

На правах рукописи

Швецов Александр Владимирович

**НЕЛИНЕЙНЫЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ
КРИСТАЛЛОВ МОЛЕКУЛЯРНЫХ МАГНИТОВ С
РЕЗОНАНСНЫМИ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫМИ
ПОЛЯМИ**

01.04.07 - физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Нижний Новгород, 2009 г.

Работа выполнена на кафедре теоретической физики физического факультета ГОУ ВПО "Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского"

Научный руководитель

кандидат физико-математических наук,
с.н.с. ИФМ РАН **Токман Иосиф Давидович**

Официальные оппоненты

доктор физико-математических наук,
профессор **Ефремов Геннадий Федорович**

доктор физико-математических наук,
зам. директора ИФМ РАН **Фраерман Андрей Александрович**

Ведущая организация

Институт прикладной физики РАН, г. Нижний Новгород

Защита состоится 21 октября 2009 г. в часов на заседании диссертационного совета Д212.166.01 при государственном образовательном учреждении высшего профессионального образования "Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского" по адресу: 603950, г. Нижний Новгород, пр. Гагарина, д. 23, корп. 3 (НИФТИ).

С диссертацией можно ознакомиться в фундаментальной библиотеке Нижегородского государственного университета им. Н. И. Лобачевского.

Автореферат разослан " сентября 2009 г.

Отзывы направлять по адресу:
603950, г. Нижний Новгород, пр. Гагарина, д. 23, корп. 3 физический факультет ННГУ

Ученый секретарь диссертационного совета
доктор физико-математических наук,
профессор

А.И. Машин

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Магнетизм является одним из фундаментальных свойств материи, важным разделом физики конденсированного состояния. Среди широкого спектра исследуемых в последние годы новых магнитных материалов кристаллы молекулярных магнитов, благодаря усилиям многих исследовательских групп, стали активно и всесторонне изучаться [1]. Эти кристаллы, молекулы которых содержат большое, но конечное число магнитных центров, обладают необычными магнитными свойствами, что сделало их почти идеальными системами для наблюдения квантовых эффектов в магнетиках [2, 3]. Магнитными центрами в этих материалах могут являться ионы переходных или редкоземельных металлов или органические радикалы. Такие системы, состоящие из десятков и сотен атомов, уже не являются микроскопическими. Во многих случаях поведение намагниченности таких систем описывается классическими уравнениями, но при определенных условиях они демонстрируют квантовое поведение, например, квантовое туннелирование намагниченности. Поэтому такие системы называют мезоскопическими, их свойства являются промежуточными между квантовыми и классическими и это определяет фундаментальный интерес к ним. Для них характерны очень низкие скорости магнитного туннелирования. Существование классических и квантовых эффектов в мезоскопических системах обуславливает их возможное использование для создания совершенно новых типов устройств нанометровых размеров. В частности, интересна область квантовых вычислений, где информацией можно управлять с помощью квантовых эффектов.

В начале 1990-ых было открыто [2, 3], что молекула $[Mn_{12}O_{12}(CH_3COO)_{16}(H_2O)_4]$, содержащая 12 ионов марганца и обладающая полным спином $S = 10$ в основном состоянии, обнаруживает очень слабую релаксацию намагниченности при низкой температуре (порядка нескольких месяцев при 2К). В таких условиях отдельная молекула становится наноманитом. Если такую молекулу намагнитить внешним полем, то она будет сохранять намагниченность в течение дней. Это является одним из условий для записи информации на частицу. При такой низкой температуре Mn_{12} -ацетат ведет себя как классический магнит. Тем не менее, молекулы Mn_{12} -ацетата, как и другие магнитные молекулы, еще достаточно малы, так что проявляют квантовые эффекты, в том числе квантовое туннелирование намагниченности. Таким образом, молекулярные магниты рассматриваются как объекты для создания устройств со сверхплотной записью информации [4, 5]. В частности, интересен недавний эксперимент, который показывает возможность записи информации на магнитную молекулу [6].

Среди работ, посвященных кристаллам молекулярных магнитов, важное место занимают те, в которых изучается взаимодействие молекулярных магнитов с переменными полями [7, 17]. Такие работы позволяют получать ин-

формацию о спектре и временах релаксации молекулярных магнитов. Кроме того, при помощи электромагнитных полей можно управлять спиновыми степенями свободы, то есть управлять состоянием молекулярного магнита, что важно для практических применений. Молекулярные магниты рассматриваются как источники электромагнитного излучения миллиметрового диапазона (~ 0.2 ТГц). В этой связи рассматриваются условия, при которых может быть получено сверхизлучение в кристаллах молекулярных магнитов [9]. Экспериментальные работы, нацеленные на наблюдение сверхизлучения, обнаружили интересный эффект, названный "магнитным горением" (*magnetic deflagration* [8]). Эффект состоит в обращении намагниченности кристалла за достаточно короткое время. Но это время все же достаточно большое для того, чтобы этот эффект соответствовал сверхизлучению.

В последнее время интенсивно теоретически изучается эффект электромагнитной индуцированной прозрачности (ЭИП) в кристаллах молекулярных магнитов [11, 12]. Заметим, что этот нелинейный эффект достаточно трудно осуществить в твердых телах из-за малых времен релаксации. Исключения составляют спиновые степени свободы в широком классе конденсированных сред [15], что, в частности, обуславливает интерес к кристаллам молекулярных магнитов с этой точки зрения.

Молекулярные магниты интересны также как перспективные материалы для реализации квантовых вычислений [4, 10]. Однако, прежде чем использовать эти материалы для таких практических приложений, необходимо также иметь информацию о механизмах релаксации и временах релаксации в таких системах. В этой связи отметим работу [13], где экспериментально исследована спиновая динамика в молекулярных магнитах с помощью электронного парамагнитного резонанса и поверхностных акустических волн и установлена верхняя граница продольного времени релаксации. В целом же, вопрос о временах релаксации при низких температурах в молекулярных магнитах остается открытым и ответить на него могут помочь нелинейные эффекты взаимодействия кристалла молекулярных магнитов с акустическими и электромагнитными полями.

Цели и задачи работы

Целью работы является изучение нелинейных эффектов в кристаллах молекулярных магнитов: эффекта электромагнитной индуцированной прозрачности и распространения акустической волны в кристалле в присутствии сильного резонансного электромагнитного поля, сверхизлучения в кристаллах молекулярных магнитов, находящихся под действием сильного резонансного электромагнитного поля, а также динамики намагничивания кристалла циркулярно-поляризованной электромагнитной волной. В связи с этим ставятся следующие задачи:

1. Рассчитать отклик кристалла молекулярных магнитов на слабое поле,

как при наличии сильного одночастотного электромагнитного поля, так и в случае двухчастотного сильного электромагнитного поля, определить условия необходимые для наблюдения эффекта электромагнитной индуцированной прозрачности. Исходя из симметрии гамильтониана магнитных молекул, определить оптимальные для возникновения окон прозрачности (как в случае одночастотного, так и двухчастотного поля) поляризации полей.

