почти в полтора раза превышающей температуру максимума магнитной восприимчивости. Это обстоятельство благоприятствует нахождению  $T_E$  и  $E(T)$  из экспериментальных данных.

В соответствии с (16), запутанность в димере (1) существует, когда его восприимчивость

$$\chi(T) < \frac{2}{3} \chi^{Curie}(T). \quad (21)$$

Данное неравенство находится в полном согласии с более общим критерием несепарабельности — условием возникновения запутанности в системе из  $N$  частиц со спинами  $S$  [9, 11]:

$$\chi_p(T) < \frac{N g^2 \mu_B^2 S}{3k_B T}, \quad (22)$$

где  $\chi_p$  — усредненная по пространственным направлениям восприимчивость (восприимчивость поликристаллического материала).

Уравнение (22) мы представим в виде

$$\chi_p(T) < \frac{1}{1+S} \chi^{Curie}(T), \quad (23)$$

где

$$\chi^{Curie}(T) = \frac{n N_A g^2 \mu_B^2 S(S+1)}{3k_B T} \quad (24)$$

— закон Кюри для моля  $n$ -ядерных кластеров, состоящих из спинов величины  $S$ . (В димере  $n = 2$ .)

Правые части неравенств (21) и (23) представляют собой деформированные законы Кюри. Именно благодаря таким деформациям (из-за дополнительных ренормировочных коэффициентов) становится возможным определение запутанности в системе.

Отметим, что критерий (23), так же как и (21), позволяет находить только лишь температуру  $T_E$ , но не саму величину запутанности. Однако для димерных соединений, и в этом их преимущество, мы можем как определять  $T_E$ , так и воспроизводить с

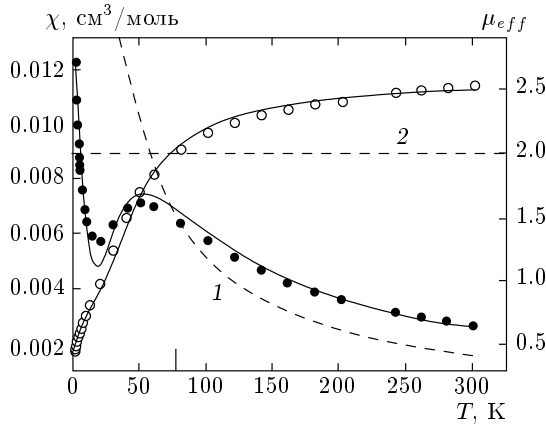


Рис. 1. Зависимости магнитной восприимчивости (●) и эффективного магнитного момента (○) для НКЖ I. Данный рисунок взят из статьи [14] и дополнен нами, как объяснено в тексте, штриховыми линиями 1 и 2

помощью соотношений (6), (16) и (17) температурный ход запутанности различных веществ, используя для этого экспериментальные данные по восприимчивости.

Обратимся к экспериментальному материалу. На рис. 1 показано поведение начальной магнитной восприимчивости комплекса I [14]. Реальное вещество с НКЖ I содержит небольшое количество примеси (порядка 2.3 % [14]), вклад от которой подчиняется закону Кюри–Вейсса. Этот вклад велик при  $T \rightarrow 0$  (на рис. 1 он проявляется в виде подъема восприимчивости вблизи нуля температуры). Однако при  $T > T_{max}^{\chi}$  вклад примеси относительно невелик и мы будем пренебрегать им при оценках температуры  $T_E$  для НКЖ I.

Штриховой линией 1 на рис. 1 мы нанесли деформированную гиперболу Кюри (правая часть неравенства (21)) с учетом того, что в НКЖ  $g = 2$  [14]. На рисунке видно, что эта гипербола пересекает экспериментальные точки (темные кружки) при  $T_E \approx 80$  К (по оси абсцисс эта температура отмечена на удлиненной рискоей). С другой стороны, как указано в работе [18], магнитная восприимчивость обсуждаемого НКЖ I проходит через максимум при  $T_{max}^{\chi} = 63$  К. Следовательно, в соответствии с формулой (20) температура запутанности должна быть  $T_E \approx 90$  К. Учитывая обе полученные оценки, заключаем, что запутанность в комплексе I возникает при температурах  $T < 80\text{--}90$  К.

