

顺磁性磁光材料维尔德常数解算模型的讨论*

蔡伟¹⁾²⁾ 许友安^{1)†} 杨志勇¹⁾ 苗丽瑶¹⁾ 赵钟浩¹⁾

1) (火箭军工程大学, 兵器发射理论与技术国家重点学科实验室, 西安 710025)

2) (光电控制技术重点实验室, 洛阳 471000)

(2019年5月30日收到; 2019年8月22日收到修改稿)

对顺磁性材料磁光特性和维尔德常数的研究通常采用量子理论, 但传统的量子理论仅考虑了电子跃迁偶极矩的影响, 难以对维尔德常数进行全面系统的描述. 本文在考虑跃迁偶极矩影响的基础上, 以受迫振动对电偶极矩修正的方式计入外磁场与光电场对电子运动的影响. 首先从微观层面分析了顺磁性材料磁光效应及维尔德常数的内在机理, 而后通过经典电子动力学理论和量子理论分别分析了电子的能级跃迁和外场作用下非跃迁位移对电偶极矩的贡献, 进而推导得到顺磁性材料的极化率, 构建了维尔德常数的解算模型. 以典型顺磁性磁光材料铽石榴石为例, 量子计算了 Tb^{3+} 离子在自旋-轨道耦合、晶场及有效场作用下的能级及波函数, 最终分别定量求解得到传统量子理论和本文方法下的维尔德常数. 对比分析发现: 相比传统量子理论, 利用本文方法计算得到的结果与实验数据更为吻合, 具有一定的优越性.

关键词: 顺磁性, 维尔德常数, 能级跃迁, 电偶极矩

PACS: 78.20.Ls, 75.10.Dg, 75.20.-g, 75.70.Tj

DOI: 10.7498/aps.68.20190845

1 引言

1845年, 法拉第发现在外磁场作用下, 入射的线偏振光经过某些特定材料后偏振面会发生偏转, 具有这种磁致旋光效应的磁光材料被用于磁光调制器、光纤电流传感器及光信息处理等各项领域^[1-4]. 磁光材料主要分为顺磁性和抗磁性两类, 其中顺磁性磁光材料具有较高的维尔德常数, 应用更为广泛.

维尔德常数是偏转角与外磁场及材料长度之间的比例系数, 表征材料的磁光性能. 根据介质的色散特性, Becquerel^[5] 提出了一种描述维尔德常数的经典表达式, 由经典电磁场理论, 文献^[6] 推导了磁性介质中磁光效应的基本关系式, 结合介电常量张量和麦克斯韦方程, 利用宏观理论解释了磁光效应的物理过程^[7]. 这些经典理论对大多数抗磁性材料适用性较好, 但在计算顺磁性材料的维尔德

常数时将出现较大偏差^[8].

顺磁性磁光材料中通常含有大量的 Tb^{3+} , Pr^{3+} , Nd^{3+} 等稀土离子, 离子中不成对的电子极易发生 $4f \rightarrow 5d$ 的能级跃迁, 利用量子理论对维尔德常数进行求解具有更高的精确性. van Vleck-Hebb 和 Hebb^[9] 提出了维尔德常数的量子表达式及与温度之间的依赖关系, 文献^[10] 从分子-轨道能级的角度出发, 在微观层面解释了磁光效应, 文献^[11] 分析了顺磁性材料中的多种相互作用对维尔德常数的影响. 但传统的量子理论只考虑电子能级跃迁的影响, 忽略了外磁场与光电场作用下电子非跃迁位移所产生的电偶极矩.

文献^[8] 采用主导波长跃迁模型思想, 通过实验数据拟合得到了顺磁性维尔德常数的量子理论表达式, 进而得到波动跃迁性贡献下的维尔德常数. 但该方法仅将维尔德常数视为波动性和跃迁性两部分的简单叠加, 未阐明维尔德常数的内在机

* 国家自然科学基金 (批准号: 61505254) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: 408091240@qq.com

理, 理论依据不足.

针对现有理论的不足, 本文从微观机理层面进行分析, 在电子能级跃迁的基础上, 考虑了外磁场和光电场对电子运动的影响, 分别讨论了能级跃迁和非跃迁位移所产生的电偶极矩, 从而构建了更为精确的维尔德常数解算模型. 以铽石榴石 (TGG) 晶体为例, 通过定量计算验证了本文方法的优越性.

2 理论及模型构建

2.1 传统量子理论

量子理论认为, 顺磁性磁光材料中存在具有非零轨道角动量的简并基态 M_J , 在沿 z 轴正向的外磁场作用下, 分裂成 $M_J = \pm 1$ 的两个基态子能级 E_{m1} , E_{m2} , 当温度 T 远高于居里温度 T_c 且外部磁场 H_e 不太强时, 两个子能级上均有一定概率的电子分布^[12]. 线偏振光可分解为左旋 (LCP) 和右旋 (RCP) 两束圆偏振光, 其携带的左旋光子和右旋光子在 z 分量的自旋角动量分别为 \hbar 和 $-\hbar$. 根据角动量守恒定理, 当线偏振光通过外磁场作用下的磁光材料时, LCP 和 RCP 的光子及其所具有的自旋角动量可以分别被 E_{m1} 能级上的轨道左旋电子和 E_{m2} 能级上的轨道右旋电子吸收, 轨道左旋电子和右旋电子分别跃迁至激发态 n , 如图 1 所示.

