

05

Квантовая теория обратных магнитооптических эффектов в редкоземельных соединениях

© А.И. Попов¹, А.К. Звездин^{2,3}, Д.И. Плохов^{2,4}

¹ Национальный исследовательский университет «МИЭТ», Москва, Зеленоград, Россия

² Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия

³ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

⁴ Российский университет дружбы народов (РУДН), Москва, Россия

E-mail: dmitry@plokhov.ru

Поступила в Редакцию 9 ноября 2025 г.

В окончательной редакции 9 ноября 2025 г.

Принята к публикации 16 ноября 2025 г.

Исследованы обратные магнитооптические эффекты, возникающие при воздействии коротких лазерных импульсов на редкоземельные ионы в различных материалах. Основное внимание уделено прямым разрешенным электродипольным $f-d$ и $f-g$ переходам. Разработана теоретическая модель, описывающая взаимодействие ионов с электрическим полем волны лазерного импульса. Получены выражения для расчета состояний редкоземельных ионов в поле электромагнитной волны. Результаты показывают, что прямые $f-d$ переходы определяющим образом формируют динамику магнитных возмущений в материале, что подтверждается численными расчетами для ортоферрита диспрозия.

Ключевые слова: обратные магнитооптические эффекты, редкоземельные ионы, $f-d$ и $f-g$ переходы, короткие лазерные импульсы, ортоферрит диспрозия.

DOI: 10.61011/FTT.2025.11.62138.316-25

1. Введение

Исследование обратных магнитооптических эффектов, несмотря на продолжительную историю, до сих пор представляет большую научную значимость. Среди этих эффектов наиболее интересным является обратный эффект Фарадея, заключающийся в индуцировании у магнитного иона магнитного момента при действии на ион циркулярно поляризованного света. Создание лазеров большой мощности позволило изучать обратные магнитооптические эффекты экспериментально. Так, в работе [1] был исследован обратный эффект Фарадея в $\text{Eu}^{2+}:\text{CaF}_2$ при использовании мощного лазера с длительностью импульса $\tau \approx 30$ ns. Эффект возникал в течение действия импульса и практически совпадал с ним по продолжительности.

Теоретическое рассмотрение обратного эффекта Фарадея, проведенное в работе [2], основывалось на использовании эффективного гамильтониана, получаемого при анализе действия на ион бесконечно длинной монохроматической электромагнитной волны. При этом возникала задача о нахождении собственных значений, решение которой приводило к выводу о наличии у иона постоянного во времени магнитного момента.

Данный подход представляется весьма упрощенным, особенно в связи с тем, что в последние годы в экспериментальной практике нашли широкое применение лазеры с достаточно короткими импульсами продолжи-

тельностью $\tau \sim 10$ fs и меньше [3–5]. Поэтому большую актуальность приобретает проведение теоретического анализа действия столь коротких импульсов на магнитные ионы.

Среди магнитных материалов важное место занимают соединения, уникальные магнитные, магнитоупругие и магнитооптические свойства которых обусловлены наличием в их составе редкоземельных ионов [6].

В настоящей работе проведен теоретический анализ обратных магнитооптических явлений, возникающих при действии коротких лазерных импульсов на редкоземельные ионы и обусловленных прямыми разрешенными электродипольными $f-d$ и $f-g$ переходами ($4f^N \rightarrow 4f^{N-1}5d$ и $4f^N \rightarrow 4f^{N-1}5g$).

2. Нестационарная теория возмущений

Рассмотрим смешивание состояний редкоземельного иона в поле волны лазерного импульса, используя подход, предложенный в работе Першана с соавторами [2], основанный на получении эффективного гамильтониана. В случае излучения в инфракрасном, видимом и ультрафиолетовом диапазонах актуальным является взаимодействие иона с электрическим полем волны.

Гамильтониан возмущения представим в виде

$$\mathcal{V}(t) = v(t)e^{i\omega t} + v^*(t)e^{-i\omega t}. \quad (1)$$

Для импульса, огибающая которого имеет гауссову форму,

$$v(t) = -(\mathbf{dE}_0 + \mathbf{mH}_0)e^{-t^2/\tau^2}, \quad (2)$$

где $\mathbf{d} = -e \sum_{i=1}^N \mathbf{r}_i$ — оператор электрического дипольного момента редкоземельного иона, имеющего N электронов в своей f -оболочке, $\mathbf{m} = -\mu_B g \mathbf{J}$ — оператор магнитного момента иона, \mathbf{E}_0 и \mathbf{H}_0 — амплитуды соответственно электрического и магнитного полей волны в центре импульса (в общем случае, комплексные величины), τ — параметр, определяющий длительность импульса.

Нестационарное уравнение Шредингера представим в виде

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = (\mathcal{H}_0 + \mathcal{V}(t)) \psi,$$

где \mathcal{H}_0 — невозмущенный гамильтониан, уровни энергии E_k и собственные функции φ_k которого считаются известными. Волновые функции φ_k от времени не зависят.

Решение нестационарного уравнения Шредингера будем искать в виде

$$\begin{aligned} \psi_g(t) &= \sum_k a_{kg}(t) e^{-i\omega_k t} \varphi_k \\ &= \varphi_g e^{-i\omega_g t} + \psi_g^{(1)}(t) + \psi_g^{(2)}(t) + \dots, \end{aligned} \quad (3)$$

где

$$\psi_g^{(1)}(t) = \sum_e a_{eg}^{(1)}(t) e^{-i\omega_e t} \varphi_e$$

и

$$\psi_g^{(2)}(t) = \sum_n a_{ng}^{(2)}(t) e^{-i\omega_n t} \varphi_n, \quad (4)$$