В магнетохимии принято наряду с кривыми  $\chi(T)$  (а часто даже вместо них) изображать те же самые экспериментальные данные в виде зависимостей эф-

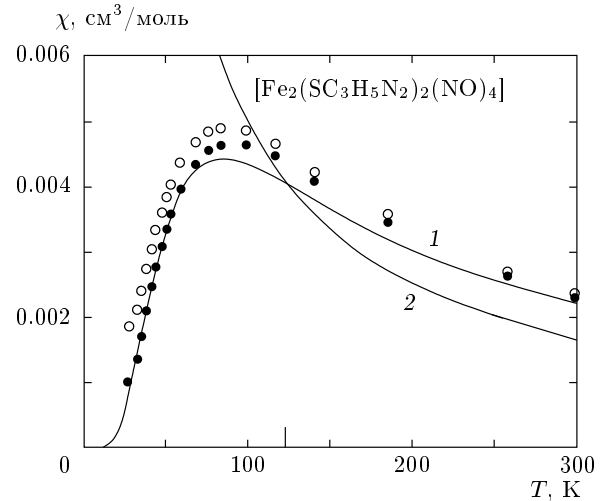


Рис. 2. Поведение магнитной восприимчивости НКЖ II с примесями (○) и после вычета вклада примеси (●). Кривая 1 — теоретическая зависимость Билини–Бауэрс с  $J/k_B = -68$  К и  $g = 2$ ; кривая 2 — зависимость  $(2/3)\chi^{Curie}(T)$  с  $g = 2$

фективного магнитного момента

$$\mu_{eff}(T) = \frac{1}{\mu_B} \left( \frac{3k_B}{N_A} T \chi \right)^{1/2}. \quad (25)$$

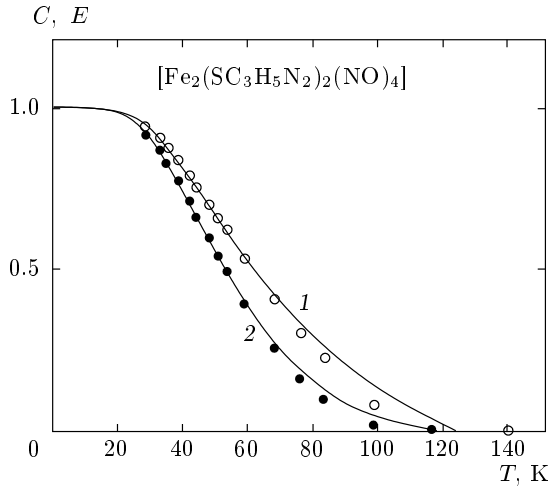
Тогда критерию (23) с учетом (24) можно придать форму

$$\mu_{eff}(T) < g\sqrt{nS}. \quad (26)$$

Использование критерия наличия или отсутствия запутанности становится предельно простым делом: нужно лишь провести горизонтальную прямую на высоте  $g\sqrt{nS}$  и посмотреть, пересекает ли она кривую  $\mu_{eff}(T)$  или нет, а если пересекает, то определить где.

На комбинированном рис. 1 светлыми кружками представлены значения  $\mu_{eff}(T)$  для комплекса I. Мы провели на этом рисунке горизонтальную штриховую прямую 2 по уровню  $g\sqrt{nS} = 2$  (поскольку  $g = 2$ ,  $n = 2$  и  $S = 1/2$ ). Видим, что значение абсциссы точки пересечения согласуется с температурой  $T_E$ , найденной выше.

