



**ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ**  
**ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ ΚΑΙ ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ**

**ΔΙΑΤΜΗΜΑΤΙΚΟ ΜΕΤΑΠΤΥΧΙΑΚΟ ΠΡΟΓΡΑΜΜΑ ΜΕΤΑΠΤΥΧΙΑΚΩΝ ΣΠΟΥΔΩΝ**  
**«ΜΙΚΡΟΣΥΣΤΗΜΑΤΑ ΚΑΙ ΝΑΝΟΔΙΑΤΑΞΕΙΣ»**



**ΔΙΠΛΩΜΑΤΙΚΗ ΜΕΤΑΠΤΥΧΙΑΚΗ ΕΡΓΑΣΙΑ**

**ΒΑΡΟΥΤΗ ΕΙΡΗΝΗ**

**«ΑΤΟΜΙΣΤΙΚΗ ΠΡΟΣΟΜΟΙΩΣΗ ΘΕΡΜΙΚΗΣ ΑΠΟΜΑΓΝΗΤΙΣΗΣ**  
**ΜΟΝΙΜΩΝ ΜΑΓΝΗΤΩΝ ΜΕ ΧΡΗΣΗ fs LASER»**

**ΕΠΙΒΛΕΠΩΝ:**

[ΕΥΑΓΓΕΛΟΣ ΧΡΙΣΤΟΦΟΡΟΥ, ΚΑΘΗΓΗΤΗΣ, ΣΧΟΛΗ ΗΛΕΚΤΡΟΛΟΓΩΝ ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ ΚΑΙ  
ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ ΥΠΟΛΟΓΙΣΤΩΝ ΕΜΠ]

**ΤΡΙΜΕΛΗΣ ΕΠΙΤΡΟΠΗ**

[ΕΥΑΓΓΕΛΟΣ ΧΡΙΣΤΟΦΟΡΟΥ, ΚΑΘΗΓΗΤΗΣ, ΣΧΟΛΗ ΗΛΕΚΤΡΟΛΟΓΩΝ ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ ΚΑΙ  
ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ ΥΠΟΛΟΓΙΣΤΩΝ ΕΜΠ]

[ΙΩΑΝΝΗΣ ΡΑΠΤΗΣ, ΚΑΘΗΓΗΤΗΣ, ΣΧΟΛΗ ΕΦΑΡΜΟΣΜΕΝΩΝ ΜΑΘΗΜΑΤΙΚΩΝ ΚΑΙ  
ΦΥΣΙΚΩΝ ΕΠΙΣΤΗΜΩΝ ΕΜΠ]

[ΑΦΡΟΔΙΤΗ ΚΤΕΝΑ, ΚΑΘΗΓΗΤΡΙΑ, ΓΕΝΙΚΟ ΤΜΗΜΑ ΕΚΠΑ]

[ΑΘΗΝΑ, ΦΕΒΡΟΥΑΡΙΟΣ/2020]

## ΠΡΟΛΟΓΟΣ - ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Με την ολοκλήρωση της παρούσας μεταπτυχιακής εργασίας, θα ήθελα να εκφράσω τις θερμές μου ευχαριστίες σε όλους όσους μου προσέφεραν, απλόχερα, την πολύτιμη βοήθεια και υποστήριξή τους:

- ✓ Τα μέλη της τριμελούς επιτροπής κ. Ευάγγελο Χριστοφόρου, κα Αφροδίτη Κτενά και κ.Ιωάννη Ράπτη για τις υποδείξεις και συμβουλές τους, καθώς και για την προθυμία τους να μοιραστούν γνώσεις
- ✓ Τον Δ/ντη του προγράμματος, κ. Ιωάννη Ράπτη, για την αμέριστη κατανόησή του
- ✓ Τον Ιωάννη Κροντίρη για την πολύτιμη βοήθειά του σχετικά με την εγκατάσταση και λειτουργία του λογισμικού VAMPIRE
- ✓ Το σύζυγό μου Αιμίλιο, τη μητέρα μου Μαρία και την αδερφή μου Χριστίνα για την καθημερινή βοήθεια και υποστήριξη που μου παρείχαν. Χωρίς τη δική τους θετική ενέργεια, αυτή η εργασία δεν θα είχε περατωθεί!

.....  
Ειρήνη Βαρούτη

© (2020) Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο. All rights Reserved. Απαγορεύεται η αντιγραφή, αποθήκευση και διανομή της παρούσας εργασίας, εξ ολοκλήρου ή τμήματος αυτής, για εμπορικό σκοπό. Επιτρέπεται η ανατύπωση, αποθήκευση και διανομή για σκοπό μη κερδοσκοπικό, εκπαιδευτικής ή ερευνητικής φύσης, υπό την προϋπόθεση να αναφέρεται η πηγή προέλευσης και να διατηρείται το παρόν μήνυμα. Ερωτήματα που αφορούν τη χρήση της εργασίας για κερδοσκοπικό σκοπό πρέπει να απευθύνονται προς το συγγραφέα. Οι απόψεις και τα συμπεράσματα που περιέχονται σ' αυτό το έγγραφο εκφράζουν το συγγραφέα και δεν πρέπει να ερμηνευτεί ότι αντιπροσωπεύουν τις επίσημες θέσεις του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου.

## Περιεχόμενα

1	Κίνητρο και γενική επισκόπηση .....	1
1.1	Υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης και αποθήκευση δεδομένων .....	1
2	Ατομιστική μοντελοποίηση μαγνητικών υλικών .....	3
2.1	Εισαγωγή.....	4
2.2	Ατομιστική δυναμική των σπιν.....	6
2.3	Προέλευση των ατομικών μαγνητικών ροπών .....	7
2.4	Γενικευμένο μοντέλο Χαμιλτονιανής Heisenberg .....	9
2.4.1	Αλληλεπίδραση ανταλλαγής.....	9
2.4.2	Μαγνητική ανιστροπία.....	11
2.4.3	Όρος Zeeman.....	12
2.4.4	Αλληλεπιδράσεις διπόλου-διπόλου.....	12
2.5	Εξίσωση της κίνησης.....	14
2.5.1	Δυναμική των μαγνητικών ροπών: Εξίσωση Landau-Lifshitz-Gilbert.....	14
2.6	Πεπερασμένη θερμοκρασία: Εξίσωση Landau- Lifshitz-Bloch .....	16
2.7	Εξίσωση Landau-Lifshitz Langevin.....	17
2.8	Μέθοδοι Ολοκλήρωσης.....	19
2.8.1	Μέθοδος Heun.....	19
2.9	Μέθοδος Monte Carlo .....	20
3	Εισαγωγή στην υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης .....	23
3.1	Υπερταχείες μαγνητικές διαδικασίες επαγόμενες από παλμούς laser: από την αρχική αλληλεπίδραση σπιν-φωτονίου ως την έναρξη της μαγνητικής μεταβολής .....	26
3.1.1	Χρονική κλίμακα και μηχανισμοί.....	26
3.1.2	Σύμφωνη αλληλεπίδραση σπιν-φωτονίων.....	28
3.1.3	Θερμικές επιδράσεις της διέγερσης με laser .....	29
3.1.4	Χωρική κλίμακα και μηχανισμοί .....	35
3.1.5	Πλήρης αντιστροφή του σπιν και μεταφορά γωνιακής στροφορμής στα μέταλλα.....	36
3.2	Αλληλεπίδραση μεταξύ φωτονίων και σπιν - Μαγνητοοπτική και Οπτομαγνητισμός.....	38
3.3	Πειραματικές τεχνικές που χρησιμοποιούνται κατά τη μελέτη της υπερταχείας δυναμικής των σπιν	41
3.3.1	Μέθοδος pump and probe .....	41
3.3.2	Οπτικός παλμός ανίχνευσης.....	42
3.3.3	Ανίχνευση υπεριώδους και με ηλεκτρόνια πολωμένου σπιν.....	44
3.3.4	Ανίχνευση άπω υπέρυθρου (Far infrared probe).....	44

3.3.5	Ανίχνευση με ακτίνες X.....	44
4	Μοντελοποίηση της υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης με χρήση laser .....	46
4.1	Χαρακτηριστικά του λογισμικού.....	46
4.2	Αρχεία εισαγωγής και αρχεία αποτελεσμάτων .....	47
4.2.1	Αρχείο εισαγωγής παραμέτρων υλικών.....	47
5	Αποτελέσματα Προσομοιώσεων .....	50
5.1	Σύγκριση απόκρισης μαγνήτισης Fe, Co, Ni & Gd.....	51
5.2	Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Co .....	52
5.2.1	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση.....	52
5.2.2	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων .....	54
5.2.3	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων .....	56
5.2.4	Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Co .....	58
5.3	Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Fe .....	59
5.3.1	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση.....	59
5.3.2	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων .....	61
5.3.3	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων .....	63
5.3.4	Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Fe.....	65
5.4	Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Ni.....	66
5.4.1	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση.....	66
5.4.2	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων .....	68
5.4.3	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων .....	70
5.4.4	Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Ni.....	72
5.5	Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Gd.....	73
5.5.1	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση.....	73
5.5.2	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων .....	75
5.5.3	Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων .....	77
5.5.4	Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Gd.....	79
5.6	Συγκριτική ανάλυση αποτελεσμάτων όλων των στοιχείων.....	80
5.6.1	Απομαγνήτιση των τριών στοιχείων μετάπτωσης Co, Fe, Ni.....	80
5.6.2	Απομαγνήτιση του Gd.....	82
6	Συμπεράσματα και προτάσεις για μελλοντική εργασία.....	83
1	Βιβλιογραφία .....	84

## Περίληψη

Στην παρούσα εργασία γίνεται προσπάθεια συνδυασμού δυο πολύ ενδιαφερόντων, ερευνητικών πεδίων του σύγχρονου μαγνητισμού: το πρώτο αφορά τη χρήση ατομιστικών μοντέλων ως εργαλείο μελέτης της δυναμικής της μαγνήτισης, ενώ το δεύτερο σχετίζεται με την υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης, επαγόμενη από τη χρήση παλμών laser. Ο απώτερος στόχος είναι η διερεύνηση των δυναμικών ιδιοτήτων των μαγνητικών υλικών, όπως διαμορφώνονται σε κλίμακες χρόνου μικρότερες από ps και σε κλίμακα χώρου μερικών nm. Η ατομιστική μοντελοποίηση των μαγνητικών υλικών παρέχει λεπτομέρειες για τις φυσικές ιδιότητες που ελέγχουν τη μακροσκοπική συμπεριφορά τους και επιτρέπει την προσομοίωση σύνθετων φαινομένων όπως είναι αυτό της υπερταχείας απομαγνήτισης.

Η εργασία απαρτίζεται από δύο κύρια μέρη. Το πρώτο αποτελεί το θεωρητικό μέρος, όπου παρουσιάζονται τόσο το υπόβαθρο και οι βασικές αρχές των ατομιστικών μοντέλων και της δυναμικής των spin (Κεφάλαιο 2), όσο και του υπερταχέος ελέγχου σε υλικά με μαγνητική τάξη (Κεφάλαιο 3). Επίσης, γίνεται μια σύντομη αναφορά στις κύριες πειραματικές τεχνικές, με τις οποίες επιτυγχάνεται διέγερση και ανίχνευση των μεταβολών της μαγνήτισης στα υλικά. Στο δεύτερο μέρος περιγράφεται η μεθοδολογία που ακολουθήθηκε για τη διεξαγωγή των προσομοιώσεων και παρουσιάζονται τα αποτελέσματα αυτών (Κεφάλαιο 4 & 5). Για τις προσομοιώσεις επελέγησαν 3 μέταλλα μετάπτωσης (Fe, Ni και Co) και μία σπάνια γαία (Gd), ενώ μελετήθηκε η επίδραση των παραμέτρων της ενέργειας και της διάρκειας του παλμού στη μαγνήτιση των προαναφερθέντων υλικών, καθώς και στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και των φωνονίων. Τέλος, δίνονται τα συμπεράσματα και κατευθύνσεις για μελλοντική εργασία.

### Λέξεις Κλειδιά

Ατομιστική προσομοίωση, υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης, παλμοί laser

## Abstract

The current thesis is an attempt of combining two quite interesting research fields of modern magnetism. The first one is about using atomistic modelling as an essential tool of studying magnetization dynamics, while the second one is related to laser induced ultrafast magnetization dynamics. The ultimate goal is the investigation of the dynamic properties of magnetic materials in sub-picosecond time scale and in spatial scale of a few nanometers. Atomistic modelling of magnetic materials provide details about the physical properties that govern the macroscopic behavior and allows the simulation of complex phenomena such as the laser induced ultrafast demagnetization.

The thesis is comprised of two main parts. The first one constitutes the theoretical part, where the background and the main principles of atomistic modelling (Chapter 2) and ultrafast manipulation of materials with magnetic order (Chapter 3) are presented. A brief description of the main experimental techniques that are used for the excitation and detection of changes in magnetization is, also, included in Chapter 3. The second part contains the methodology that was followed for the simulations and their results (Chapters 4&5). For the simulation 3 transition metals were chosen (Fe, Co, and Ni) and one rare earth metal (Gd), while the effect of the parameters of the energy and time pulse on the normalized magnetization, electron temperature and phonon temperature was investigated. Finally, the final conclusions and directions for future research are given.

## Keywords

Atomistic simulation, ultrafast magnetization dynamics, laser pulses



---

*“All things are difficult before they are easy”*

Dr. Thomas Fuller

*Η παρούσα εργασία αφιερώνεται στη μικρή Ιωάννα!*





## Θεωρητικό Μέρος

## 1 Κίνητρο και γενική επισκόπηση

### 1.1 Υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης και αποθήκευση δεδομένων

Οι δυναμικές μεταβολές της μαγνήτισης λαμβάνουν χώρα σε μια ευρύτατη κλίμακα χρόνου, η οποία εκτείνεται από την πόλωση του μαγνητικού πεδίου της Γης, που συμβαίνει σε κλίμακα 1 δισεκατομμυρίου ετών (1 δισεκατομμύριο έτη= $3 \cdot 10^{16}$  sec), μέχρι την αλληλεπίδραση ανταλλαγής μεταξύ των σπιν, που συμβαίνει σε κλίμακα χρόνου φεμτοδευτερολέπτων (1 φεμτοδευτερολέπτο= $10^{-15}$ sec). Παρόλο που και οι δύο παραπάνω διαδικασίες χαρακτηρίζονται από κλίμακες χρόνους που είναι πέρα από την ανθρώπινη αντίληψη, η επιστήμη έχει επιτύχει τη μέτρηση τέτοιων ακραίων μορφών **δυναμικής της μαγνήτισης**. Ένα παράδειγμα δυναμικής της μαγνήτισης είναι οι σημερινές μαγνητικές διατάξεις, στις οποίες η μαγνήτιση αντιστρέφεται με χρήση μαγνητικών πεδίων του  $1T=10^4 Oe$ , με χαρακτηριστική κλίμακα χρόνου τα νανοδευτερόλεπτα, ενώ αποτελεί πρόκληση η δημιουργία ενός παλμού μαγνητικού πεδίου με διάρκεια κάτω από τα 100 πικοδευτερόλεπτα. Σε αυτό το όριο των 100 πικοδευτερολέπτων, η διέγερση ταχύτερης μαγνητικής απόκρισης απαιτεί τη διέγερση σύζευξης σπιν – τροχιάς. Η αλληλεπίδραση σπιν-τροχιάς είναι υπεύθυνη για τη σύζευξη μεταξύ της τροχιακής στροφορμής **L** και του σπιν **S**. Η σύζευξη LS μετριάζει την αλληλεπίδραση σπιν-πλέγματος, δηλαδή τη μεταφορά στροφορμής μεταξύ τους. Κατά συνέπεια, ευνοώντας τη μεταφορά στροφορμής από το σπιν στους βαθμούς ελευθερίας της τροχιάς, θα μπορούσε να επιτευχθεί μια ταχύτερη απώλεια μαγνήτισης. Δυστυχώς, η κλίμακα χρόνου της σύζευξης μεταξύ σπιν και τροχιάς έχει εύρος από δεκάδες πικοδευτερόλεπτα μέχρι εκατοντάδες πικοδευτερόλεπτα.

Οι κλίμακες χρόνου και τα μέσα με τα οποία μπορεί να ελεγχθεί η μαγνήτιση είναι μεγάλης σημασίας τόσο για τις πιθανές τεχνολογικές εφαρμογές, όσο και από την οπτική γωνία της φυσικής. Όσον αφορά την τεχνολογική σημασία, η διαρκώς αυξανόμενη ταχύτητα αποθήκευσης δεδομένων σε μαγνητικά μέσα απαιτεί νέες, ταχύτερες μεθόδους χειρισμού της μαγνήτισης στα στερεά, έτσι ώστε να μπορεί να συμβαδίσει με τους ρυθμούς των σύγχρονων επεξεργαστών. Από την πλευρά της φυσικής, η δυναμική της μαγνήτισης σε κλίμακα χρόνο φεμτοδευτερολέπτων βρίσκεται στην καρδιά της σχετικιστικής κβαντομηχανικής, από τη στιγμή που οι αρχές της μαγνήτισης στα στερεά περιλαμβάνουν ηλεκτρόνια, το σπιν τους, την τροχιακή στροφορμή και τις Coulomb αλληλεπιδράσεις σε συνδυασμό με την αρχή του Pauli.