а зависящие от времени коэффициенты разложения $a_{eg}^{(1)}(t)$ и $a_{ng}^{(2)}(t)$ выражаются через матричные элементы $V_{eg}(t) = \langle \varphi_e | \mathcal{V}(t) | \varphi_g \rangle = \langle e | \mathcal{V}(t) | g \rangle$ оператора возмущения $\mathcal{V}(t)$ по состояниям φ_k следующим образом:

$$a_{eg}^{(1)}(t) = \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t e^{i\omega_{eg}t'} V_{eg}(t') dt', \quad (5)$$

$$a_{ng}^{(2)}(t) = \frac{1}{(i\hbar)^2} \sum_e \int_{-\infty}^t V_{ne}(t') e^{i\omega_{ne}t'} \int_{-\infty}^{t'} V_{eg}(t'') e^{i\omega_{eg}t''} dt' dt''.$$

В уравнениях (3)–(5) используются обозначения $\omega_k = E_k/\hbar$ и $\omega_{eg} = (E_e - E_g)/\hbar$. В том случае, когда возмущение определяется формулой (1), в которой величина v не зависит от времени, выражения для $a_{kn}^{(1)}(t)$ и $a_{ng}^{(2)}(t)$ можно записать в более простом виде:

$$\begin{aligned} a_{eg}^{(1)}(t) &= -\frac{1}{\hbar} \left(v_{eg} \frac{e^{i(\omega_{eg} + \omega)t}}{\omega_{eg} + \omega} + v_{eg}^* \frac{e^{i(\omega_{eg} - \omega)t}}{\omega_{eg} - \omega} \right), \\ a_{ng}^{(2)}(t) &= \frac{1}{\hbar^2} \sum_e \left(\frac{v_{ne}^* v_{eg}}{\omega_{eg} + \omega} + \frac{v_{ne} v_{eg}^*}{\omega_{eg} - \omega} \right) \frac{e^{i\omega_{ng}t}}{\omega_{ng}}. \end{aligned}$$

Для гауссовой формы (2) импульса интегрирование выражений (5) приводит к следующим результатам:

$$\begin{aligned} a_{eg}^{(1)}(t) &= \frac{i\tau\sqrt{\pi}}{2\hbar} \langle e | \mathbf{dE}_0 | g \rangle (f_+(\omega_{eg}, t) + f_-(\omega_{eg}, t)), \\ f_{\pm}(\omega_{eg}, t) &= \exp\left(-\frac{\tau^2(\omega_{eg} \pm \omega)^2}{4}\right) \operatorname{erfc}(z_{\pm}(\omega_{eg}, t)), \\ z_{\pm}(\omega_{eg}, t) &= \frac{i\tau(\omega_{eg} \pm \omega)}{2} - \frac{t}{\tau}, \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} a_{ng}^{(2)}(t) &= -\frac{\tau^2\sqrt{\pi}}{2\hbar^2} \sum_e \langle n | \mathbf{dE}_0^* | e \rangle \langle e | \mathbf{dE}_0 | g \rangle F_+(t) \\ &\quad + \langle n | \mathbf{dE}_0 | e \rangle \langle e | \mathbf{dE}_0^* | g \rangle F_-(t), \\ F_{\pm}(t) &= \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t \phi_{\pm}(t') dt', \\ \phi_{\pm}(t) &= \exp\left(i\omega_{ng}t - \frac{2t^2}{\tau^2}\right) \\ &\quad \times \exp(z_{\pm}^2(\omega_{eg}, t)) \operatorname{erfc}(z_{\pm}(\omega_{eg}, t)). \end{aligned} \quad (7)$$

Символом $\operatorname{erfc} x$ обозначена дополнительная функция ошибок, определяемая соотношением

$$\operatorname{erfc} x = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} e^{-t^2} dt.$$

Выражение (6) дает описание прямых магнитооптических явлений. В свою очередь, представляющие для нас интерес обратные магнитооптические явления, определяются соотношением (7).

Заметим, что в выражениях (6) и (7) состояния φ_g и φ_n принадлежат основной $4f^N$ конфигурации (орбитальное квантовое число $l = 3$), а возбужденные состояния φ_e , обладающие противоположной четностью, принадлежат $4f^{N-1}5d$ ($l' = l - 1 = 2$) или $4f^{N-1}5g$ ($l' = l + 1 = 4$) электронным конфигурациям. Далее мы будем пренебрегать расщеплением уровней возбужденных конфигураций (приближение Джадда–Офельта) и заменим в уравнениях (6) и (7) все величины ω_{eg} на величину $\omega_{l'} = E_{l'}/\hbar$ (здесь $l' = l \pm 1$), где $E_{l'}$ — средняя энергия состояний электронных конфигураций $4f^{N-1}5d$ ($l' = 2$) или $4f^{N-1}5g$ ($l' = 4$). Типичные значения $E_{l'}$ составляют $10^4 - 10^5 \text{ см}^{-1}$ [10].

Введем операторы $W_{\alpha\beta} = d_{\alpha} P_{l'} d_{\beta}$ (индексы $\alpha, \beta = x, y, z$), где оператор проецирования $P_{l'} = \sum_{e_{l'}} |e_{l'}\rangle \langle e_{l'}|$, и разложим их на симметричную $W_{\alpha\beta}^S(l')$ и антисимметричную $W_{\alpha\beta}^A(l')$ составляющие: $W_{\alpha\beta}(l') = W_{\alpha\beta}^S(l') + W_{\alpha\beta}^A(l')$, где $W_{\alpha\beta}^{S,A} = (W_{\alpha\beta} \pm W_{\beta\alpha})/2$, и найдем, что выражение (7) можно представить в виде

$$\begin{aligned} a_{ng}^{(2)} &= -\frac{\tau^2\sqrt{\pi}}{2\hbar^2} \sum_{l'=l\pm 1} \langle n | q_{l'}^S(\mathbf{E}) (F_+ + F_-) \\ &\quad + q_{l'}^A(\mathbf{E}) (F_+ - F_-) | g \rangle, \end{aligned} \quad (8)$$

