## Проявление памяти и бабочка в фотонном эхо на ионах эрбия в $LuLiF_4$ и $YLiF_4$

А. М. Шегеда<sup>1)</sup>, С. Л. Кораблева\*, О. А. Морозов<sup>+\*</sup>, В. Н. Лисин<sup>+</sup>, Н. К. Соловаров<sup>+</sup>, В. Ф. Тарасов<sup>+</sup>

<sup>+</sup>Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского Федеральный исследовательский центр "Казанский научный центр РАН", 420029 Казань, Россия

\*Казанский (Приволжский) федеральный университет, 420008 Казань, Россия

Поступила в редакцию 12 декабря 2022 г. После переработки 28 декабря 2022 г. Принята к публикации 28 декабря 2022 г.

При измерении зависимости интенсивности фотонного эха в образцах  $YLiF_4$  и  $LuLiF_4$  с примесными ионами эрбия  $Er^{3+}$  от ориентации, величины и направления изменения магнитного поля обнаружен эффект памяти – гистерезис. В образце записывается и запоминается на время не менее 6 ч при температуре 2 К, предыстория его нахождения в магнитном поле определенного направления и величины. Эффект критически зависит от ориентации оптической оси образцов относительно внешнего магнитного поля.

DOI: 10.31857/S1234567823040043, EDN: phzeea

1. Введение. Диэлектрические кристаллы с примесями редкоземельных ионов рассматриваются последние 20 лет в качестве перспективных кандидатов для создания устройств оптических квантовых процессоров (элементов памяти, повторителей, преобразователей информации между оптическим и микроволновым диапазонами частот) [1-3]. Ионы эрбия являются одной из наиболее часто изучаемых редкоземельных примесей, поскольку обладают резонансными переходами в привлекательной для передачи информации области частот. Реализованы различные оптические протоколы квантовой памяти и квантового процессинга на кристаллах с примесями эрбия [4-6]. Изучались спектры поглощения, люминесценции и измерялись времена жизни когерентности кристаллов с примесями эрбия [7-22]. Основным условием успешности работы квантовых процессоров является большое время жизни когерентности на участвующих резонансных оптических и магнитных переходах, поэтому измерение времени жизни когерентности методом наблюдения двух- или трехимпульсного эха является непременным этапом изучения таких кристаллов.

**2.** Экспериментальные результаты. В настоящей работе изучалась зависимость интенсивности фотонного эха ( $\Phi$ Э) в диэлектрических монокристалах LuLiF<sub>4</sub> и YLiF<sub>4</sub> с ионами эрбия разной

носительно оптических осей кристаллов) и знака изменения (увеличение-уменьшение) внешнего постоянного магнитного поля. Образцы имели форму прямоугольных параллелепипедов с размерами от 2.5 до 5.5 мм. Кристаллы были выращены в Казанском (Приволжском) федеральном университете методом Бриджмена-Стокбаргера с концентрацией ионов  $Er^{3+}$  от 0.0015 ат. % до 0.1 ат. %. Часть образцов была выращена в тиглях с молибденовыми нагревателями, часть - с графитовыми нагревателями. Большая часть исследованных образцов была с естественным содержанием эрбия, но были и изотопически чистые образцы  $^7{\rm LiYF_4}$ : $^{166}{\rm Er^{3+}}$ и  $^{7}\text{LiYF}_{4}$ : $^{167}\text{Er}^{3+}$ . Основные особенности приведенных ниже результатов наблюдались во всех исследованных образцах, кроме  $^{7}{\rm LiYF_4}$ : $^{167}{\rm Er^{3+}}$ . Обращенное двухимпульсное ФЭ наблюдалось при температуре 2 К на длине волны 653.05 нм для образцов  $YLiF_4:Er^{3+}$ , и 653.28 нм для  $LuLiF_4:Er^{3+}$  (переход  ${}^{4}\mathrm{I}_{15/2} \to {}^{4}\mathrm{F}_{9/2}$ ). Возбуждающие ФЭ лазерные импульсы длительностью  $\tau = 12\,\mathrm{Hc}$  генерировались перестраиваемым лазером на красителе оксазин 17. Задержки  $t_{12}$  между лазерными импульсами менялись в пределах  $33 \div 90$  нс. Угол между лазерными импульсами  $\angle(k1, k2) = 2^{\circ}$ . Первый лазерный импульс k1 направлялся перпендикулярно направлению постоянного магнитного поля H. Угол  $\angle(C, H)$  между осью C и внешним магнитным полем контролировал-

концентрации от напряженности, направления (от-

<sup>1)</sup>e-mail: shegedaam@gmail.com

ся по отраженному от граней образца импульсу k1 с погрешностью  $\pm~0.08^\circ$ .

Спектральная ширина лазерных импульсов 0.015 нм была намного больше неоднородной ширины резонансной линии эрбия в этих кристаллах. Надо учесть, что ионы Er<sup>3+</sup> в матрицах YLiF<sub>4</sub> и LuLiF<sub>4</sub> являются крамерсовыми ионами, поэтому нижние кристаллические уровни основного  ${}^{4}I_{15/2}(I)$ и возбужденного  ${}^4F_{9/2}(I)$  мультиплетов двукратно вырождены по спиновому числу. Для импульсов  $\pi$ -поляризации разрешены переходы без изменения знака спина, для импульсов  $\sigma$ -поляризации – с изменением. Вследствие большой разницы между дфакторами в основном и возбужденном состоянии в этих кристаллах [15] в магнитном поле порядка 1 кЭ расщепление резонансных уровней, особенно для импульсов  $\sigma$ -поляризации, превышает ширину спектра лазерного импульса. Поэтому при изменении величины H проводилась подстройка под частоту резонансного перехода по максимуму сигнала ФЭ.