Ο συμβατικός τρόπος καταγραφής ενός μαγνητικού bit είναι να τεθεί το διάνυσμα της μαγνήτισης των μεμονωμένων μαγνητικών ροπών είτε πάνω, είτε κάτω με χρήση μαγνητικού πεδίου. Κατά συνέπεια, η καταγραφή ενός bit αντιστοιχεί στην αντιστροφή της μαγνήτισης. Το ερώτημα που εγείρεται αφορά τη μέγιστη ταχύτητα με την οποία μπορεί να επιτευχθεί μια τέτοια περιστροφή. Είναι εμφανές ότι για να επιτευχθεί ταχεία μαγνήτιση, θα πρέπει να χρησιμοποιηθεί ένα βραχύ και ισχυρό ερέθισμα. Όμως, αν το ερέθισμα είναι πιο σύντομο από τους χρόνους θερμικής χαλάρωσης, τότε μία τέτοια διέγερση θα έχει ως αποτέλεσμα τα σπιν ενός υλικού με μαγνητική τάξη να βρεθούν σε μια κατάσταση εκτός θερμοδυναμικής ισορροπίας, όπου οι υπερταχείς κινήσεις των σπιν και τα μαγνητικά φαινόμενα που θα εμφανιστούν είναι ελάχιστα κατανοητά. Πράγματι αν ένα υλικό βρίσκεται εκτός θερμοδυναμικής ισορροπίας, η συμβατική θερμοδυναμική προσέγγιση για την περιγραφή των μαγνητικών φαινομένων είναι μη εφαρμόσιμη, καθώς μπορεί να περιγράψει επαρκώς εκείνα τα φαινόμενα που συμβαίνουν σε

κλίμακες χρόνου μεγαλύτερες από τους χρόνους θερμικής χαλάρωσης (σημειώνεται ότι ο χρόνος θερμοποίησης μιας μαγνητικής διέγερσης αναμένεται να είναι της τάξης των 100 ps).

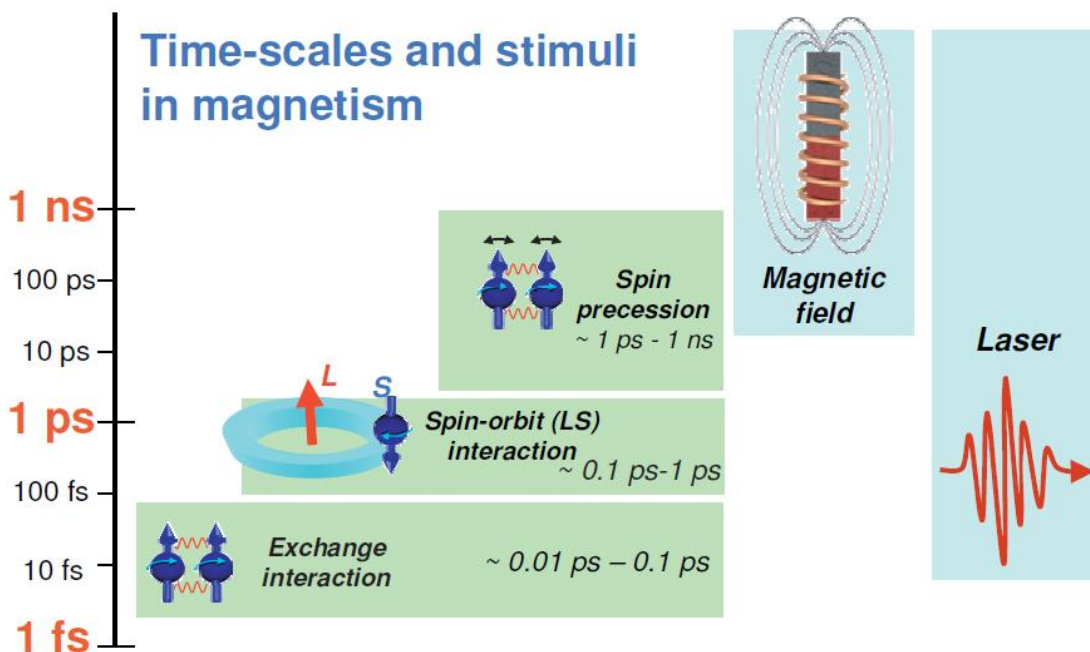
Η διερεύνηση αυτών των φαινομένων έγκειται στην εύρεση ενός κατάλληλου, υπερταχέος ερεθίσματος για τη δυναμική της μαγνήτισης. Ο ταχύτερος, συμβατικός τρόπος για να γίνει αυτό είναι μέσω επιβολής ενός ισχυρού μαγνητικού πεδίου, κάθετο στον άξονα μαγνήτισης και έτσι η αντιστροφή θα επιτευχθεί μέσω μεταπτωτικής κίνησης. Καθώς η συχνότητα της μετάπτωσης είναι ανάλογη του επιβαλλόμενου πεδίου, θα ανέμενε κανείς ότι η μεταβολή θα ήταν απείρως ταχεία και θα περιοριζόταν μόνο από τον παλμό του μαγνητικού πεδίου. Παρόλα αυτά, τα αποτελέσματα των πειραμάτων στην αντιστροφή της μαγνήτισης με εφαρμογή ισχυρών και βραχέων (Stanford Linear Accelerator SLAC), πεδίων, έδειξαν ότι υπάρχει περιορισμός στην ταχύτητα μεταβολή, καθώς η μαγνήτιση γίνεται μη-ντετερμινιστική αν ο παλμός είναι μικρότερος από 2 πικοδευτερόλεπτα (1). Κατά συνέπεια, το μαγνητικό πεδίο δε μπορεί να χρησιμοποιηθεί για υπερταχείς (THz) μεταβολές της μαγνήτισης, κάνοντας, έτσι το ενδιαφέρον για εύρεση νέων εναλλακτικών μεθόδων για τη διέγερση των σπιν και αντιστροφή της μαγνήτισης σε κλίμακα μικρότερη των πικοδευτερολέπτων, ακόμα πιο έντονο.

Οι οπτικοί παλμοί θα μπορούσαν να είναι μια εναλλακτική της χρήσης του μαγνητικού πεδίου για την αντιστροφή της μαγνήτισης (**Εικόνα 1-1**). Οι εμπορικές πηγές laser μπορούν να παράγουν παλμούς laser με διάρκεια μικρότερη των 100 fs, ενώ σε εργαστηριακά πειράματα έχει επιτευχθεί και διάρκεια μικρότερη του 1 fs. Αποτελέσματα πρόσφατων πειραμάτων έχουν δείξει ότι η διέγερση ενός υλικού με μαγνητική τάξη με παλμό laser διάρκειας  $10^{-13}$  s ή και μικρότερης, μπορεί να έχει ως αποτέλεσμα την απομαγνήτισή του, τον αναπροσανατολισμό των σπιν ή ακόμα και τροποποίηση της μαγνητικής δομής σε κλίμακες χρόνου της τάξης του 1 ps ή και μικρότερης (2). Παρόλα αυτά, σε όλα τα παραπάνω πειράματα, ο παρατηρούμενος μεταβολές ήταν θερμικής προέλευσης, καθώς ήταν αποτέλεσμα της οπτικής απορρόφησης που ακολουθεί την απότομη αύξηση της θερμοκρασίας. Αυτή θερμική προέλευσης της διέγερσης των σπιν περιορίζει σημαντικά τις πιθανές εφαρμογές, καθώς η ταχύτητα επανάληψης περιορίζεται από το χρόνο ψύξης (3). Επιπλέον, εξαιτίας αυτού του μηχανισμού θερμικής διέγερσης, η διάχυση θερμότητας περιορίζει την πυκνότητα εγγραφής. Η λύση σε αυτά τα δύο ζητήματα θα μπορούσε να είναι ένας μη θερμικός έλεγχος της μαγνήτισης και το ερώτημα που εγείρεται είναι το αν το φως μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τον έλεγχο της μαγνήτισης.

Ο πυρήνας της μαγνήτισης είναι η στροφορμή. Ένα κυκλικά πολωμένο φωτόνιο μεταφέρει στροφορμή. Αν ήταν δυνατή η χρήση της στροφορμής για να υπάρξει άμεση επίδραση στα σπιν των ηλεκτρονίων, αυτό θα είχε ως αποτέλεσμα τον υπερταχύ και μη θερμικό έλεγχο της μαγνήτισης, καθώς τα αριστερόστροφα και δεξιόστροφα κυκλικά πολωμένα κύματα φωτός μπορούν να επηρεάσουν τα σπιν όπως τα μαγνητικά πεδία. Έχει προταθεί ότι η μεταφορά ενέργειας από το φως στο μαγνητικό σύστημα λαμβάνει χώρα μέσω της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman. Με χρήση αυτού του οπτικού-μαγνητικού φαινομένου μπορεί κανείς να διεγείρει επιλεκτικά διαφορετικές καταστάσεις μαγνητικού συντονισμού, να πραγματοποιήσει έλεγχο των μαγνόνιων, να ενεργοποιήσει μεταπτώσεις μεταξύ των μαγνητικών φάσεων και να αντιστρέψει τα σπιν σε κλίμακα χρόνου μικρότερη από ps.

Από τα παραπάνω γίνεται εμφανές ότι η μελέτη των μαγνητικών φαινομένων που λαμβάνουν χώρα σε υπερταχεία κλίμακα χρόνου έχει προσελκύσει το ενδιαφέρον πολλών ερευνητών, με στόχο την αποσαφήνιση των θεμελιωδών μηχανισμών και τον έλεγχο των μαγνητικών ιδιοτήτων των υλικών σε

κλίμακα χρόνου φεμτοδευτερολέπτων. Παρόλα αυτά, ακόμα και σε σιδηρομαγνητικά υλικά όπως το Ni, δεν είναι πλήρης η κατανόηση των στοιχειωδών μηχανισμών που οδηγούν στη μακροσκοπική απομαγνήτιση σε κλίμακα χρόνου φεμτοδευτερολέπτων. Η πρόκληση έγκειται στην πολυπλοκότητα της παράλληλης και δυναμικής αντιμετώπισης φωτονίων, ηλεκτρονίων, φωνονίων και σπιν σε διάφορες κλίμακες χρόνου και μήκους.



**Εικόνα 1-1:** Κλίμακες χρόνου στο μαγνητισμό. Σύγκριση μαγνητικού πεδίου και διέγερση με παλμούς laser. (4).

## 2 Ατομιστική μοντελοποίηση μαγνητικών υλικών

Η ανάγκη για τη λεπτομερή ατομιστική περιγραφή των μαγνητικών υλικών πηγάζει από το αυξανόμενο ενδιαφέρον για προηγμένα μαγνητικά υλικά, τα οποία προορίζονται για πλήθος εφαρμογών με πιο σημαντική την αποθήκευση δεδομένων. Παρά το γεγονός ότι στο παρελθόν έχουν γίνει προσπάθειες από διάφορες ομάδες προς ανάπτυξη μεθοδολογικών και υπολογιστικών σχημάτων για την πραγματοποίηση ατομιστικών προσομοιώσεων δυναμικής των σπιν, υπάρχει περιορισμός στις προσομοιώσεις πάνω σε ρεαλιστικά συστήματα υλικών. Η εξήγηση για το περιορισμένο πλήθος εργασιών σε προσομοιώσεις ρεαλιστικών συστημάτων έγκειται στην υπολογιστική πολυπλοκότητα που συνοδεύουν τέτοιου είδους συστήματα. Ο περιορισμός αυτός σταδιακά ξεπερνιέται από τη αυξανόμενη διαθεσιμότητα υπολογιστικής δύναμης. Η πρόσφατη ανάπτυξη πειραματικών μεθόδων για την μελέτη της δυναμικής των σπιν σε υπερταχεία κλίμακα χρόνου συνάδει με την παράλληλη αύξηση του ενδιαφέροντος τη πραγματοποίηση προσομοιώσεων προς σύγκριση.

Οι μικρομαγνητικές προσομοιώσεις παρέχουν ένα πλαίσιο μελέτης και κατανόησης της δυναμικής της μαγνήτισης στην κλίμακα των μικρομέτρων και με την βελτίωση των υπολογιστικών δυνατοτήτων έχουν εξελιχθεί σε ένα πεδίο υψηλής τεχνολογικής σημασίας. Όμως, η προσέγγιση των μικρομαγνητικών

προσομοιώσεων υστερούν εξαιτίας ενός πλήθους περιορισμών. Οι εν λόγω προσεγγίσεις βασίζονται στη φαινομενολογική εξίσωση Landau-Lifshitz-Gilbert, η οποία αντιμετωπίζει τη μαγνήτιση ως ένα συνεχές διανυσματικό πεδίο, στην κλίμακα των μικρομέτρων, όπου οι ενεργειακές απώλειες του συστήματος περιγράφονται σε όρους μίας απλής ad hoc παραμέτρου απόσβεσης (damping parameter). Η παραπάνω βάση περιορίζει την εφαρμοσιμότητα και την ακρίβεια της προσέγγισης, καθιστώντας τη, έτσι, ανεπαρκή για την περιγραφή των διαφόρων φαινομένων δυναμικής της μαγνήτισης. Αντ' αυτού, θα ήταν προτιμητέο η ατομιστική προσέγγιση, που βασίζεται στην κβαντική περιγραφή των στερεών, να συμπληρώνεται από μια προσέγγιση η οποία θα απεικονίζει αποτελεσματικά τη σύνδεση μεταξύ της ηλεκτρονιακής δομής του υλικού και της δυναμικής της μαγνήτισης. Μια τέτοια ατομιστική προσέγγιση θα ήταν σε θέση να αποδώσει μια πιο ακριβή περιγραφή της δυναμικής της μαγνήτισης. Θα παρείχε έναν τρόπο υπολογισμού της δυναμικής της μαγνήτισης που θα ξεκινούσε από πρώτες αρχές και θα έδινε τη δυνατότητα μελέτης της δυναμικής των υλικών με πολύπλοκη χημική σύνθεση και σύνθεση μαγνητική τάξη (5).

## 2.1 Εισαγωγή

Η μοντελοποίηση των μαγνητικών υλικών μπορεί να πραγματοποιηθεί με μια πληθώρα μοντέλων, καθώς η συμπεριφορά τους διαφέρει ανάλογα με τις κλίμακες χρόνου και μεγέθους. Η μοντελοποίηση σε ατομιστική κλίμακα παρουσιάζει, τελευταία, μεγάλο ενδιαφέρον, και αποτελεί μια πολύ ενεργή περιοχή έρευνα για μελέτη των φαινομένων σε πεπερασμένη θερμοκρασία και σε κλίμακα χρόνου μικρότερη από τα πικοδευτερόλεπτα. Η έρευνα σε αυτή την περιοχή έχει ως στόχο αφενός να απαντηθούν θεμελιώδη ερωτήματα σχετικά με τις διεργασίες και τα φαινόμενα που λαμβάνουν χώρα στις πολύ μικρές κλίμακες χρόνου και, αφετέρου να προαχθεί η εξέλιξη τεχνολογικών εφαρμογών, όπως η μαγνητική αποθήκευση δεδομένων.

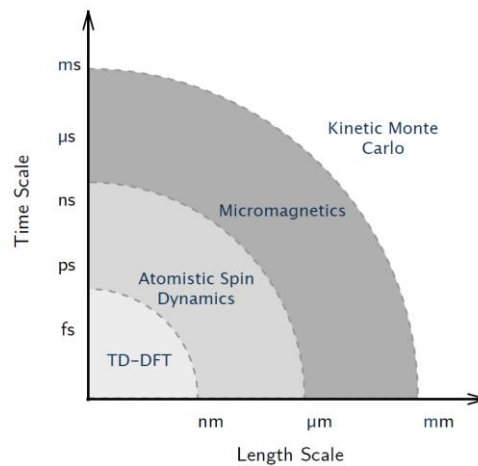
Σε μικρότερες κλίμακες μήκους, στην περιοχή των μερικών  $\text{\AA}$ , η μαγνήτιση μπορεί να μοντελοποιηθεί στο πλαίσιο της κβαντομηχανικής με θεωρία συναρτησιακής πυκνότητας (DFT) ή με σκέδαση Korringa-Kohn-Rostoker (KKR). Αυτές οι τεχνικές επιτρέπουν τον προσδιορισμό της μαγνητικής συμπεριφοράς των υλικών απευθείας από την κυματοσυνάρτηση των ηλεκτρονίων και είναι χρήσιμες για την κατανόηση της προέλευσης του μαγνητισμού και στον υπολογισμό μαγνητικών ιδιοτήτων, όπως η ενέργεια ανταλλαγής και οι ενέργειες ανισοτροπίας. Το όριο αυτών των τεχνικών πρώτων αρχών έγκειται στο γεγονός ότι μπορούν να εφαρμοστούν μόνο σε περιοδικές, μοναδιαίες κυψελίδες ή σε πεπερασμένου μεγέθους συλλογές ατόμων. Επιπλέον, δυναμικά φαινόμενα και φαινόμενα πεπερασμένων θερμοκρασιών δεν μπορούν εύκολα να συμπεριληφθούν σε τέτοιους φορμαλισμούς και, κυρίως, όταν πρόκειται να μελετηθούν καταστάσεις εκτός ισορροπίας.