2. Исследовать влияние неоднородного уширения на профили поглощения слабого электромагнитного поля, как для случая одного сильного поля, так и для случая сильного двухчастотного поля. Сделать вывод о том, какие молекулярные магниты предпочтительнее для наблюдения эффекта.
3. Рассмотреть распространение акустической волны в кристалле молекулярных магнитов при наличии сильного резонансного электромагнитного поля. Вывести волновое акустическое уравнение. Определить коэффициент поглощения акустической волны и групповую скорость, установить зависимость этих величин от констант релаксации. Провести численные расчеты влияния неоднородного уширения на распространение акустической волны в кристалле для различных значений отношения амплитуды сильного резонансного электромагнитного поля к константам релаксации.
4. Рассмотреть явление сверхизлучения в кристаллах молекулярных магнитов в сильном резонансном электромагнитном поле, которое существенно модифицирует исходный спектр молекулярных магнитов. Исследовать условия необходимые для наблюдения данного эффекта. Определить интенсивность излучения как функцию времени.
5. Рассмотреть взаимодействие кристалла молекулярных магнитов со слабой поперечной анизотропией с циркулярно-поляризованной электромагнитной волной: рассчитать возникающую при этом намагниченность кристалла, определить зависимость возникающей намагниченности от времени для случая точного резонанса и в отсутствие резонанса с использованием приближения единого времени релаксации, определить стационарное значение намагниченности.

Научная новизна диссертации

Данная работа является первым исследованием эффекта электромагнитной индуцированной прозрачности в кристаллах молекулярных магнитов. В работе рассматривается распространение акустической волны в кристалле молекулярных магнитов и показано, что изменение групповой скорости акустической волны в данных материалах может быть значительным.

Детально изучено влияние разброса параметра анизотропии магнитных молекул на эффекты. Разброс параметров молекул не подавляет эффект электромагнитной индуцированной прозрачности и не уменьшает изменение групповой скорости акустической волны в кристалле. В работе показано, что данные нелинейные эффекты могут быть использованы для определения констант релаксации в молекулярных магнитах при низкой температуре.

Впервые предложено использование воздействия сильного резонансного электромагнитного поля на кристаллы молекулярных магнитов с целью создания условий, при которых возможно сверхизлучение. Рассмотренная нами задача отличается от способа получения сверхизлучения в кристаллах молекулярных магнитов, предложенного в [9]. Сильное резонансное электромагнитное поле существенно модифицирует спектр молекулярных магнитов и становится возможным сверхизлучение со стационарного уровня на квази-энергетический.

Впервые теоретически исследована динамика намагничивания кристаллов молекулярных магнитов эллиптически-поляризованной электромагнитной волной миллиметрового диапазона. Возникающая стационарная намагниченность (на временах больших характерных времен релаксации) квадратична по амплитуде переменного магнитного поля и максимальна при круговой поляризации. А направление намагниченности изменяется на противоположное при смене направления поляризации волны на противоположное.

Научная и практическая значимость

Результаты, изложенные в данной работе, являются важными для изучения нелинейных эффектов в кристаллах молекулярных магнитов и, прежде всего, эффекта электромагнитной индуцированной прозрачности.

Предложенный способ получения сверхизлучения в кристаллах молекулярных магнитов интересен с точки зрения создания импульсных источников излучения.

Анализ взаимодействия молекулярных магнитов с переменными полями может быть полезен для экспериментальных исследований, связанных с определением времен релаксации.

Эффект намагничивания кристалла молекулярных магнитов эллиптически-поляризованной электромагнитной волной миллиметрового диапазона может быть использован для анализа поляризации миллиметрового излучения.

Основные научные положения выносимые на защиту

1. Показана возможность существования эффекта электромагнитной индуцированной прозрачности в кристаллах молекулярных магнитов: поглощение слабого (пробного) электромагнитного поля уменьшается в присутствии сильного резонансного поля (поля накачки). При этом поле на-

качки должно быть поляризовано вдоль средней оси анизотропии молекулы, а пробное поле - вдоль тяжелой оси. В силу симметрии гамильтониана молекулы поле накачки не вызывает переходы молекул с основного уровня на более высоколежащие, так как такие переходы запрещены. Это имеет важное значение для наблюдения эффекта в условиях малой величины расщепления основного дублета молекулярных магнитов.

2. Разброс константы анизотропии в кристалле Fe_8 делает эффект ЭИП менее выраженным, но не подавляет его полностью. В кристалле $\text{Mn}_{12} - \text{As}$ с большим беспорядком эффект ЭИП подавлен.
3. В кристаллах молекулярных магнитов в поле двухчастотной накачки образуется два окна прозрачности для пробного сигнала (область частот, где поглощение пробного сигнала мало). Показано, что поля накачки должны быть поляризованы вдоль легкой и средней осей анизотропии молекулы. Из численных расчетов восприимчивости следует, что неоднородное уширение в молекулярном магните Fe_8 не подавляет эффект образования окон прозрачности.
4. Воздействие сильного резонансного магнитного поля на кристалл магнитных молекул приводит к уменьшению поглощения и групповой скорости акустического сигнала, распространяющегося в нем. Показано, что в кристаллах молекулярных магнитов происходит значительное изменение групповой скорости акустического сигнала в условиях электромагнитной индуцированной прозрачности.
5. Поглощение акустического сигнала и изменение его групповой скорости сильно зависят от отношения квадрата амплитуды резонансного магнитного поля к произведению констант релаксации и от отношения самих релаксационных констант. Это может быть использовано для оценки констант релаксации в молекулярных магнитах при низких температурах. Выполнены численные расчеты для коэффициента поглощения и изменения величины групповой скорости акустического сигнала с учетом неоднородного уширения в кристалле молекулярных магнитов Fe_8 . Расчеты демонстрируют, что неоднородное уширение приводит к сужению окна прозрачности, но позволяет наблюдать эффект.
6. Кристалл молекулярных магнитов, находящийся в постоянном магнитном поле, под воздействием сильного переменного магнитного поля может стать источником электромагнитного сверхизлучения. Энергетический спектр магнитных молекул существенно модифицируется сильным электромагнитным полем и сверхизлучение возникает как эффект корреляции процессов излучения отдельных магнитных молекул при их переходах со стационарного уровня на квазиэнергетический.
7. Описана динамика возникновения нелинейной намагниченности в кристаллах молекулярных магнитов в поле резонансной электромагнитной

волны. Величина намагниченности зависит от констант релаксации, мощности электромагнитной волны и ее поляризации. Если волна линейно-поляризованная, то намагниченность не возникает. И наоборот, намагниченность максимальна, если волна имеет круговую поляризацию. В случае точного резонанса намагниченность монотонно возрастает и за время порядка времени продольной релаксации выходит на постоянное значение. Если же существует отстройка от резонанса, то намагниченность будет достигать постоянного значения осциллируя. Эти осцилляции затухают за время порядка времени релаксации. Численные оценки показывают, что намагниченность кристалла может быть легко экспериментально обнаружена.

Личный вклад автора в получение результатов

Соискатель принимал участие в постановке и решении теоретических задач, в обсуждении полученных результатов и их интерпретации. Во всех работах вклад автора равноценен вкладам соавторов.

