

## Квантовая теория обратных магнитооптических эффектов в редкоземельных соединениях

© А.И. Попов<sup>1</sup>, А.К. Звездин<sup>2,3</sup>, Д.И. Плохов<sup>2,4</sup>

<sup>1</sup> Национальный исследовательский университет „МИЭТ“, Москва, Зеленоград, Россия

<sup>2</sup> Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия

<sup>3</sup> Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

<sup>4</sup> 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 возбуждений 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  $\tau \approx 30 \text{ ns}$ . 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 длившейся монохроматической электромагнитной волны. При этом возникла 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  $\tau \sim 10 \text{ fs}$  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,

$$v(t) = -(\mathbf{d}\mathbf{E}_0 + \mathbf{m}\mathbf{H}_0)e^{-t^2/\tau^2}, \quad (2)$$

где  $\mathbf{d} = -e \sum_{i=1}^N \mathbf{r}_i$  — оператор электрического дипольного момента редкоземельного иона, имеющего  $N$  электронов в своей  $f$ -оболочке,  $\mathbf{m} = -\mu_B g_J \mathbf{J}$  — 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),  $\tau$  — 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  $\varphi_k$  которого считаются известными. Волновые функции  $\varphi_k$  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  $\varphi_k$  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  $a_{kn}^{(2)}(t)$  можно записать в более простом виде:

$$a_{eg}^{(1)}(t) = -\frac{1}{\hbar} \left( v_{eg} \frac{e^{i(\omega_{eg} + \omega)t}}{\omega_{eg} + \omega} + v_{eg}^* \frac{e^{i(\omega_{eg} - \omega)t}}{\omega_{eg} - \omega} \right),$$

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

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

$$\begin{aligned} a_{eg}^{(1)}(t) &= \frac{i\tau\sqrt{\pi}}{2\hbar} \langle e | \mathbf{d}\mathbf{E}_0 | g \rangle (f_+(\omega_{eg}, t) + f_-(\omega_{eg}, t)), \\ f_{\pm}(\omega_{eg}, t) &= \exp\left(-\frac{\tau^2(\omega_{eg} \pm \omega)^2}{4}\right) \operatorname{erfc}(z_{\pm}(\omega_{eg}, t)), \\ z_{\pm}(\omega_{eg}, t) &= \frac{i\tau(\omega_{eg} \pm \omega)}{2} - \frac{t}{\tau}, \\ a_{ng}^{(2)}(t) &= -\frac{\tau^2\sqrt{\pi}}{2\hbar^2} \sum_e \langle n | \mathbf{d}\mathbf{E}_0^* | e \rangle \langle e | \mathbf{d}\mathbf{E}_0 | g \rangle F_+(t) \\ &\quad + \langle n | \mathbf{d}\mathbf{E}_0 | e \rangle \langle e | \mathbf{d}\mathbf{E}_0^* | g \rangle F_-(t), \\ F_{\pm}(t) &= \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t \phi_{\pm}(t') dt', \\ \phi_{\pm}(t) &= \exp\left(i\omega_{ng}t - \frac{2t^2}{\tau^2}\right) \\ &\quad \times \exp(z_{\pm}^2(\omega_{eg}, t)) \operatorname{erfc}(z_{\pm}(\omega_{eg}, t)). \end{aligned} \quad (6)$$

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  $\varphi_g$  и  $\varphi_n$  принадлежат основной  $4f^N$  конфигурации (орбитальное квантовое число  $l = 3$ ), а возбужденные состояния  $\varphi_e$ , 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  $\omega_{eg}$  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  $10^4$ – $10^5$  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