Обсудим теперь опытные данные для НКЖ II, опубликованные в работе [15]. Поведение магнитной восприимчивости здесь в целом схожее с НКЖ I (см. рис. 2). Образцы были более чистыми, количество примеси не превышало 1.7%. С целью проведения более тщательного анализа мы вычли вклад примеси и получили  $\chi(T)$  собственно для НКЖ II (темные кружки на рис. 2). На этом же рис. 2 кривая 1



**Рис. 3.** Температурный ход согласованности (○) и запутанности (●) для НКЖ II. Сплошные кривые 1 и 2 — теоретические зависимости соответственно для  $C$  и  $E$

показывает зависимость Блини–Бауэрса (4) с найденными в работе [15] параметрами:  $J/k_B = -68$  К и  $g = 2$ . Как видно на рис. 2, деформированная кривая Кюри пересекает темные кружки при температуре  $T_E \approx 110$  К, а теоретическую аппроксимацию опытных данных — при  $T_E \approx 120$  К. Согласно [18], магнитная восприимчивость рассматриваемого комплекса II с примесями проходит через максимум при температуре 83 К. Пользуясь соотношением (20), находим, что  $T_E \approx 121$  К. Таким образом, в НКЖ II температура возникновения запутанности  $T_E \approx 110$ –120 К.

Наконец, на рис. 3 представлены температурные зависимости для согласованности (светлые кружки) и запутанности (темные кружки), пересчитанные по формулам (16), (17) и (6) из экспериментальных данных по магнитной восприимчивости комплекса II. Сплошными кривыми показаны теоретические зависимости  $C(T)$  и  $E(T)$ , полученные с использованием уравнения Блини–Бауэрса (4) с приведенными выше параметрами  $J/k_B$  и  $g$  для этого комплекса. На рисунке видно, что при температуре  $T = 25$  К степень запутанности в комплексе составляет 90–95 %.

Физическая интерпретация температурного поведения запутанности состоит в следующем. Гейзенберговский димер (1) обладает двумя уровнями энергии  $3J/2$  и  $-J/2$ . Они разделены энергетической щелью  $\Delta = 2|J|$ . Первый уровень представляет собой синглет, волновая функция которого равна

$$|\psi_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (27)$$

Второй уровень трехкратно вырожден, и ему отвечают волновые функции

$$|\psi_1\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (28)$$

$$|\psi_2\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (29)$$

$$|\psi_3\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (30)$$

(Орты упорядочены в последовательности  $|\uparrow\uparrow\rangle, |\uparrow\downarrow\rangle, |\downarrow\uparrow\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle$ .)

Если  $J < 0$ , то нижним уровнем оказывается синглет. Переходя в выражениях (10) и (11) к пределу  $K \rightarrow -\infty$ , находим, что при  $T = 0$  матрица плотности равна

$$\rho(0) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & & & \\ & 1 & -1 & \\ & -1 & 1 & \\ & & & 0 \end{pmatrix} = |\psi_0\rangle\langle\psi_0|. \quad (31)$$

Поскольку это состояние является чистым и максимально запутанным, в антиферромагнитном димере Гейзенберга при температуре абсолютного нуля  $E = 1$ .

С другой стороны, в пределе бесконечно высокой температуры, когда спины ведут себя как независимые частицы, матрица плотности (10) переходит в

$$\rho(\infty) = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} 1 & & & \\ & 1 & & \\ & & 1 & \\ & & & 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{4} \sum_{i=0}^3 |\psi_i\rangle\langle\psi_i|. \quad (32)$$

Запутанность частиц в этом максимально смешанном, но, очевидно, факторизуемом состоянии равна нулю.