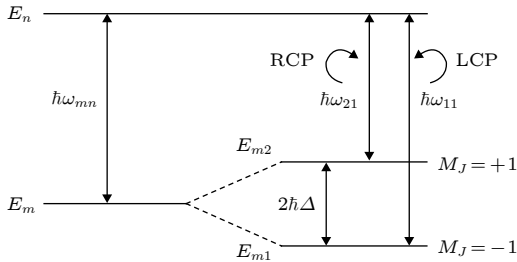


图 1 顺磁性磁光材料中的能级跃迁

Fig. 1. Energy level transition in paramagnetic magneto-optical materials.

对于图 1 所示的顺磁性磁光材料, 电子左旋跃迁与右旋跃迁的振动强度大小不等, 这种跃迁的不均匀性正是磁光效应及维尔德常数产生的根源.

基于量子理论, van Vleck-Hebb 求得了顺磁性材料的维尔德常数表达式^[9]:

$$V_i = \frac{4\pi^2\omega^2\chi}{g\mu_B ch} \cdot \sum_{mn} [C_{mn}/(\omega^2 - \omega_{mn}^2)], \quad (1)$$

式中, g 为 Lande 因子, $\mu_B = \hbar e/(4\pi mc)$ 为玻尔磁

子, c 为光速, \hbar 为普朗克常量, e 和 m 分别为电子电量的绝对值和电子质量, ω 为入射光的频率, χ 为磁化率, C_{mn} 代表发生 ω_{mn} 频率跃迁的几率. 由于磁化率是温度的函数, 所以顺磁性磁光材料的维尔德常数同时与入射光波长和温度有关.

(1) 式表明顺磁性材料的维尔德常数是一系列跃迁作用的总和, 式中 C_{mn} , ω_{mn} 等参数往往需要通过实验拟合方法来获得. 该方法的缺点是: 将法拉第磁光效应仅仅归因于基于实验数据拟合得到的量子跃迁模型, 这种拟合方法可能实际掩盖了除电偶极跃迁外的其他因素对维尔德常数的影响, 且拟合结果的正确性无法自证. 此外, 由于各跃迁几率互不相同且具有微观不确定性, 导致各种参数难以直接拟合得到. 文献^[13]引入主导波长跃迁模型思想, 即只考虑对维尔德常数起主导作用的跃迁, 同时考虑入射光波长 λ 和温度 T 的影响, 得到 TGG 维尔德常数的拟合模型为^[13]

$$V(\lambda, T) = -\frac{B\lambda_0^2}{\lambda^2 - \lambda_0^2} - \frac{C\lambda_0^2}{(T - T_w)(\lambda^2 - \lambda_0^2)} + \frac{D}{T - T_w}, \quad (2)$$

式中 λ_0 为 TGG 的主导跃迁波长; T_w 为居里-外斯温度; B , C , D 为实验拟合得到的常数. 在文中所述的温度和波长范围内, 虽然各样本的维尔德常数测试曲线的相似性很高, 但拟合得到的各种待定常数却有显著的差别. 以第二项中的常数 B 为例, 文中 4 个 TGG 陶瓷样本中 B 的拟合结果分别为 -252 , -262 , -175 , -115 , 最大差别超过 127%, 显然这样的拟合模型对每个样本都不相同, 普适性较差.

2.2 维尔德常数解算模型

(1) 式只考虑了电子的能级跃迁, 亦即跃迁偶极矩的影响, 而忽略了外磁场和光电场对电子回旋运动的影响. 本文认为: 入射偏振光在磁光材料中传播时, 光电场对所有电子均产生影响, 引起非跃迁偶极矩; 与此同时, 电子可分别吸收左旋光子或右旋光子, 产生能级跃迁, 引起相应的跃迁偶极矩. 两者共同作用于顺磁性磁光材料的维尔德常数.

2.2.1 电偶极矩

1) 外磁场和光电场引起的非跃迁偶极矩

线偏振光的电场可描述为

$$\mathbf{E} = E_0 R_e \left\{ e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{z})} \right\} = E_0 R_e \left\{ e^{i\omega(t - \frac{n}{c} \mathbf{s} \cdot \mathbf{z})} \right\}, \quad (3)$$

式中 E_0 为振幅, 波矢 $\mathbf{k} = \frac{n\omega}{c} \mathbf{s}$, 其大小 $k = \frac{n\omega}{c} s$ 为波数, \mathbf{s} 为波矢方向的单位矢量, n 为介质的折射率, c 为真空中的光速, ω 为入射光频率, \mathbf{z} 为观测点的 z 轴坐标乘以 z 轴方向的单位矢量, $R_e \{\psi\}$ 为取 ψ 实部的算子.

磁光旋转的典型应用中, 线偏振光的波矢方向平行于外部磁场方向, 沿 z 轴正向传播, 故 $\mathbf{s} \cdot \mathbf{z} = z$, 并设 \mathbf{E}_0 平行于 x 轴. 考虑在介质中 LCP 和 RCP 具有不同的折射率 n_L 和 n_R , 左旋电场和右旋电场可分别表示为

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_L &= \frac{1}{2} E_0 e^{i(\omega t - \frac{n_L \omega}{c} z)}, \\ \mathbf{E}_R &= \frac{1}{2} E_0 e^{-i(\omega t - \frac{n_R \omega}{c} z)}. \end{aligned} \quad (4)$$

由于 n_L 和 n_R 相差很小, 在许多运算中可以忽略其差别.

在任意固定时刻, 沿光传播方向即 z 轴正向来看, RCP 和 LCP 各自对应的电场矢量分别呈现为两个绕 z 轴顺时针和逆时针旋转的空间曲面; 但如果固定于 z 轴上一点来观察, 则 RCP 和 LCP 各自对应电场在该点处垂直于 z 轴的 XY 平面内的旋转方向恰好相反, 分别为逆时针和顺时针旋转. 这种现象可以解释为“空右时左”或“空左时右”.