Εκτός από τις προσεγγίσεις πρώτων αρχών, υπάρχουν τα μοντέλα σε ατομιστική κλίμακα, όπου οι αποστάσεις είναι στην κλίμακα των νανομέτρων. Εδώ συμπεριλαμβάνονται μοντέλα, όπως το μοντέλο Hubbard, το μοντέλο Ising και το μοντέλο Heisenberg. Σε αυτή την κλίμακα μήκους λαμβάνονται υπ' όψιν διακριτές ατομικές θέσεις και οι ενεργητικές θεωρήσεις της ροπής που σχετίζεται με την κάθε ατομική θέση. Εξαιτίας της απλοποιημένης Χαμιλτονιανής που χρησιμοποιείται σε αυτά τα μοντέλα, είναι εφικτός ο υπολογισμός της στατιστικής συμπεριφοράς μεγάλων αριθμών ροπών. Υπάρχουν, επίσης, τεχνικές που επιτρέπουν τη συμπεριληψη θερμοικών φαινομένων σε αυτά τα μοντέλα και, σε κάποιες περιπτώσεις, μπορεί να γραφτεί η εξίσωση κίνησης για την ροπή. Το στατιστικό πλήθος πολλών

ατομικών θέσεων επιτρέπει τον υπολογισμό των θερμοδυναμικών μεταβλητών των μακροσπιν και, κατά συνέπεια, τη μοντελοποίηση των μεταβάσεων των μαγνητικών φάσεων.

Οι μεγαλύτερες κλίμακες μήκους κάνουν χρήση συνεχούς προσέγγισης και, ουσιαστικά, με επίλυση των εξισώσεων του Maxwell, ώστε να προσδιορισθεί η μαγνητική κατάσταση η οποία είναι εξαρτώμενη από τη γεωμετρία του υλικού. Αυτή προσέγγιση είναι γνωστή ως μικρομαγνητισμός και μπορεί να εφαρμοσθεί για κλίμακες μήκους από μερικές δεκάδες νανομέτρων ως και μικρόμετρα. Ο περιοριστικός παράγοντας σε αυτή την περίπτωση είναι ότι η προσέγγιση μεγάλου μήκους κύματος δεν επιτρέπει τη μοντελοποίηση των φαινομένων που λαμβάνουν χώρα σε υψηλές θερμοκρασίες. Ομοίως, δυναμικά φαινόμενα εκτός ισορροπίας δεν μπορούν να αναπαραχθούν σε μικρές κλίμακες μήκους και χρόνου. Αυτοί οι περιορισμοί ξεπερνούνται με μικρομαγνητική μοντελοποίηση, η οποία είναι, επίσης, ενεργό πεδίο έρευνας. Προσεγγίσεις, όπως η εξίσωση Landau-Lifshitz-Bloch έχει δείξει ότι είναι ακριβής για πεπερασμένες θερμοκρασίες και σε καταστάσεις εκτός ισορροπίας αν και γίνεται μοντελοποίηση σε υλικά με διαστάσεις αρκετά μεγαλύτερες από τις ατομικές. Στην ίδια κλίμακα μήκους (μικρομαγνητισμού) υπάρχουν και άλλες τεχνικές που επιτρέπουν τη μοντελοποίηση της μακροπρόθεσμης συμπεριφοράς. Η κινητική Monte-Carlo μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την εκτίμηση της πιθανότητας για τη μακροσκοπική μαγνήτιση ενός σωματιδίου που κινείται μεταξύ ενεργειακών ελαχίστων, σε πολύ μεγάλες κλίμακες χρόνου και σε πεπερασμένες θερμοκρασίες. Αν και δεν πρόκειται για πραγματικό, δυναμικό φορμαλισμό, επιτρέπει την προσέγγιση καταστάσεων σε μεγάλη κλίμακα χρόνου, που δεν μπορούν να εκτιμηθούν με τη χρήση άλλων τεχνικών.

Για τη μελέτη των μαγνητικών υλικών που έχουν διεγερθεί με παλμούς laser η ατομιστική δυναμική των σπιν είναι η πλέον κατάλληλη, καθώς μπορούν να μελετηθούν καταστάσεις υψηλών θερμοκρασιών και εκτός ισορροπίας. Στις εργασίες των Schellekens και Koormans αποδεικνύεται ότι αυτή η προσέγγιση δικαιολογείται και ως προς το θεωρητικό υπόβαθρο (6). Στην εργασία τους γίνεται σύγκριση μεταξύ αυτής της προσέγγισης και της προσέγγισης μοντέλου ζωνών και φαίνεται ότι η ατομιστική δυναμική είναι η κύρια συνεισφορά στην απομαγνήτιση.



**Εικόνα 2-1:** Κλίμακες χρόνου και μηκών κατά τη μοντελοποίηση των μαγνητικών υλικών. Η κάθε περιοχή μπορεί να προσεγγισθεί με διαφορετική τεχνική μοντελοποίησης (7).

## 2.2 Ατομιστική δυναμική των σπιν

Σήμερα, η ατομιστική προσομοίωση των μαγνητικών υλικών έχει εξελιχθεί σε ένα απαραίτητο εργαλείο για την κατανόηση των σύνθετων διαδικασιών που ελέγχουν τη σύνθετη συμπεριφορά των μαγνητικών νανοϋλικών. Μια σημαντική ιδιότητα των ατομιστικών μοντέλων σπιν είναι η γεφύρωση του κενού μεταξύ των *ab initio* υπολογισμών της ηλεκτρονιακής δομής και του μικρομαγνητισμού. Ένα τέτοιο μοντέλο δίνει τη δυνατότητα υπολογισμού παραμέτρων για της μεγαλύτερης κλίμακας προσομοιώσεις μικρομαγνητισμού, όπως οι ανισοτροπίες και οι σταθερές ανταλλαγής.

Τα μικρομαγνητικά μοντέλα χρησιμοποιούν είτε πεπερασμένες διαφορές, είτε πεπερασμένα στοιχεία. Η θεωρητική βάση του μικρομαγνητισμού είναι ότι τα ατομικά δίπολα μπορούν να προσεγγιστούν ως ένα συνεχές διανυσματικό πεδίο, όπου εξαιτίας της ενέργειας αλληλεπίδρασης, τα ατομικά δίπολα σε ένα μικρού μεγέθους, πεπερασμένο όγκο μπορούν να θεωρηθούν ως πλήρως ευθυγραμμισμένα. Ο μικρομαγνητισμός έχει αποδειχθεί ότι αποτελεί ένα πολύ αποτελεσματικό εργαλείο κατανόησης ενός μεγάλου εύρους σύνθετων μαγνητικών φαινομένων, αλλά εξαιτίας του ταχύ ρυθμού της τεχνολογικής ανάπτυξης των μαγνητικών υλικών, η συνεχής προσέγγιση δεν είναι εφαρμόσιμη σε πολλές εφαρμογές υψηλού ενδιαφέροντος. Ο λόγος της μη εφαρμογής της συνεχούς προσέγγισης κατά τη μελέτη ρεαλιστικών τεχνολογικών εφαρμογών, έγκειται στη χωρική μεταβολή της μαγνήτισης σε διαστάσεις μικρότερες από νανο, οι οποίες προκαλούνται από τις υψηλές θερμοκρασίες, την τάξη σε επίπεδο ατόμου (αντισιδηρομαγνητικά και σιδηριμαγνητικά υλικά) καθώς και από τις επιφανειακές και διεπιφανειακές, ατομικές επιδράσεις. Για να αντιμετωπιστούν αυτά τα προβλήματα απαιτείται φορμαλισμός, ο οποίος θα λαμβάνει υπ' όψιν του τη λεπτομερή ατομική δομή, έτσι ώστε να είναι δυνατό να εκφραστεί η επίδραση στην μακροσκοπική συμπεριφορά ενός νανοσωματιδίου, κόκκου, ή πλήρους διάταξης.

Κάποια, αλλά όχι όλα, από αυτά τα προβλήματα μπορούν να αντιμετωπιστούν επαρκώς με νέας γενιάς μικρομαγνητικές προσεγγίσεις, χρησιμοποιώντας την εξίσωση Landau-Lifshitz-Bloch, η οποία βασίζεται στην αντιμετώπιση της σύζευξης ενός μακροσπιν με ένα λουτρό θερμότητας, επιτρέποντας, έτσι, τη μελέτη διεργασιών υψηλών θερμοκρασιών, υπερταχείας απομαγνήτισης και αντιστροφής. Παρόλα αυτά, οι πραγματικές μεταβολές ατομικής κλίμακας της μαγνήτισης απαιτούν ατομιστική προσέγγιση.

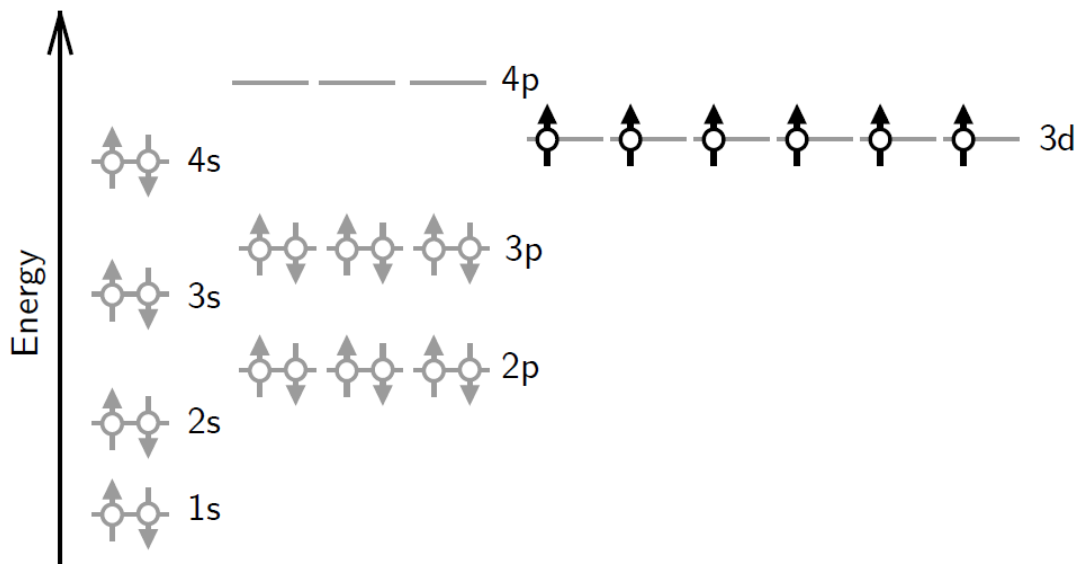
Η φυσική βάση των ατομιστικών μοντέλων σπιν είναι ο εντοπισμός των ασύζευκτων ηλεκτρονίων σε ατομικές θέσεις, οδηγώντας στην ενεργή, τοπική, ατομιστική μαγνητική ροπή. Ο βαθμός εντοπισμού των ηλεκτρονίων έχει, ιστορικά, υπάρξει ένα ζήτημα υπό αμφισβήτηση στα 3d μέταλλα, εξαιτίας του μαγνητισμού που προέρχονται από τα εξωτερικά ηλεκτρόνια, τα οποία είναι χαλαρά συνδεδεμένα με τα άτομα. *Ab initio* υπολογισμού της ηλεκτρονιακής πυκνότητας δείχνουν ότι στην πραγματικότητα, ακόμα και σε σιδηρομαγνητικά υλικά με περιοδεύοντα ηλεκτρόνια (itinerant), η πόλωση του σπιν είναι καλώς εντοπισμένη στις ατομικές θέσεις.

Τα μαγνητικά συστήματα είναι κβαντομηχανικής φύσης, δεδομένου ότι τα επίπεδα ενέργειας των ηλεκτρονίων είναι κβαντισμένα, η ενέργεια ανταλλαγής είναι ένα κβαντομηχανικό αποτέλεσμα και άλαλες σημαντικές επιδράσεις, όπως η μαγνητοκρυσταλλική ανισοτροπία προέρχεται από σχετιστικές αλληλεπιδράσεις των ηλεκτρονιακών τροχιακών με το πλέγμα. Πέρα από αυτές τις ιδιότητες στο ηλεκτρονιακό επίπεδο, οι ιδιότητες των μαγνητικών υλικών επηρεάζονται ισχυρά από τις θερμοκίς

επιδράσεις, οι οποίες είναι δύσκολο να ενσωματωθούν στις τυπικές προσεγγίσεις DFT. Κατά συνέπεια, τα μοντέλα των μαγνητικών υλικών θα πρέπει να συνδυάζουν τις κβαντομηχανικές ιδιότητες με το θερμοδυναμικό φορμαλισμό. Το απλούστερο μοντέλου μαγνητισμού που χρησιμοποιεί αυτή τη προσέγγιση είναι το μοντέλο Ising, το οποίο έχει περιορισμένη εφαρμοσιμότητα για πραγματικά υλικά.

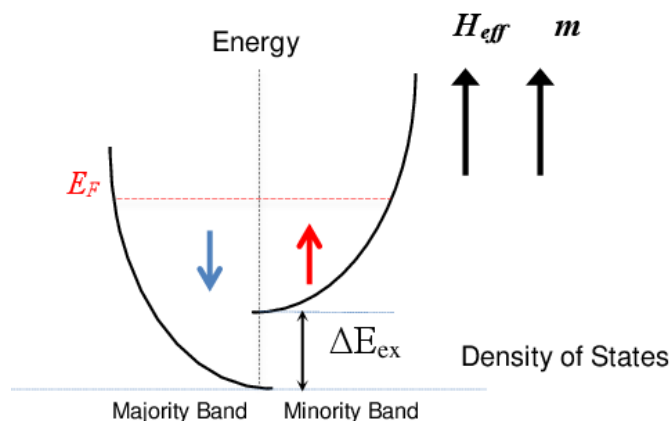
### 2.3 Προέλευση των ατομικών μαγνητικών ροπών

Οι ατομιστικές μαγνητικές ροπές προέρχονται από δύο πηγές: την τροχιακή κίνηση των ηλεκτρονίων γύρω από τους πυρήνες των ατόμων και από το ενδογενές σπιν των ηλεκτρονίων. Η τροχιακή συνεισφορά στη ροπή προκύπτει από την κίνηση φορτίου γύρω από τον πυρήνα. Ένας τέτοιος βρόχος ρεύματος επάγει μαγνητική ροπή, η οποία στη στερεά κατάσταση και, κυρίως, στα μεταλλικά συστήματα είναι αμελητέα. Ο απεντοπισμός των ηλεκτρονίων και οι ισχυρές ηλεκτροστατικές αλληλεπιδράσεις με το κρυσταλλικό πεδίο έχουν ως αποτέλεσμα τη σημαντική μείωση της τροχιακής συνεισφοράς και είναι γνωστό ως εξουδετέρωση (quenching). Η πλειοψηφία της παρατηρούμενης μαγνητικής ροπής στα συμπαγή υλικά, είναι αποτέλεσμα του ενδογενούς σπιν των ηλεκτρονίων. Στα υλικά που είναι μονωτές οι ατομιστικές ροπές σπιν δημιουργούνται όταν υπάρχουν επιπλέον ηλεκτρόνια με σπιν πάνω ή με σπιν κάτω (spin up or down), εξαιτίας της αρχής του Pauli. Αυτή η επίδραση είναι μεγαλύτερη στα 3d και 4f εξαιτίας του μεγαλύτερου αριθμού καταστάσεων που είναι διαθέσιμες στα εξωτερικά, μερικώς πληρωμένα τροχιακά. **Εικόνα 2-2.**



**Εικόνα 2-2:** Μοντέλο εντοπισμένης ροπής στο σιδηρομαγνητισμό. Αρχή του Pauli οδηγεί σε ασύζευκτα ηλεκτρόνια μέσα στα ατομικά τροχιακά, που έχει σαν αποτέλεσμα τη δημιουργία καθαρής ροπής σπιν. Το παράδειγμα αντιστοιχεί στο Fe, όπου η εντοπισμένη ροπή αντιστοιχεί σε έξι ασύζευκτα ηλεκτρόνια στην 3d στιβάδα (7)





**Εικόνα 2-3:** Μοντέλο του Stoner για το σιδηρομαγνητισμό. Η πυκνότητα καταστάσεων είναι διαφορετική για τις ζώνες με σπιν πάνω  $N_e^\uparrow$  από εκείνες με σπιν κάτω  $N_e^\downarrow$ , έχοντας ως αποτέλεσμα ροπή σπιν.