где

$$\begin{aligned} q_l^S(\mathbf{E}) &= \sum_{\alpha} |E_{\alpha}|^2 W_{\alpha\alpha}(l') + (E_x^* E_y + E_x E_y^*) W_{xy}^S(l') \\ &+ (E_x^* E_z + E_x E_z^*) W_{xz}^S(l') + (E_y^* E_z + E_y E_z^*) W_{yz}^S(l'), \\ q_l^A(\mathbf{E}) &= (E_x^* E_y - E_x E_y^*) W_{xy}^S(l') + (E_x^* E_z - E_x E_z^*) W_{xz}^S(l') \\ &+ (E_y^* E_z - E_y E_z^*) W_{yz}^S(l'). \end{aligned} \quad (9)$$

$$(10)$$

Оператор проецирования $P_{l'}$ инвариантен относительно пространственных вращений \mathbb{R}_3 , поэтому операторы $W^{(0)}(l') = \frac{1}{3} \sum_{\alpha} W_{\alpha\alpha}(l')$, $W_{\alpha\beta}^{(1)}(l') = W_{\alpha\beta}^A(l')$ и $W_{\alpha\beta}^{(2)}(l') = W_{\alpha\beta}^S(l') - W^{(0)}(l') \delta_{\alpha\beta}$ преобразуются соответственно по D_0 , D_1 и D_2 неприводимым представлениям группы \mathbb{R}_3 . Отметим также, что операторы $W_{\alpha\beta}^{(1)}(l')$ и $L_{\alpha\beta} = L_{\alpha} L_{\beta} - L_{\beta} L_{\alpha} = i \sum_{\gamma} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} L_{\gamma}$ (здесь \mathbf{L} — оператор орбитального углового момента иона) при операциях группы вращений \mathbb{R}_3 преобразуются по одному и тому же представлению D_1 , поэтому, согласно теореме Вигнера–Эккарта, матричные элементы этих операторов на волновых функциях $L-S$ терма иона пропорциональны друг другу: $W_{\alpha\beta}^{(1)}(l') = i c_1 \sum_{\gamma} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} L_{\gamma}$. Аналогично, операторы $W_{\alpha\beta}^{(2)}(l')$ при операциях группы \mathbb{R}_3 преобразуются так же, как и операторы квадрупольного момента $Q_{\alpha\beta}(\mathbf{L})$, поэтому на волновых функциях $L-S$ терма иона $W_{\alpha\beta}^{(2)} = c_2 Q_{\alpha\beta}$. Однако, ради удобства вычислений, выгоднее выразить операторы $W_{\alpha\beta}^{(2)}$ и, следовательно, операторы $q^S(\mathbf{E})$ и $q^A(\mathbf{E})$, через неприводимые тензорные операторы C_q^k , широко используемые в теории кристаллического поля. В этом случае поправки к волновым функциям второго порядка $\psi_g^{(2)}(t)$, введенные уравнением (4), определяющие обратные магнитооптические эффекты, можно представить в виде, см. приложение (34),

$$\begin{aligned} \psi_g^{(2)}(t) &= -\frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{\tau}{\hbar} \right)^2 \sum_n \left(c_1 \langle n | q^S(\mathbf{E}_0) | g \rangle \right. \\ &\left. + c_2 (2 - g_J) i [\mathbf{E}_0^* \mathbf{E}_0] \langle n | \mathbf{J} | g \rangle \right) e^{-i\omega_n t} | n \rangle, \end{aligned} \quad (11)$$

где $q^S(\mathbf{E})$, c_1 и c_2 определяются соответственно формулами (25) и (33). Второе слагаемое в этом выражении определяет обратный эффект Фарадея, обусловленный наличием эффективного магнитного поля, возбуждаемого электрическим полем циркулярно поляризованного лазерного импульса:

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} \sim i [\mathbf{E}^* \mathbf{E}].$$

Первое слагаемое в соотношении (11) определяет четные обратные магнитооптические эффекты, наведенную излучением анизотропию и др.

3. Динамические магнитные структуры

В настоящем разделе на основе развитой общей теории мы рассмотрим динамические магнитные струк-

туры подсистемы редкоземельных ионов в ортоферрите диспрозия

k	\mathbf{e}_k^x	\mathbf{e}_k^y	\mathbf{e}_k^z
1	(0; 0; -1)	(-sin δ ; +cos δ ; 0)	(+cos δ ; +sin δ ; 0)
2	(0; 0; +1)	(-sin δ ; -cos δ ; 0)	(+cos δ ; -sin δ ; 0)
3	(0; 0; -1)	(+sin δ ; -cos δ ; 0)	(-cos δ ; -sin δ ; 0)
4	(0; 0; +1)	(+sin δ ; +cos δ ; 0)	(-cos δ ; +sin δ ; 0)

туры подсистемы редкоземельных ионов, возбуждаемые лазерным импульсом в ортоферрите диспрозия.

Недавно был проведен ряд экспериментальных и теоретических исследований обратных магнитооптических эффектов в редкоземельных материалах, в частности, в ортоферрите диспрозия DyFeO_3 [7]. В ортоферритах редкоземельные ионы размещены по четырем неэквивалентным узлам, симметрия окружения которых описывается точечной группой C_S (отражение в ab -плоскости) и не содержит центра инверсии, что приводит к возникновению сложных магнитных структур при действии светового импульса [7]. Кристаллическое поле расщепляет мультиплеты редкоземельных ионов на синглеты в случае некрамерсовских ионов и на дублеты в случае крамерсовских ионов.