由核外电子与正电中心组成的电偶极子在外电场中受力矩作用而旋转, 使其感应电偶极矩转向外电场方向, 也可理解为受迫振动. 以正电中心为圆心绘制电子受力及运动情况如图 2 所示.

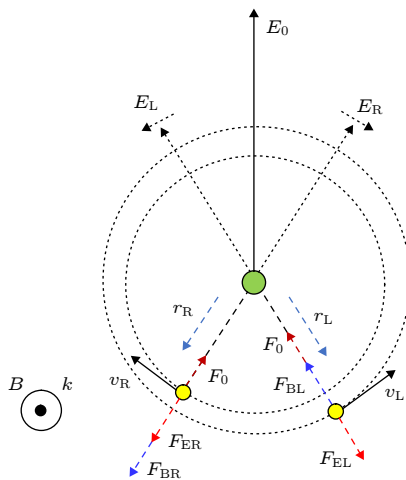


图 2 电子运动及受力分析

Fig. 2. Electronic motion and force analysis.

由图 2 可见, 电子受到正电中心吸引力 F_0 、光电场作用力 F_E 及洛伦兹力 F_B 的共同作用. 忽略阻尼项的影响, 电子的受力与运动方程为

$$m\mathbf{r}'' = -m\omega_0^2 \mathbf{r} - e\mathbf{E} - e\mathbf{r}' \times \mathbf{B}_i, \quad (5)$$

式中, \mathbf{r} 为电子相对于正电中心的位移矢量, ω_0 为电子运动的固有频率, \mathbf{E} 为介质中光波电场强度, \mathbf{B}_i 为介质中的有效磁场. 注意到 LCP 和 RCP 电场分别驱动左旋电子和右旋电子^[14], 通过方程 (5) 可分别求得轨道左旋电子与右旋电子的位移为

$$\begin{aligned} \mathbf{r}_L &= \frac{-e/m}{\omega_0^2 - \omega^2 + 2\omega\omega_L} \mathbf{E}_L, \\ \mathbf{r}_R &= \frac{-e/m}{\omega_0^2 - \omega^2 - 2\omega\omega_L} \mathbf{E}_R, \end{aligned} \quad (6)$$

式中 $\omega_L = \frac{e}{2m} B_i$ 为电子进动的拉莫尔频率, 由于 $\omega_L \ll \omega$, 故 (6) 式常简化为

$$\begin{aligned} \mathbf{r}_L &= \frac{-e/m}{\omega_0^2 - (\omega - \omega_L)^2} \mathbf{E}_L, \\ \mathbf{r}_R &= \frac{-e/m}{\omega_0^2 - (\omega + \omega_L)^2} \mathbf{E}_R. \end{aligned} \quad (7)$$

磁光旋转中, 光波频率与电子运动固有频率通常在同一个量级上, 为 10^{15} rad/s, 在 LCP 和 RCP 的电场作用下, 顺磁材料中的束缚电子将跟上光波频率, 在 XY 平面内产生两种方向相反的圆周运动方式, 角频率由 ω_0 变为 $\omega \mp \omega_L$. 因此由外磁场和光电场引起的非跃迁偶极矩为

$$\mathbf{P}_w^\pm = -e\mathbf{r}_{R,L} = \frac{e^2/m}{\omega_0^2 - (\omega \pm \omega_L)^2} \mathbf{E}_{R,L}, \quad (8)$$

(8) 式采用了文献中常用的表示方法, “+”, “-”分别表示右旋和左旋.

2) 跃迁偶极矩

根据量子理论, 磁光材料中的右旋与左旋电子吸收相应光子后引起能级跃迁, 跃迁偶极矩为

$$\mathbf{P}_t^\pm = \int \psi_m^* \hat{\mathbf{d}} \psi_n d^3r = \langle \psi_m | e(x \mp iy) | \psi_n \rangle, \quad (9)$$

式中 ψ_m , ψ_n 分别为基态与激发态的波函数.

3) 总电偶极矩

入射光通过磁光材料时, 电子的能级跃迁及非跃迁位移同时存在, 总电偶极矩应是两者的叠加, 即 $\mathbf{P}_{w-t}^\pm = \mathbf{P}_w^\pm + \mathbf{P}_t^\pm$, 如图 3 所示.

2.2.2 单粒子系统在光场作用下的极化率

维尔德常数主要取决于离子最外层电子的运

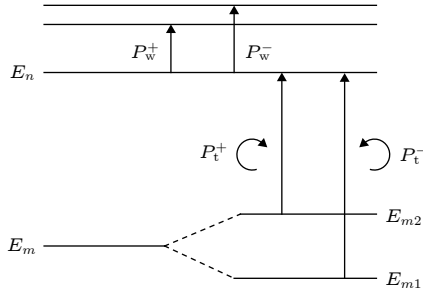


图 3 总电偶极矩

Fig. 3. Total electric dipole moment.

动, 而单粒子系统容易受环境的影响, 系统的哈密顿量 \hat{H} 难以精确获知, 且波函数 $|\Psi\rangle$ 的初值也难以给定. 因此引入密度算符 $\hat{\rho} = |\Psi\rangle\langle\Psi|$ 及统计算法, 则可观测量 \hat{F} 的平均值可表示为

$$\langle F \rangle = \langle \Psi | \hat{F} | \Psi \rangle = \sum_{n,m} \rho_{nm} F_{mn} = \text{tr}(\hat{\rho} \hat{F}), \quad (10)$$

式中波函数 $|\Psi\rangle$ 通过能量表象 $\{|\psi_n\rangle\}$ 来表示; 而 ρ_{nm} , F_{nm} 分别是该表象中的矩阵元.