Πάρα ταύτα στα μεταλλικά συστήματα, τα οποία χαρακτηρίζονται από την ισχυρή φύση απεντοπισμού της ηλεκτρονιακής κυματοσυνάρτησης, δεν είναι εύκολη η περιγραφή σε όρους διακριτών τροχιακών. Αυτό γίνεται εμφανές αν θεωρήσει κάποιος τη μαγνητική ροπή ανά άτομο για ένα υλικό όπως ο Fe. Σύμφωνα με την αρχή του Pauli και τον κανόνα του Hund θα πρέπει να υπάρχουν 6 ασύζευκτα 3d ηλεκτρόνια, ανά άτομο Fe, οδηγώντας, έτσι σε μια μεγάλη μαγνητική ροπή, η οποία είναι ακέραιο πολλαπλάσιο της μαγνητόνης του Bohr. Πειραματικά, ο Fe έχει βρεθεί ότι έχει ροπή ίση με 2,21  $\mu_B$ , που είναι μικρότερη από την αναμενόμενη και όχι ακέραια. Το απλούστερο μοντέλο, το οποίο λαμβάνει υπ' όψιν τη δομή των ζωνών τέτοιων υλικών είναι το μοντέλο του Stoner, όπου το πεδίο του Weiss από τα διπλανά άτομα στο πλέγμα προκαλεί splitting της δομής των ζωνών. Αυτό οδηγεί σε διαφορά στην πυκνότητα των καταστάσεων σπιν πάνω και σπιν κάτω στην ενέργεια Fermi (Εικόνα 2-3). Αυτή η διαφορά στην πυκνότητα των καταστάσεων δίνει τη καθαρή ροπή, η οποία δεν είναι ακέραιο πολλαπλάσιο της  $\mu_B$ , αλλά ορίζεται ως ακολούθως:

$$m = \mu_B (N_e^\uparrow - N_e^\downarrow) \quad (2-1)$$

Όπου  $N_e^\uparrow, N_e^\downarrow$  είναι οι πυκνότητες καταστάσεων για σπιν πάνω και κάτω μέχρι την ενέργεια Fermi.

Από τα παραπάνω παραμένει η δυσκολία του συνδυασμού της εικόνας των ζωνών που σχετίζονται με το μαγνητισμό και της εντοπισμένης προσέγγισης που πρέπει να χρησιμοποιηθεί στην ατομιστική δυναμική των σπιν, ώστε να είναι εφικτός ο διαχωρισμός σε κλασικά διανύσματα σπιν του μαγνητισμού από τους βαθμούς ελευθερίας των σπιν. Για να γίνει αυτό θα πρέπει να γίνει διαχωρισμός των κλιμάκων χρόνου του μαγνητισμού μέσω αδιαβατικής προσέγγισης. Σε αυτή την προσέγγιση λαμβάνεται υπ' όψιν μια ατομική σφαίρα με όγκο  $\Omega$ , μέσα στην οποία αποδίδονται οι κυματοσυναρτήσεις των ροπών σπιν σε μια συγκεκριμένη ατομική θέση. Χρειάζεται να είναι γνωστή η κλίμακα χρόνου, στην οποία θα είναι σταθερό το μέγεθος της συνολικής μαγνητικής ροπής μέσα στη σφαίρα. Για να είναι συνεχής η ροπή σε κάποια κλίμακα χρόνου, θα πρέπει ο χρόνος συσχετισμού του προσανατολισμού των σπιν να είναι μικρότερος από την κλίμακα χρόνου, στην οποία κινούνται τα διανύσματα των κλασικών σπιν μέσα στο κλασικό μοντέλο Heisenberg. Στην (8) μελετάται αυτό το θέμα με λεπτομέρειες και δίνονται προσεγγιστικές τιμές των  $10^{15}$  Hz για τη συχνότητα μεταπήδησης των ηλεκτρονίων από θέση σε θέση και συχνότητα  $10^{13}$  Hz ως τυπική συχνότητα των κυμάτων σπιν. Έτσι, η συχνότητα που αποδίδεται σε

ένα άτομο γράφεται ως ολοκλήρωμα στο χώρο και στο χρόνο, μέσα στο οποίο τα ηλεκτρόνια παραμένουν μέσα σε μια καθορισμένη ατομική σφαίρα (9).

$$\mathbf{S}(t) = \frac{v}{2} \int_{\Omega} d^3r \int_{t-\frac{1}{v}}^{t+\frac{1}{v}} dt' s(\mathbf{r}, t') \quad (2-2)$$

Στη συνέχεια, ο όρος σπιν θα αναφέρεται, γενικά, στην ατομική μαγνητική ροπή  $\mathbf{S}(t)$ . Στο γενικό πλαίσιο της ατομιστικής δυναμικής των σπιν είναι σημαντικό να μην εξάγονται συμπεράσματα για κλίμακα χρόνου μικρότερη από τα 10 φέμτοδευτερόλεπτα, πέρα από τη οποία οι ηλεκτρονικές αλληλεπιδράσεις χρειάζονται πιο ενδελεχή αντιμετώπιση, όπως ο υπολογισμός της μεταφοράς του σπιν (10).

## 2.4 Γενικευμένο μοντέλο Χαμιλτονιανής Heisenberg

Το εκτεταμένο μοντέλο του Heisenberg για τα σπιν περιλαμβάνει τη φυσική των μαγνητικών υλικών στο ατομικό επίπεδο, όπου οι ενέργειες ενός συστήματος αλληλοεπιδρώντων ατομικών ροπών δίνεται από τη σπιν Χαμιλτονιανή (η οποία αγνοεί τις μη μαγνητικές επιδράσεις όπως τον όρο Coulomb). Η σπιν Χαμιλτονιανή  $\mathcal{H}$  έχει τυπικά την ακόλουθη μορφή:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{exc} + \mathcal{H}_{ani} + \mathcal{H}_{app} \quad (2-3)$$

Όπου φαίνονται οι όροι της αλληλεπίδρασης ανταλλαγής, της μαγνητικής ανισοτροπίας και των εξωτερικά εφαρμοζόμενων πεδίων, αντίστοιχα.

### 2.4.1 Αλληλεπίδραση ανταλλαγής

Ο κύριος όρος στη σπιν Χαμιλτονιανή είναι η Heisenberg ενέργεια ανταλλαγής, η οποία προκύπτει από τη συμμετρία της κυματομορφής των ηλεκτρονίων και του κανόνα του Pauli, που ορίζει τον προσανατολισμό των ηλεκτρονιακών σπιν σε αλληλεπικαλυπτόμενα τροχιακά. Εξαιτίας της ηλεκτροστατικής προέλευσης, οι σχετιζόμενες ενέργειες της αλληλεπίδρασης ανταλλαγής είναι περίπου της τάξης του 1-2 eV, που είναι, τυπικά, 1000 φορές μεγαλύτερη από την επόμενη μεγαλύτερη συνεισφορά και έχει ως αποτέλεσμα τη μαγνητική τάξη σε θερμοκρασίες στο εύρος 300-1300K. Η ενέργεια ανταλλαγής ενός συστήματος αλληλοεπιδρώντων ατομικών ροπών δίνεται από την έκφραση:

$$\mathcal{H}_{exc} = - \sum_{i \neq j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (2-4)$$

Όπου  $J_{ij}$  είναι η αλληλεπίδραση ανταλλαγής μεταξύ των ατομικών θέσεων  $i$  και  $j$ ,  $\mathbf{S}_i$  είναι το μοναδιαίο διάνυσμα που υποδεικνύει την κατεύθυνση της τοπικής ροπής σπιν και  $\mathbf{S}_j$  είναι η κατεύθυνση της ροπής σπιν του γειτονικού ατόμου. Τα μοναδιαία διανύσματα λαμβάνονται από την ατομική ροπή  $\boldsymbol{\mu}_s$  και δίνεται από τη σχέση  $\mathbf{S}_i = \boldsymbol{\mu}_s / |\boldsymbol{\mu}_s|$ . Είναι σημαντικό να σημειωθεί η σημασία του προσήμου του  $J_{ij}$ . Για τα σιδηρομαγνητικά υλικά, όπου τα γειτονικά σπιν ευθυγραμμίζονται παράλληλα, τότε  $J_{ij} > 0$  και για τα αντισιδηρομαγνητικά υλικά  $J_{ij} < 0$  (**Εικόνα 2-4**: Επίδραση της ανταλλαγής Heisenberg. Χωρίς ενέργεια ανταλλαγής και χωρίς την επιβολή πεδίου, οι ροπές είναι τυχαία προσανατολισμένες και το υλικό είναι παραμαγνητικό. Με θετική τιμή της ανταλλαγής Heisenberg ( $J_{ij} > 0$ ) οι ροπές είναι προσανατολισμένες προς την ίδια κατεύθυνση και το υλικό είναι σιδηρομαγνητικό. Αρνητική τιμή της ανταλλαγής Heisenberg έχει ως αποτέλεσμα τον προσανατολισμό των ροπών σε αντίθετα υποπλέγματα και υλικό με αντισιδηρομαγνητική συμπεριφορά. Εξαιτίας της ισχυρής εξάρτησης της αλληλεπίδρασης

ανταλλαγής από την απόσταση, το άθροισμα στην εξίσωση  $\mathcal{H}_{exc} = -\sum_{i \neq j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$  (2-4) συχνά παραλείπεται και περιλαμβάνονται, έτσι, μόνο οι πλησιέστεροι γείτονες. Το παραπάνω μειώνει, σημαντικά, την υπολογιστική προσπάθεια, ενώ παραμένει μια καλή προσέγγιση για πολλά υλικά. Στην πραγματικότητα η αλληλεπίδραση ανταλλαγής μπορεί να επεκταθεί σε αρκετά ατομικά διαστήματα, αναπαριστώντας, έτσι, εκατοντάδες αλληλεπιδράσεις ζευγών.

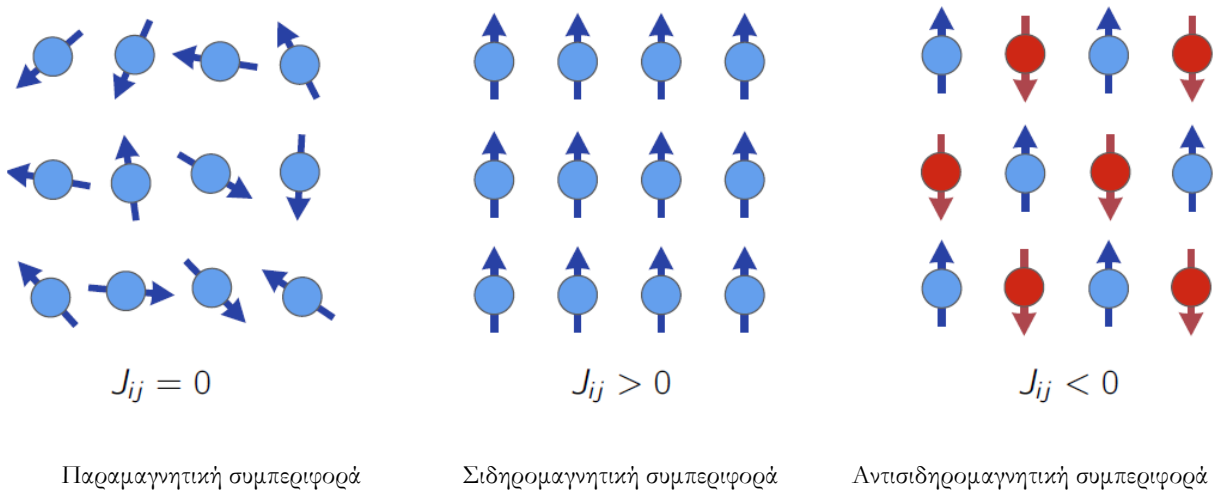
Στην πιο απλή περίπτωση αλληλεπίδρασης ανταλλαγής, ο παράγοντας  $J_{ij}$  είναι ιστροπικός, και, κατά συνέπεια, η ενέργεια ανταλλαγής δύο σπιν εξαρτάται από το σχετικό προσανατολισμό τους και όχι από την κατεύθυνσή τους. Σε πιο σύνθετα υλικά, η αλληλεπίδραση ανταλλαγής σχηματίζει ταυυστή:

$$J_{ij}^M = \begin{bmatrix} J_{xx} & J_{xy} & J_{xz} \\ J_{yx} & J_{yy} & J_{yz} \\ J_{zx} & J_{zy} & J_{zz} \end{bmatrix} \quad (2-5)$$

Ο οποίος είναι σε θέση να περιγράψει ανιστροπικές αλληλεπιδράσεις ανταλλαγής, όπως ανιστροπία δύο ιόντων και αλληλεπίδραση Dzyaloshinskii-Moriya (μη διαγώνια στοιχεία του ταυυστή ανταλλαγής). Στην περίπτωση του ταυυστή ανταλλαγής  $\mathcal{H}_{exc}^M$ , η ενέργεια ανταλλαγής δίνεται από τη σχέση:

$$\mathcal{H}_{exc}^M = -\sum_{i \neq j} \begin{bmatrix} S_x^i & S_y^i & S_z^i \end{bmatrix} \begin{bmatrix} J_{xx} & J_{xy} & J_{xz} \\ J_{yx} & J_{yy} & J_{yz} \\ J_{zx} & J_{zy} & J_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_x^j \\ S_y^j \\ S_z^j \end{bmatrix} \quad (2-6)$$

Η απόκτηση των συνιστωσών του ταυυστή ανταλλαγής μπορεί να γίνει φαινομενολογικά ή με ab initio μεθόδους, οι οποίες μπορεί να περιέχουν και ανώτερης τάξης αλληλεπιδράσεις ανταλλαγής, όπως όρους τριών και τεσσάρων σπιν. Στις περισσότερες περιπτώσεις υλικών οι υψηλότεροι όροι ανταλλαγής είναι σημαντικά μικρότεροι και μπορούν με ασφάλεια να παραλειφθούν.



**Εικόνα 2-4:** Επίδραση της ανταλλαγής Heisenberg. Χωρίς ενέργεια ανταλλαγής και χωρίς την επιβολή πεδίου, οι ροπές είναι τυχαία προσανατολισμένες και το υλικό είναι παραμαγνητικό. Με θετική τιμή της ανταλλαγής

Heisenberg ( $J_{ij} > 0$ ) οι ροπές είναι προσανατολισμένες προς την ίδια κατεύθυνση και το υλικό είναι σιδηρομαγνητικό. Αρνητική τιμή της ανταλλαγής Heisenberg έχει ως αποτέλεσμα τον προσανατολισμός των ροπών σε αντίθετα υποπλέγματα και υλικό με αντισιδηρομαγνητική συμπεριφορά (7).

#### 2.4.2 Μαγνητική ανισοτροπία

Η ενέργεια ανταλλαγής καθορίζει το σχετικό προσανατολισμό μεταξύ των σπιν, αλλά δε σχετίζεται με τυχόν προτιμητέο προσανατολισμό. Έτσι, ενώ η ενέργεια ανταλλαγής έχει ως αποτέλεσμα τη μαγνητική τάξη σε ατομικό επίπεδο, η θερμοκή σταθερότητα του μαγνητικού υλικού εξαρτάται από τη μαγνητική ανισοτροπία, δηλαδή από την προτίμηση των ατομικών ροπών να προσανατολιζονται κατά μήκος συγκεκριμένης κατεύθυνσης. Γενικά, οι ενεργειακές συνεισφορές είναι τάξεις μεγέθους μικρότερες από την ενέργεια ανταλλαγής στα μαγνητικά συστήματα που βρίσκονται σε τάξη. Παρόλα αυτά, οι ενέργειες ανισοτροπίας καθορίζουν τη θεμελιώδη κατάσταση στην οποία θα μεταβεί η μαγνήτιση. Η παραπάνω ιδιότητα είναι ιδιαίτερος σημαντική για τεχνολογικές εφαρμογές των μαγνητικών υλικών.

Οι προελεύσεις των όρων ανισοτροπίας είναι πολυάριθμοι με τη πιο σημαντική να είναι η μαγνητοκρυσταλλική ανισοτροπία (οι ροπές προσανατολιζονται κατά μήκος συγκεκριμένων κρυσταλλογραφικών αξόνων) η οποία προκύπτει από την αλληλεπίδραση των ατομικών, ηλεκτρονιακών τροχιακών με το τοπικό κρυσταλλικό περιβάλλον.