Апробация результатов

Основные положения и результаты работы докладывались и обсуждались на конференциях:

1. Международный симпозиум "Нанозифика и нанозлектроника" (Н. Новгород, 2007-2009гг.).
2. Международная конференция "Euro-Asian Symposium EASTMAG - 2007 "Magnetism on a nanoscale" (Россия, Казань, 23-26 августа 2007г.).
3. 3-я Всероссийская школа молодых ученых "Микро-, нанотехнологии и их применение", (Черноголовка, 18-19 ноября 2008г.).
4. XII и XIII нижегородские сессии молодых ученых, (Н. Новгород, 2007-2008гг.).

Публикации

По результатам исследований, отраженных в диссертации, опубликовано 15 научных работ (8 статей в реферируемых научных журналах и 7 - в сборниках тезисов докладов).

Объем и структура диссертации

Диссертация состоит из Введения, пяти Глав, Заключения, Приложения и Списка литературы из 114 наименований. Объем диссертации составляет 122

страниц. В диссертации приведено 35 рисунков.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обосновывается актуальность работы, формируются её цели и положения, выносимые на защиту. Обсуждаются задачи, решаемые в диссертации. Описывается новизна, практическая значимость и апробация работы.

В первой главе приводится обзор современных работ, посвященных кристаллам молекулярных магнитов (магнитных молекул). В разделе 1.1 описывается строение и магнитокристаллографическая анизотропия наиболее известных представителей данных материалов - кристаллов молекулярных магнитов $Mn_{12}-Ac$ и Fe_8 . Обсуждается сильная одноосная магнитная анизотропия магнитных молекул, составляющих кристалл и подчеркивается очень слабое взаимодействие между соседними молекулами в кристалле. Раздел 1.2 посвящен макроскопическому квантовому туннелированию намагниченности, явлению, которое наблюдается в этих кристаллах и привлекает в последние годы внимание исследователей. Описывается различие между молекулярными магнитами $Mn_{12}-Ac$ и Fe_8 . Так, в первом из них очень большие времена туннелирования, порядка месяцев, тогда как времена туннелирования намагниченности в Fe_8 на порядки меньше. Это связано с наличием достаточно заметной поперечной анизотропии в Fe_8 наряду с сильной одноосной.

В разделе 1.3 обсуждаются работы, посвященные взаимодействию кристаллов молекулярных магнитов с акустическими волнами. Поскольку молекулярный магнит - металл-органическое соединение, за магнитные свойства которого отвечает лишь жесткий остов, состоящий из ионов металла и кислорода и находящийся в окружении сравнительно упругих молекул кислот и воды, то взаимодействие с длинноволновыми акустическими колебаниями приводит лишь к поворотам жесткого магнитного остова как целого, но не к деформации последнего. Авторами работы [14] показано, что в этом случае гамильтониан магнитоупругого взаимодействия существенно упрощается.

Во второй главе рассматривается эффект электромагнитной индуцированной прозрачности (ЭИП) в кристаллах молекулярных магнитов для частот порядка 0.1 ТГц. Магнитные молекулы характеризуются сильной одноосной анизотропией и в постоянном магнитном поле описываются гамильтонианом

$$\hat{H}_0 = -D\hat{S}_z^2 + \hat{H}_{tr} - g\mu_B\hat{S}_xH_0, \quad (1)$$

где \hat{H}_{tr} описывает более слабую поперечную анизотропию молекулы, постоянное магнитное поле H_0 направлено вдоль средней оси анизотропии молекулы (ось x), D - константа анизотропии магнитной молекулы, \hat{S}_x - оператор проекции спина магнитной молекулы на ось x , g - фактор Ланде, μ_B - магнетон Бора. Спектр магнитной молекулы представляет собой последовательность

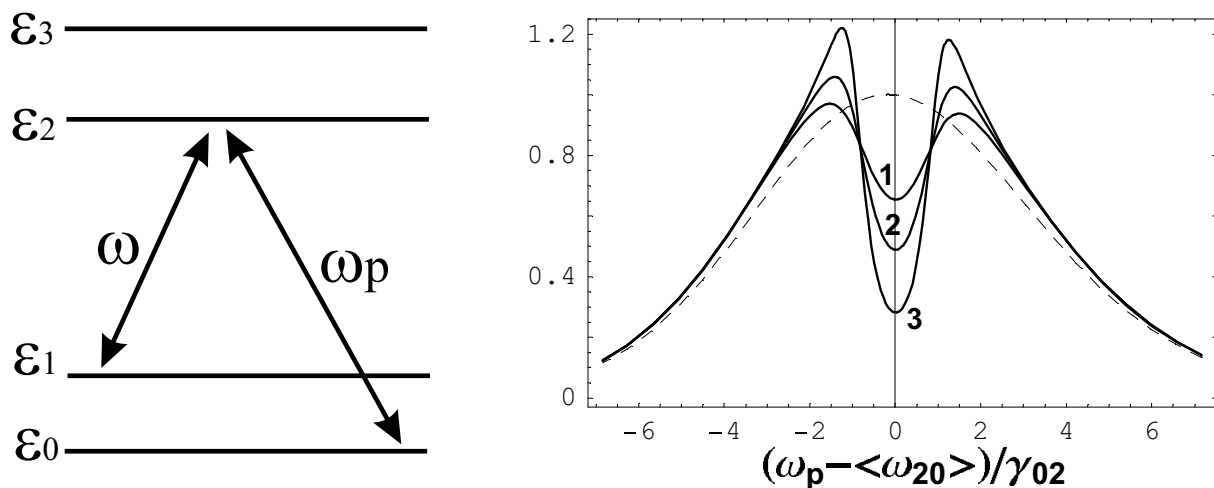


Рис. 1: Два нижних дублета магнитной молекулы. Вертикальные стрелки показывают переходы, вызванные сильным (ω) и слабым (ω_p) полями.

Рис. 2: Профиль поглощения пробного поля с учетом разброса константы анизотропии D . Расчет выполнен для фиксированного значения амплитуды поля накачки и трех значений отношения констант релаксации соответствующих переходов γ_{01}/γ_{02} ($\gamma_{01}/\gamma_{02} = 1$ (сплошная линия 1), 0.5 (2), 0.1 (3)) для кристалла Fe_8 . Константа релаксации γ_{02} равна 10^9 с^{-1} . Постоянное магнитное поле $H_0 = 22.4 \text{ кГц}$. Частота поля накачки ω совпадает с $\omega_{21}(\langle D \rangle)$, где $\langle D \rangle$ - среднее значение константы анизотропии. $\langle \omega_{20} \rangle = \omega_{20}(\langle D \rangle)$. Пунктирная линия - пик поглощения пробного поля в отсутствие поля накачки.

дублетов, расщепленных постоянным магнитным полем, а также полем поперечной анизотропии (рис.1).