Выбор для изучения диспрозиевого ортоферрита обусловлен (с „теоретической“ точки зрения) тем, что ион Dy^{3+} в DyFeO_3 обладает простыми и хорошо изученными низколежащими состояниями [6,8,9]. Кристаллическое поле расщепляет основной мультиплет $^6H_{15/2}$ иона Dy^{3+} на дублеты с энергиями $E_0 = 0 \text{ см}^{-1}$, $E_1 = 52 \text{ см}^{-1}$, $E_2 = 147 \text{ см}^{-1}$ и т.д., см. работу [9]. При этом основной и первый возбужденный дублеты являются изинговскими и описываются соответственно функциями $|\pm 15/2\rangle$ и $|\pm 13/2\rangle$ в системах координат с осями z , лежащими в ab -плоскости под углами $\delta = \pm 60^\circ$ к a -оси. Координаты локальных осей симметрии \mathbf{e}_k^{α} ($\alpha = x, y, z$, а $k = 1, 2, 3, 4$) неэквивалентных позиций редкоземельных ионов в ортоферрите диспрозия приведены в таблице.

Помимо этого, энергия кванта излучения лазера с длиной волны $\lambda = 0.8 \mu\text{м}$ лежит весьма близко к разности энергий мультиплетов $^6H_{15/2}$ и $^6F_{5/2}$ ионов диспрозия. Данное обстоятельство инициировало теоретическое исследование учета состояний возбужденного мультиплетта $^6F_{5/2}$ иона диспрозия в качестве промежуточных при рассмотрении возбуждений магнитной подсистемы ортоферрита диспрозия полем световой волны [7].

Однако, согласно результатам работы [7], близость энергии кванта излучения лазера к разности энергий мультиплетов $^6H_{15/2}$ и $^6F_{5/2}$ в случае коротких импульсов не приводит к резкому резонансному возрастанию амплитуды колебаний магнитных моментов. В связи с этим представляется несомненно актуальным учет прямых переходов ($f-d$ и $f-g$) на формирование магнитных возбуждений в ортоферрите диспрозия, чего не было проведено в работе [7] и что ниже рассматри-

вается в качестве примера применения общей теории настоящей работы.

Волновую функцию $\psi_g(t)$ редкоземельного иона в поле импульса гауссовой формы согласно уравнению (3) при $\omega_g = 0$ представим в виде

$$\psi_g(t) = \varphi_g + \psi_g^{(2)}(t).$$

В случае иона диспрозия в ортоферрите диспрозия имеем

$$\psi_g(t) = |\pm g\rangle = \left| \pm \frac{15}{2} \right\rangle + C_{\pm}^{(2)}(\mathbf{E}, t) \left| \pm \frac{13}{2} \right\rangle, \quad (12)$$

где введены функции

$$\begin{aligned} C_{\pm}^{(2)}(\mathbf{E}, t) = & -\frac{\sqrt{\pi}(er_{fd})^2}{2\sqrt{7}\hbar^2} \left\{ \left\langle \pm \frac{13}{2} \left| q_S \right| \pm \frac{15}{2} \right\rangle (F_+(\omega_1, t) \right. \\ & + F_-(\omega, t)) + \left\langle \pm \frac{13}{2} \left| q_A \right| \pm \frac{15}{2} \right\rangle \\ & \times (F_+(\omega_1, t) - F_-(\omega, t)) \left. \right\} e^{-i\omega_1 t}, \end{aligned} \quad (13)$$

где $\omega_1 = E_1/\hbar = 9.9 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$, а операторы q_S и q_A даются формулами (9).

Электромагнитная волна лазерного импульса индуцирует зависящий от времени магнитный момент у иона диспрозия, компоненты которого при низких температурах $T \ll E_1/k_B \sim 75 \text{ K}$ в локальных осях

$$M_\alpha = \langle +g | \hat{\mu}_\alpha | +g \rangle + \langle -g | \hat{\mu}_\alpha | -g \rangle, \quad (14)$$

где состояния $|\pm g\rangle$ определены соотношением (12), а оператор магнитного момента $\hat{\mu}_\alpha = -\mu_B g_J J_\alpha$, фактор Ланде $g_J = 4/3$.

Пусть свет распространяется вдоль кристаллографической b -оси. Компоненты вектора \mathbf{E} в локальных осях

$$E_x^{(k)} = E_c(\mathbf{e}_k^x), \quad E_y^{(k)} = E_a(\mathbf{a}_k^y), \quad E_z^{(k)} = E_a(\mathbf{a}_k^z),$$

где \mathbf{e}_k^α приведены в таблице, а E_a и E_c — проекции вектора \mathbf{E} на оси a и c , направления которых задаются единичными векторами \mathbf{a} и \mathbf{c} соответственно.

Рассмотрим падающий импульс гауссовой формы с линейной и круговой поляризациями. Для линейно поляризованного света

$$\begin{aligned} M_a^{(k)} &= A\mu_B g_J (\sin 2\delta) E_{0a} E_{0c} \Phi_1(F_{\pm}, t) (-1)^{k+1}, \\ M_b^{(k)} &= 2A\mu_B g_J (\cos^2 \delta) E_{0a} E_{0c} \Phi_1(F_{\pm}, t), \\ M_c^{(k)} &= A\mu_B g_J (\sin 2\delta) E_{0a}^2 \Phi_1(F_{\pm}, t) (-1)^k. \end{aligned} \quad (15)$$

Для поляризованного по кругу света с левым направлением поляризации

$$\begin{aligned} M_a^{(k)} &= \frac{1}{2} B\mu_B g_J (\sin 2\delta) E_0^2 \Phi_2(F_{\pm}, t) (-1)^k, \\ M_b^{(k)} &= B\mu_B g_J (\cos^2 \delta) E_0^2 \Phi_2(F_{\pm}, t), \\ M_c^{(k)} &= \frac{1}{2} B\mu_B g_J (\sin 2\delta) E_0^2 \Phi_2(F_{\pm}, t) (-1)^k. \end{aligned} \quad (16)$$

В случае правого направления круговой поляризации величины $M_a^{(k)}$ и $M_b^{(k)}$ в формулах (16) должны быть записаны со знаком минус. При записи выражений (15) и (16) использованы следующие обозначения:

$$A = \frac{\sqrt{\pi}\tau^2}{4\hbar^2} 27\sqrt{5 \cdot 7} \alpha_2 (er_{fd})^2,$$

$$B = \frac{\sqrt{\pi}\tau^2}{12\hbar^2} 5\sqrt{3}(2 - g_J)(er_{fd})^2,$$

где $\alpha_2 = -2/(5 \cdot 7 \cdot 9)$ — параметр Стевенса.