介质在光场作用下, 系统的哈密顿量可表示为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}} + \hat{H}_{\text{rad}}, \quad (11)$$

式中 \hat{H}_0 为无外场时的哈密顿量, \hat{H}_{int} 为系统与光场的相互作用, \hat{H}_{rad} 为系统与环境的弱相互作用.

由薛定谔方程可知密度矩阵算子的时间演变关系 $\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}]$, 因此 (11) 式可表示为

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{nm} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\rho}]_{nm} + \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_{\text{int}}, \hat{\rho}]_{nm} + \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_{\text{rad}}, \hat{\rho}]_{nm}. \quad (12)$$

选择能量表象, 本征函数 $|u_k\rangle$ 满足 $H_0 |u_k\rangle = E_k |u_k\rangle$, 以本征函数为基矢, 则 \hat{H}_0 的矩阵元是对角的, 得

$$[\hat{H}_0, \hat{\rho}]_{nm} = (E_n - E_m) \rho_{nm} = \hbar\omega_{nm} \rho_{nm}. \quad (13)$$

引入弛豫速率 γ_{nm} , (12) 式右边的第三项可表示为

$$\frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_{\text{rad}}, \hat{\rho}]_{nm} = -\gamma_{nm} (\rho_{nm} - \rho_{nm}^{\text{(eq)}}), \quad (14)$$

其中 $\rho_{nm}^{\text{(eq)}}$ 为密度矩阵元在无外场条件下的初值, 注意到无外场时常处于热平衡态, 因此非对角元初值为 0, 即 $\rho_{nm}^{\text{(eq)}} = 0 (n \neq m)$, 而对角元表示各能级的填充几率, 服从玻尔兹曼分布.

当粒子与光的作用不是特别强的情况下,

$H_{\text{int}} \ll H_0$, 可以采用微扰理论对其进行处理. 引入表征光场微扰程度的微小项 η , 系统与光场的相互作用可表示为 $\eta \hat{H}_{\text{int}}$. 将密度矩阵元展开成 η 的幂级数

$$\rho_{nm} = \rho_{nm}^{(0)} + \eta \rho_{nm}^{(1)} + \eta^2 \rho_{nm}^{(2)} + \dots \quad (15)$$

考虑电子在光电场作用下的受迫运动, 系统与光场的相互作用为

$$\hat{H}_{\text{int}} = -(\mathbf{P}_w' + \mathbf{P}_t) \cdot \mathbf{E} = -\mathbf{P} \cdot \mathbf{E}, \quad (16)$$

式中 $\mathbf{P}_w' = e\mathbf{r}' = \frac{e^2/m}{\omega_0^2 - (\omega \pm \omega_L)^2} \mathbf{l}$, \mathbf{l} 为电场方向的单位矢量. 由于在偶极近似下 \hat{H}_{int} 是光场的一阶函数, 对于密度矩阵元的求导只需考虑一阶效应, 由 (12)–(16) 式可得

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho_{nm}^{(0)} &= -i\omega_{nm} \rho_{nm}^{(0)} - \gamma_{nm} (\rho_{nm}^{(0)} - \rho_{nm}^{\text{(eq)}}), \\ \frac{\partial}{\partial t} \rho_{nm}^{(1)} &= -(i\omega_{nm} + \gamma_{nm}) \rho_{nm}^{(1)} + \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{int}}, \rho^{(0)}]_{nm}. \end{aligned} \quad (17)$$

不失一般性, 分析 $z = 0$ 处的情况,

$$\begin{aligned} [\hat{H}_{\text{int}}, \rho^{(0)}]_{nm} &= -\sum_k (\mathbf{P}_{nk} \rho_{km}^{(0)} - \rho_{nk}^{(0)} \mathbf{P}_{km}) \cdot \mathbf{E} \\ &= -(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \mathbf{P}_{nm} \cdot \mathbf{E}_0 e^{i\omega t}. \end{aligned} \quad (18)$$

利用标准方法求解微分方程 (17), 得

$$\begin{aligned} \rho_{nm}^{(1)}(t) &= \frac{i}{\hbar} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \mathbf{P}_{nm} \cdot \mathbf{E}_0 e^{-(i\omega_{nm} + \gamma_{nm})t} \\ &\quad \times \int_{-\infty}^t e^{i(\omega_{nm} + \omega) + \gamma_{nm})t'} dt' \\ &= \frac{1}{\hbar} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \frac{\mathbf{P}_{nm} \cdot \mathbf{E}}{(\omega_{nm} + \omega) - i\gamma_{nm}}. \end{aligned} \quad (19)$$

介质的电极化强度表示为

$$\mathbf{P}_i = N \text{tr}(\hat{\rho}^{(1)} \hat{\mathbf{P}}) = N \sum_{n,m} \rho_{nm}^{(1)} \mathbf{P}_{mn}. \quad (20)$$

极化率张量 $\boldsymbol{\alpha}$ 为

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\alpha} &= \frac{\mathbf{P}_i}{N \varepsilon_0 \mathbf{E}} \\ &= \frac{1}{\varepsilon_0 \hbar} \sum_{n,m} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \frac{\mathbf{P}_{mn} \mathbf{P}_{nm}}{\omega_{nm} + \omega - i\gamma_{nm}}. \end{aligned} \quad (21)$$