Рассматривается классическая лямбда-схема [15] (см. рис.1), где сильное резонансное поле с частотой ω связывает два незаселенных уровня ε_1 и ε_2 , в результате чего слабое пробное поле с частотой ω_p , близкой к частоте перехода $\varepsilon_0 \longleftrightarrow \varepsilon_2$ не поглощается (рис.2).

В разделе 2.1 показано, что в силу симметрии гамильтониана молекулы (1) пробное поле должно быть поляризовано вдоль средней оси анизотропии молекулы (оси x), тогда как сильное поле накачки - вдоль тяжелой оси анизотропии молекулы (оси y). Кроме того, в силу симметрии гамильтониана (1) отсутствует сильная резонансная связь уровней ε_0 и ε_2 за счет поля накачки. Это имеет важное значение, поскольку для не слишком больших значений постоянного магнитного поля H_0 частота перехода $\varepsilon_0 \longleftrightarrow \varepsilon_1$ значительно меньше частоты перехода $\varepsilon_0 \longleftrightarrow \varepsilon_2$. Однако, описание эффекта, проведенное в разделах 2.2 и 2.3, касается лишь идеальных кристаллов, в которых отсутствует неоднородное уширение. В реальных же кристаллах молекулярных магнитов всегда присутствует разброс частот переходов. В работе [17] показано, что основным фактором вызывающим разброс частот переходов является разброс

в величине анизотропии D молекул, составляющих кристалл. Изменение величины анизотропии приводит не только к изменению спектра магнитной молекулы, но и собственных функций гамильтониана (1). В разделе 2.4 установлено, что изменение матричных элементов операторов проекций спина магнитной молекулы при небольших вариациях константы анизотропии не существенно и не сказывается на эффекте ЭИП, поэтому следует лишь учитывать разброс частот переходов. Учет неоднородного уширения приводит к следующему выводу: в кристаллах молекулярных магнитов $Mn_{12} - Ac$ эффект ЭИП будет подавлен сильным разбросом параметров молекул, но может наблюдаться в кристалле Fe_8 . На рис.2 приведен профиль поглощения пробного сигнала для кристалла молекулярных магнитов Fe_8 с учетом разброса константы анизотропии.

В разделе 2.5 рассматривается случай двухчастотного поля накачки. Одно из полей накачки резонансно для переходов $\varepsilon_1 \longleftrightarrow \varepsilon_2$, другое - для $\varepsilon_2 \longleftrightarrow \varepsilon_3$. Частота слабого пробного поля близка к частоте перехода $\varepsilon_0 \longleftrightarrow \varepsilon_3$. Качественно, путем приближенного решения временного уравнения Шредингера, и более детально, с учетом процессов релаксации, показано, что в этом случае для пробного поля образуются два окна прозрачности, заключенные между тремя пиками поглощения. Эффект не подавлен в кристалле Fe_8 .

В третьей главе описано распространение акустической волны в кристалле молекулярных магнитов в присутствии сильного резонансного электромагнитного поля. В данной главе рассматривается кристалл молекулярных магнитов Fe_8 в постоянном магнитном поле, которое необходимо, чтобы расщеплять дублеты на нужную величину, и в сильном резонансном электромагнитном поле, частота которого ω близка к частоте перехода $\varepsilon_1 \longleftrightarrow \varepsilon_2$ (см. рис.3а). Сильное резонансное электромагнитное поле существенно влияет на спектр магнитных молекул и, тем самым, на распространение акустической волны с частотой ω_p , близкой к частоте перехода $\varepsilon_0 \longleftrightarrow \varepsilon_1$.

В разделе 3.2, пользуясь понятием квазиэнергетических состояний [16], объяснена возможность появления окна прозрачности для акустической волны. Действительно, волновые функции, соответствующие уровням, связанным полем накачки, претерпевают существенные изменения. Вместо двух стационарных состояний, соответствующих уровням ε_1 и ε_2 , образуются два квазиэнергетических состояния, являющихся линейными комбинациями начальных стационарных состояний φ_1 и φ_2 гамильтониана (1). При этом образуются два квазиэнергетических уровня (см. рис.3б) с квазиэнергиями $\varepsilon_1 - \hbar\Omega$ и $\varepsilon_1 + \hbar\Omega$, где

$$\Omega = g\mu_B H | \langle \varphi_2 | \hat{S}_y | \varphi_1 \rangle | / 2\hbar \quad (2)$$

- частота Раби поля накачки. Здесь H - амплитуда поля накачки. В результате акустическая волна оказывается в окне прозрачности шириной 2Ω .

Решение волнового уравнения (раздел 3.3) для акустической волны, распространяющейся вдоль оси z и поляризованной вдоль оси x , приводит к

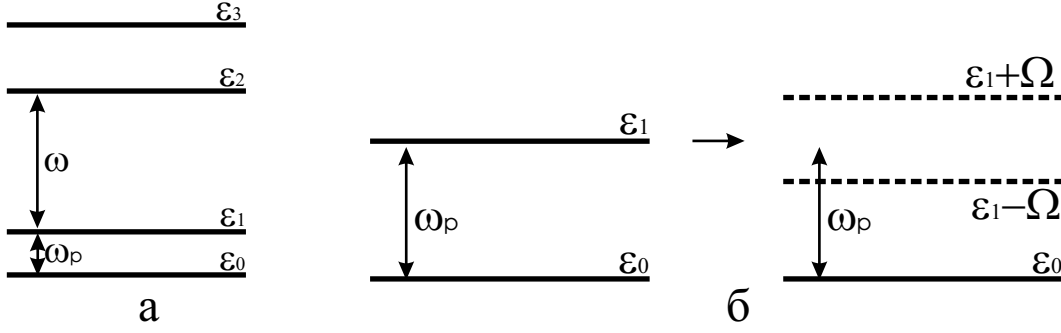


Рис. 3: а) Нижние уровни магнитной молекулы. Стрелки изображают переходы, вызванные сильным переменным магнитным полем (ω) и акустической волной (ω_p); б) образование квазиэнергетических уровней (штрихованные линии) взамен уровней $\varepsilon_1, \varepsilon_2$ невозмущенной системы как результат наличия резонансного магнитного поля.

выражению для смещения кристаллической решетки u_x :

$$u_x(z, t) = \frac{1}{2} u_1(z = 0) \exp(-\alpha' z) \exp(i(k_p - \alpha'') z - \omega_p t) + c.c., \quad (3)$$

где k_p - волновой вектор акустической волны. Коэффициент α - комплексный. Его действительная часть α' описывает поглощение акустической волны, а производная от мнимой части α'' по частоте акустической волны определяет изменение групповой скорости.

$$\alpha = \frac{ik_p F \{\hat{S}_x, \hat{S}_z\}_{10} \chi(\omega_p)}{2g\mu_B S_{z,01} \rho \vartheta^2} = \frac{ik_p n F^2 \{\hat{S}_x, \hat{S}_z\}_{01}^2}{2\rho \vartheta^2 \hbar \Gamma}. \quad (4)$$

$$\Gamma = \Gamma_{01}^* (1 - \Omega^2 / \Gamma_{02}^* \Gamma_{01}^*).$$

Здесь $\Gamma_{01} = \omega_p - \omega_{10} - i\gamma_{01}$, $\Gamma_{02} = \omega + \omega_p - \omega_{20} - i\gamma_{02}$, F - константа, характеризующая величину магнитоупругого взаимодействия, n - число молекул в единице объема, ϑ - скорость акустической волны в кристалле в отсутствие магнитоупругого взаимодействия, ρ - плотность кристалла, $\{\hat{S}_x, \hat{S}_z\}$ - антикоммутатор.