Функции $\Phi_1(F_{\pm}, t)$ и $\Phi_2(F_{\pm}, t)$ определяются согласно соотношениям

$$\begin{aligned} \Phi_1(F_{\pm}, t) &= \text{Im}(F_+ + F_-) \cos \omega_1 t - \text{Re}(F_+ + F_-) \sin \omega_1 t \\ &= C_1(t) \cos(\omega_1 t + \varphi_1(t)), \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \Phi_2(F_{\pm}, t) &= \text{Im}(F_+ - F_-) \sin \omega_1 t + \text{Re}(F_+ - F_-) \cos \omega_1 t \\ &= C_2(t) \cos(\omega_1 t + \varphi_2(t)), \end{aligned} \quad (18)$$

где $C_{1,2}(t)$ и $\varphi_{1,2}(t)$ — соответственно модули и аргументы $(-\pi \leq \varphi \leq \pi)$ комплекснозначных функций $F_{\pm} \pm F_{\mp}$:

$$C_{1,2}(t) = \sqrt{\text{Re}^2(F_{\pm} \pm F_{\mp}) + \text{Im}^2(F_{\pm} \pm F_{\mp})},$$

$$\varphi_{1,2}(t) = \text{sign} \left(\frac{\text{Re}(F_{\pm} \pm F_{\mp})}{C_{1,2}(t)} \right) \cdot \arccos \left(\frac{\text{Im}(F_{\pm} \pm F_{\mp})}{C_{1,2}(t)} \right). \quad (19)$$

Для длины волны $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ импульса (круговая частота $\omega = 2.35 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$), длительности импульса $\tau = 40 \text{ fs}$, круговой частоты $\omega_0 = 2 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ графики зависимостей $C_{1,2}(t)$ и $\varphi_{1,2}(t)$ при $-2\tau \leq t \leq 2\tau$ изображены на рисунке.

Отсюда можно заключить, что в случае линейной поляризации света колебания всех компонент магнитного момента происходят по закону $\cos \omega_1 t$, а в случае циркулярно поляризованного света для компонент M_a и M_b по закону $\sin \omega_1 t$, а для компоненты M_c по закону $\cos \omega_1 t$.

Сопоставление величин вкладов в амплитуду колебаний (магнитных мод) магнитных моментов ионов диспрозия прямых $f-d$ переходов по уравнениям (15)–(18) и резонансных ${}^6H_{15/2} - {}^6F_{5/2}$ переходов [7] свидетельствует о том, что вклад прямых $f-d$ переходов на 3–4 порядка превосходит вклад ${}^6H_{15/2} - {}^6F_{5/2}$ переходов.

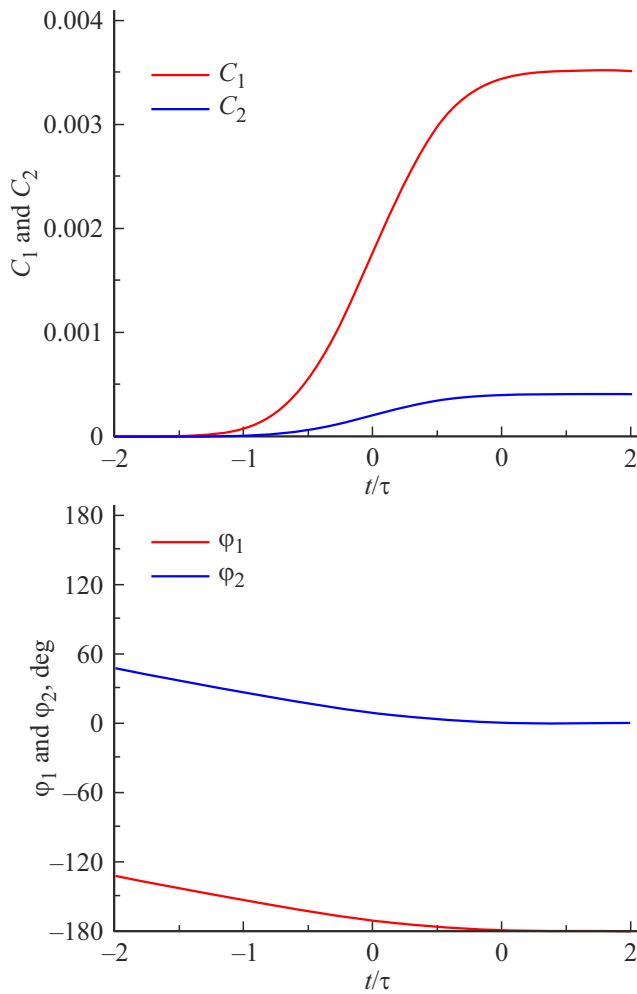
Заметим также, что для кристаллов с неэквивалентными позициями редкоземельных ионов, что соответствует нечетному кристаллическому полю, возникают эффекты, линейные по напряженности электрического поля, описываемые возмущением

$$V_{odd} = -\mathbf{dE} + V_{CF}^{odd}.$$

В этом случае

$$\begin{aligned} a_{ng}^{(2)} \sim & \int \langle n | \mathbf{E} \mathbf{d} | e \rangle \langle e | V_{odd} | g \rangle e^{i\omega t} + \langle n | \mathbf{E}^* \mathbf{d} | e \rangle \langle e | V_{odd} | g \rangle e^{-i\omega t} \\ & + \langle n | V_{odd} | e \rangle \langle e | \mathbf{E} \mathbf{d} | g \rangle e^{i\omega t} + \langle n | V_{odd} | e \rangle \langle e | \mathbf{E}^* \mathbf{d} | g \rangle e^{-i\omega t} dt, \end{aligned}$$

в характерном диапазоне частот порядка ω .