Нами снималась зависимость I(H) интенсивности ФЭ от напряженности (до  $H_{\rm max} \sim 1.2\,{\rm k}$ Э) и направления постоянного магнитного поля при разных ориентациях осей образцов в магнитном поле. Величина H менялась с заданным шагом в программе LabView. В этой же программе записывались осциллограммы наблюдаемых сигналов. При частоте повторения лазерных импульсов  $12\,\Gamma$ ц и 64-кратном накоплении сигнала время последовательного изменения значения магнитного поля (порядка нескольких секунд) намного превышало характерные времена релаксации населенности и когерентности в атомной подсистеме Eг.

Введем обозначения  $\Delta_{\parallel}$  и  $\Delta_{\perp}$ , показывающие отклонения угла  $\measuredangle(C,H)$  от параллельного или перпендикулярного, соответственно. Тогда основные особенности в поведении  $\Phi \Theta$  в магнитном поле можно разделить на два случая:

- 1. Ось C кристалла параллельна или составляет небольшой угол с направлением внешнего магнитного поля ( $\Delta_{\parallel} < 5^{\circ}$ ). Первый лазерный импульс k1  $\perp$  H.
- 2. Ось C кристалла перпендикулярна (или почти перпендикулярна) направлению внешнего магнитного поля ( $\Delta_{\perp} < 5^{\circ}$ ). Первый лазерный импульс k1  $\parallel C$ .

В первом случае, если  $\Delta_{\parallel}=0$ , с увеличением магнитного поля от нуля до  $200\div300\, \Im$  в исследованных образцах происходит рост I(H), почти на порядок, а затем спад I(H), зависящий от времени задержки  $t_{12}$ . Такая колоколообразная зависимость наблюдалась ранее в [11]. Эта зависимость I(H) зеркально

симметрична относительно нулевого значения магнитного поля и повторяется независимо от того, в каком направлении меняется величина H в интервале  $+H_{\rm max} \leftrightarrow -H_{\rm max}.$ 

Если нет точного выполнения условия  $C \parallel H$ , т.е.,  $\Delta_{\parallel} \neq 0$ , поведение I(H) принципиально меняется. Зависимость  $I(H\uparrow)$ , полученная при увеличении напряженности поля от H = 0 до  $H_{\text{max}}$  (независимо от знака, т.е. полярности магнитного поля) не всегда повторяется при уменьшении поля  $(I(H\downarrow))$  от  $H_{\max}$  до 0, как это происходит при  $C \parallel H$ . Результат зависит от направления изменения магнитного поля, величины и знака  $\Delta_{\parallel}$  и предыстории нахождения образца в магнитном поле. Поэтому, чтобы все измерения начинались при одинаковых условиях, использовалась следующая экспериментальная последовательность. Устанавливалось максимальное значение магнитного поля  $H_{\rm max}$  (не играло роли какой полярности) и снималась зависимость I(H) при уменьшении H до 0 и последующем увеличении до  $H_{\mathrm{max}}$  противоположной полярности. Затем проводились измерения I(H) в обратном направлении изменения H. Результаты для образца  $LuLiF_4$ : $Er^{3+}$  (0.025 ат. %) при углах  $\angle(C, H) = \pm 2^{\circ}$  и задержке  $t_{12} = 60$  нс приведены на рис. 1, 2.

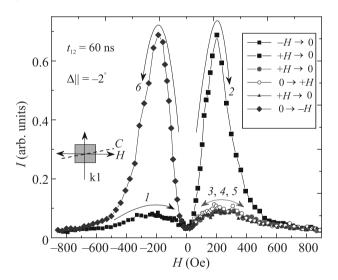


Рис. 1. (Цветной онлайн) Интенсивность ФЭ в LuLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> (0.025 ат.%) для импульсов  $\pi$ -поляризации. Угол  $\measuredangle(C,H)=-2^\circ$ . Видно, что  $I(H\downarrow)=I(H\uparrow)$  (кривые  $3,\ 4,\ 5$ ) при повторных измерениях в поле одной полярности, а при смене полярности магнитного поля происходит однократное (зеркальное относительно оси H=0) изменение  $I(H\uparrow)$  (кривые 2 и 6)

Видно, что каждый раз после смены полярности (прохождения точки H=0) зависимости  $I(H\uparrow)$  и

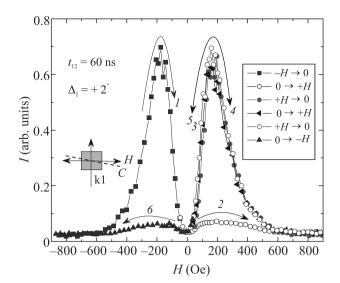


Рис. 2. (Цветной онлайн) Интенсивность ФЭ в LuLiF4:Er³+ (0.025 ат.%) для импульсов  $\pi$ -поляризации. Угол  $\measuredangle(C,H)=+2^\circ$ . Видно, что  $I(H\downarrow)=I(H\uparrow)$  (кривые  $3,\ 4,\ 5$ ) при повторных измерениях в поле одной полярности, а при смене полярности магнитного поля происходит однократное (зеркальное относительно оси H=0) изменение  $I(H\uparrow)$  (кривые 2 и 6)