Коэффициент α пропорционален восприимчивости $\chi(\omega_p)$ на частоте акустической волны и, следовательно, величине $1/\Gamma$. Последняя определяет зависимость восприимчивости от частоты. При резонансе ($\omega = \omega_{21}$ и $\omega_p = \omega_{10}$) функция $Im(1/\Gamma)$ (и, следовательно, $Im(\chi(\omega_p))$) имеет экстремум, а функция $Re(1/\Gamma)$ (и, следовательно, $Re(\chi(\omega_p))$) равна нулю (см. Рис. 4а и Рис. 4б). Если поле накачки слабое, тогда отношение $\Omega^2 / (\gamma_{01}\gamma_{02})$ мало, и мы получаем $1/\Gamma \approx 1/\Gamma_{01}^*$, то есть действительная часть α имеет один пик поглощения. Если выполняется неравенство $\Omega^2 / (\gamma_{01}\gamma_{02}) \gg 1$, тогда действительная часть α имеет резко выраженный минимум и поглощение сигнала на частоте ω_{10} исчезает (см. Рис. 4а).

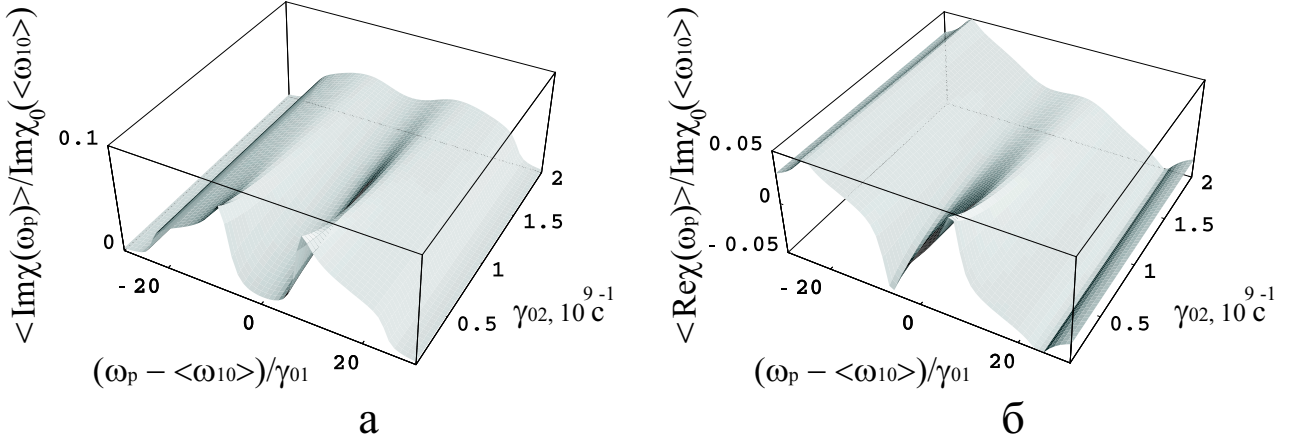


Рис. 4: а) Зависимость мнимой части восприимчивости от значения константы релаксации γ_{02} . б) Зависимость действительной части восприимчивости от значения константы релаксации γ_{02} . Расчеты учитывают разброс частот переходов ($\Omega = 20\gamma_{01}$, $\gamma_{01} = 10^7 \text{с}^{-1}$, γ_{02} изменяется от 10^8с^{-1} до $2 \cdot 10^9 \text{с}^{-1}$).

Из уравнения (3) следует, что групповая скорость акустической волны равна

$$v_{gr} = \frac{\vartheta\theta}{\theta - \vartheta} \quad (5)$$

и определяется величиной $\theta = d\omega_p/d\alpha''$ и, соответственно, производной действительной части восприимчивости по частоте акустической волны. Численные расчеты, проведенные в разделе 3.4, показывают, что при выполнении условия $\Omega^2/(\gamma_{01}\gamma_{02}) \gg 1$ изменение групповой скорости акустической волны может быть значительным, а именно, в кристалле Fe_8 она уменьшается вдвое. Это изменение сопровождается также резким уменьшением поглощения акустической волны, что позволит измерить данный эффект. Численные расчеты показывают, что разброс параметров молекул не подавляют данный эффект.

Так как проявление эффекта сильно зависит от отношения частоты Раби и констант релаксации $\Omega^2/(\gamma_{01}\gamma_{02})$, а также от отношения γ_{01}/γ_{02} (см. Рис. 4а и Рис. 4б), данный эффект может быть использован для определения этих отношений. Измеряя поглощение акустической волны, можно оценить величину релаксационных констант γ_{01} , γ_{02} , а одновременно измеряя изменение групповой скорости, можно оценить отношение этих констант.

В четвертой главе рассматривается сверхизлучение кристалла молекулярных магнитов в присутствии сильного резонансного электромагнитного поля. Сверхизлучение - это спонтанное коллективное излучение системы одинаковых диполей, когда интенсивность излучения пропорциональна квадрату числа этих диполей. Предложенная в разделе 4.2 схема наблюдения сверхизлучения молекулярных магнитов отличается от предложенной ранее в работе [9]. Сильное резонансное электромагнитное поле с амплитудой H и частотой

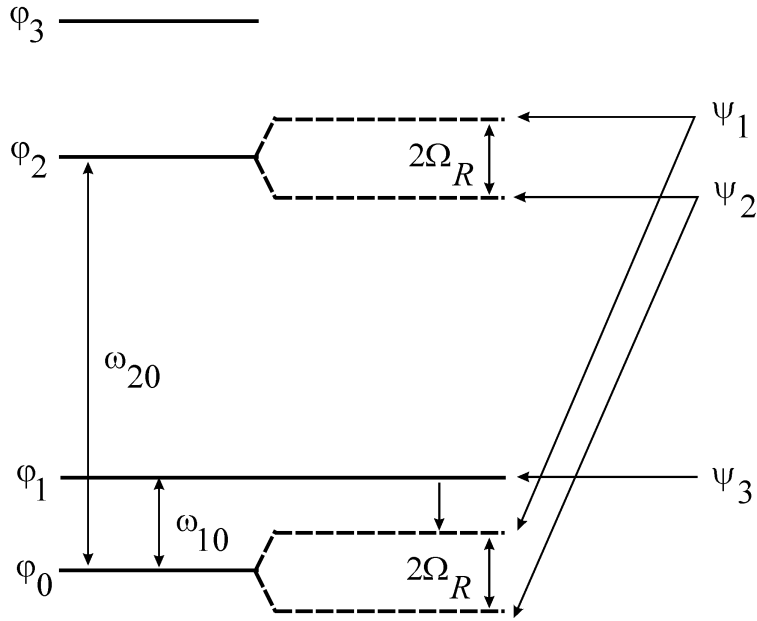


Рис. 5: Образование квазиэнергетических уровней (пунктирные линии). Сплошными линиями изображены два нижних дублета невозмущенной молекулы. Длинная вертикальная стрелка изображает переходы, вызванные переменным магнитным полем с частотой близкой к ω_{20} . Вертикальная стрелка с одним наконечником изображает рассматриваемые нами переходы. $\Omega_R = g\mu_B H \langle \varphi_2 | \hat{S}_x | \varphi_0 \rangle / 2\hbar$.