Зависимость амплитуд $C_{1,2}$ и фаз $\phi_{1,2}$ от времени t/τ .

Поправки второго порядка, определяющие обратные магнитооптические эффекты, действие электрического поля волны, $f-d$ переходы:

$$\begin{aligned} \psi_g^{(2)}(t) = & -\frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{\tau}{\hbar}\right)^2 \frac{(er_{fd})^2}{\sqrt{7}} \\ & \times \sum_f \left\{ (F_+(\omega_{fg}, t) + F_-(\omega_{fg}, t)) \langle f | q_S | g \rangle \right. \\ & \left. + (F_+(\omega_{fg}, t) - F_-(\omega_{fg}, t)) \langle f | q_A | g \rangle \right\} e^{-i\omega_f t} |f\rangle, \end{aligned} \quad (20)$$

где в приближении Джадда–Оффельта

$$\begin{aligned} F_{\pm}(\omega_{fg}, t) &= \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t \varphi_{\pm}(\omega_{fg}, t') dt', \\ \varphi_{\pm}(\omega_{fg}, t) &= \exp\left(-\frac{2t^2}{\tau^2} + i\omega_{fg}t\right) e^{z_{\pm}^2(\omega_0, t)} \operatorname{erfc}(z_{\pm}(\omega_0, t)), \\ z_{\pm}(\omega_0, t) &= \frac{i\tau}{2}(\omega_0 \pm \omega) - \frac{t}{\tau}, \end{aligned}$$

$\omega_0 \sim 2 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$ — частота $f-d$ перехода. Операторы q_S и q_A выражаются следующим образом:

$$\begin{aligned} q_S &= \frac{3}{\sqrt{5}} \left(|E_{0z}|^2 - \frac{1}{3} \sum_{\alpha} |E_{0\alpha}|^2 \right) C_0^2 \\ &+ \frac{3}{2} \sqrt{\frac{6}{5}} (\operatorname{Re}(E_{0x}^* E_{0z})(C_{-1}^2 - C_1^2) + i \operatorname{Re}(E_{0y}^* E_{0z})(C_{-1}^2 + C_1^2) \\ &+ i \operatorname{Re}(E_{0x}^* E_{0y})(C_{-2}^2 - C_2^2) + \frac{1}{2} (|E_{0x}|^2 - |E_{0y}|^2)(C_{-2}^2 + C_2^2)), \end{aligned} \quad (21)$$

$$q_A = \frac{2 - g_J}{3\sqrt{3}} (\mathbf{J} \mathbf{H}_v), \quad \text{где } \mathbf{H}_v = i[\mathbf{E}_0^* \times \mathbf{E}_0].$$

Достаточно простые формулы получаются, если представить импульс в виде синусоидального пуга продолжительностью τ ($-\tau/2 \leq t \leq \tau/2$):

$$\begin{aligned} \psi_g^{(2)}(t) = & -\frac{(er_{fd})^2}{4\sqrt{7}\hbar^2} \sum_f \left\{ (G_+(\omega_{fg}, t) + G_-(\omega_{fg}, t)) \langle f | q_S | g \rangle \right. \\ & \left. + (G_+(\omega_{fg}, t) - G_-(\omega_{fg}, t)) \langle f | q_A | g \rangle \right\}. \end{aligned}$$

Функции G_{\pm} при этом имеют вид

$$\begin{aligned} G_{\pm}(\omega_{fg}, t) &= \\ &= \begin{cases} \frac{1}{(\omega_0 \pm \omega)\omega_{fg}} (e^{-i\omega_{fg}\tau/2} - e^{i\omega_{fg}t}) & \text{при } -\frac{\tau}{2} \leq t \leq \frac{\tau}{2}, \\ \frac{\tau}{i(\omega_0 \pm \omega)} \operatorname{sinc}\left(\frac{\omega_{fg}\tau}{2}\right) & \text{при } t > \frac{\tau}{2}, \\ 0 & \text{при } t < -\frac{\tau}{2}. \end{cases} \end{aligned}$$

4. Заключение

В представленной работе были проведены теоретические исследования обратных магнитооптических эффектов, возникающих при воздействии коротких лазерных импульсов на редкоземельные ионы в различных материалах. Основной акцент сделан на анализе прямых разрешенных электродипольных $f-d$ и $f-g$ переходов, которые оказывают значительное влияние на динамику магнитных возбуждений в материале.

Была разработана детальная теоретическая модель, учитывающая взаимодействие ионов с электрическим полем волны лазерного импульса. Эта модель позволяет рассчитать смешивание состояний ионов и определить индуцированные магнитные моменты, возникающие под действием лазерного излучения. Важным результатом модели стало выявление того, что прямые $f-d$ переходы существенно влияют на процессы формирования магнитных возбуждений в материале, что было продемонстрировано на примере ортоферрита диспрозия.

Численные расчеты, выполненные для данного материала, подтверждают выводы теоретической модели и показывают, что учет прямых $f-d$ переходов необходим

для адекватного описания наблюдаемых магнитооптических эффектов. Эти результаты подчеркивают важность дальнейших исследований в области взаимодействия света с магнитными материалами и открывают новые перспективы для разработки инновационных оптомагнитных устройств.