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

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-

Локальные оси симметрии редкоземельных ионов в ортоферрите диспрозия

$k$	$\mathbf{e}_k^x$	$\mathbf{e}_k^y$	$\mathbf{e}_k^z$
1	(0; 0; -1)	(- sin $\delta$ ; + cos $\delta$ ; 0)	(+ cos $\delta$ ; + sin $\delta$ ; 0)
2	(0; 0; +1)	(- sin $\delta$ ; - cos $\delta$ ; 0)	(+ cos $\delta$ ; - sin $\delta$ ; 0)
3	(0; 0; -1)	(+ sin $\delta$ ; - cos $\delta$ ; 0)	(- cos $\delta$ ; - sin $\delta$ ; 0)
4	(0; 0; +1)	(+ sin $\delta$ ; + cos $\delta$ ; 0)	(- cos $\delta$ ; + sin $\delta$ ; 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  $\text{DyFeO}_3$  [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  $\text{Dy}^{3+}$  в  $\text{DyFeO}_3$  обладает простыми и хорошо изученными низколежащими состояниями [6,8,9]. Кристаллическое поле расщепляет основной мультиплет  $^6H_{15/2}$  иона  $\text{Dy}^{3+}$  на дублеты с энергиями  $E_0 = 0 \text{ cm}^{-1}$ ,  $E_1 = 52 \text{ cm}^{-1}$ ,  $E_2 = 147 \text{ cm}^{-1}$  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  $\mathbf{e}_k^{\alpha}$  ( $\alpha = x, y, z$ ,  $a k = 1, 2, 3, 4$ ) неэквивалентных позиций редкоземельных ионов в ортоферрите диспрозия приведены в таблице.

Помимо этого, энергия кванта излучения лазера с длиной волны  $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$  лежит весьма близко к разности энергий мультиплетов  $^6H_{15/2}$  и  $^6F_{5/2}$  ионов диспрозия. Данное обстоятельство инициировало теоретическое исследование учета состояний возбужденного мультиплета  $^6F_{5/2}$  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 рассматривается.

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

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

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 Ланда  $g_J = 4/3$ .

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  $\mathbf{e}_k^{\alpha}$  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

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

Для поляризованного по кругу света с левым направлением поляризации

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

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

$$\Phi_1(F_{\pm}, t) = \operatorname{Im}(F_+ + F_-) \cos \omega_1 t - \operatorname{Re}(F_+ + F_-) \sin \omega_1 t \\ = C_1(t) \cos(\omega_1 t + \varphi_1(t)), \quad (17)$$

$$\Phi_2(F_{\pm}, t) = \operatorname{Im}(F_+ - F_-) \sin \omega_1 t + \operatorname{Re}(F_+ - F_-) \cos \omega_1 t \\ = C_2(t) \cos(\omega_1 t + \varphi_2(t)), \quad (18)$$

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

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

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

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.

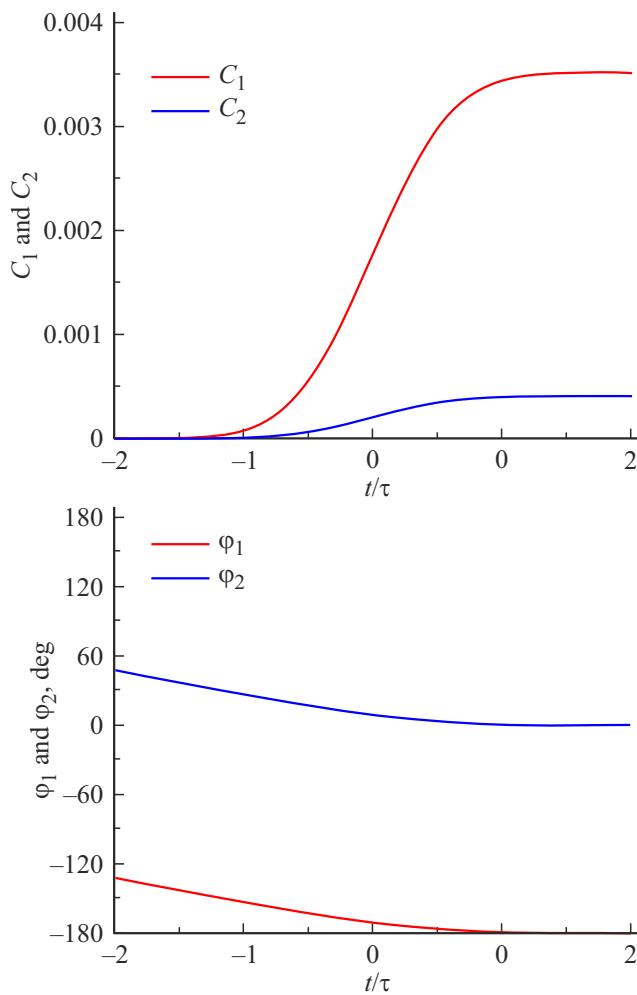
Заметим также, что для кристаллов с неэквивалентными позициями редкоземельных ионов, что соответствует нечетному кристаллическому полю, возникают эффекты, линейные по напряженности электрического поля, описываемые возмущением

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

В этом случае

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

в характерном диапазоне частот порядка  $\omega$ .