ω , равной частоте перехода ω_{20} , существенно модифицирует спектр магнитных молекул (рис.5).

Пусть в начальный момент времени уровни нижнего дублета равно заселены, а уровни первого возбужденного дублета свободны (это может быть достигнуто подходящей температурой $\hbar\omega_{10} \ll k_B T \ll \hbar\omega_{20}$, т.е. $T \sim 1K$). После наложения сильного резонансного поля с частотой $\omega = \omega_{20}$ образуются квазиэнергетические состояния и квазиэнергетические уровни. В результате становятся возможными переходы на новых частотах, являющихся комбинациями старых частот переходов ω_{10} и ω_{20} и частоты Раби Ω_R сильного резонансного поля, из квазиэнергетических состояний ψ_1, ψ_2 в стационарное $\psi_3 \equiv \varphi_1$ и наоборот. По предположению о начальном распределении молекул по состояниям φ_0 и φ_1 получается, что в состоянии φ_1 находится половина всех молекул, а молекулы, ранее находившиеся в состоянии φ_0 , поровну разделяются по квазиэнергетическим состояниям ψ_1, ψ_2 . В этом случае, если подобрать частоту резонатора, в которой находится кристалл, равной частоте $\omega_{10} - \Omega_R$ (рис.5, переход обозначен стрелкой с одним наконечником), то возможно сверхизлучение на данной частоте, поскольку квазиуровень состояния ψ_1 лежит ниже уровня, соответствующего состоянию ψ_3 , а число молекул в состоянии ψ_1 в два раза меньше, чем в состоянии ψ_3 (инверсная населенность).

В разделе 4.3 описывается кинетика сверхизлучения. Сверхизлучение возможно, если выполняется $\tau \ll \tau_c < T_2$, где τ - время жизни излучаемой моды, τ_c - длительность импульса сверхизлучения, T_2 - поперечное время релаксации. В разделе 4.4 приведены численные расчеты для интенсивности импульса сверхизлучения и распределения молекул по уровням от времени для кристалла молекулярных магнитов Fe_8 . Из полученных результатов ясно, что для выбранной области параметров ($\omega_{10} \sim 10^{10}c^{-1}$, $\Omega_R \sim 10^8c^{-1}$, $\tau \sim 10^{-8}c$) и для идеализированного случая $T_2 \rightarrow \infty$ имеет место характерная для сверхизлучения зависимость максимального значения интенсивности импульса от квадрата числа молекул $I_{max} \sim N^2$, а $\tau_c \sim N^{-1}$. С другой стороны, для той же области параметров, но при $T_2^{-1} \neq 0$, уменьшение T_2 вызывает увеличение ширины импульса сверхизлучения и увеличение времени его задержки. Уменьшение T_2 приводит к тому, что излучение перестает носить характер сверхизлучения, то есть I_{max} не пропорциональна N^2 , хотя и имеет импульсный характер.

В пятой главе рассматривается динамика намагничивания кристаллов молекулярных магнитов циркулярно-поляризованной электромагнитной волной миллиметрового диапазона. Обсуждаются лишь кристаллы молекулярных магнитов, характеризующиеся слабой поперечной анизотропией. Например, это кристаллы молекулярных магнитов $Mn_{12} - Ac$ и Ni_4 . В этом случае, в отсутствие постоянного магнитного поля уровни дублетов практически вырождены.

Аналитически рассмотрены два случая: приближение единого времени релаксации (раздел 5.1) и случай точного резонанса (раздел 5.2).

Приближение единого времени релаксации означает равенство продольного и поперечного времен релаксации $T_1 = T_2 = T$. Эта ситуация может реализоваться в кристаллах, если температура достаточно высока, так что релаксация в основном определяется фононами. В разделе 5.1 показано, что спустя время $t \gg T$ возникает стационарная намагниченность, квадратичная по полю волны. До этого момента намагниченность возрастает, осциллируя с частотой, которая тем больше, чем больше отстройка частоты волны от частоты перехода между дублетами или частоты Раби волны. Постепенно осцилляции затухают и намагниченность достигает своего постоянного значения (см. рис.6).

В случае точного резонанса частота волны строго равна частоте перехода между дублетами магнитной молекулы. Если выполняется условие ($64\Omega^2 < (T_2^{-1} - T_1^{-1})^2$), тогда намагниченность является монотонной функцией времени и возрастает (по абсолютному значению) до своего стационарного значения. Время, необходимое для достижения постоянного значения, оценивается как T_1 . Если выполняется ($64\Omega^2 > (T_2^{-1} - T_1^{-1})^2$), тогда намагниченность будет возрастать, осциллируя (эти осцилляции будут затухать), и также достигнет постоянного значения. Но, если период этих осцилляций в то же время будет больше, чем $2/(T_2^{-1} + T_1^{-1})$, они будут незаметны. В этом случае вре-

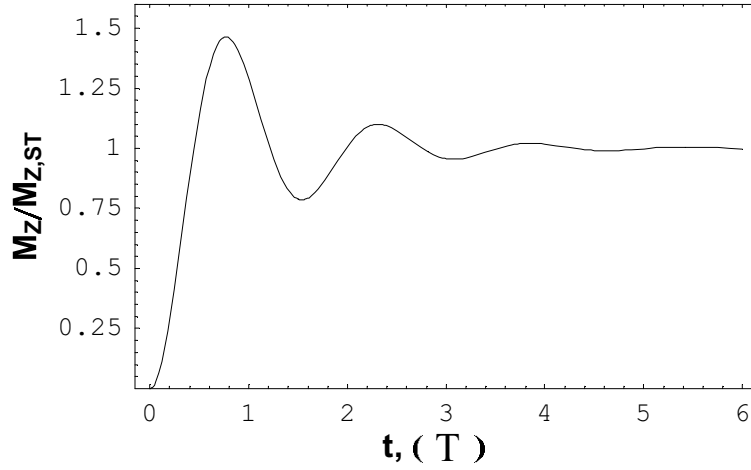


Рис. 6: Поведение намагниченности для случая единого времени релаксации. $M_{z,ST}$ - намагниченность при $t \gg T$. $\Delta = 4T^{-1}$, $\Omega = 0.2T^{-1}$.

мя, необходимое для достижения постоянного значения, определяется как $2/(T_2^{-1} + T_1^{-1})$.