##### 2.4.2.1 Μαγνητοκρυσταλλική ανισοτροπία

Το μοντέλο του Heisenberg, που αναφέρθηκε παραπάνω, εξαρτάται μόνο από τις καταστάσεις των σπιν στο σύστημα και από τις σταθερές σύζευξης. Κατά συνέπεια το σύστημα είναι αμετάβλητο στη συλλογική περιστροφή των σπιν. Στα πραγματικά συστήματα αυτό δεν είναι ορατό. Εξαιτίας του σχήματος του δείγματος και της κρυσταλλικής του δομής, είναι ενεργειακά προτιμητέο για τις ροπές να προσανατολιστούν σε συγκεκριμένες κατευθύνσεις μέσα στο κρυσταλλικό πλέγμα που καλούνται «εύκολοι άξονες» (ή είναι ενεργειακά προτιμητέα η ευθυγράμμιση σε επίπεδο το οποίο, αντιστοίχως, καλείται «εύκολο επίπεδο»). Στα συμπαγή υλικά οι «εύκολες», χαμηλής ενέργειας κατευθύνσεις βρίσκονται κατά μήκος συμμετρικών στο πλέγμα. Στα λεπτά υμένα αυτή η συμμετρία μπορεί να καταστραφεί, εξαιτίας των παραμορφώσεων που είναι παρούσες. Το παραπάνω μπορεί να οδηγήσει σε μονοαξονική συνεισφορά, όπου η μαγνήτιση έχει δύο καλώς ορισμένες, εύκολες διευθύνσεις. Το κρυσταλλικό πλέγμα μπορεί, επίσης να περιέχει ανταλλαγή μεταξύ διαφορετικών ειδών, οδηγώντας έτσι σε εμφανή ανισοτροπία, όπως στην περίπτωση συστήματος δύο ιόντων και στην περίπτωση συστήματος υπερανταλλαγής. Στην περίπτωση των συστημάτων με μειωμένες διαστάσεις, υπάρχει υψηλή συνεισφορά από τη μαγνητοκρυσταλλική ανισοτροπία, η οποία προκαλείται από της αλληλεπιδράσεις σπιν-τροχιάς των ηλεκτρονίων. Το σπιν των ηλεκτρονίων αλληλοεπιδρά με την στροφορμή των ατομικών τροχιακών. Ανάλογα με την κατεύθυνση των σπιν, υπάρχει μια μικρή μεταβολή του ατομικού τροχιακού (Εικόνα 2-5) η οποία μεταβάλλει την αλληλοεπικάλυψη της κυματοσυνάρτησης με τα γειτονικά.

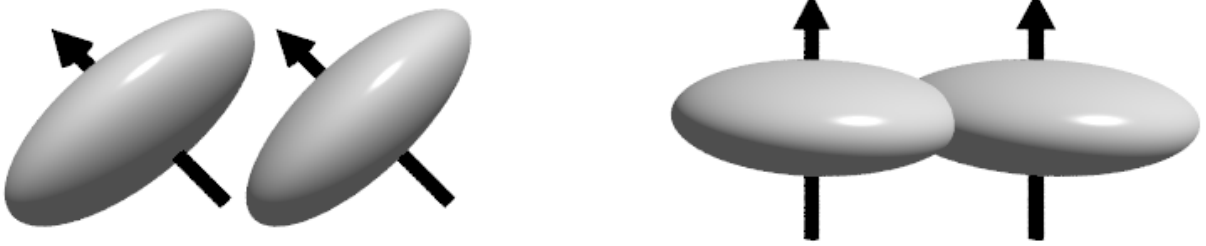
Στην απλούστερη περίπτωση ανισοτροπίας που είναι αυτή του ενός ιόντος και μονοαξονικού τύπου (οι μαγνητικές ροπές ευθυγραμμίζονται κατά μήκος ενός εύκολου άξονα  $e$ ) η ενέργεια ανισοτροπίας δίνεται από τη σχέση:

$$\mathcal{H}_{ani}^{uni} = -k_u \sum_i (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{e})^2 \quad (2-7)$$

Όπου  $k_u$  είναι η ενέργεια ανισοτροπίας ανά άτομο. Υλικά με κυβική, κρυσταλλική δομή, όπως ο σίδηρος και το νικέλιο έχουν μια διαφορετικού είδους ανισοτροπία, η οποία καλείται κυβική ανισοτροπία. Η κυβική ανισοτροπία είναι, γενικά, πιο ασθενής και έχει τρεις κύριες κατευθύνσεις, οι οποίες ενεργειακά αντιστοιχούν σε εύκολη, δύσκολη και πολύ δύσκολη κατεύθυνση μαγνήτισης, αντίστοιχα. Η κυβική ανισοτροπία περιγράφεται από τη σχέση:

$$\mathcal{H}_{ani}^{cub} = -\frac{k_c}{2} \sum_i (S_x^4 + S_y^4 + S_z^4) \quad (2-8)$$

Όπου  $k_c$  είναι η ενέργεια κυβικής ανισοτροπίας ανά άτομο και  $S_x$ ,  $S_y$  και  $S_z$  είναι οι x, y, z συνιστώσες της ροπής σπιν S, αντίστοιχα.



Εικόνα 2-5: Σχηματική αναπαράσταση της παραμόρφωσης των ατομικών τροχιακών δύο ηλεκτρονίων, η οποία είναι εξαρτώμενη από την κατεύθυνση των σπιν. Η αλληλοεπικάλυψη των μεταβολών των δύο τροχιακών, έχει ως αποτέλεσμα τη μεταβολή στη συνολική ενέργεια. Κατά συνέπεια, συγκεκριμένες καταστάσεις σπιν είναι ενεργειακά προτιμητέες (11).

### 2.4.3 Όρος Zeeman

Ένα σύστημα σπιν μπορεί να αντιδράσει με ένα εξωτερικό μαγνητικό πεδίο  $H_{Zeeman}$ . Αυτό θα οδηγήσει σε μια μεταπτωτική κίνηση (precession) των σπιν γύρω από το μαγνητικό πεδίο. Η κίνηση σπιν ενός ηλεκτρονίου μπορεί να περιγραφεί με χρήση της Χαμιλτονιανής Zeeman ως εξής:

$$\mathcal{H}_{Zeeman} = -\mu \cdot H_{Zeeman} = g\mu_B H_{Zeeman} \cdot S \quad (2-9)$$

Στο ενεργειακό ελάχιστο το σπιν βρίσκεται αντιπαράλληλα με το μαγνητικό πεδίο, καθώς η μαγνητική ροπή είναι αντιπαράλληλα με το σπιν του ηλεκτρονίου.

### 2.4.4 Αλληλεπίδρασεις διπόλου-διπόλου

Η διπολική αλληλεπίδραση μεταξύ δύο ατόμων είναι, περίπου τρεις τάξεις μεγέθους μικρότερη από την αλληλεπίδραση ανταλλαγής. Παρόλα αυτά, όταν η τελευταία πέφτει ειθελτικά, η διπολική αλληλεπίδραση μειώνεται αναλογικά με την απόσταση κατά  $1/r^3$ . Έτσι, ενώ δεν επηρεάζει τη συμπεριφορά μεταξύ γειτονικών ατόμων, έχει μεγάλη επίδραση στις μαγνητικές ιδιότητες μεγάλων σωματιδίων. Η διπολική αλληλεπίδραση επάγει, ουσιαστικά, δύο επιδράσεις: την μαγνητική ανισοτροπία σχήματος και το σχηματισμό των περιοχών. Η ανισοτροπία σχήματος είναι μια από τις πιο περίπλοκες επιδράσεις στη δυναμική της μαγνήτισης, η οποία επιδρά τις μεγάλες κλίμακες χρόνου και μήκους. Για να υπάρχει

συμφωνία με τους κανόνες του Maxwell, το μαγνητικό πεδίο σε ένα μαγνητικό υλικό δε θα πρέπει να αποκλίνει ή διαφορετικά, η ροή θα πρέπει να είναι κλειστή. Στα μεσοσκοπικά μαγνητικά υλικά είναι ενεργειακά προτιμητέο για το κλείσιμο της ροής να σχηματίζονται περιοχές με αντίθετο προσανατολισμό. Στην περίπτωση ενός μαγνητικού νανοσωματίδιου η ενέργεια που απαιτείται για το σχηματισμός ενός τοιχώματος είναι, συνήθως, αρκετά μεγάλη, ώστε το νανοσωματίδιο θα διατηρήσει ένα τοίχωμα, αλλά οι ροπές θα προσανατολιστούν με τις ροϊκές γραμμές μέσα στο υλικό. Στην ατομιστική εικόνα αυτό μπορεί να εκφραστεί με μια προσέγγιση αλληλεπίδρασης διπόλου – διπόλου

Σύμφωνα με την κλασική μαγνητοστατική, το πεδίο που επάγεται από μαγνητική ροή  $\mu$  δίνεται από:

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{r}\cdot\boldsymbol{\mu}) - \boldsymbol{\mu}r^2}{r^5} \quad (2-10)$$

Μια άλλη μαγνητική ροπή που είναι παρούσα στο σύστημα θα συζευχθεί με το μαγνητικό πεδίο που προέκυψε από τη  $\mu$ . Χρησιμοποιώντας της εξίσωση Zeeman (εξίσωση) η ενέργεια διπόλου-διπόλου του συστήματος των μαγνητικών ροπών  $\{\boldsymbol{\mu}\}$  σε απόσταση  $\{\mathbf{r}\}$  δίνεται από τη σχέση:

$$\mathcal{H}_{dip}(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{\mu_i \mu_j (r_i - r_j)^2 - 3(\mu_i \cdot (r_i - r_j))(\mu_j \cdot (r_i - r_j))}{|r_i - r_j|^5} \quad (2-11)$$

Όπου  $i$  και  $j$  ορίζουν τα άτομα μεταξύ των οποίων γίνεται ο υπολογισμός της αλληλεπίδρασης. Στην ατομιστική δυναμική και, ιδιαίτερα, στις κλίμακες χρόνου μικρότερες από τα πικοδευτερόλεπτο, αυτός ο όρος συνήθως παραλείπεται. Όπως αναφέρθηκε προηγουμένα, η συχνότητα των αλληλεπιδράσεων διπόλου – διπόλου είναι τάξεις μεγέθους μικρότερη από στις συνεισφορές λόγω ανταλλαγής. Επίσης, η επίδραση από την αλληλεπιδράσεις διπόλου - διπόλου στις πολύ μικρές κλίμακες χρόνου και σε υψηλές θερμοκρασίες είναι αμελητέες. Η εξίσωση  $\mathcal{H}_{dip}(\mathbf{r}) =$

$\frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{\mu_i \mu_j (r_i - r_j)^2 - 3(\mu_i \cdot (r_i - r_j))(\mu_j \cdot (r_i - r_j))}{|r_i - r_j|^5}$  (2-11) μπορεί να απλοποιηθεί για τα σιδηρομαγνητικά συστήματα με ομοιόμορφη κατανομή των μαγνητικών ροπών, έχοντας ως αποτέλεσμα την ενέργεια:

$$E = \frac{1}{2} |\mu|^2 \sum_{i \neq j} \frac{1 - 3 \cos^2 \theta_{ij}}{R_{ij}^3} \quad (2-12)$$

Όπου  $\mathbf{R}_{ij}$  αντιστοιχεί στην απόσταση μεταξύ του σπιν στη θέση  $i$  και του σπιν στη θέση  $j$ ,  $\theta_{ij}$  είναι η γωνία μεταξύ του διανύσματος που συνδέει τα σπιν στις θέσεις  $i$  και  $j$  και της μαγνητικής τους ροπής. Για μια αλυσίδα από μαγνητικές ροπές η γωνία  $\theta_{ij}$  θα είναι ανεξάρτητη από τις ατομικές θέσεις. Κατά συνέπεια, είναι φανερό ότι η διπολική ενέργεια ελαχιστοποιείται όταν οι μαγνητικές ροπές ευθυγραμμίζονται κατά μήκος της αλυσίδας ( $\theta_{ij}=0$ ).

Για ένα σιδηρομαγνητικό, δισδιάστατο σύστημα η διεύθυνση μαγνήτισης θα είναι στο επίπεδο. Αυτό είναι σε αντίθεση με τον εύκολο άξονα μαγνητοκρυσταλλικής ανισοτροπίας, που στις περισσότερες των περιπτώσεων τείνει να είναι εκτός του επιπέδου. Έτσι, η θεμελιώδης κατάσταση καθορίζεται από τον ανταγωνισμό μεταξύ των δύο όρων. Αξίζει να σημειωθεί ότι η ενέργεια διπόλου-διπόλου δεν επηρεάζει τη θεμελιώδη κατάσταση ενός τρισδιάστατου, συμπαγούς, απείρου συστήματος. Η διπολική ενέργεια καθορίζεται από τα όρια του δείγματος. Κατά συνέπεια, σε ένα πεπερασμένο σύστημα, η θεμελιώδης ενέργεια θα καθοριστεί από το σχήμα του δείγματος. Για το λόγο αυτό, ο προσανατολισμός της

θεμελιώδους κατάστασης, εξαιτίας της αλληλεπίδρασης διπόλου-διπόλου καλείται ανισοτροπία σχήματος.

Η διπολική ενέργεια μειώνεται με το σχηματισμό περιοχών με διαφορετικό μαγνητικό προσανατολισμό. Αυτές οι περιοχές χωρίζονται από μαγνητικά τοιχώματα διαφορετικού πάχους. Αυτός ο μαγνητικός χωρισμός των περιοχών έχει επίδραση στη ενέργεια ανταλλαγής, η οποία μειώνεται όταν όλα τα σπιν είναι προσανατολισμένα προς την ίδια κατεύθυνση. Παρόλα αυτά, από τη στιγμή που οι αλληλεπιδράσεις ανταλλαγής είναι μικρής κλίμακας (short ranged), η ενέργεια ανταλλαγής αυξάνεται μόνο στα όρια μεταξύ των περιοχών, δηλαδή στα μαγνητικά τοιχώματα. Στην πραγματικότητα οι αλληλεπιδράσεις ανταλλαγής αυξάνουν το πλάτος του μαγνητικού τοιχώματος, έτσι ώστε να πραγματοποιηθεί η μετάβαση από τη μια μαγνητική περιοχή στην άλλη όσο πιο ομαλά γίνεται. Στην περίπτωση της μαγνήτοκρυσταλλικής ανισοτροπίας ισχύει το αντίθετο, καθώς τείνει να μειώσει το πλάτος του μαγνητικού τοιχώματος. Κατά συνέπεια, ο ανταγωνισμός μεταξύ μαγνήτοκρυσταλλικής ανισοτροπίας και ενέργειας ανταλλαγής θα καθορίσει το πλάτος του τοιχώματος.

## 2.5 Εξίσωση της κίνησης

### 2.5.1 Δυναμική των μαγνητικών ροπών: Εξίσωση Landau-Lifshitz-Gilbert

Η αποσαφήνιση των αλληλεπιδράσεων των μαγνητικών ροπών με τα μαγνητικά πεδία αποτελεί απαραίτητη προϋπόθεση για την κατανόηση των μαγνητικών φαινομένων και την αξιοποίησή τους, συνακόλουθα, σε τεχνολογικές εφαρμογές. Υλικά, τα οποία χαρακτηρίζονται από ομοιογενή μαγνήτιση, εμφανίζουν μαγνητική ροπή, η οποία, για όγκο  $V$  δίνεται από τη σχέση  $\mathbf{m} = V\mathbf{M}$ , όπου  $\mathbf{M}$  είναι η μαγνήτιση. Αν  $V$  είναι ατομικός όγκος, τότε η μαγνητική ροπή  $\mathbf{m}$  αντιστοιχεί στη μαγνητική ροπή ανά άτομο, ενώ αν ο όγκος  $V$  είναι ο όγκος ενός μαγνητικού στερεού, τότε το  $\mathbf{m}$  αντιστοιχεί στη μαγνητική ροπή όλου του στερεού. Αυτή η τελευταία περίπτωση καλείται προσέγγιση «μακροσπιν». Για την περίπτωση των υλικών που χαρακτηρίζονται από ανομοιογενή μαγνήτιση μακροσκοπικά, ισχύει ότι το στερεό μπορεί να διαιρεθεί σε μικρότερες περιοχές, στις οποίες η μαγνήτιση μπορεί να θεωρηθεί ομοιογενής. Αυτές οι περιοχές έχουν τέτοιο μέγεθος, ώστε η κίνηση της μαγνήτισης σε αυτές να μπορεί να περιγραφεί μέσω της κλασικής προσέγγισης.