 $I(H\downarrow)$  сильно отличаются, совпадают в точке H=0и напоминают петлю гистерезиса. Однако, если полярность магнитного поля не меняется, то все повторные измерения I(H) совпадают с зависимостью, полученной при уменьшении напряженности поля от  $\pm H_{\rm max}$  до 0 (см. кривые 3, 4, 5 на рис. 1, 2). Измененная зависимость при увеличении | Н | получается только один раз ("одноразовый гистерезис") после смены полярности H (кривые 2, 6 на рис. 1, 2). При этом всегда наблюдаются "зеркальные" (относительно оси H=0) зависимости I(H), по форме напоминающие "крылья бабочки". Изменение знака угла  $\angle(C, H)$  не приводит к зеркальному повторению гистерезиса. Наблюдается "инвертированный гистерезис", когда зависимости  $I(H\uparrow)$  и  $I(H\downarrow)$  меняются местами на рис. 1, 2. При этом знак угла  $\angle(C, H)$ определен в наших экспериментах условно, и не привязан к осям a и b образцов.

Во всех исследованных кристаллах (кроме образца с  $^{167}$ Er, где гистерезис проявляется слабо) и разных (ненулевых) углах  $\Delta_{\parallel}$  изменение поля в одном направлении (например, от  $-H_{\rm max}$  до  $+H_{\rm max}$ ), а потом наоборот, приводило к симметричной относительно оси H=0 гистерезисной зависимости I(H) в форме "крыльев бабочки", как на рис. 1, 2. Существование гистерезиса и отсутствие его в зависимости I(H), если полярность поля не меняется, показы-

вает, что в магнитном поле формируется перестраиваемая память.

Характер петли гистерезиса зависит от интервала между возбуждающими импульсами. На рисунке 3, демонстрируется заметное уменьшение отноше-

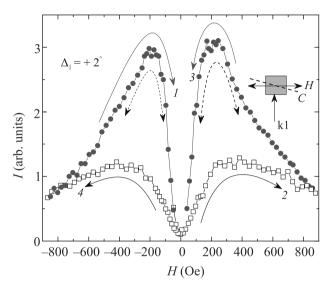


Рис. 3. (Цветной онлайн) Интенсивность  $\Phi \Theta$  в LuLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> (0.025 ат. %) для импульсов  $\pi$ -поляризации при задержке  $t_{12}=33$  нс. Угол  $\measuredangle(C,H)=+2^\circ$ . Из рисунка видно уменьшение контрастности гистерезиса по сравнению с рис. 2, где  $t_{12}=60$  нс

ния (контрастности)  $I(H\downarrow)$  к  $I(H\uparrow)$  на кривой гистерезиса при уменьшении интервала  $t_{12}$  до 33 нс с таким же значением угла  $\measuredangle(C,H)=+2^\circ$ , как и на рис. 2. На этом рисунке, и на всех последующих, черным квадратикам соответствует зависимость  $I(H\uparrow)$ , полученная при увеличении H по абсолютной величине после смены полярности магнитного поля, а красным кружочкам — зависимость  $I(H\downarrow)$  при уменьшении H.

Можно в общем случае описать эффект памяти соотношением:  $I(H\uparrow) \neq I(H\downarrow)$ . При  $\Delta_{\parallel} \neq 0$  отношение интенсивностей  $I(H\uparrow)$  и  $I(H\downarrow)$  возрастает с увеличением задержки  $t_{12}$ , и при некоторых значениях магнитного поля и  $\Delta_{\parallel}$  интенсивности  $I(H\uparrow)$  и  $I(H\downarrow)$  могут отличаться на порядок. Важно, что независимо от знака H и угла  $\angle(C,H)$ , все зависимости сходятся в точке H=0, т.е. I(H=0)= const. Эксперименты показали, что, хотя зависимости I(H) для лазерных импульсов  $\pi$  и  $\sigma$ -поляризаций отличаются, на появление "бабочки" это не влияет.

Качественно эффект памяти, т.е. несовпадение величин  $I(H\uparrow)$  и  $I(H\downarrow)$  наблюдался во всех образцах, но сама зависимость I(H) и проявление гистере-

зиса могли отличаться в разных образцах, особенно в образце с изотопом  $^{167}{\rm Er}.$ 

При повороте оси C образцов в вертикальной плоскости, перпендикулярной k1, с увеличением угла  $\angle(C,H)$  от  $15^\circ$  до  $85^\circ$ , I(H) быстро спадает с ростом H, а гистерезис не наблюдается.