$\boldsymbol{\alpha}$ 为二阶张量, 其分量形式为

$$\alpha_{ij} = \frac{1}{\varepsilon_0 \hbar} \sum_{n,m} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \frac{P_{mn}^i P_{nm}^j}{\omega_{nm} + \omega - i\gamma_{nm}} = \frac{1}{\varepsilon_0 \hbar} \sum_{n,m} \rho_{mm}^{(0)} \frac{P_{mn}^i P_{nm}^j}{\omega_{nm} + \omega - i\gamma_{nm}} - \frac{1}{\varepsilon_0 \hbar} \sum_{n,m} \rho_{nn}^{(0)} \frac{P_{mn}^i P_{nm}^j}{\omega_{nm} + \omega - i\gamma_{nm}}. \quad (22)$$

将等号右边的第二项进行 n, m 符号交换, 且因为 $\omega_{mn} = -\omega_{nm}$, $\gamma_{mn} = \gamma_{nm}$, 极化率可化简为

$$\alpha_{ij} = \sum_{m,n} \frac{\beta_m (P_{mn}^i P_{nm}^j + P_{nm}^i P_{mn}^j) \omega_{nm} + (P_{mn}^i P_{nm}^j - P_{nm}^i P_{mn}^j) (\omega - i\gamma_{mn})}{\varepsilon_0 \hbar [\omega_{mn}^2 - (\omega - i\gamma_{mn})^2]}. \quad (23)$$

由于总电偶极矩 P^\pm 为复数, 根据厄米算符的复共轭特征, 可解得极化率的分量形式为

$$a_{ij} = \frac{1}{2i\varepsilon_0 \hbar} \sum_m \beta_m \sum_n \frac{(\omega - i\gamma_{nm}) [(P_t^+ + P_w^+)^2 - (P_t^- + P_w^-)^2]}{\omega_{mn}^2 - (\omega - i\gamma_{nm})^2}, \quad (24)$$

式中 $\beta_m = \rho_{mm}^{(0)}$ 表示电子处于基态能级 E_m 的几率, 服从 Zeeman 分布, $\rho_{mm}^{(0)} = \frac{g_m}{Z} e^{-E_m/(k_B T)}$, 其中 g_m 为基态能级 E_m 的简并度, 配分函数 $Z = \sum_m g_m e^{-E_m/(k_B T)}$.

2.2.3 法拉第旋转角及维尔德常数

法拉第旋转角及维尔德常数的求解通常从磁光材料的介电常数张量入手, 本文重点讨论立方晶系以上的磁光材料, 此时 z 轴方向与 x/y 轴方向的介电特性互不影响, 而 x 轴与 y 轴方向存在对称性. 根据厄米特性, 介电张量可写成如下形式^[15]:

$$\varepsilon = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & 0 \\ -\varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{bmatrix}, \quad (25)$$

其中矩阵对角元 ε_{xx} 与介质的折射率 n 相关, 假定介质无吸收, $\varepsilon_{xx} = n^2$; 矩阵非对角元 $\varepsilon_{xy} = 4\pi N a_{ij}$ 则引起了磁光材料的法拉第旋转.

单位长度上引起的法拉第旋转角为^[10]

$$\theta_F = \frac{\pi}{\lambda} \cdot \frac{i\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}} \approx \frac{\pi\omega}{c} \cdot \frac{i\varepsilon_{xy}}{n}. \quad (26)$$

$\gamma_{nm} \ll \omega$ 可忽略不计, 则考虑磁场和光电场作用下的电子受迫运动后, 可得到顺磁性材料的维尔德常数为

$$V_{w-t} = \frac{2N\pi^2\omega^2}{\varepsilon_0 \hbar H_c} L_n \sum_m \beta_m \times \sum_n \frac{(P_t^+ + P_w^+)^2 - (P_t^- + P_w^-)^2}{\omega_{mn}^2 - \omega^2}, \quad (27)$$

式中 $L_n = \left[\frac{n^2 + 2}{3} \right]^2$ 为 Lorentz-Lorenz 局域场修正项.

3 数据验证

选取典型顺磁性磁光材料 TGG 晶体为研究对象, 其维尔德常数主要取决于晶体中 Tb^{3+} 离子由 $4f \rightarrow 5d$ 的能级跃迁. 下文通过计算 Tb^{3+} 离子的能级及波函数, 分别得到传统量子理论及本文方法下的维尔德常数并进行对比分析, 进而验证本文方法的可行性.

3.1 Tb^{3+} 离子能级及波函数

Tb^{3+} 离子在晶体中受诸多作用的影响, 总哈密顿量为

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{LS} + \hat{H}_C + \hat{H}_i + \hat{H}_S, \quad (28)$$

式中 \hat{H}_0 为库仑相互作用, \hat{H}_{LS} 为自旋-轨道耦合, \hat{H}_C 为晶体场作用, \hat{H}_i 为有效场对离子的作用, \hat{H}_S 为磁相互作用 (可忽略不计).

$$\hat{H}_0 = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{z^* e^2}{4\pi\varepsilon_0 r}, \quad \hat{H}_{LS} = \xi \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}, \quad (29)$$

$$\hat{H}_C = \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{q=-k}^k B_{k,q} Y_{k,q}(\theta, \varphi), \quad \hat{H}_i = \mu_B H_i \cdot (\mathbf{L} + 2\mathbf{S}), \quad (30)$$

式中 $\frac{z^* e^2}{4\pi\varepsilon_0 r}$ 为电子所处的周期性势场, ξ 为自旋-轨道耦合系数, \mathbf{L} 为轨道角动量, \mathbf{S} 为自旋角动量, $B_{k,q}$ 为晶场参数, $Y_{k,q}(\theta_j, \varphi_j)$ 为球谐函数.