5. Приложение

Представим \mathbf{dE} в виде произведения циклических координат \mathbf{d}_μ и \mathbf{E}_μ

$$\mathbf{dE} = \sum_{\mu=0,\pm 1} (-1)^\mu d_\mu \mathbf{E}_{-\mu},$$

где $d_{\pm 1} = \mp(d_x \pm id_y)/\sqrt{2}$, $d_0 = d_z$ и $E_{\pm 1} = \mp(E_x \pm iE_y)/\sqrt{2}$, $E_0 = E_z$. Воспользуемся генеалогической схемой построения волновых функций $|g\rangle$ основной $4f^N$ и волновых функций $|e\rangle$ возбужденных $4f^{N-1}5d$ и $4f^{N-1}5g$ конфигураций [11], согласно которой

$$|l^N SLM_S M_L\rangle = \sum_{S_1 L_1 m_\mu} \sum_{M_{S_1} M_{L_1} \xi} G_{S_1 L_1}^{SL} C_{L_1 M_{L_1} l m}^{LM_L} \times \Psi_{S_1 L_1 M_{S_1} M_{L_1}} (-1)^{N-\xi} \psi_{lm1/2\mu}(\xi),$$

$$|e_{l'}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\xi} (-1)^{N-\xi} \Psi_{S_1 L_1 M_{S_1} M_{L_1}} \psi_{l'm'1/2\mu'}(\xi), \quad (22)$$

где $C_{j_1 m_1 j_2 m_2}^{jm}$ — коэффициенты Клебша–Гордана, $G_{S_1 L_1}^{SL}$ — генеалогические коэффициенты [11,12], L_1 , S_1 , M_{L_1} , M_{S_1} — квантовые числа исходного терма. Используем выражение $d_\mu = -er \sum_{\xi=1}^N C_\mu^1(\xi)$ и найдем, что симметричная часть оператора $\mathbf{dE}^* |e_{l'}\rangle \langle e_{l'}| \mathbf{dE}$, см. (9), примет вид

$$q_{l'}^S(\mathbf{E}) = \sum_{\mu\tau mn} (-1)^{\mu+\tau} E_{-\mu}^* E_{-\tau} A(l'l'n) C_{l'm\tau}^{nm} C_m^n, \quad (23)$$

где

$$A(l'l'n) = (er_{l'})^2 \frac{C_{l'010}^{l0} C_{l010}^{l'0}}{C_{l0n0}^{l0}} \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & n \\ l & l & l' \end{matrix} \right\} \sqrt{(2l'+1)(2l+1)}.$$

В формуле (23) фигурными скобками обозначен $6j$ -символ [12], а $r_{l'l'} = \langle l|r|l'\rangle = \langle 4f|r|5d\rangle$ и $r_{l'l'} = \langle l|r|l'\rangle = \langle 4f|r|5g\rangle$ — радиальные интегралы. Суммирование в выражении (23) дает

$$q_{l'}^S(\mathbf{E}) = \frac{(2l-1)(er_{l'})^2 q^S(\mathbf{E})}{(2l'+1)\sqrt{2l+1}}, \quad (24)$$

где

$$q^S(\mathbf{E}) = \frac{3}{\sqrt{5}} \left(|E_z|^2 - \frac{1}{3} \sum_{\alpha} |E_{\alpha}|^2 \right) C_0^2 + \frac{3}{2} \sqrt{\frac{6}{5}} \left(\frac{E_x^* E_z + E_z^* E_x}{2} (C_{-1}^2 - C_1^2) + \frac{E_y^* E_z + E_z^* E_y}{2} i(C_{-1}^2 + C_1^2) + \frac{E_x^* E_y + E_y^* E_x}{2} i(C_{-2}^2 - C_2^2) + \frac{|E_x|^2 - |E_y|^2}{2} (C_{-2}^2 + C_2^2) \right). \quad (25)$$

Теперь выявим связь операторов $W_{xy}^A(l')$ с оператором L_y . Для этого вычислим матричные элементы $\langle l^N SLM_S M_L | W_{xy}^A(l') | l^N SLM_S M_L \rangle$ и $\langle l^N SLM_S M_L | L_z | l^N SLM_S M_L \rangle$, а затем сравним их между собой. Для первого матричного элемента имеем

$$\begin{aligned} \langle l^N SLM_S M_L | W_{xy}^A(l') | l^N SLM_S M_L \rangle &= \frac{1}{2} \sum_{e_{l'}} (\langle LM_L | d_x | e_{l'} \rangle \langle e_{l'} | d_y | LM_L \rangle - \langle LM_L | d_y | e_{l'} \rangle \langle e_{l'} | d_x | LM_L \rangle) \\ &= \frac{i}{2} \sum_{e_{l'}} (\langle LM_L | d_{-1} | e_{l'} \rangle \langle e_{l'} | d_{+1} | LM_L \rangle - \langle LM_L | d_{+1} | e_{l'} \rangle \langle e_{l'} | d_{-1} | LM_L \rangle). \end{aligned} \quad (26)$$

Используем соотношение (10) и получим

$$\begin{aligned} \langle LSM_L M_S | d_{\tau} | e_{l'} \rangle &= -er_{l'} \sqrt{N} \sum G_{S_1 L_1}^{SL} C_{L_1 M_{L_1} l m_i}^{LM_L} C_{S_1 M_{S_1} 1/2\mu}^{SM_S} C_{l'm_i\tau}^{lm_i} \frac{\langle l || C_1 || l' \rangle}{\sqrt{2l+1}}, \\ \langle e_{l'} | d_{\tau'} | SLM_S M_L \rangle &= -er_{l'} \sqrt{N} \sum G_{S_1 L_1}^{SL} C_{L_1 M_{L_1} l m_i}^{LM_L} C_{S_1 M_{S_1} 1/2\mu}^{SM_S} C_{l m_i \tau'}^{l' m_i} \frac{\langle l' || C_1 || l \rangle}{\sqrt{2l'+1}}. \end{aligned} \quad (27)$$

Используем соотношение (27) при $\tau = \mp 1$ и $\tau' = \pm 1$ и найдем, что уравнение (26) примет вид

$$\begin{aligned} \langle SLM_S M_L | W_{xy}^A(l') | SLM_S M_L \rangle &= \frac{i}{2} \sum (C_{L_1 M_{L_1} l m_i}^{LM_L})^2 (G_{S_1 L_1}^{SL})^2 \\ &\times \sqrt{\frac{2l'+1}{2l+1}} \left((C_{l'm_i\tau'}^{l m_i})^2 - (C_{l'm_i\tau}^{l m_i})^2 \right) N(er_{l'})^2 \\ &\times \frac{\langle l || C^1 || l' \rangle \langle l' || C^1 || l \rangle}{\sqrt{(2l+1)(2l'+1)}} = -\frac{i}{2} N(er_{l'})^2 \frac{\langle l || C^1 || l' \rangle \langle l' || C^1 || l \rangle}{l(2l+1)} \\ &\times \sum_{S_1 L_1 M_{L_1}} (G_{S_1 L_1}^{SL})^2 (C_{L_1 M_{L_1} l m_i}^{LM_L})^2 m_l. \end{aligned} \quad (28)$$