Возникает вопрос, если образец запоминает свое нахождение в поле H определенной величины и полярности, допустим —  $H_{\rm max}$ , то при каком значении  $H_{\rm start}$  магнитного поля противоположной полярности +H начнется стирание этой памяти? Для этого надо посмотреть, начиная с какого значения +H будет возникать "бабочка". Результаты для образца  ${\rm YLiF_4:Er^{3+}}$  (0.05 ат. %) при  $t_{12}=60$  нс приведены на рис. 4. Перед измерениями вначале устанав-

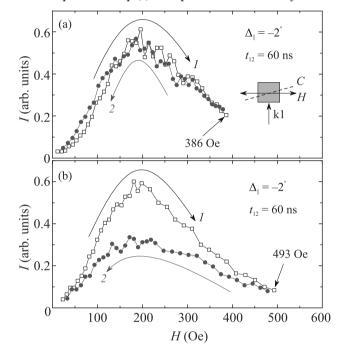


Рис. 4. (Цветной онлайн) Появление несовпадения зависимости I(H) при увеличении и уменьшении величины H в образце YLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> (0.05 ат. %). Угол  $\angle(C,H)==-2^\circ$ . В полях до 390 Э (а) зависимости  $I(H\uparrow)$  и  $I(H\downarrow)$  совпадают. При дальнейшем увеличении H (b) возникает заметное различие между  $I(H\uparrow)$  и  $I(H\downarrow)$ 

ливалось, а потом выключалось поле  $H=-900\, \Im$ . Очевидно, что полученное для этого образца значение поля  $H_{\rm start}\approx 400\, \Im$  зависит от угла  $\measuredangle(C,H)$  (при  $\Delta_{\parallel}=0$  гистерезиса нет), и не является универсальной величиной для всех образцов. Например, в образце YLiF4:  $^{166}{\rm Er}^{3+}$  (0.005 ат. %) с изотопом эрбия такая же величина  $H_{\rm start}\approx 400\, \Im$  была получена при  $\Delta_{\parallel}=3^{\circ}$ .

Что касается стирания "памяти" со временем, измерения показали, что после паузы в 2 ч, когда маг-

нитное поле было выключено и лазерные импульсы не подавались на образец YLiF<sub>4</sub>: ${\rm Er}^{3+}$  (0.1 ат. %), максимальная интенсивность ФЭ (кривая 3 на рис. 3) незначительно уменьшается при увеличении H от нуля до 900 Э, но восстанавливается при уменьшении H от 900 Э до H=0. К сожалению, наш криостат не может поддерживать температуру 2 К более 6 ч и это не позволяет детально изучить стирание "памяти" со временем.

На рисунке 4 показано, что "память" о нахождении образца в поле противоположной полярности начинает стираться при превышении некоего порогового значения  $H_{\rm start}$ . Из приведенных выше зависимостей I(H) легко установить, когда эта "память" будет окончательно стерта. Достаточно посмотреть на рис. 1–3, 5, 6 и определить при каких значениях H исчезает гистерезис. Видим, что в разных образцах и при разных задержках  $t_{12}$  это происходит в области  $H_{\rm end} \sim 600 \div 800$  Э. Если бы память была обусловлена внутренней намагниченностью образца, то, по аналогии с ферромагнетиками, это позволило бы оценить величину коэрцитивной силы.

Теперь обратимся к геометрии эксперимента, когда ось  $C \perp H$ , а лазерные импульсы направлены вдоль оси C (k1  $\parallel$  C) (puc. 5).

В этом случае зависимость I(H) эха от магнитного поля приобретает другой вид, а проявление памяти еще более критичным образом зависит теперь от ортогональности C и H. Уже при  $\Delta_{\perp} \approx 0.16^{\circ}$  появляется заметный гистерезис, а при  $\Delta_{\perp} > \pm 1^{\circ}$  в исследуемых образцах при  $H > 100\, 9$  практически зануляется нижняя ветвь гистерезиса. На рисунках 5b-е приведены графики только для одной полярности H, поскольку эти графики зеркально симметричны относительно H=0. При увеличении  $\Delta_{\perp}$  до  $\pm 2^{\circ}$ гистерезис сохраняется, но интенсивность ФЭ падает, максимум сигнала сдвигается в область 200 Э и при  $H > 400\, 9$  эхо не наблюдается. В случае, когда ось  $C \perp H$ , в образцах  $YLiF_4:Er^{3+}$ , в отличие от образцов LuLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup>, наблюдается локальный минимум I(H) при H=0.

В случае когда  $C \perp H$  при задержке  $t_{12} = 33$  нс в ряде образцов наблюдаются сильные биения интенсивности  $\Phi$ Э в области  $600 \div 1000$ Э с периодом  $T \simeq 60$ Э (рис. 6). Эти биения сохраняются и при наличии гистерезиса в случае небольшого отклонения угла  $\measuredangle(C,H)$  от перпендикулярного (рис. 6b, c). В некоторых образцах в этой области магнитных полей наблюдаются не четкие биения, как на рис. 6, а хаотичные скачки интенсивности  $\Phi$ Э. При увеличении задержки  $t_{12}$  до 87 нс область биений сдвигается в сторону значений H < 200Э.