В разделе 5.3 приведены численные оценки возникающей намагниченности для случая точного резонанса. Согласно работам [18, 19, 20] для молекул Mn_{12} : $S = 10$, $D = 0.68 K$, $g = 1.9$. Число молекул в единице объема в кристалле $Mn_{12} - Ac$ равно $n \sim 2 \cdot 10^{20} \text{см}^{-3}$ (см. [21]). Также предположим $T_1 T_2 \sim 10^{-16} \text{с}^2$ (что согласуется с работами [13, 17]) и амплитуду волны равную $H_0 = 1 \text{Гс}$. При таких условиях стационарное значение намагниченности равно $M_{z,st} \approx 0.35 \text{Гс}$.

Также показано, что электромагнитная волна такой амплитуды не вызывает существенного нагрева кристалла и, следовательно, можно пренебречь изменением времен релаксации в процессе воздействия волны на кристалл.

В заключении сформулированы результаты работы:

1. В работе проведено теоретическое исследование эффекта электромагнитной индуцированной прозрачности в кристаллах молекулярных магнитов и рассчитан профиль поглощения слабого (пробного) электромагнитного поля в присутствии сильного резонансного поля (поля накачки). Численные расчеты, проведенные для двух кристаллов молекулярных магнитов - Fe_8 и $Mn_{12} - Ac$, показывают, что наиболее предпочтительным для наблюдения эффекта ЭИП является кристалл Fe_8 . Это связано с большой величиной неоднородного уширения в кристалле $Mn_{12} - Ac$. В кристалле молекулярных магнитов Fe_8 в поле двухчастотной накачки образуется два окна прозрачности для пробного сигнала.
2. Рассмотрено распространение акустической волны в кристалле молекулярных магнитов в присутствии сильного резонансного электромагнитного поля. Воздействие поля приводит к значительному уменьшению поглощения и групповой скорости акустического сигнала. Эффект суще-

ственно зависит от величин констант релаксации и амплитуды резонансного магнитного поля и, тем самым, может быть использован для оценки констант релаксации в молекулярных магнитах при низких температурах. Этот эффект наблюдается и в условиях неоднородного уширения, несмотря на вызываемое этим уширением уменьшение окна прозрачности.

3. Сильное резонансное переменное магнитное поле может создавать условия для наблюдения эффекта сверхизлучения в кристаллах молекулярных магнитов. Эффект возникает в результате корреляции процессов излучения различных молекул, спектр которых модифицируется сильным резонансным магнитным полем.
4. Теоретически рассчитана намагниченность кристаллов молекулярных магнитов, возникающая в поле резонансной электромагнитной волны. Намагниченность кристалла максимальна, если волна имеет круговую поляризацию и отсутствует при линейной поляризации. При совпадении частоты электромагнитной волны с частотой магнитодипольного перехода намагниченность монотонно возрастает и выходит на постоянное значение за время порядка времени продольной релаксации. При отстройке от частоты магнитодипольного перехода намагниченность достигает постоянного значения осциллируя. Период осцилляций определяется величиной отстройки и амплитудой поля волны. Возникающая намагниченность кристалла может быть легко экспериментально обнаружена. Проведено сравнение величины намагниченности в случае точного резонанса с величиной намагниченности при обратном эффекте Фарадея и показано, что последняя значительно меньше.

Список литературы

- [1] D. Gatteschi, *Molecular Nanomagnets* /D. Gatteschi, R. Sessoli, J. Villain, - Oxford University Press, New York, 2006.
- [2] A. Caneschi, Alternating current susceptibility, high field magnetization, and millimeter band EPR evidence for a ground $S = 10$ state in $[Mn_{12}O_{12}(CH_3COO)_{16}(H_2O)_4] \cdot 2CH_3COOH \cdot 4H_2O$ /A. Caneschi, D. Gatteschi, R. Sessoli, A.-L. Barra, L. C. Brunel, M. Guillot //J. Am. Chem. Soc. - 1991 - Vol. 113 - P. 5873.
- [3] R. Sessoli, Magnetic bistability in a metal-ion cluster /R. Sessoli, D. Gatteschi, A. Caneschi, M. A. Novak //Nature - 1993 - Vol. 365 - P. 141.
- [4] M. N. Leuenberger, Quantum computing in molecular magnets /M. N. Leuenberger, D. Loss //Nature - 2001 - Vol. 410 - P. 789.

- [5] J. Tejada, Magnetic qubits as hardware for quantum computers /J. Tejada, E. M. Chudnovsky, E. del Barco, J. M. Hernandez, T. P. Spiller //Nanotechnology - 2001 - Vol. 12 - P. 181.
- [6] M. Mannini, Magnetic memory of a single-molecule quantum magnet wired to a gold surface /M. Mannini, F. Pineider, P. Sainctavit, C. Danieli, E. Otero, C. Sciancalepore, A. M. Talarico, M.-A. Arrio, A. Cornia, D. Gatteschi, R. Sessoli //Nature Materials - 2009 - Vol. 8 - P. 194.
- [7] J. van Slageren, Terahertz Faraday effect in single molecule magnets /J. van Slageren, Vongtragool S., Mukhin A., Gorshunov B., Dressel M. //Phys. Rev. B - 2005 - Vol. 72 - P. 020401(R).
- [8] J. Tejada, Electromagnetic radiation produced by avalanches in the magnetization reversal of Mn_{12} -acetate /J. Tejada, E.M. Chudnovsky, J.M. Hernandez, and R. Amigo //Appl. Phys. Lett. - 2004 - Vol. 84 - P. 2373.
- [9] E.M.Chudnovsky, Superradiance from Crystals of Molecular Nanomagnets /E.M.Chudnovsky and D.A.Garanin //Phys. Rev. Lett. - 2002 - Vol. 89 - P. 157201.
- [10] A. Ardavan, Will Spin-Relaxation Times in Molecular Magnets Permit Quantum Information Processing? /A. Ardavan, O. Rival, J. J. L. Morton, S. J. Blundell, A. M. Tyryshkin, G. A. Timco, R. E. P. Winpenny //Phys. Rev. Lett. - 2007 - Vol. 98 - P. 057201.
- [11] Y. Wu, Four-wave mixing in molecular magnets via electromagnetically induced transparency /Y. Wu, X. Yang //Phys. Rev. B - 2007 - Vol. 76 - P. 054425.
- [12] J. B. Liu, Theoretical investigation of an acoustic wave in molecular magnets via electromagnetically induced transparency /J. B. Liu, X. Y. Lu, N. Liu, P. Huang, C. L. Ding, J. Li //Eur. Phys. J. B - 2008 - Vol. 63 - P. 479-484.
- [13] F. Macia, Spin dynamics in single-molecule magnets combining surface acoustic waves and high-frequency electron paramagnetic resonance /F. Macia, J. Lawrence, S. Hill, J. M. Hernandez, J. Tejada, P. V. Santos, C. Lampropoulos, G. Christou //Phys. Rev. B - 2008 - Vol. 77 - P. 020403(R).
- [14] E. M. Chudnovsky, Universal mechanism of spin relaxation in solids /E. M. Chudnovsky, D. A. Garanin, and R. Schilling //Phys. Rev. B - 2005 - Vol. 72 - P. 094426.
- [15] M. Fleishhauer, Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media /M. Fleishhauer, A. Imamoglu, J.P. Marangos //Rev. Mod. Phys. - 2005 - Vol. 77 - P. 633.
- [16] Базь А.И., Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике /Базь А.И., Зельдович Я.Б., Переломов А.М. //М.: "Наука", 1971.