Η μεταπτωτική κίνηση της μαγνητικής ροπής, απουσία απόσβεσης, δίνεται από την εξίσωση της ροπής  $\mathbf{T}$ . Σύμφωνα με την κβαντομηχανική, η στροφορμή σχετίζεται με τη μαγνητική ροπή  $\mathbf{m}$ , της σχέσης:

$$\mathbf{L} = \mathbf{m}/\gamma \quad (2-13)$$

Όπου  $\gamma$  είναι ο γυρομαγνητικός λόγος και είναι ίσος με  $\gamma = 1,76 \times 10^7 \text{rad s}^{-1} \text{Oe}^{-1}$ . Η ροπή  $\mathbf{T}$  που πάνω στη μαγνητική ροπή  $\mathbf{m}$  ασκείται από το μαγνητικό πεδίο  $\mathbf{H}$  και δίνεται από τη σχέση:

$$\mathbf{T} = \mathbf{m} \times \mathbf{H} \quad (2-14)$$

Η μεταβολή της στροφορμής με το χρόνο ισούται με τη ροπή  $\mathbf{T}$ :

$$\frac{d\mathbf{L}}{dt} = \frac{d\mathbf{m}}{dt} \gamma = \mathbf{m} \times \mathbf{H} \quad (2-15)$$

Τα σπιν, πέρα από την επίδραση του μαγνητικού πεδίου, μπορούν να επηρεάζονται και από την μαγνήτοκρυσταλλική ανισοτροπία, την ανισοτροπία λόγω σχήματος, τη αλληλεπίδραση των μαγνητικών

δίπολων κλπ. Όλες αυτές οι αλληλεπιδράσεις συνεισφέρουν στο δυναμικό  $\Phi$  και η συνδυασμένη δράση τους μπορεί να εκληφθεί ως ενεργό μαγνητικό πεδίο:

$$\mathbf{H}^{eff} = -\frac{\partial\Phi}{\partial\mathbf{M}} \quad (2-16)$$

Έτσι, η κίνηση του διανύσματος της μαγνήτισης μπορεί να περιγραφεί από την εξίσωση  $\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff}$  (2-17), η οποία αποτελεί την εξίσωση Landau-Lifshitz. Η λύση της εξίσωσης  $\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff}$  (2-17) περιγράφει τη μεταπτωτική κίνηση της μαγνητικής ροπής γύρω από το ενεργό πεδίο, με τη συχνότητα Larmor ( $\omega_{Larmor} = \gamma H^{eff}$ ), ενώ γίνεται φανερό ότι το μαγνητικό πεδίο που προκαλεί τη μεταπτωτική κίνηση της μαγνήτισης είναι σε κλίμακα GHz.

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff} \quad (2-17)$$

Όπως αναφέρθηκε ανωτέρω το  $H^{eff}$  εμπεριέχει πολλές συνεισφορές:

$$\mathbf{H}^{eff} = \mathbf{H}_{ext} + \mathbf{H}_{ani} + \mathbf{H}_{dem} + \dots, \quad (2-18)$$

Όπου το  $H^{ext}$  αντιστοιχεί στο εξωτερικό, εφαρμοζόμενο πεδίο, το  $H^{ani}$  αντιστοιχεί στο πεδίο ανισοτροπίας και  $H^{dem}$  αντιστοιχεί στο πεδίο απομαγνήτισης. Εκτός από το  $H^{ext}$ , όλες οι άλλες συνεισφορές είναι εξαρτώμενες από το εκάστοτε υλικό. Κατά συνέπεια, η οπτική διέγερση ενός μαγνητικού υλικού μπορεί να έχει ως αποτέλεσμα, μέσω των οπτικά επαγόμενων μεταβολών στα πεδία που είναι εξαρτώμενα από το υλικό, σε μεταβολή του  $H^{eff}$ , δίνοντας έτσι, το έναυσμα για τη δυναμική της μαγνήτισης, η οποία είναι οπτικά επαγόμενη.

Σε κατάσταση ισορροπίας, η μεταβολή της στροφορμής με το χρόνο είναι μηδενική, και κατά συνέπεια, και η ροπή είναι μηδενική. Για την περιγραφή της μεταπτωτικής κίνησης της μαγνητικής ροπής προς την ισορροπία, μπορεί να εισαχθεί ένας παράγοντας απόσβεσης. Για την επιβράδυνση της κίνησης της μαγνητικής ροπής, εισάγεται ένας παράγοντας επιβράδυνσης, ανάλογος της γενικευμένη ταχύτητα  $-(\partial\mathbf{m}/\partial t)$ , και έτσι επιτυγχάνεται η ευθυγράμμιση της μαγνητικής ροπής  $\mathbf{m}$  με το πεδίο  $H^{eff}$ . Έτσι προκύπτει η εξίσωση Landau-Lifshitz-Gilbert:

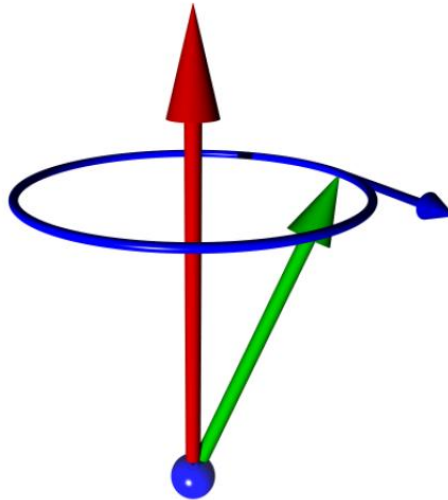
$$\frac{\partial\mathbf{m}}{\partial t} = \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff} + \frac{\alpha}{|\mathbf{m}|}\mathbf{m} \times \frac{\partial\mathbf{m}}{\partial t} \quad (2-19)$$

Όπου  $\alpha$  είναι ο αδιάστατος, φαινομενολογικός παράγοντας απόσβεσης Gilbert.

Η εξίσωση  $\frac{\partial\mathbf{m}}{\partial t} = \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff} + \frac{\alpha}{|\mathbf{m}|}\mathbf{m} \times \frac{\partial\mathbf{m}}{\partial t}$  (2-19) μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τη μελέτη της δυναμικής των μεταβολών μικρών, μαγνητικών σωματιδίων. Αν τα σωματίδια είναι επαρκώς μικρού μεγέθους, η μαγνήτιση μπορεί να θεωρηθεί ότι παραμένει ομοιόμορφη κατά τη διάρκεια της διαδικασίας αντιστροφής και οι μόνες συνεισφορές από στο ενεργό πεδίο προέρχονται από το πεδίο ανισοτροπίας, από το πεδίο απομαγνήτισης και από το εξωτερικά εφαρμοζόμενο πεδίο. Για μεγαλύτερα δείγματα, και για την περίπτωση ανομοιογενούς δυναμικής, όπως τα κύματα spin με  $k \neq 0$ , η μαγνητική ροπή γίνεται συνάρτηση χωρικών συντεταγμένων  $\mathbf{m}=\mathbf{m}(\mathbf{r})$ . Το ενεργό μαγνητικό πεδίο σε αυτή την περίπτωση διαθέτει έναν επιπλέον παράγοντα συνεισφοράς, που προκύπτει από την ενέργεια



αλληλεπίδρασης. Σε αυτή την περίπτωση μπορούν να υπάρξουν μη ομογενείς διεγέρσεις στο μαγνητικό μέσο, όπως προτάθηκε αρχικά από τον Bloch. Αυτές οι διεγέρσεις καλούνται κύματα σπιν και σημειώνεται εμπλοκή πολλών σημείων του πλέγματος. Η εξίσωση LLG μπορεί να χρησιμοποιηθεί εντός των ατομιστικών ορίων, για τη μελέτη της εξέλιξης του συστήματος των σπιν, με χρήση της δυναμικής Langevin, η οποία έχει αποδειχθεί ότι αποτελεί μία ισχυρή προσέγγιση για τη μοντελοποίηση των διαδικασιών υπερταχείας (ultrafast) μαγνήτισης. Κάποιοι περιορισμοί στη χρήση της εξίσωσης LLG εγείρονται από το γεγονός ότι σε μια κλίμακα χρόνου μικρότερη από τη σύζευξη σπιν – τροχιάς (της τάξης των 20fs), η περιγραφή μόνο με το γυρομαγνητικό λόγο αποτυγχάνει και οι συνεισφορές από το σπιν και από την τροχιά θα πρέπει να ληφθούν υπ' όψιν χωριστά (12).



**Εικόνα 2-6:** Κίνηση σπιν (πράσινο) γύρω από το ενεργό, μαγνητικό πεδίο (κόκκινο). Η τροχιά (μπλε) δείχνει τη μεταπτωτική κίνηση (precession) γύρω από το μαγνητικό πεδίο (11)

## 2.6 Πεπερασμένη θερμοκρασία: Εξίσωση Landau- Lifshitz-Bloch

Η εξίσωση Landau-Lifshitz-Gilbert θεωρεί τη μαγνήτιση ως διάνυσμα συγκεκριμένου μήκους και αγνοεί τη διαμήκη χαλάρωση (relaxation). Είναι προφανές ότι μια τέτοια προσέγγιση είναι μη ικανοποιητική για τις υψηλές θερμοκρασίες, αφού η μαγνήτιση που εισάγεται στην εξίσωση LLG είναι μία μέση τιμή μίας συνάρτησης κατανομής και το μέγεθος της μπορεί να μεταβληθεί. Κατά συνέπεια, η μακροσκοπική εξίσωση κίνησης της μαγνήτισης, ενός σιδηρομαγνητικού υλικού, σε υψηλές θερμοκρασίες, θα πρέπει να περιέχει τόσο τον παράγοντα της κάθετης χαλάρωσης, όσο και τον παράγοντα διαμήκους χαλάρωσης και θα πρέπει να είναι παρεμβολή μεταξύ της εξίσωσης Landau Lifshitz στις χαμηλές θερμοκρασίες και της εξίσωσης Bloch για τις υψηλές θερμοκρασίες.

Η ατομιστική προσέγγιση ξεκινά με την προϋπόθεση ότι ένα μαγνητικό άτομο μπορεί να περιγραφεί ως ένα κλασικό διάνυσμα σπιν  $\mathbf{s}$  μοναδιαίου μήκους. Η μαγνητική ροπή ενός ατόμου δίνεται από τη σχέση  $\boldsymbol{\mu} = \mu_0 \mathbf{s}$ . Στην περίπτωση της ασθενούς σύζευξης με το λουτρό, η δυναμική του διανύσματος  $\mathbf{s}$  μπορεί να περιγραφεί με τη βοήθεια της στοχαστικής εξίσωσης Landau- Lifshitz.

$$\frac{ds}{dt} = \gamma[\mathbf{s} \times (\mathbf{H} + \zeta)] - \gamma\lambda[\mathbf{s} \times [\mathbf{s} \times \mathbf{H}]] \quad (2-20)$$

με  $\lambda < 0$ ,  $|\lambda| \gg 1$ , όπου οι συσχετιστές των  $\alpha, \beta = x, y, z$  συνιστωσών του πεδίου Langevin  $\zeta(t)$  δίνονται από τη σχέση:

$$\langle \zeta_\alpha(t) \zeta_\beta(t') \rangle = \frac{2\lambda T}{\gamma\mu_0} \delta_{\alpha\beta} \delta(t - t') \quad (2-21)$$

Όπου  $\mu_0$  είναι η ατομική μαγνητική ροπή και  $\lambda$  είναι η παράμετρος που περιγράφει τη σύζευξη στο σύστημα του λουτρού. Ο συντελεστής μπροστά από την εξίσωση δέλτα καθορίζεται από το θεώρημα διαταραχών ανάλωσης (fluctuation - dissipation), και εξαιτίας αυτού μπορεί να περιοριστεί η εφαρμοσιμότητα αυτής της προσέγγισης σε κλίμακα χρόνου συγκρίσιμη με αυτή του συστήματος ηλεκτρονίων (περίπου 10 fs για τα μέταλλα).

Η βάση για την εξίσωση  $\langle \zeta_\alpha(t) \zeta_\beta(t') \rangle = \frac{2\lambda T}{\gamma\mu_0} \delta_{\alpha\beta} \delta(t - t')$  (2-21) είναι κατά συνέπεια, ο διαχωρισμός των κλιμάκων χρόνου, υποθέτοντας ότι το λουτρό θερμότητας (σύστημα φωνονίων και ηλεκτρονίων) δρα πιο γρήγορα από το σύστημα των σπιν. Σε αυτή την περίπτωση οι βαθμοί ελευθερίας του λουτρού μπορούν να ληφθούν ως μέσος όρος και να αντικατασταθούν από ένα στοχαστικό πεδίο με συναρτήσεις συσχέτισης λευκού θορύβου. Η μαγνήτιση του υλικού, προκύπτει σύμφωνα με τα παραπάνω, ότι είναι ίση με  $\mathbf{m} = \mu_0 \langle \mathbf{s} \rangle$ . Η εξίσωση  $\frac{d\mathbf{s}}{dt} = \gamma[\mathbf{s} \times (\mathbf{H} + \zeta)] - \gamma\lambda[\mathbf{s} \times [\mathbf{s} \times \mathbf{H}]]$  (2-20) καταλήγει, έτσι, στη γνωστή εξίσωση Landau-Lifshitz-Bloch.

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \gamma[\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff}] - \gamma\lambda_{||} \frac{(\mathbf{m} \cdot \mathbf{H}^{eff})\mathbf{m}}{m^2} + \gamma\lambda_{\perp} \frac{[\mathbf{m} \times [\mathbf{m} \times \mathbf{H}^{eff}]]}{m^2} \quad (2-22)$$

Όπου  $\lambda_{||}, \lambda_{\perp}$  είναι οι αδιάστατοι παράμετροι απόσβεσης (κάθετος και διαμήκης) και δίνονται από τις σχέσεις:

$$\lambda_{||} = \lambda \frac{2T}{3T_c^{MF}}, \lambda_{\perp} = \lambda \left(1 - \frac{T}{3T_c^{MF}}\right) \quad (2-23)$$

Όπου  $T_c^{MF}$  είναι το μέσο πεδίο της θερμοκρασίας Curie.

Είναι προφανές ότι οι παράγοντες απόσβεσης  $\lambda_{||}, \lambda_{\perp}$  εξαρτώνται από το πεδίο Langevin. Στην εξίσωση LLB φαίνεται ότι αποτυπώνεται η περίπλοκη φυσική, που αποκαλύπτεται από το ατομιστικό μοντέλο, και πιο συγκεκριμένα, με τη μεταβολή του μεγέθους της μαγνήτισης κατά την αντιστροφή και με την αύξηση της απόσβεσης με τη θερμοκρασία. Οι χρόνοι της κάθετης και της διαμήκους χαλάρωση υπολογίζονται από την εξίσωση LLB και βρίσκονται σε συμφωνία με αυτούς που προκύπτουν από το ατομιστικό μοντέλο. Έτσι, η εξίσωση LLB μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως βάση για βελτίωση των μικρομαγνητικών μοντέλων σε υψηλές θερμοκρασίες, ενώ ιδιαίτερο ενδιαφέρον έχει η εφαρμογή της σε προσομοιώσεις πολλαπλής κλίμακας.

## 2.7 Εξίσωση Landau-Lifshitz Langevin

Ένα από τα κύρια πλεονεκτήματα των προσομοιώσεων σε ατομιστικό επίπεδο είναι το γεγονός ότι το στατιστικό σύνολο των σπιν επιτρέπει την ακριβή δειγματοληψία από τη συνάρτηση επιμερισμού ακόμα

και για πεπερασμένες θερμοκρασίες. Στις πιο μακροσκοπικές προσεγγίσεις, όπως στο μικρομαγνητισμό, χρησιμοποιείται η προσέγγιση της ανταλλαγής και τα σπιν λογίζονται ως συγγραμικά σε μια κλίμακα μεγέθους ανάλογη  $\sqrt{K/J}$ . Σε υψηλές θερμοκρασίες, αυτή η προσέγγιση δεν ισχύει καθώς η μαγνήτιση του κάθε διακριτού όγκου δε μπορεί να μειωθεί. Έτσι, για τις θερμοκρασίες που προκύπτουν κατά τη θέρμανση με laser, η ατομιστική προσέγγιση είναι κατάλληλη. Στις προσομοιώσεις Monte Carlo, σε ατομιστική κλίμακα, η δειγματοληψία των μικροκαταστάσεων έχει ως συντελεστή βαρύτητας τον παράγοντα Boltzmann, ο οποίος αντιστοιχεί στη θερμική ενέργεια π.χ οι κινήσεις Monte Carlo γίνονται αποδεκτές με πιθανότητα:

$$P = \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad (2-24)$$

Όπου  $\Delta E$  είναι η ενεργειακή διαφορά μεταξύ της πριν και μετά της δοκιμαστικής κίνησης,  $k_B$  είναι η σταθερά του Boltzmann και  $T$  είναι η θερμοκρασία σε Kelvin. Πάρα αυτά, οι προσεγγίσεις Monte Carlo δεν δίνουν τη δυναμική των διεργασιών στις οποίες η ενσωμάτωση της θερμικής ενέργειας είναι περίπλοκη, γιατί η θερμική κατανομή Boltzmann πρέπει να κάνει δειγματοληψία από τις προκύπτουσες τροχιές. Μία από τις κοινές, εμπειρικές μεθόδους ενσωμάτωσης θερμικών επιδράσεων σε δυναμικές εξισώσεις είναι μέσω της χρήσης της εξίσωσης Langevin. Στην εξίσωση Langevin προστίθενται και θερμικές διαταραχές μαζί με τις δυνάμεις, και κάνοντας προσέγγιση στην οποία υποτίθεται ότι η δυναμική του λουτρού θερμότητας είναι αμελητέα στην κλίμακα χρόνου της δυναμικής. Με αυτό τον διαχωρισμό των κλιμάκων χρόνου παραμένουν σημαντικές μόνο οι στατιστικές ιδιότητες (13). Η εξίσωση Langevin γράφεται για το κάθε σπιν ως εξής:

$$H_i(t) = -\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial s_i} - \eta \int_{-\infty}^t \varphi(t-t') \frac{ds_i}{dt'} dt' + \xi_i(t) \quad (2-25)$$