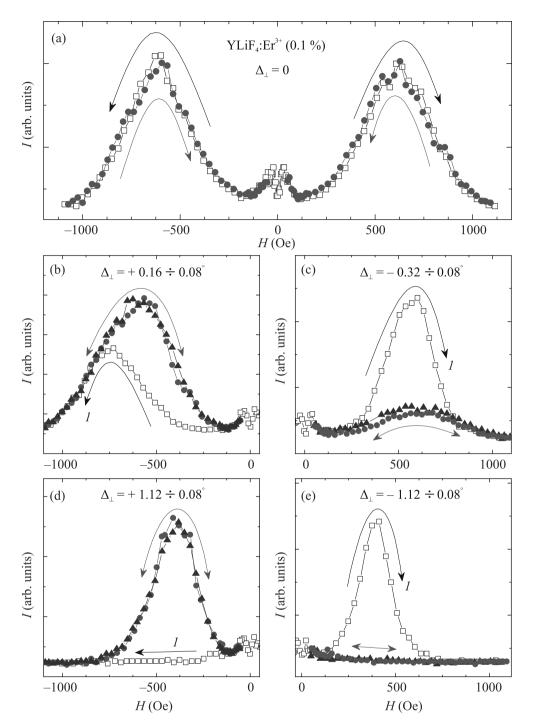


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость I(H) в образце YLiF<sub>4</sub>: ${\rm Er}^{3+}$  (0.1 ат. %) при задержке  $t_{12}=33$  нс и разных значениях  $\Delta_{\perp}$ . Рисунки 5b-с зеркально симметричны относительно H=0

В работе [6] в образце  $Y_2SiO_5$ : $Er^{3+}$  на переходе  $^4I_{15/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$  наблюдались осцилляции интенсивности  $\Phi$ Э в зависимости от  $t_{12}$ . В магнитном поле 670 Э при задержках  $t_{12}$  в области  $20 \div 30$  мкс на осцилляциях возникали биения  $\Phi$ Э. Картина этих биений очень похожа на биения, которые наблюдаем мы в другой кристаллической решетке при за-

держках  $t_{12}$ , отличающихся на 3 порядка. Скорей всего, природа биений в нашем случае и в [6] различна.

Важно отметить, что в некоторых новых образцах  $YLiF_4$ : $Er^{3+}$ , в которых ранее не проводились измерения в магнитных полях, полное проявление гистерезиса в фотонном эхе возникало не сразу, а через

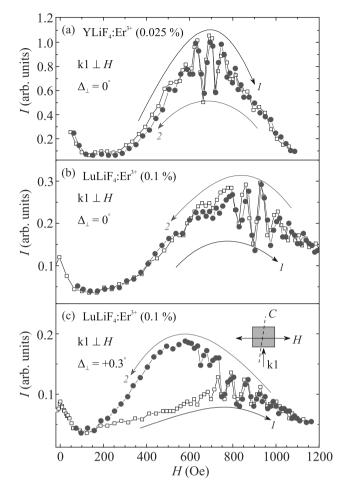


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость I(H) в образцах: (a) — YLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> (0.025 ат. %), (b), (c) — LuLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> (0.1 ат. %) при задержке  $t_{12}=33$  нс и разных значениях  $\Delta_{\perp}$ . В области  $600\div 1000$  Э, независимо от величины  $\Delta_{\perp}$ , наблюдаются биения с периодом  $T\sim 60$  Э

время порядка десятков минут, характерное для конкретного образца.

3. Обсуждение. Начиная с пионерской работы по ФЭ в рубине [23], наблюдается сильная зависимость времени жизни оптической когерентности от напряженности внешнего магнитного поля в диэлектрических кристаллах с парамагнитными примесями. Рассматриваются два качественно отличающихся механизма зависимости интенсивности фотонного (и электронного спинового) эха от магнитного поля: 1) интерференция компонент поляризации с близкими, изменяющимися с магнитным полем частотами [24–27], и 2) изменение скорости спектральной диффузии с изменением магнитного поля [23, 26–28].

Первый (интерференционный) механизм относится к обратимой релаксации и обычно проявляется в виде модуляции огибающей эха в зависи-

мости от  $t_{12}$  при измерениях в постоянном магнитном поле. С ростом числа интерферирующих компонент и увеличением напряженности магнитного поля (разности частот компонент) этот механизм обычно приводит к уменьшению интенсивности ФЭ. Спектральная диффузия определяет необратимую релаксацию когерентности для двухимпульсного эха, а ее зависимость от напряженности магнитного поля носит сложный характер, определяемый относительной величиной магнитных взаимодействий примесного иона с окружающими атомами кристалла. Одним из известных проявлений этого механизма считается "замораживание" флип-флоп переходов на магнитных ядрах окружения ионов примеси ("ядре"), приводящее к увеличению интенсивности ФЭ и неэкспоненциальному спаду сигналов ФЭ с ростом  $t_{12}$  [7, 26].

Необычное поведение кристаллов двойных фторидов с редкоземельными примесями в магнитном поле было замечено еще в работе [29], где при вращении образца вокруг оси C менялся спектр ЭПР. Измерение I(H) в YLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> и LuLiF<sub>4</sub>:Er<sup>3+</sup> ранее проводилось в работах [7,11–14,17]. Результаты интерпретировались на основе представления о быстрой переориентации магнитных моментов ионов эрбия и ядер ближайшего окружения во время действия резонансных оптических импульсов и "замораживании" спектральной диффузии. В [11–14] при изучении зависимости I(H) полярность магнитного поля не менялась, поэтому гистерезис там не мог проявиться.