При температуре  $T_E$  матрица плотности антиферромагнитного димера имеет вид

$$\rho(T_E) = \frac{1}{6} \begin{pmatrix} 1 & & & & & \\ & 2 & -1 & & & \\ & -1 & 2 & & & \\ & & & & & \\ & & & & & 1 \\ & & & & & & \end{pmatrix} = \frac{1}{2} |\psi_0\rangle\langle\psi_0| + \frac{1}{6} \sum_{i=1}^3 |\psi_i\rangle\langle\psi_i|. \quad (33)$$

В Приложении мы показываем непосредственными вычислениями, что данную матрицу можно представить в виде суммы прямых произведений матриц плотности отдельных спинов. Это означает (теперь уже «из первых принципов»), что состояние сепарабельно, т. е. не запутано:  $E(T_E) = 0$ .

Далее, запутанность системы в смешанном триплетном состоянии тоже равна нулю (несмотря на то, что среди формул (28)–(30) — одна,  $|\psi_3\rangle$ , является нефакторизуемой). Чтобы убедиться в этом, перейдем в уравнении (10) к пределу  $K \rightarrow +\infty$ . Получаем

$$\rho = \frac{1}{6} \begin{pmatrix} 2 & & & & & \\ & 1 & 1 & & & \\ & 1 & 1 & & & \\ & & & & & \\ & & & & & 2 \\ & & & & & & \end{pmatrix} = \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 |\psi_i\rangle\langle\psi_i|. \quad (34)$$

Для этой матрицы мы снова нашли разложение, которое в явном виде демонстрирует сепарабельность триплетного состояния (см. Приложение).

В результате картина выглядит следующим образом. Запутанность антиферромагнитного димера при  $T = 0$  равна единице (максимально запутанное состояние). С повышением температуры начинает заселяться триплет и запутанность ослабевает. Она исчезает, когда статистический вес синглета в матрице плотности уменьшается до  $1/2$  (см. (33)). Поскольку в системе есть характерный энергетический параметр  $\Delta (= 2|J|)$ , неудивительно, что исчезновение запутанности происходит при температуре  $T_E \sim \Delta/k_B$ . Затем при температурах  $T > T_E$  система остается все время в сепарабельном состоянии.

### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

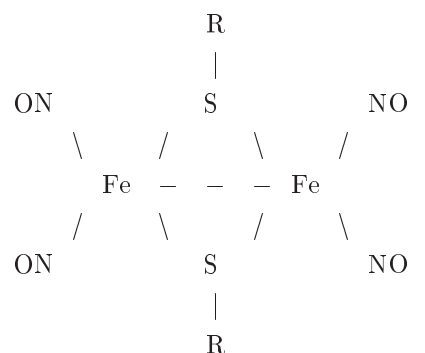
В рамках простой модели спинового димера проанализированы экспериментальные данные по магнитной восприимчивости парамагнитных нитрозильных комплексов железа  $[\text{Fe}_2(\text{SR})_2(\text{NO})_4]$  с  $\text{R}=\text{C}_3\text{H}_3\text{N}_2$  и  $\text{C}_3\text{H}_5\text{N}_2$ . Анализ свидетельствует о

возникновении в обоих этих соединениях квантово-механической запутанности при азотных температурах.

Для комплекса с  $\text{R}=\text{C}_3\text{H}_5\text{N}_2$  представлен температурный ход кривой запутанности. Опытные данные показывают, что при понижении температуры до  $T = 25$  К степень запутанности в этом НКЖ близка к 100 %.

Высокая температура  $T_E$  парамагнитных материалов является их существенным преимуществом по сравнению с веществами с ядерными спинами, где, по оценкам [31], запутанность может возникать лишь при десятых долях микрокельвина.