Όπου  $\varphi(t-t')$  είναι παράγοντας που περιγράφει τη συνάρτηση αυτοδιόρθωσης των σπιν αναφορικά με το χρόνο. Αυτή η συνάρτηση δρα με δύναμη  $\eta$  και  $\xi$  είναι ένας στοχαστικός όρος που αναπαριστά τις δυνάμεις θερμικών αναταραχών. Σε μικρή κλίμακα χρόνου η δυναμική των σπιν επηρεάζεται, κυρίως, από το λουτρό θερμότητας των ηλεκτρονίων και ο διαχωρισμός των κλιμάκων χρόνου μεταξύ των ατομικών ροπών και της δυναμικής των ηλεκτρονίων γίνεται στο μοντέλο του Heisenberg. Από το Κεντρικό Οριακό Θεώρημα ο στοχαστικός όρος  $\xi$  μπορεί να προσεγγιστεί ως παράγοντας λευκού θορύβου (μη συσχετισμένος με χρόνο και χώρο), με δύναμη που προσδιορίζεται από το θεώρημα διαταραχών ανάλωσης ως εξής:

$$\langle \xi_{i,a}(t) \rangle = 0 \quad (2-26)$$

$$\langle \xi_{i,a}(t), \xi_{j,b}(t') \rangle = 2k_B T \eta \varphi(|t-t'|) \delta_{ij} \delta_{ab} \quad (2-27)$$

Όπου  $i$  και  $j$  είναι οι θέσεις πλέγματος και  $a$  και  $b$  είναι καρτεσιανές συντεταγμένες. Η πρώτη ροπή, που είναι μηδενική, υποδηλώνει ότι δεν υπάρχει προτίμηση για την κατεύθυνση στο στοχαστικό όρο. Στη δεύτερη ροπή, η συνάρτηση  $\delta_{ij}$  ορίζει το στοχαστικό όρο ως τοπικό, και έτσι, η θερμική διαταραχή σε οποιοδήποτε σημείο του πλέγματος δε συσχετίζεται με άλλα σημεία του πλέγματος. Αυτή είναι μια προσέγγιση γιατί μόνο οι βαθμοί ελευθερίας του σπιν λαμβάνονται υπόψη και δε γίνεται προσπάθεια για τη προσομοίωση των συστημάτων των ηλεκτρονίων ή φωνονίων, που μπορεί να προαλέσουν χωρικούς

συσχετισμούς μεταξύ των σημείων του πλέγματος. Η συνάρτηση  $\delta_{ab}$  καθορίζει το στοχαστικό όρο να είναι διαγώνιος, έτσι ώστε να μην υπάρχουν συσχετισμοί μεταξύ των συνιστωσών των σπιν. Ενώ είναι πιθανό να υπάρχει συσχέτιση μεταξύ του λευκού θορύβου και των καρτεσιανών συντεταγμένων η δυσκολία στη μέτρηση τέτοιων επιδράσεων είναι ενδεικτική του γεγονότος ότι είναι αρκετά μικρές. Η σταθερά συσχέτισης  $\eta$  περικλείει τη δύναμη της σύζευξης μεταξύ των βαθμών ελευθερίας των σπιν και των ενεργών βαθμών ελευθερίας του λουτρού θερμότητας. Από τις εξισώσεις Langevin  $H_i(t) = -\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial s_i} - \eta \int_{-\infty}^t \varphi(t-t') \frac{ds_i}{dt'} dt' + \xi_i(t)$  (2-25),  $\xi_i a(t) = 0$  (2-26) και  $\xi_i a(t), \xi_{j,b} t^{\otimes 2} = 2k_B T \eta \varphi(t-t') \delta_{ij} \delta_{ab}$  (2-27) μπορεί να εξαχθεί συνάρτηση με χρωματισμένο θόρυβο, που υπονοεί ότι ο παράγοντας  $\varphi(t-t')$  είναι χρονοεξαζωόμενος. Περιλαμβάνοντας το πεδίο από την εξίσωση Langevin στην εξίσωση Landau-Lifshitz  $\frac{ds}{dt} = \gamma[\mathbf{s} \times (\mathbf{H} + \zeta)] - \gamma\lambda[\mathbf{s} \times [\mathbf{s} \times \mathbf{H}]]$  (2-20), η εξίσωση LLG  $\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = \gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{eff} + \frac{a}{|\mathbf{m}|} \mathbf{m} \times \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t}$  (2-19) ξαναγράφεται και το ενεργό πεδίο που «αισθάνονται» τα σπιν περιλαμβάνει, πλέον, το στοχαστικό όρο  $\xi(t)$ . Αυτή η εξίσωση καλείται Landau-Lifshitz-Gilbert-Langevin (LLG-L).

## 2.8 Μέθοδοι Ολοκλήρωσης

### 2.8.1 Μέθοδος Heun

Ο προσδιορισμός της χρονικής εξέλιξης ενός συστήματος σπιν απαιτεί την αριθμητική επίλυση της στοχαστικής εξίσωσης LLG. Η επιλογή του επιλύτη είναι περιορισμένη εξαιτίας της στοχαστικής φύσης της εξίσωσης. Στην πρώιμη προσέγγιση ολοκλήρωσης χρησιμοποιείται η μέθοδος Euler, η οποία υποθέτει μια γραμμική μεταβολή της κατεύθυνσης των σπιν σε διακριτό βήμα χρόνου  $1t$ . Μια βελτιωμένη προσέγγιση της προηγούμενης μεθόδου αποτελεί η μέθοδος Heun η οποία δίνει τη δυνατότητα για μεγαλύτερα βήματα χρόνου, εξαιτίας της χρήσης αλγορίθμου πρόβλεψης-διόρθωσης. Στη μέθοδο Heun το πρώτο βήμα (πρόβλεψη) υπολογίζει τη νέα κατεύθυνση σπιν  $\mathbf{S}'_i$  για ένα δεδομένο ενεργό πεδίο  $\mathbf{H}_{eff}^i$ , πραγματοποιώντας ένα βήμα ολοκλήρωσης Euler, που δίνεται από τη σχέση:

$$\mathbf{S}'_i = \mathbf{S}_i + \Delta \mathbf{S} \Delta t \quad (2-28)$$

Όπου

$$\Delta \mathbf{S} = -\frac{\gamma}{(1+\lambda^2)} [\mathbf{S}_i \times \mathbf{H}_{eff}^i + \lambda \mathbf{S}_i \times (\mathbf{S}_i \times \mathbf{H}_{eff}^i)] \quad (2-29)$$

Η μέθοδος Heun δεν διατηρεί το μήκος των σπιν και, έτσι, είναι απαραίτητη η κανονικοποίηση του μήκους του μοναδιαίου διανύσματος  $\mathbf{S}_i$  μετά τα βήματα της πρόβλεψης και διόρθωσης για να εξασφαλιστεί αριθμητική σταθερότητα και σύγκλιση στην λύση Stratonovich. Μετά το πρώτο βήμα, το ενεργό πεδίο πρέπει να επανεκτιμηθεί, καθώς οι ενδιάμεσες θέσεις των σπιν έχουν μεταβληθεί. Θα πρέπει να σημειωθεί ότι το θερμικό πεδίο δεν μεταβάλλεται μεταξύ των βημάτων. Το δεύτερο βήμα (διόρθωση) χρησιμοποιεί την θέση σπιν που έχει προβλεφθεί και το αναθεωρημένο ενεργό πεδίο  $\mathbf{H}_{eff}^i$ , για τον υπολογισμό του τελικής θέσης των σπιν, καταλήγοντας σε ένα ολοκληρωμένο βήμα ολοκλήρωσης, που δίνεται από τη σχέση:

$$\mathbf{S}_i^{t+\Delta t} = \mathbf{S}_i + \frac{1}{2}[\Delta\mathbf{S} + \Delta\mathbf{S}']\Delta t \quad (2-30)$$

Όπου

$$\Delta\mathbf{S}' = -\frac{\gamma}{(1+\lambda^2)}[\mathbf{S}'_i \times \mathbf{H}'_{eff} + \lambda\mathbf{S}'_i \times (\mathbf{S}'_i \times \mathbf{H}'_{eff})] \quad (2-31)$$

Το βήμα πρόβλεψης της ολοκλήρωσης πραγματοποιείται σε κάθε σύστημα σπιν πριν να γίνει εκτίμηση του βήματος διόρθωσης για κάθε σπιν. Αυτό επαναλαμβάνεται πολλές φορές, ώστε να μπορεί να επιτευχθεί προσομοίωση της χρονικής εξέλιξης. Αν και η μέθοδος Heun έχει εξαχθεί συγκεκριμένα για στοχαστική εξίσωση με πολλαπλασιαστικό θόρυβο, η απουσία του όρου του θορύβου οδηγεί τη μέθοδο Heun σε μιας δεύτερης τάξης Runge-Kutta μέθοδο. Για να δοκιμαστεί η εφαρμογή της μεθόδου ολοκλήρωσης Heun, μπορεί να συγκριθεί το υπολογιζόμενο αποτέλεσμα με την αναλυτική λύση της LLG. Για την απλή περίπτωση ενός σπιν που είναι αρχικά προσανατολισμένο κατά μήκος του άξονα x, η επιβολή ενός πεδίου κατά τον άξονα z θα έχει ως αποτέλεσμα τη χρονική εξέλιξη που περιγράφεται ως εξής:

$$S_x(t) = \operatorname{sech}\left(\frac{\lambda\gamma H}{1+\lambda^2}t\right) \cos\left(\frac{\gamma H}{1+\lambda^2}t\right)$$

$$S_y(t) = \operatorname{sech}\left(\frac{\lambda\gamma H}{1+\lambda^2}t\right) \sin\left(\frac{\gamma H}{1+\lambda^2}t\right)$$

$$S_z(t) = \tan\left(\frac{\lambda\gamma H}{1+\lambda^2}t\right)$$

(2-32)

## 2.9 Μέθοδος Monte Carlo

Η μελέτη δυναμικής των σπιν είναι ιδιαίτερα χρήσιμη για την απόκτηση πληροφοριών σχετικά με τις μαγνητικές ιδιότητες ή τις διαδικασίες αντιστροφής ενός συστήματος σε δυναμική κατάσταση. Όμως, συχνά, δεν είναι η βέλτιστη μέθοδος για τον προσδιορισμό των ιδιοτήτων σε κατάσταση ισορροπίας, όπως για παράδειγμα η εξαρτώμενη από τη θερμοκρασία μαγνήτιση. Ο αλγόριθμος Monte Carlo Metropolis παρέχει έναν τρόπο προσομοίωσης θερμοκρασιακών επιδράσεων, όπου δεν απαιτείται δυναμική, εξαιτίας της άμεσης σύγκλισης στην ισορροπία και τη σχετική ευκολία εφαρμογής.

Ο αλγόριθμος Monte Carlo Metropolis για ένα κλασικό σύστημα σπιν διαμορφώνεται ως εξής: Πρώτα επιλέγεται ένα τυχαίο σπιν  $i$  και η αρχική κατεύθυνση σπιν  $\mathbf{S}_i$  μεταβάλλεται τυχαία στη νέα θέση  $\mathbf{S}'_i$ . Στη συνέχεια γίνεται εκτίμηση της μεταβολή στην ενέργεια  $\Delta E = E(\mathbf{S}'_i) - E(\mathbf{S}_i)$ , μεταξύ της παλιάς και της νέας θέσης και η κίνηση που έγινε (δοκιμαστική) γίνεται αποδεκτή με πιθανότητα

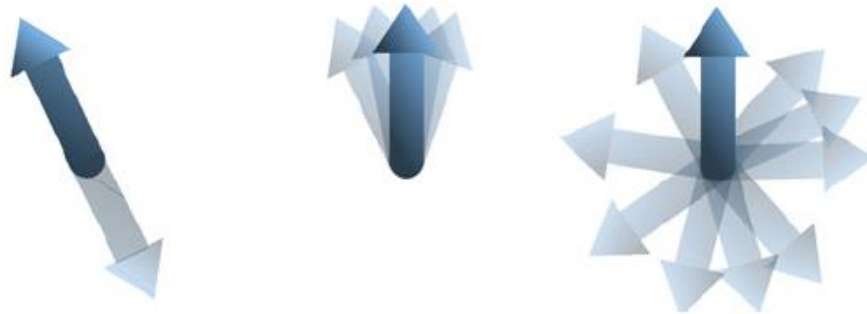
$$P = \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad (2-33)$$

Με σύγκριση με ένα ομοιόμορφο τυχαίο αριθμό, στο εύρος 0-1. Πιθανότητες μεγαλύτερες από 1, αντιστοιχούν σε μείωση της ενέργειας και γίνονται αποδεκτές χωρίς όρους. Αυτή η διαδικασία

επαναλαμβάνεται μέχρι να επιχειρηθούν  $N$  δοκιμαστικές κινήσεις, όπου  $N$  είναι ο αριθμός των σπιν όλου του συστήματος. Κάθε σετ από  $N$  προσπάθειες αντιστοιχεί σε ένα μεμονωμένο βήμα Monte Carlo.

Η φύση της δοκιμαστικής κίνησης είναι σημαντική εξαιτίας των δύο απαιτήσεων κάθε αλγορίθμου Monte Carlo οι οποίες είναι η εργοδικότητα και η αντιστρεψιμότητα. Η εργοδικότητα εκφράζει την απαίτηση ότι όλες οι πιθανές καταστάσεις του συστήματος είναι προσβάσιμες, ενώ η αντιστρεψιμότητα εκφράζει την απαίτηση της αμετάβλητης πιθανότητας μετάβασης μεταξύ δύο καταστάσεων και, πιο συγκεκριμένα,  $P(S_i \rightarrow S'_i) = P(S'_i \rightarrow S_i)$ . Η αντιστρεψιμότητα είναι εμφανής, δεδομένου ότι η πιθανότητα της μεταβολής ενός σπιν εξαρτάται μόνο από την αρχική και την τελική ενέργεια. Η εργοδικότητα είναι εύκολο να ικανοποιηθεί μετακινώντας ένα επιλεγμένο σπιν σε μια τυχαία θέση στη μοναδιαία σφαίρα, όμως αυτό συνδέεται με την ανεπιθύμητη συνέπεια στις χαμηλές θερμοκρασίες, καθώς σημαντικές αποκλίσεις από τη συγγραμική κατεύθυνση είναι μάλλον απίθανες, εξαιτίας της ισχύος της αλληλεπίδρασης ανταλλαγής. Έτσι, σε χαμηλές θερμοκρασίες μια σειρά δοκιμαστικών κινήσεων στη μοναδιαία σφαίρα θα οδηγήσει στην απόρριψη των περισσότερων κινήσεων.

Ένας από τους πιο αποτελεσματικούς αλγόριθμους Monte Carlo για τη μελέτη κλασικών μοντέλων σπιν αναπτύχθηκε από τους Hinze και Nowak (14), το οποίο περιλαμβάνει μια συνδυαστική προσέγγιση τριών διαφορετικών κινήσεων: αντιστροφή του σπιν, Γκαουσιανή και τυχαία, όπως απεικονίζεται σχηματικά στην **Εικόνα 2-7**



**Εικόνα 2-7:** Σχηματική αναπαράσταση των τριών κινήσεων Monte Carlo: αντιστροφή του σπιν, Γκαουσιανή και τυχαία (15).

Η αντιστροφή του σπιν αντιστοιχεί στην μεταβολή της κατεύθυνσης του σπιν, έτσι ώστε να ισχύει  $S'_i = -S_i$ . Θα πρέπει να σημειωθεί ότι οι κινήσεις αντιστροφής του σπιν δεν ικανοποιούν από μόνες τους την απαίτηση της εργοδικότητας στο κλασικό μοντέλο σπιν, καθώς οι καταστάσεις που είναι κάθετες στην αρχική κατεύθυνση των σπιν είναι μη προσβάσιμες και, έτσι, πρέπει να γίνεται συνδυασμός με άλλη εργοδική, δοκιμαστική κίνηση. Η Γκαουσιανή δοκιμαστική κίνηση αντιστοιχεί στην κίνηση του σπιν από την αρχική του κατεύθυνση προς κάποιο σημείο πάνω στη μοναδιαία σφαίρα και κοντά στην αρχική θέση, σύμφωνα με την έκφραση:

$$S'_i = \frac{S_i + \sigma_g \Gamma}{|S_i + \sigma_g \Gamma|} \quad (2-34)$$

Όπου  $\Gamma$  είναι η Γκαουσιανή κατανομή και  $\sigma_g$  είναι το πλάτος ενός κώνου γύρω από την αρχική κατεύθυνση του σπιν  $S_i$ . Μετά από τη δημιουργία της δοκιμαστικής θέσης  $S'_i$ , η θέση κανονικοποιείται για να προκύψει ένα σπιν με μοναδιαίο μήκος. Η επιλογή της Γκαουσιανής κατανομής είναι εσκεμμένη, καθώς μετά την κανονικοποίηση οι δοκιμαστικές κινήσεις γίνονται με ομοιόμορφη δειγματοληψία γύρω από τον κώνο. Το πλάτος του κώνου έχει επιλεγεί να είναι εξαρτώμενο από τη θερμοκρασία και της μορφής:

$$\sigma_g = \frac{2}{25} \left( \frac{k_B T}{\mu_B} \right)^{1/5} \quad (2-35)$$

Η Γκαουσιανή δοκιμαστική κίνηση ευνοεί τις μικρές, γωνιακές μεταβολές στην κατεύθυνση του σπιν, στις χαμηλές θερμοκρασίες, δίνοντας ικανοποιητική πιθανότητα αποδοχής για τις περισσότερες θερμοκρασίες.