Существование гистерезиса при изменении магнитного и электрических полей обычно связывается с формированием ферромагнитных или электрических поляризационных доменов. Насколько нам известно, о первом наблюдении гистерезиса и магнитной памяти в кристалле с примесями редких земель (эрбий в иттрий алюминиевом гранате) было сообщено в работе [30]. Наблюдаемый там гистерезис в сдвиге резонансной частоты ЭПР ионов эрбия в зависимости от знака изменения магнитного поля интерпретировался, как существование магнитного фазового перехода при температуре между 445 и 191 мК и возникновение при этом слабого ферромагнетизма в системе примесных ионов эрбия. В настоящей работе, гистерезис наблюдался при температуре 2 К. значительно превышающей указанную температуру фазового перехода. Ранее сообщалось, что поляризационные домены могут индуцироваться в диэлектрических кристаллах при воздействии интенсивного лазерного излучения [31, 32]. Для проверки возможности такого механизма формирования памяти нами были проведены контрольные эксперименты. Магнитное поле изменялось от нуля до максимального значения при выключенных лазерных импульсах, а затем поле уменьшалось до нуля с включенными лазерными импульсами. Наблюдаемая при этом петля гистерезиса оказалась точно такой же, как и в случае, когда лазерные импульсы не выключались. В нашем случае эффект памяти слабо зависит от концентрации эрбия. Поэтому мы полагаем, что память обусловлена не образованием ферромагнитных или поляризационных доменов, а связана с локальным изменением свойств кристаллического окружения примесного иона.

Кристалл YLiF<sub>4</sub> имеет тетрагональную структуру и принадлежит к пространственной группе симметрии  $I4_{1/a}$  ( $C_{4h}^6$ ), для которой отсутствует инверсионная симметрия. Поэтому в кристалле возможен магнитоэлектрический эффект, заключающийся в том, что внешнее магнитное поле Н индуцирует электрическую поляризацию Р [33]. Эта поляризация, возникающая под действием внешнего магнитного поля благодаря статическому магнитоэлектрическому эффекту, является результатом изменения пространственного положения ионов в кристаллической решетке, либо изменения пространственной ориентации электронных оболочек [33]. Эта перестройка сопровождается изменением термодинамического потенциала кристалла. При увеличении магнитного поля до какого-то критического значения возможно появление локального минимума термодинамического потенциала, приводящего к созданию метастабильного состояния, остающегося стабильным при уменьшении магнитного поля. Вследствие обратного магнитоэлектрического эффекта локальная электрическая поляризация этого состояния создает в образце внутреннее локальное магнитное поле. Поэтому это состояние имеет комбинированный магнитоэлектрический характер. При изменении направления магнитного поля локальное магнитное поле этого состояния сохраняет свою устойчивость в магнитных полях, не превышающих критического значения. В критическом поле другого знака происходит изменение знака электрической поляризации и направления магнитного поля. При этом характер невзаимности оптических свойств инвертируется. В соответствии с рис. 4 величина критического поля для данной геометрии эксперимента находится в пределах от 386 до 493 Э. Наличие такого локального магнитного поля приводит к гистерезису оптических свойств. Невзаимность оптических свойств кристаллов во внешнем магнитном поле (зависимость оптических свойств от направления волнового вектора и направления магнитного поля) при резонансном взаимодействии оптического излучения с оптически активными центрами можно объяснить интерференцией электрических и магнитных дипольных переходов.

Такая интерференция возможна благодаря динамическому магнитоэлектрическому эффекту, при котором на каждом из примесных ионов эрбия поля лазерных импульсов создают осциллирующие на резонансной частоте намагниченность и поляризацию [34–38]. В момент  $2t_{12}$  обе компоненты участвуют в формировании сигнала ФЭ. Регистрируемый сигнал интенсивности излученного ансамблем ионов эрбия света в момент эха представляет собой сфазированную сумму вкладов каждого иона, пропорциональную квадрату модуля суммы электрической и магнитной поляризаций иона:

$$I_{ge} \sim |\langle g|\hat{H}_E + \hat{H}_M|e\rangle|^2,$$
 (1)

где  $|g\rangle, |e\rangle$  – основное и возбужденное состояние резонансного перехода,  $\hat{H_E}$  и  $\hat{H_M}$  – операторы электрического и магнитного дипольных переходов соответственно. Если одновременно разрешены электрический и магнитный дипольные переходы, при наличии магнитоэлектрической связи в вероятности взаимодействия появляется слагаемое, пропорциональное произведению компонент магнитного и электрического полей. Знак этого члена зависит от фазовых соотношений между электрической и магнитной компонентами. При изменении направления волнового вектора оптического импульса к фаза электрической поляризации изменяется на 180°, а при изменении направления магнитного поля **H** на 180° изменяется фаза магнитной компоненты. Это приводит к невзаимности оптических свойств. Величина отклика резонансной системы на оптическое возбуждение будет зависеть от направления волнового вектора и от направления магнитного поля. Математически вклад в вероятность перехода такого интерференционного члена можно описать выражением вида

$$I_{\rm int} \sim \cos(\angle \mathbf{k} \, \mathbf{H}).$$
 (2)

В кристаллической структуре  $Y(Lu)LiF_4$  имеется одна винтовая ось симметрии четвертого порядка, направленная вдоль кристаллографической оси C. Для объяснения изложенных в статье экспериментальных результатов нам надо предположить, что поляризация магнитоэлектрического метастабильного состояния направлена вдоль этой оси. Обозначим локальное магнитное поле  $\mathbf{H}_{\mathrm{int}}$  и рассмотрим описанные выше геометрии эксперимента.