Далее, матричный элемент оператора $L_z = \sum_i l_z(i)$

$$\langle LSM_L M_S | L_z | LSM_S M_L \rangle = N \sum (G_{S_1 L_1}^{SL})^2 (C_{L_1 M_{L_1} l m_l}^{LM_L})^2 m_l. \quad (29)$$

Сопоставим (28) и (29) и получим, что

$$W_{xy}^A(l') = -i(er_{ll'})^2 \frac{\langle l || C_1 || l' \rangle \langle l' || C_1 || l \rangle}{2l(2l+1)} L_z. \quad (30)$$

Поскольку $\langle l || C_1 || l' \rangle = \sqrt{2l'+1} C_{l'010}^{l0}$, то

$$\langle l || C_1 || l' \rangle \langle l' || C_1 || l \rangle = \begin{cases} -l & \text{при } l' = l-1, \\ -(l+1) & \text{при } l' = l+1 \end{cases}.$$

Используем (30) и найдем, что оператор $q_{l'}^A(\mathbf{E})$, согласно определению (10),

$$q_{l'}^A(\mathbf{E}) = \frac{(er_{ll'})^2}{4l(2l+1)} (l+l'+1) i([\mathbf{E}^* \mathbf{E}] \mathbf{L}). \quad (31)$$

Подставим (25) и (31) в уравнение (8) и получим

$$a_{ng}^{(2)} = -\frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{\tau}{\hbar} \right)^2 (c_1 \langle n | q^S(\mathbf{E}) | g \rangle + c_2 i [\mathbf{E}^* \mathbf{E}] \langle n | \mathbf{L} | g \rangle). \quad (32)$$

Здесь величины c_1 и c_2 выражаются следующим образом:

$$c_1 = \sum_{l'} \frac{(er_{ll'})^2 (2l-1)}{(2l'+1)\sqrt{2l+1}} (F_+^{l'} + F_-^{l'}),$$

$$c_2 = \sum_{l'} \frac{(er_{ll'})^2 (l+l'+1)}{4l(2l+1)} (F_+^{l'} - F_-^{l'}), \quad (33)$$

где величины $F_{\pm}^{l'}$ определяются формулами (7), в которых частоты ω_{eg} заменены на $\omega_{l'}$.

В подавляющем большинстве случаев при рассмотрении редкоземельных ионов достаточно ограничиться учетом состояний основного мультиплета. В этом приближении в равенстве (32) оператор \mathbf{L} можно заменить оператором $(2 - g_J)\mathbf{J}$, где g_J — фактор Ланде мультиплета. Таким образом, смешивание состояний мультиплета электрическим полем волны определяется выражением

$$\psi_g^{(2)}(t) = -\frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\frac{\tau}{\hbar} \right)^2 \sum_n (c_1 \langle n | q^S(\mathbf{E}) | g \rangle + c_2 (2 - g_J) i [\mathbf{E}^* \mathbf{E}] \langle n | \mathbf{J} | g \rangle) e^{-i\omega_n t} | n \rangle. \quad (34)$$

Финансирование работы

Настоящая работа выполнена в рамках государственного задания ИОФ РАН (шифр FFWF-2023-0002).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] J.P. van der Ziel, P.S. Pershan, L.D. Malmstrom. Phys. Rev. Lett. **15**, 190 (1965). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.15.190>
- [2] P.S. Pershan, J.P. van der Ziel, L.D. Malmstrom. Phys. Rev. **143**, 574 (1966). <https://doi.org/10.1103/PhysRev.143.574>
- [3] С.А. Ахманов, В.А. Высолюх, А.С. Чиркин. Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М., Наука (1988).
- [4] A.M. Weiner. Ultrafast optics. Wiley (2011). 598 p. ISBN 978-1-118-21147-2.
- [5] R. Borrego-Varillas, M. Lucchini, M. Nisoli. Rep. Prog. Phys. **85**, 066401 (2022). <https://doi.org/10.1088/1361-6633/ac5e7f>
- [6] А.К. Звездин, В.М. Матвеев, А.А. Мухин, А.И. Попов. Редкоземельные ионы в магнитоупорядоченных кристаллах. М., Наука (1985). 296 с.
- [7] A.I. Popov, K.A. Zvezdin, Z.V. Gareeva, A.V. Kimel, A.K. Zvezdin. Phys. Rev. B **103**, 014423 (2021). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.014423>
- [8] G. Gorodetsky, B. Sharon, S. Shtrikman. Solid State Commun. **5**, 739 (1967). [https://doi.org/10.1016/0038-1098\(67\)90362-6](https://doi.org/10.1016/0038-1098(67)90362-6)
- [9] H. Schuchert, S. Hüfner, R. Faulhaber. Z. Phys. A **220**, 273 (1969). <https://doi.org/10.1007/BF01394703>
- [10] М.В. Еремин. Спектроскопия кристаллов. М., Наука (1978). С. 39.
- [11] И.И. Собельман. Введение в теорию атомных спектров. М., Физматгиз (1963). 640 с.
- [12] Д.А. Варшалович, А.Н. Москалев, В.К. Херсонский. Квантовая теория углового момента. Л., Наука, Ленингр. отд. (1975). 439 с.
- [13] B.R. Judd. Phys. Rev. **127**, 750 (1962). <https://doi.org/10.1103/PhysRev.127.750>

Редактор Т.Н. Василевская