将 $\hat{H}_C + \hat{H}_{LS}$ 作为微扰量, 通过下列久期方程得到 Tb^{3+} 离子在晶场及自旋-轨道耦合作用下的能级位移及波函数

$$\left\| \langle \psi_{i1} | \hat{H}_C + \hat{H}_{LS} | \psi_{j1} \rangle - E_{m1(n1)} \delta_{ij} \right\| = 0, \quad (31)$$

式中 ψ_{i1} , ψ_{j1} 为未微扰的本征波函数; E_{m1} 为自旋-轨道耦合和晶场引起的基态能级位移, E_{n1} 为激发

表 1 晶场及自旋轨道作用下的能级位移 (单位为 cm^{-1})
Table 1. Energy level shift under the action of crystal field and spin orbit (in cm^{-1}).

		1	2	3	4	5	6	7	8
Tb^{3+}	E_{m1}	41.6	49.7	84.9	89.2	267.5	272	303.2	310.5
	E_{n1}	-863.2	-336.4	-56.3	784.6	1446.7	1996.2		

表 2 有效场作用下的能级分裂 (单位为 cm^{-1})
Table 2. Energy level splitting under the action of effective field (in cm^{-1}).

	1	2	3	4
Tb^{3+}	$(\pm 2.342 \mp 0.9516\nu\chi)$	$(\pm 0.46 \mp 0.1422\nu\chi)$	$(\pm 0.897 \mp 0.3641\nu\chi)$	$(\pm 1.49 \mp 0.6561\nu\chi)$

态能级位移. 考虑 4f 及 5d 多重态的耦合, 以 4f 基态 7F_6 为能级零点, 计算得到的部分能级位移如表 1 所列.

根据塞曼定理, 当存在与 z 轴平行的外部磁场时, 原子磁矩与有效场相互作用引起的能量将导致能级的进一步分裂. 将 \hat{H}_i 代入下列久期方程, 得到有效场作用下的能级位移及波函数,

$$\left\| \langle \psi_{i1} | \hat{H}_i | \psi_{j1} \rangle - E_{m2(n1)} \delta_{ij} \right\| = 0. \quad (32)$$

考虑附加磁场 $H_\nu = \nu M$ 只作用于自旋, 且有效场对激发态能级的影响可忽略不计, 在一级近似下, 基态能级位移为

$$E_{m2} = \mu_B \mathbf{H}_e [\langle \psi_{i2} | (\mathbf{L} + 2\mathbf{S}) | \psi_{j2} \rangle + 2\nu\chi \langle \psi_{i2} | \mathbf{S} | \psi_{j2} \rangle], \quad (33)$$

式中 ψ_{i2}, ψ_{j2} 为晶场及自旋-耦合作用后的基态波函数. 玻尔兹曼常数 $k_B = 1.3807 \times 10^{-23}$, 室温下 $k_B T \approx 200 \text{ cm}^{-1}$, 因此表 2 中 Tb^{3+} 离子的第 1—4 个基态能级上都有一定概率的电子分布, 由

(33) 式计算得到的基态能级分裂列于表 2.

基态的最终能级为 $E_m = E_{m1} + E_{m2}$, Tb^{3+} 离子 5d 激发态与 4f 基态之间的能级间距为 38462 cm^{-1} [16], 因此激发态的最终能级为 $E_n = E_{n1} + 38462 \text{ cm}^{-1}$. Tb^{3+} 离子能级的分裂过程如图 4 所示.

3.2 维尔德常数计算

根据表 1 和表 2 中的能级位移及由 (31), (32) 式求得的波函数, 可解算得到左右圆偏振光激发下 Tb^{3+} 离子全部的 48 个跃迁矩阵元 P_i^\pm ; TGG 晶体的中心波长 $\lambda_0 = 258 \text{ nm}$ [17], 共振频率 $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0 = 7.307 \times 10^{15} \text{ rad/s}$, 拉莫尔进动频率 $\omega_L = \frac{e\mu_0}{2m} H_1$, 其中 $e \approx 1.60217662 \times 10^{-19} \text{ C}$, $m \approx 9.109383 \times 10^{-31} \text{ kg}$, $\mu_0 \approx 1.2566370614 \times 10^{-6} \text{ H/m}$, 由此可计算得出非跃迁矩阵元 $P_{w'}^\pm$.

分裂后, 基态能级的简并度为 1, 因此电子在各能级上的分布概率可由下列方程求解获得

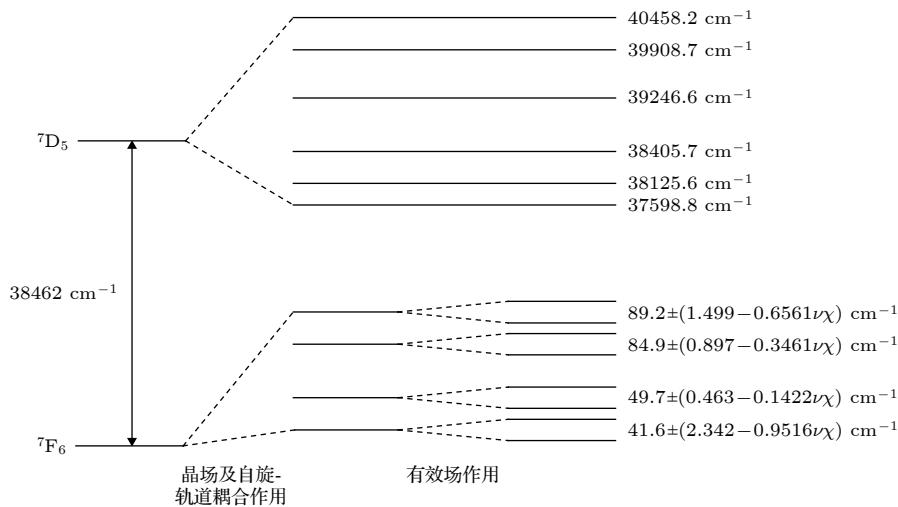


图 4 Tb^{3+} 离子的能级分裂过程

Fig. 4. Energy level splitting process of Tb^{3+} ions.