1. **С**  $\parallel$  **H**  $\perp$  **k**. (рис. 1–4). При  $\Delta_{\parallel} = 0$  в соответствии с (2) интерференционный член равен нулю. Поэтому магнитоэлектрический эффект не проявляется, и сигнал эха не зависит от направления внешнего магнитного поля. При  $\Delta_{\parallel} \neq 0$  появляется параллельная  ${f k}$  компонента  ${f H}_{\rm int},$  и в вероятности перехода появляется ненулевой интерференционный член. При изменении знака  $\Delta_{\parallel}$  знак параллельной компоненты  $\mathbf{H}_{\mathrm{int}}$ изменяется. Это приводит к изменению знака интерференционного члена и к различному характеру интерференции, зависящему от направления поворота образца. При изменении направления магнитного поля также изменяется знак параллельной компоненты  $\mathbf{H}_{\mathrm{int}}$ , что тоже приводит к изменению знака интерференционного члена. Поэтому характер интерференции изменяется и при изменении направления магнитного поля. При отклонении оси С в вертикальной плоскости магнитное поле  $\mathbf{H}_{\mathrm{int}}$  изменяет свое пространственное направление, однако, это поле всегда остается перпендикулярным к. Поэтому интерференционный член равен нулю, и сигнал эха не зависит от направления внешнего магнитного поля и знака  $\Delta_{\parallel}$ .

2. **k** || **C**  $\perp$  **H** (рис. 5–6). При  $\Delta_{\perp} = 0$  внешнее магнитное поле направлено перпендикулярно C и не может создать поляризацию, направленную вдоль C. Поэтому магнитооптический эффект не проявляется. При  $\Delta_{\perp} \neq 0$  появляется параллельная оси  ${f C}$  компонента Н, и создается магнитополяризационное состояние с небольшим отклонением направления **H**<sub>int</sub>. от направления k. Это приводит к невзаимности эха относительно направления магнитного поля и знака  $\Delta_{\perp}$ . В нашей экспериментальной установке [39] второй импульс представляет стоячую волну, образованную вследствие интерференции прошедшего и отраженного от зеркала лучей. При распространении лучей вдоль магнитного поля  $\mathbf{H}_{\mathrm{int}}$  плоскость их поляризации вращается вследствие эффекта Фарадея. Поэтому условия интерференции падающего и отраженного лучей непостоянны по толщине образца. Внешнее магнитное поле может влиять на угол поворота поляризации и на характер интерференции прошедшего и отраженного лучей. Это, в свою очередь, может быть причиной появления осцилляций интенсивности эха на рис. 6.

Вышеприведенные рассуждения представляют попытку объяснить полученные необычные для фотонного эха результаты на единой физической основе. Их не следует рассматривать как единственно возможную и окончательную интерпретацию полученных экспериментальных результатов.

**4.** Выводы. В диэлектрических кристаллах YLiF<sub>4</sub> и LuLiF<sub>4</sub> с широким набором концентраций

парамагнитной примеси эрбия при температуре 2 K наблюдается гистерезис в зависимости интенсивности фотонного эха от магнитного поля.

Существование памяти — гистерезиса критически связано с ориентацией образцов в магнитном поле. Гистерезис наблюдается, если нет точного выполнения условий:  $C \parallel H$  или  $C \perp H$ .

В исследованных образцах при температуре  $2 \, {\rm K}$  на длительное время (часы) записывается и запоминается предыстория их нахождения в магнитном поле определенной ориентации, величины и полярности. Для стирания и перезаписывания "памяти" о нахождении образцов в магнитном поле необходимо превысить некоторое пороговое значение поля  $H_{\rm end}$  противоположного направления.

Предполагается, что зависимость интенсивности фотонного эха от направления магнитного поля и его ориентации относительно кристаллографических осей обязана интерференции электрических и магнитных дипольных переходов в условиях существования в образце магнитоэлектрического эффекта.

Авторы благодарны доктору Н. Н. Гарифьянову за измерения, подтвердившие полное отсутствие каких-либо магнитных включений в образце  $LuLiF_4$ : $Er^{3+}$ .

Исследования сотрудниками КФТИ проводились в рамках выполнения госзадания ФИЦ КазНЦ РАН.

- C. W. Thiel, T. Bottger, and R. L. Cone, J. Lumin. 131, 353 (2011).
- A. Kinos, D. Hunger, R. Kolesov, K. Molmer, H. de Riedmatten, P. Goldner, A. Tallaire, L. Morvan, P. Berger, S. Welinski, Kh. Karrai, L. Rippe, S. Kroll, and A. Walther, ArXiv:2103.15743.
- N. Lauk, N. Sinclair, Sh. Barzanjeh, J. Covey, M. Saffman, M. Spiropulu, and Ch. Simon, Quantum Sci. Technol. 5, 020501 (2020).
- X. Fernandez-Gonzalvo, Y.-H. Chen, Ch. Yin, S. Rogge, and J. Longdell, Phys. Rev. B 92, 062313 (2015).
- M. Rancic, M. P. Hedges, R. L. Ahlefeldt, S. Rogge, and J. Longdell, Nature Phys. 14, 50 (2018).
- B. Car, L. Veissier, A. Louchet-Chauvet, J.-L. Le Gouet, and T. Chaneliere, Phys. Rev. Lett. 120, 197401 (2018).
- J. Ganem, Y.P. Wang, D. Boye, R. Meltzer, W. Yen, and R. MacFarlane, Phys. Rev. Lett. 66, 695 (1991).
- R. Wannemacher, R. M. MacFarlane, Y. P. Wang,
  D. Sox, D. Boyeand, and R. Meltzer, J. Lumin. 48–49,
  309 (1991).
- R. M. MacFarlane, A. Cassanho, and R. S. Meltzer, Phys. Rev. Lett. 69, 542 (1992).
- Y. P. Wang, D. P. Landau, R. S. Meltzer, and R. Macfarlane, J. Opt. Soc. Am. B 9, 946 (1992).