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

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

$$F_{\pm}(\omega_{fg}, t) = \frac{1}{\tau} \int_{-\infty}^t \varphi_{\pm}(\omega_{fg}, t') dt',$$

$$\begin{aligned} \varphi_{\pm}(\omega_{fg}, t) = & \exp \left( -\frac{2t^2}{\tau^2} + i\omega_{fg}t \right) e^{z_{\pm}^2(\omega_0, t)} \operatorname{erfc}(z_{\pm}(\omega_0, t)), \\ z_{\pm}(\omega_0, t) = & \frac{i\tau}{2}(\omega_0 \pm \omega) - \frac{t}{\tau}, \end{aligned}$$

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

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

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

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

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

Функции  $G_{\pm}$  при этом имеют вид

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

#### 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  $\mathbf{d}_\mu$  и  $\mathbf{E}_\mu$

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

где  $d_{\pm 1} = \mp(d_x \pm i d_y)/\sqrt{2}$ ,  $d_0 = d_z$  и  $E_{\pm 1} = \mp(E_x \pm i E_y)/\sqrt{2}$ ,  $E_0 = E_z$ . 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

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

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

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

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

где

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

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

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

где

$$\begin{aligned} q^S(\mathbf{E}) &= \frac{3}{\sqrt{5}} \left( |E_z|^2 - \frac{1}{3} \sum_{\alpha} |E_{\alpha}|^2 \right) C_0^2 \\ &+ \frac{3}{2} \sqrt{\frac{6}{5}} \left( \frac{E_x^* E_z + E_z^* E_x}{2} (\mathcal{C}_{-1}^2 - \mathcal{C}_1^2) \right. \\ &+ \left. \frac{E_y^* E_z + E_z^* E_y}{2} i (\mathcal{C}_{-1}^2 + \mathcal{C}_1^2) \right. \\ &+ \left. \frac{E_x^* E_y + E_y^* E_x}{2} i (\mathcal{C}_{-2}^2 - \mathcal{C}_2^2) + \frac{|E_x|^2 - |E_y|^2}{2} (\mathcal{C}_{-2}^2 + \mathcal{C}_2^2) \right). \end{aligned} \quad (25)$$

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

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

Используем соотношение (10) и получим

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

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

$$\begin{aligned} &\langle SLM_S M_L | W_{xy}^A(l') | SLM_S M_L \rangle = \frac{i}{2} \sum \left( C_{L_1 M_{L_1} l m_l}^{LM_L} \right)^2 \left( G_{S_1 L_1}^{SL} \right)^2 \\ &\times \sqrt{\frac{2l'+1}{2l+1}} \left( \left( C_{l'm_l 1-1}^{l'm_l} \right)^2 - \left( C_{l'm_l 11}^{l'm_l} \right)^2 \right) N(er_{ll'})^2 \\ &\times \frac{\langle l || C^1 || l' \rangle \langle l' || C^1 || l \rangle}{\sqrt{(2l+1)(2l'+1)}} = -\frac{i}{2} N(er_{ll'})^2 \frac{\langle l || C^1 || l' \rangle \langle l' || C^1 || l \rangle}{l(2l+1)} \\ &\times \sum_{S_1 L_1 M_{L_1}} \left( G_{S_1 L_1}^{SL} \right)^2 \left( C_{L_1 M_{L_1} l m_l}^{LM_L} \right)^2 m_l. \end{aligned} \quad (28)$$

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:

$$\begin{aligned} c_1 &= \sum_{l'} \frac{(er_{ll'})^2(2l-1)}{(2l'+1)\sqrt{2l+1}} (F_+^{l'} + F_-^{l'}), \\ c_2 &= \sum_{l'} \frac{(er_{ll'})^2(l+l'+1)}{4l(2l+1)} (F_+^{l'} - F_-^{l'}), \end{aligned} \quad (33)$$

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

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

## 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. Выслюх, 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. Зvezdin, 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. Варшавович, 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