$$\begin{aligned} \beta_m &= \frac{e^{-E_m/(k_B T)}}{\sum_s e^{-E_s/(k_B T)}} \\ &= \beta_0 e^{-E_{m1}/(k_B T)} \left(1 - \frac{\mu_B}{k_B T} \right) \langle \psi_{i2} | \mathbf{H}_e \\ &\quad \times (\mathbf{L} + 2\mathbf{S} + 2\nu\chi\mathbf{S} | \psi_{j2} \rangle). \end{aligned} \quad (34)$$

结合 (34) 式及 (27) 式可知, 维尔德常数表达式的各项参数中, 只有拉莫尔进动频率 ω_L 与外磁场相关, 由于 $\omega_L \ll \omega$, 因此弱磁场条件下的维尔德常数与外磁场大小无关.

本文方法理论上适用于所有波长, 但短波长下, TGG 晶体的磁光特性极为复杂, 光的非线性、双折射及其他光学效应将对维尔德常数的测量及计算造成较大影响, 目前暂未见到阐述内在机理及试验测量的相关报道; 同时各类磁光调制的实际应用中往往采用 400 nm 以上的可见光波段或近红外波段. 由于缺乏实验数据的支撑, 且短波长下晶体内部的复杂作用尚不清晰, 为保证研究结果的正确性及严谨性, 本文只考虑 TGG 晶体实际工作波长范围 (400—1500 nm) 内的计算结果.

TGG 晶体的离子密度 $N = 1.274 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, 磁化率 $\chi = Ng^2 J(J+1)\mu_0^2 / [3k_B(T - T_c)]$, 式中有有效玻尔磁子数 $p = g[J(J+1)]^{1/2} = 9.72^{[17]}$, J 为内

量子数, $T_c = 0.227 \text{ K}$ 为居里常数^[18]. 取温度 $T = 298 \text{ K}$, 分别得到不同波长下利用 van Vleck-Hebb 传统量子理论及本文方法进行解算时的维尔德常数, 如表 3.

分析维尔德常数随波长的变化情况, 如图 5 所示. 图 5 中, V_e 表示实验数据, V_t 表示利用 van Vleck-Hebb 传统量子理论进行计算得到的值, V_{w-t} 表示本文方法的计算值. 由图 5 可见, 由于跃迁偶极矩对维尔德常数的贡献为负, 而非跃迁偶极矩的贡献为正, 两者效果相反. 因此计入电子回旋运动引起的非跃迁偶极矩后, 本文方法计算得到的维尔德常数 V_{w-t} 均低于传统跃迁模型的维尔德常数 V_t , 与实验数据更为相符. 同时随着波长的增大, 传统量子理论的计算值逐渐接近实验值, 这是由于随着波长的增大, 非跃迁偶极矩变小, 而跃迁偶极矩的值基本不变, 对维尔德常数贡献的比重进一步加大, 起决定性作用.

综上所述可知, V_{w-t} 与实验数据 V_e 更为吻合, 说明相比传统量子理论, 本文方法具有一定的优越性. 但 V_{w-t} 与 V_e 之间还存在误差, 这是由于在模型构建及计算过程中, 忽略了哈密顿微扰的高级修正项、磁偶极子之间的相互作用及电场引起的 Stark 位移等微观参数对维尔德常数的影响.

表 3 不同理论下的维尔德常数 (单位为 $\text{rad}/(\text{m} \cdot \text{T})$)
Table 3. Verdet constant under different theories (in $\text{rad}/(\text{m} \cdot \text{T})$).

λ/nm	457.9	532	632.8	830	1064	1300
V_e	-305.7	-190	-134.4	-61	-40.2	-20
V_t	-351.9	-236.2	-157.8	-83.2	-50.3	-32.9
V_{w-t}	-314.6	-198.7	-144.3	-68.9	-43.7	-23.1

注: V_t 为 Van Vleck-Hebb 传统量子理论的计算值, V_{w-t} 为本文方法的计算值, V_e 为实验数据^[19-22].

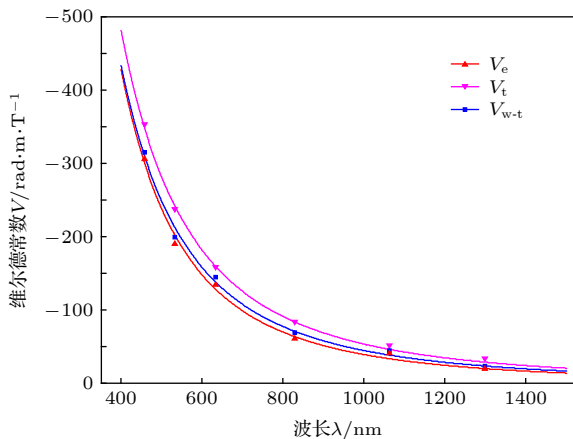


图 5 维尔德常数随波长变化情况

Fig. 5. Verdet constant varies with wavelength.

4 结论

本文从微观层面分析了顺磁性材料中磁光效应和维尔德常数的产生机理及现有理论的不足, 并由此引入外磁场与光电场对电子运动的影响, 认为维尔德常数是跃迁偶极矩及非跃迁偶极矩共同作用的结果. 通过量子计算, 分别得到传统量子理论及本文方法下 TGG 晶体的维尔德常数, 与实验数据对比分析发现: 在一定程度上, 利用本文方法能够更为精确地求解顺磁性磁光材料的维尔德常数. 这也为进一步探索顺磁性材料磁光效应的内在机理提供了参考借鉴.