В плане повышения температуры  $T_E$  представляют определенный интерес так называемые диамагнитные НКЖ [32]. Их молекулярная структура имеет вид



Здесь  $\text{R}$  — теперь уже шестичленные кольца  $\text{C}_{6-n}\text{H}_{5-n}\text{N}_n$  ( $n = 0, 1, 2$ ). В этих НКЖ магнитоактивные центры  $\text{Fe}(\text{NO})_2$  тоже образуют антиферромагнитные димеры. Благодаря тому, что в молекуле лиганды  $\text{R}$  непосредственно соединены лишь с серой, расстояние между атомами железа в таких комплексах укорочено до 0.27 нм. Малое расстояние приводит, очевидно, к сильному обменному взаимодействию в димере. Поэтому можно предположить, что состояние магнитных димеров в веществе продолжает оставаться синглетным (а значит, и запутанным) даже при комнатных температурах.

Важным является вопрос о междимерных взаимодействиях в кристаллах НКЖ. Определение их открыло бы возможность исследования запутанности в макроскопических масштабах (а не только внутри молекул). Изучение междимерных связей, которые являются слабыми, требует выполнения более тонких экспериментов.

Развитый в работе метод исследования запутанности имеет общий характер и применим не только к НКЖ, но и к другим объектам, содержащим димеры.

Авторы благодарят А. В. Куликова, А. Ф. Шестакова и С. И. Доронина за полезные обсуждения. Мы также очень признательны Е. И. Кузнецовой, оказавшей помощь при подготовке рукописи. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 07-07-00048).

**ПРИЛОЖЕНИЕ**

*Определение* (см. [33, 34]). Состояние системы, состоящей из двух подсистем 1 и 2, называется сепарабельным, если существует хотя бы одно разложение матрицы плотности  $\rho$  системы вида

$$\rho = \sum_i w_i \rho_i^{(1)} \otimes \rho_i^{(2)}, \tag{П.1}$$

где веса  $w_i \geq 0$  и  $\sum_i w_i = 1$ , а  $\rho_i^{(1,2)}$  — матрицы плотности подсистем 1 и 2.

Если система сепарабельна, то в ней нет запутанности:  $E = 0$ . И наоборот, несепарабельность означает, что в системе есть запутанность:  $E \neq 0$ .

Путем выполнения прямых вычислений мы нашли, что матрица плотности (33) имеет разложение

$$\begin{aligned} \frac{1}{6} \begin{pmatrix} 1 & & & \\ & 2 & -1 & \\ & -1 & 2 & \\ & & & 1 \end{pmatrix} &= \frac{1}{6} \left[ \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \otimes \right. \\ &\otimes \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + \\ &+ \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \\ &\otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{i}{2} \\ -\frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} \\ \frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + \\ &\left. + \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} \\ \frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{i}{2} \\ -\frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \right]. \end{aligned}$$

Аналогично для матрицы плотности (34) мы получили

$$\begin{aligned} \frac{1}{6} \begin{pmatrix} 2 & & & \\ & 1 & 1 & \\ & 1 & 1 & \\ & & & 2 \end{pmatrix} &= \frac{1}{6} \left[ \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \otimes \right. \\ &\otimes \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \\ &+ \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \\ &\otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} \\ -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{i}{2} \\ -\frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & \frac{i}{2} \\ -\frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + \\ &\left. + \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} \\ \frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \otimes \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} \\ \frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \right]. \end{aligned}$$

Оба эти разложения удовлетворяют соотношению (П.1), поэтому матрицы плотности (33) и (34) отвечают сепарабельным состояниям, т. е. в данных состояниях  $E = 0$ .

**ЛИТЕРАТУРА**

1. В. В. Митюгов, УФН **163**, 103 (1993).
2. M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2000) [М. Нильсен, И. Чанг, *Квантовые вычисления и квантовая информация*, Мир, Москва (2006)].
3. *Физика квантовой информации*, под ред. Д. Бомейстера, А. Экерта и А. Цайлингера, Постмаркет, Москва (2002).
4. А. А. Кокин, *Твердотельные квантовые компьютеры на ядерных спинах*, Институт компьютерных исследований, Москва–Ижевск (2004).
5. К. А. Валиев, УФН **175**, 3 (2005).
6. X. Wang and P. Zanardi, Phys. Lett. A **301**, 1 (2002).
7. R. A. Cowley, J. Phys.: Condens. Matter **15**, 4143 (2003).
8. Č. Brukner and V. Vedral, arXiv:quant-ph/0406040.
9. M. Wieśniak, V. Vedral, and Č. Brukner, New J. Phys. **7**, 258 (2005).
10. L. Amico, R. Fazio, A. Osterloh, and V. Vedral, Rev. Mod. Phys. **80**, 517 (2008); arXiv:quant-ph/0703044.