- 11. V. N. Lisin, V. V. Samartsev, A. M. Shegeda, V. Zuikov, and S. Korableva, Laser Phys. Lett. 3, 423 (2006).
- V. N. Lisin, A. M. Shegeda, and K. I. Gerasimov, JETP Lett. 95, 61 (2012).
- V. N. Lisin and A. M. Shegeda, JETP Lett. 96, 328 (2012).
- V. N. Lisin, A. M. Shegeda, and V. V. Samartsev, Laser Phys. Lett. 12, 025701 (2015).
- R. Marino, I. Lorgere, O. Guillot-Noel, H. Vezin, A. Toncelli, M. Tonelli, J.-L. Le Gouet, and P. Goldner, J. Lumin. 169, 478 (2016).
- K. I. Gerasimov, M. M. Minnegaliev, B. Z. Malkin, E. I. Baibekov, and S. A. Moiseev, Phys. Rev. B 94, 054429 (2016).
- M. M. Minnegaliev, E. I. Baibekov, K. I. Gerasimov, S. A. Moiseev, M. A. Smirnov, and R. V. Urmancheev, Quantum Electron. 47, 778 (2017).
- Y.H. Chen, X. Fernandez-Gonzalvo, S.P. Horvath, J.V. Rakonjac, and J.J. Longdell, Phys. Rev. B 97, 024419 (2018).
- M. M. Minnegaliev, I. V. Dyakonov, K. I. Gerasimov, A. A. Kalinkin, S.P. Kulik, S. A. Moiseev, M. Yu. Saygin, and R. V. Urmancheev, Laser Phys. Lett. 15, 045207 (2018).
- M. N. Popova, S. A. Klimin, S. A. Moiseev, K. I. Gerasimov, M. M. Minnegaliev, E. I. Baibekov, G. S. Shakurov, M. Bettinelli, and M. C. Chou, Phys. Rev. B 99, 235151 (2019).
- B. Car, J.-L. Le Gouet, and T. Chaneliere, Phys. Rev. B 102, 115119 (2020).
- M. Rancic, M. Le Dantec, S. Lin, S. Bertaina, T. Chaneliere, D. Serrano, P. Goldner, R.B. Liu, E. Flurin, D. Esteve, D. Vion, and P. Bertet, ArXiv:2203.15012 [quant-ph].

- I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann, Phys. Rev. 141, 391 (1966).
- D. Grischkowsky and S. R. Hartmann, Phys. Rev. B 2, 60 (1970).
- 25. W. B. Mims, Phys. Rev. B 5, 2409 (1972).
- 26. L.Q. Lambert, Phys. Rev. B 7, 1834 (1973).
- 27. К. М. Салихов, А. Г. Семенов, Ю. Д. Цветков, Электронное спиновое эхо и его применение, Наука, Новосибирск (1976), гл. 5.
- 28. P. Hu and S. R. Hartmann, Phys. Rev. B 9, 1 (1974).
- 29. С. Л. Кораблева, ФТТ **20**, 3701 (1978).
- 30. W. G. Farr, M. Goryachev, J-M. le Floch, P. Bushev, and M. Tobar, Appl. Phys. Lett. **107**, 122401 (2015).
- P. F. Liao, A. M. Glass, and L. M. Humphrey, Phys. Rev. B 22, 2276 (1980).
- 32. С. А. Басун, А. А. Каплянский, С. П. Феофилов, ЖЭТФ **87**, 2047 (1984).
- 33. А. П. Пятаков, А. К. Звездин, УФН 182, 593 (2012).
- J. H. Jung, M. Matsubara, T. Arima, J. P. He, Y. Kaneko, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. 93, 037403 (2004).
- S. Toyoda, N. Abe, S. Kimura, Y. Matsuda, T. Nomura, A. Ikeda, S. Takeyama, and T. Arima, Phys. Rev. Lett. 115, 267207 (2015).
- 36. S. Toyoda, N. Abe, and T. Arima, Phys. Rev. B **93**, 201109(R) (2016).
- 37. А.Р. Нурмухаметов, М.В. Еремин, ЖЭТФ **162**, 390 (2022).
- 38. К.В. Васин, М.В. Еремин, А.Р. Нурмухаметов, Письма в ЖЭТФ **115**, 420 (2022).
- V. N. Lisin, V. V. Samartsev, A. M. Shegeda,
  V. A. Zuikov, and Yu. K. Rosencwage, Laser Physics.
  17(2), 87 (2007).