参考文献

- [1] Zhang F, Tian Y, Yi Z, Gu S H 2016 *Chin. Phys. B* **25** 094206
- [2] Tian Y, Tan B Z, Yang J, Zhang Y, Gu S H 2015 *Chin. Phys. B* **24** 063302
- [3] Yasuhara R, Furuse H 2013 *Opt. Lett.* **38** 1751
- [4] Li C S 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 047801 (in Chinese) [李长胜 2015 物理学报 **64** 047801]
- [5] Becquerel H 1897 *J. Phys. Theor. Appl.* **6** 681
- [6] Liu G Q, Gong T 1985 *J. Shanghai JiaoTong Univ.* **19** 81 (in Chinese) [刘公强, 龚挺 1985 上海交通大学学报 **19** 81]
- [7] Liu G Q, Le Z Q, Shen D F 2001 *Magneto-optics* (Shanghai: Science and Technology Press) pp30–34 (in Chinese) [刘公强, 乐志强, 沈德芳 2001 磁光学(上海: 科学技术出版社) 第30—34页]
- [8] Cai W, Xing J H, Yang Z Y 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 187801 (in Chinese) [蔡伟, 邢俊辉, 杨志勇 2017 物理学报 **66** 187801]
- [9] van Vleck J H, Hebb M H 1934 *Phys. Rev.* **46** 17
- [10] Suits J 1972 *IEEE Trans. Mag.* **8** 95
- [11] Liu G Q, Huang Y P 1988 *Acta Phys. Sin.* **37** 1626 (in Chinese) [刘公强, 黄燕萍 1988 物理学报 **37** 1626]
- [12] Scott G B, Lacklison D 1976 *IEEE Trans. Mag.* **12** 292
- [13] Slezák O, Yasuhara R, Lucianetti A, Mocek T 2016 *Opt. Mater. Express* **6** 3683
- [14] Taskeya H 2017 *Int. J. Electromagn. Appl.* **7** 17
- [15] Wittekoek S, Popma T J A, Robertson J M, Bongers P F 1975 *Phys. Rev. B* **12** 2777
- [16] Zhu N F, Li Y X, Yu X F 2008 *Mater. Lett.* **62** 2355
- [17] Vasyliov V, Villora E G, Nakamura M, Sugahara Y, Shimamura K 2012 *Opt. Express* **20** 14460
- [18] Löw U, Zvyagin S, Ozerov M, Schaufuss U, Kataev V, Wolf B, Lüthi B 2013 *Eur. Phys. J. B* **86** 87
- [19] Chen Z, Yang L, Wang X Y, Hang Y 2016 *Opt. Mater.* **62** 475
- [20] Villaverde A B, Donatti D A, Bozini D G 1978 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **11** L495
- [21] Kaminskii A A, Eichler H J, Reiche P, Uecker R 2005 *Laser Phys. Lett.* **2** 489
- [22] Raja M Y A, Allen D, Sisk W 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2123

Discussion on Verdet constant solution model of paramagnetic magneto-optical materials*

Cai Wei¹⁾²⁾ Xu You-An^{1)†} Yang Zhi-Yong¹⁾
Miao Li-Yao¹⁾ Zhao Zhong-Hao¹⁾

1) (*Armament Launch Theory and Technology Key Discipline Laboratory of China, Rocket Force University of Engineering, Xi'an 710025, China*)

2) (*Science and Technology on Electro-optic Control Laboratory, Luoyang 471000, China*)
(Received 30 May 2019; revised manuscript received 22 August 2019)

Abstract

The Verdet constant is one of the key parameters to characterize the material magneto-optical properties. The quantum theory is usually used to study magneto-optical properties and calculate the Verdet constant of paramagnetic material. However, the traditional quantum theory only takes into account the influence of the electron transition dipole moments caused by the particle property of light, which therefore cannot formulate the Verdet constant of magneto-optical material accurately.

In view of the shortcomings of the existing theory, in this paper we propose is a wave-transition model of the Verdet constant. Due to the special wave-particle duality of light, the contribution of the non-transition dipole moment to the Verdet constant, caused by the electric field of light wave, should not be ignored.

According to the basic theory of magneto-optical effect, in this paper we first explore the intrinsic mechanism of the paramagnetic material's Verdet constant at a microscopic level and analyze the deficiency of traditional quantum theory. Furthermore, the classical electronic dynamic theory and quantum theory are used to reveal the contribution of volatility and transition of the light to the electric dipole moment. The density operator and statistical algorithm are introduced to derive the polarizability tensor of the paramagnetic magneto-optical material, thus obtaining the Verdet constant expression of the paramagnetic magneto-optical material, from which the Verdet constant is formulated. Taking the paramagnetic magneto-optical material TGG for example, the splitting energy levels and wave function of Tb^{3+} ions in the spin-orbit coupling, crystal field and effective field are calculated by the quantum method, and finally the Verdet constants under the traditional quantum theory and the volatility transition contribution model are obtained quantitatively. The comparative analysis shows that the results calculated by the wave-transition contribution model are more consistent with the experimental data and more accurate than the results calculated through the traditional quantum theory. The idea and method put forward in this paper will provide reference for further exploring the magneto-optical effect mechanism of paramagnetic magneto-optical materials.

Keywords: paramagnetic, Verdet constant, energy level transition, electric dipole moment

PACS: 78.20.Ls, 75.10.Dg, 75.20.-g, 75.70.Tj

DOI: 10.7498/aps.68.20190845

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61505254).

† Corresponding author. E-mail: 408091240@qq.com