- [17] K. Park, Effects of D-strain, g-strain, and dipolar interactions on EPR linewidths of the molecular magnets Fe_8 and Mn_{12} /K. Park, M.A. Novotny, N.S. Dalal, S. Hill, and P.A. Rikvold //Phys. Rev. B - 2002 - Vol. 65 - P. 014426.
- [18] A.-L. Barra, High-frequency EPR spectra of a molecular nanomagnet: Understanding quantum tunneling of the magnetization /A.-L. Barra, D. Gatteschi, and R. Sessoli //Phys. Rev. B - 1997 - Vol. 56 - P. 8192.
- [19] S. Hill, High-Sensitivity Electron Paramagnetic Resonance of Mn_{12} -Acetate /S. Hill, J.A. Perenboom, N.S. Dalal, T. Hathaway, T. Stalcup, and J.S. Brooks //Phys. Rev. Lett. - 1998 - Vol. 80 - P. 2453.
- [20] G. Bellessa, Phonon-Assisted Tunneling in High-Spin Molecules: Experimental Evidence /G. Bellessa, N. Vernier, B. Barbara, and D. Gatteschi //Phys. Rev. Lett. - 1999 - Vol. 83 - P. 416.
- [21] M. N. Leuenberger, Spin tunneling and phonon-assisted relaxation in Mn_{12} -acetate /M. N. Leuenberger, D. Loss //Phys. Rev. B - 2000 - Vol. 61 - P. 1286.

СПИСОК РАБОТ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

- A1.** Токман, И. Д. Динамика намагничивания кристаллов молекулярных магнитов циркулярно-поляризованной электромагнитной волной миллиметрового диапазона/ И. Д. Токман, А. В. Швецов // Известия РАН. Серия физическая, (принята в печать).
- A2.** Токман, И. Д. Обратный эффект Фарадея в кристаллах молекулярных магнитов / И. Д. Токман, А. В. Швецов// Известия РАН. Серия физическая. - 2009. - Т.73, №1 - С. 32-35.
- A3.** Tokman, I. D. Electro- magnetic superradiance from single-molecule magnets in the presence of a classical driving magnetic field/ I. D. Tokman, V. I. Pozdnjakova, G. A. Vugalter, and A.V. Shvetsov// Phys. Rev. B. - 2008 - Vol. 77. - P. 094414.
- A4.** Вугальтер, Г. А. Электромагнитная индуцированная прозрачность магнитных нанокластеров в поле двухчастотной накачки/ Г. А. Вугальтер, А. В. Швецов// Поверхность. РСНИ.-2008.- №7 - С. 32-35.
- A5.** Shvetsov, A. V. Acoustic wave in a crystal of molecular magnets in the presence of a strong resonant magnetic field/ A. V. Shvetsov, G. A. Vugalter, and A. I. Beludanova// Physical Review B. - 2007 - Vol. 76 - P. 214401.
- A6.** Вугальтер, Г. А. Электромагнитная индуцированная прозрачность в кристаллах магнитных молекул/ Г. А. Вугальтер, А. В. Швецов// Известия РАН. Серия физическая. - 2007 -Т. 71. №1 - С. 44-47.

- A7.** Shvetsov, A. V. Theoretical investigation of electromagnetically induced transparency in a crystal of molecular magnets/ A. V. Shvetsov, G. A. Vugalter, A. I. Grebeneva// Physical Review B - 2006 - Vol. 74 - P. 054416.
- A8.** Швецов, А. В. Магнитодипольное излучение системы магнитных молекул в сильном резонансном магнитном поле/ А. В. Швецов, Г. А. Вугальтер, И. Д. Токман// Поверхность. РСНИ. - 2006 - №2 - С. 102-109.
- A9.** Токман, И. Д. Динамика намагничивания кристаллов молекулярных магнитов циркулярно-поляризованной электромагнитной волной миллиметрового диапазона/ И. Д. Токман, А. В. Швецов// Международный симпозиум "Нанозифика и нанозлектроника": материалы симпозиума, Нижний Новгород, 2009. - С. 522-523.
- A10.** Токман, И. Д. Взаимодействие кристалла молекулярных магнитов с циркулярно-поляризованной электромагнитной волной/ И. Д. Токман, А. В. Швецов// 3-я Всероссийская школа молодых ученых "Микро-, нанотехнологии и их применение": тезисы, ИПТМ РАН, Черноголовка, 2008 - С. 62-63.
- A11.** Токман, И. Д. Обратный эффект Фарадея в кристаллах молекулярных магнитов/ И. Д. Токман, А. В. Швецов// Международный симпозиум "Нанозифика и нанозлектроника": материалы симпозиума, Нижний Новгород, 2008. - С. 257-258.
- A12.** Токман, И. Д. Возникновение постоянной намагниченности в кристалле молекулярных магнитов $Mn_{12}-Ac$ в поле сильной электромагнитной волны/ И. Д. Токман, А. В. Швецов// XIII нижегородская сессия молодых ученых: сборник тезисов докладов, Нижний Новгород, 2008. - С. 77.
- A13.** Вугальтер, Г. А. Электромагнитная индуцированная прозрачность магнитных нанокластеров в поле двухчастотной накачки/ Г. А. Вугальтер, А. В. Швецов// Международный симпозиум "Нанозифика и нанозлектроника": материалы симпозиума, Нижний Новгород, 2007. - С. 249-250.
- A14.** Shvetsov, A. V. A propogation of an acoustic wave in crystals of molecular magnets in the presence of a strong ac magnetic field/ A.V.Shvetsov, G. A. Vugalter, A. I. Beludanova// Euro-Asian Symposium EASTMAG - 2007 "Magnetism on a nanoscale": proceedings, Kazan, Russia, 2007. - P. 90.
- A15.** Швецов, А. В. Распространение акустической волны в кристалле магнитных молекул в сильном резонансном магнитном поле/ А. В. Швецов// XII нижегородская сессия молодых ученых: сборник тезисов докладов, Нижний Новгород, 2007. - С. 77.

Швецов Александр Владимирович

**НЕЛИНЕЙНЫЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ КРИСТАЛЛОВ
МОЛЕКУЛЯРНЫХ МАГНИТОВ С РЕЗОНАНСНЫМИ
ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫМИ ПОЛЯМИ**

01.04.07 - физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Подписано в печать .09.2009 г. Формат 60 × 84 1/16

Бумага офсетная. Печать офсетная. Гарнитура Таймс.

Усл. печ. л. 1. Заказ № . Тираж 100 экз.

Отпечатано в типографии Нижегородского государственного университета им. Н.И.
Лобачевского.

Лицензия ИД № 18-0099 от 4 мая 2001 г.

603000, г. Н. Новгород, ул. Б. Покровская, 37