11. M. Wieśniak, *Quantum Entanglement in Some Physical Systems*, Dissertation, Gdańsk (2007); arXiv:quant-ph/0710.1775.
12. Č. Brukner, V. Vedral, and A. Zeilinger, Phys. Rev. A **73**, 012110 (2006).
13. A. M. Souza, M. S. Reis, D. O. Soares-Pinto et al., Phys. Rev. B **77**, 104402 (2008).
14. N. A. Sanina, S. M. Aldoshin, T. N. Rudneva et al., J. Mol. Struct. **752**, 110 (2005).
15. Н. А. Санина, Т. Н. Руднева, С. М. Алдошин и др., Известия АН, серия хим. № 1, 28 (2007).
16. А. Ф. Ванин, УФН **170**, 455 (2000).
17. Н. А. Санина, С. М. Алдошин, Известия АН, серия хим. № 11, 2326 (2004).
18. Т. Н. Руднева, *Синтез, исследование строения и NO-донорной активности нитрозильных комплексов железа с 2-меркаптоимидазолами*, Дисс. ... канд. хим. наук, ИПХФ РАН, Черноголовка (2007); [http://www.icp.ac.ru/news/avtoref/070628\\_Rudneva.doc](http://www.icp.ac.ru/news/avtoref/070628_Rudneva.doc).
19. А. Ф. Шестаков, Ю. М. Шульга, Н. С. Емельянова и др., Известия АН, серия хим. № 7, 1244 (2007).
20. А. Н. Васильев, М. М. Маркина, Е. А. Попова, ФНТ **31**, 272 (2005).
21. А. И. Смирнов, В. Н. Глазков, ЖЭТФ **132**, 984 (2007).
22. B. Bleaney and K. D. Bowers, Proc. Roy. Soc. (London) A **214**, 451 (1952).
23. Р. Карлин, *Магнетохимия*, Мир, Москва (1989).
24. C. H. Bennett, D. P. DiVincenzo, J. A. Smolin, and W. K. Wootters, Phys. Rev. A **54**, 3824 (1996).
25. S. Hill and W. K. Wootters, Phys. Rev. Lett. **78**, 5022 (1997).
26. W. K. Wootters, Phys. Rev. Lett. **80**, 2245 (1998).
27. K. M. O'Connor and W. K. Wootters, Phys. Rev. A **63**, 052302 (2002).
28. M. A. Nielsen, *Quantum Information Theory*, Dissertation, New Mexico (1998); arXiv:quant-ph/0011036.
29. M. C. Arnesen, S. Bose, and V. Vedral, Phys. Rev. Lett. **87**, 017901 (2001).
30. А. Е. Дубинов, И. Д. Дубинова, С. К. Сайков, *W-функция Ламберта: таблицы интегралов и другие математические свойства*, СарФТИ, Саров (2004).
31. С. И. Доронин, А. Н. Пырков, Э. Б. Фельдман, Письма в ЖЭТФ **85**, 627 (2007); ЖЭТФ **132**, 1091 (2007).
32. А. Ф. Шестаков, Ю. М. Шульга, Н. С. Емельянова и др. Известия АН, серия хим. № 12, 2053 (2006).
33. R. F. Werner, Phys. Rev. A **40**, 4277 (1989).
34. A. Peres, Phys. Rev. Lett. **77**, 1413 (1996).