Η τελική τυχαία, δοκιμαστική κίνηση επιλέγει ένα τυχαίο σημείο στη μοναδιαία σφαίρα, σύμφωνα με την έκφραση:

$$S'_i = \frac{\Gamma}{|\Gamma|} \quad (2-36)$$

Με την παραπάνω έκφραση εξασφαλίζεται η εργοδικότητα και η αποτελεσματική δειγματοληψία σε υψηλές θερμοκρασίες. Για κάθε δοκιμαστικό βήμα επιλέγεται τυχαία μία από τις τρεις δοκιμαστικές κινήσεις, που γενικά οδηγεί σε καλές, αλγοριθμικές ιδιότητες

### 3 Υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης

Η ανάπτυξη οπτικών μεθόδων για τον έλεγχο της μαγνήτισης στα στερεά, έδωσε τη δυνατότητα για τη μελέτη της δυναμικής της μαγνήτισης σε κλίμακα φεμτοδευτερολέπτων, μέσα στο πλαίσιο πειραμάτων pump-probe φασματοσκοπίας. Σε τέτοια πειράματα, αρχικά, γίνεται χρήση παλμού laser για τη διέγερση του μαγνητικού υλικού και, εν συνεχεία, χρησιμοποιείται δεύτερος παλμός για τη μέτρηση της μαγνήτισης μετά από κάποιο χρόνο. Το 1996 οι Beaurepaire κ.α χρησιμοποίησαν αυτή την τεχνική για τη μελέτη της δυναμικής της μαγνήτισης σε λεπτά υμένα Ni, τα οποία είχαν διεγερθεί με fs παλμούς laser (16) και έδειξαν ότι το Ni μπορεί να απομαγνητιστεί από παλμούς laser 60 fs, διερευνώντας, έτσι, τη μαγνητική απόκριση σε κλίμακα χρόνου μικρότερη από 1 πικοδευτερόλεπτο, δηλαδή, πάνω από την αλληλεπίδραση σπιν-τροχιάς. Από τότε ο χειρισμός και έλεγχος της μαγνήτισης με υπερταχείς παλμούς laser έχουν εξελιχθεί σε ένα νέο πεδίο του μοντέρνου μαγνητισμού (*femtosecond magnetism*). Μετά από αυτή την πρώτη παρατήρηση, έγιναν πολλές πειραματικές προσπάθειες για να επιβεβαιωθούν τα ευρήματα στο Ni (17), (18), καθώς και σε ένα μεγάλο εύρος μαγνητικών υλικών, όπως για παράδειγμα σε άλλα μέταλλα μετάπτωσης (Fe (19) και Co (20)), μαγνητικούς ημιαγωγούς, (21) διηλεκτρικά (22) κ.α. Η εργασία των Beaurepaire κ.α. (16) δεν ήταν η πρώτη προσπάθεια για τη διέγερση και έλεγχο της δυναμικής του συστήματος των σπιν με χρήση παλμών laser. Το 1984 Agranat κ.α δεν κατάφεραν να παρατηρήσουν μαγνητικά φαινόμενα σε Ni με χρήση παλμών laser κάτω από νανοδευτερόλεπτο. Πλέον είναι φανερό ότι το πρόβλημα έγκειται στο γεγονός ότι ο παλμός laser ήταν της ίδιας διάρκειας ή ακόμα μεγαλύτερης με τη χαρακτηριστική κλίμακα χρόνου. Παρά τον εμφανή περιορισμό είναι δυνατή η εκτίμηση του χρόνου χαλάρωσης σπιν-πλέγματος σε λεπτά υμένα Gd, ο οποίος εκτιμάται να είναι ίσος με  $100 \pm 80$  ps (23) και είναι σε συμφωνία με τις θεωρητικές εκτιμήσεις. Σε αυτές τις κλίμακες χρόνου όλα τα υποσυστήματα είναι σε θερμοδυναμική ισορροπία μεταξύ τους και, έτσι, η απόκριση του συστήματος ακολουθεί το προφίλ της διέγερσης. Κατά συνέπεια, για να γίνει παρατήρηση υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης απαιτούνται μικρότερης κλίμακας χρόνου διεγέρσεις και ανίχνευση.

Αυτά τα πειράματα έχουν προσελκύσει το ενδιαφέρον πολλών ερευνητών, με στόχο την αποσαφήνιση των θεμελιωδών μηχανισμών και τον έλεγχο των μαγνητικών ιδιοτήτων των υλικών σε κλίμακα χρόνου φεμτοδευτερολέπτων. Παρόλα αυτά, ακόμα και σε σιδηρομαγνητικά υλικά όπως το Ni, δεν είναι πλήρης η κατανόηση των στοιχειωδών μηχανισμών που οδηγούν στη μακροσκοπική απομαγνήτιση σε κλίμακα χρόνου φεμτοδευτερολέπτων. Οι Beaurepaire κ.α εξήγησαν την παρατηρούμενη απώλεια στη μαγνητική τάξη ως να οφείλεται στην αλληλεπίδραση του παλμού laser με τα λεπτά υμένα του Ni, στη βάση του φαινομενολογικού μοντέλου των τριών θερμοκρασιών (3TM). Το 3TM υποθέτει ότι η ενέργεια από τον παλμό laser απορροφάται από το σύστημα των ηλεκτρονίων, το οποίο περιγράφεται από θερμοκρασία  $T_e$ .

Τα κύρια ερωτήματα που εγείρονται αφορούν τον τρόπο μεταφοράς της ενέργειας στο σύστημα των σπιν και τον τρόπο με τον οποίο η μαγνήτιση (ακριβέστερα η γωνιακή στροφορμή) αφήνει το σύστημα. Η πρόκληση έγκειται στην πολυπλοκότητα της παράλληλης και δυναμικής αντιμετώπισης φωτονίων, ηλεκτρονίων, φωνονίων και σπιν σε διάφορες κλίμακες χρόνου και μήκους. Έτσι, ένα σημείο έναρξης για τη μοντελοποίηση της εξέλιξης της εκτός ισορροπίας κατάστασης που έχει προκύψει μετά από το βομβαρδισμό ενός μαγνητικού υλικού από ισχυρούς παλμούς laser fs, θα μπορούσε να είναι η παρακολούθηση της ροής της στροφορμής και/ή της ροής της ενέργειας μεταξύ των διαφόρων



συστημάτων που εμπλέκονται στη διεργασία. Παρά τα γεγονός ότι ο ρόλος της μεταφοράς στροφορμής είναι θεμελιώδους σημασίας για τη δυναμική των σπιν σε fs κλίμακα χρόνου, μέχρι στιγμής υπάρχουν αρκετά σημεία που δεν έχουν κατανοηθεί. Θεωρητικές προσεγγίσεις πέρα από τη Born-Oppenheimer δεν είναι εφαρμόσιμες, και κατά συνέπεια, πρέπει να αναπτυχθούν νέες θεωρητικές προσεγγίσεις (9). Η αντιμετώπιση της φυσικής των μεταβολών της μαγνήτισης σε κλίμακες χρόνου fs, είναι εμφανώς αρκετά περίπλοκη και απαιτεί χρονοεξαρτώμενη σχετιοιστική κβαντομηχανική σε προσέγγιση πολλών σωμάτων (24). Ένα σημαντικό πρόβλημα είναι το ανοιχτό ζήτημα σχετικά με το ρόλο των διαφόρων υποσυστημάτων (φωτονίων, φωνονίων, ηλεκτρονίων και σπιν) κατά τη υπερταχεία μεταφορά στροφορμής.

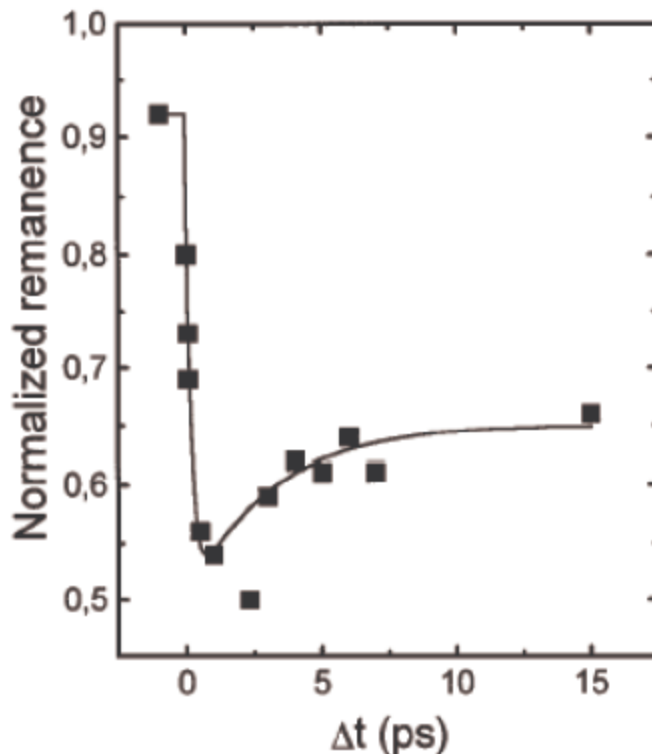
Σε αυτή την κατεύθυνση έχουν γίνει πολλές πειραματικές προσπάθειες για να αποκαλυφθούν οι μικροσκοπικές διαδικασίες με τη χρήση *ab initio* υπολογισμών. Η πρώτη θεωρητική προσέγγιση στηρίζεται στη συνεργατική επίδραση του εξωτερικού πεδίου του laser και της εσωτερικής σύζευξης σπιν-τροχιάς (25). Άλλη προσέγγιση περιλαμβάνει την άμεση επίδραση του laser, στην οποία υποστηρίζεται ότι μια άμεση σύζευξη του laser με το σύστημα των σπιν, πέρα από την αλληλεπίδραση σπιν-τροχιάς, που συνεισφέρει σημαντικά στην απομαγνήτιση. (26). Πολλές μελέτες εστιάζουν σε διαδικασίες σκέδασης ηλεκτρονίων-φωνονίων τύπου Elliot –Yafet (27), όπου η αλληλεπίδραση σπιν-τροχιάς μετριάζεται από την αντιστροφή του σπιν με μια συγκεκριμένη πιθανότητα, όταν ένα ηλεκτρόνιο σκεδάζεται από ένα φωνόνιο. Αλλά πειράματα εστιάζουν στη σημαντικότητα της απευθείας αλληλεπίδρασης ηλεκτρονίου-μαγνόνιου, η οποία μετριάζεται από τη σύζευξη σπιν-τροχιάς (28) ή την εκπομπή μαγνόνιων εξαιτίας των θερμών ηλεκτρονίων (29). Πρόσφατα έχει προταθεί ο μηχανισμός της υπερδιαχυτικής μεταφοράς σπιν (superdiffusive spin transport). Σε αυτή την περίπτωση η γωνιακή στροφορμή απομακρύνεται από τα θερμά ηλεκτρόνια διαμέσου ενός ενεργού ρεύματος σπιν εξαιτίας της διαφορετικών μέσων ελεύθερων διαδρομών των ηλεκτρονίων στις ζώνες με σπιν πάνω και σπιν κάτω (30). Πρόσφατα πειράματα επιβεβαιώνουν την ύπαρξη της επίδρασης, αλλά το μέγεθος της συνεισφοράς είναι υπό αμφισβήτηση (31).

Η επίδραση της θερμοκρασίας μελετάται μέσω μοντελοποιήσεων της δυναμικής της μαγνήτισης με ατομιστικές προσομοιώσεις βασιζόμενες στην εξίσωση LLG (32) ή σε μικροσκοπικές προσομοιώσεις βασιζόμενες στην εξίσωση LLB (33). Σε αυτά τα μοντέλα υποτίθεται ότι το laser διεγείρει αρχικά το σύστημα των ηλεκτρονίων το οποίο θερμοποιείται σε μερικές δεκάδες fs. Το μαγνητικό σύστημα υπόκειται, εν συνεχεία, σε σύζευξη, μέσω του φαινομενολογικού παράγοντα απόσβεσης στο σύστημα των ηλεκτρονίων το οποίο μπορεί να βρεθεί σε θερμοκρασίες μερικών χιλιάδων K. Η επακόλουθη χαλάρωση των ηλεκτρονίων με το σύστημα των φωνονίων διαρκεί 1-2 ps και εξαρτάται από μηχανισμούς σκέδασης ηλεκτρονίων-φωνονίων. Ο παράγοντας απόσβεσης καθορίζει την κλίμακα χρόνου της υπερταχείας απομαγνήτισης, καθώς και την κλίμακα χρόνου της αργότερης επαναμαγνήτισης. Υποτίθεται ότι οι φυσικοί μηχανισμοί είναι ίδιοι και για τις δύο διαδικασίες (34). Τα μοντέλα είναι σε συμφωνία με τα πειράματα και, έτσι, ενισχύεται η άποψη ότι τα θερμά ηλεκτρόνια έχουν σημαντικό ρόλο στη δυναμική της υπερταχείας απομαγνήτισης.

Οι περισσότεροι από τους μελετώμενους μηχανισμούς βασίζονται στην άμεση διέγερση των ηλεκτρονίων σθένους, τα οποία φέρουν τις μαγνητικές ροπές στα μέταλλα μετάπτωσης. Στα μέταλλα των σπάνιων γαιών η κατάσταση είναι διαφορετική. Τα ηλεκτρόνια σθένους συνεισφέρουν με πολύ μικρή

μαγνητική ροπή, αλλά είναι υπεύθυνα για τη σιδηρομαγνητική τάξη. Το κυρίαρχο μέρος της μαγνητικής ροπής προέρχεται από τα 4f ηλεκτρόνια, τα οποία βρίσκονται κάτω από το επίπεδο Fermi και δεν μπορούν να διεγερθούν άμεσα με παλμούς fs laser. Η δυναμική της απομαγνήτισης των μετάλλων των σπανίων γαιών θεωρείται, κατά συνέπεια, πιο αργή από εκείνη των μετάλλων μετάπτωσης. Τα πειράματα που έχουν γίνει με ns παλμούς laser και δίνουν χρόνο απομαγνήτισης  $100 \pm 80$  ps δε μπορούν να είναι συγκρίσιμα με πειράματα που χρησιμοποιούνται fs laser παλμοί (23). Από τα αποτελέσματα των πειραμάτων της εργασίας (35) προκύπτει ότι τα συστήματα των ηλεκτρονίων, των φωτονίων και των σπιν παραμένουν εκτός ισορροπίας για περίπου 80 ps. Αυτό αντιτίθεται στο γεγονός ότι η δυναμική της μαγνήτισης των μετάλλων μετάπτωσης, όπου η μαγνήτιση ακολουθεί την εξέλιξη της θερμοκρασίας του πλέγματος από τη στιγμή που θα επιτευχθεί ισορροπία μεταξύ ηλεκτρονίων και φωνονίων (36). Σε πρόσφατη μελέτη (37) προτείνεται η απομαγνήτιση σε δύο βήματα του συστήματος των σπιν των 4f ηλεκτρονίων του Gd και του Tb. Για την περίπτωση του Gd προτείνεται ότι η διαδικασία της απομαγνήτισης αποτελείται από ένα πρώτο στάδιο απομαγνήτισης με σταθερά χρόνου ίση με 750 fs και ακολουθεί ένα δεύτερο στάδιο, πιο αργό, με σταθερά χρόνου ίση με 40 ps. Υποστηρίζεται ότι η υπερταχεία πτώση της μαγνήτισης μετριάζεται από την αλληλεπίδραση ανταλλαγής μεταξύ των άμεσα διεγερμένων ηλεκτρονίων σθένους και των μαγνητικών ροπών των 4f ηλεκτρονίων.

Το κεφάλαιο που ακολουθεί, αποτελεί εισαγωγή στις βασικές, θεωρητικές έννοιες που υπεισέρχονται στη μελέτη της υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης και περιλαμβάνει μια σύντομη περιγραφή των γενικών χαρακτηριστικών της δυναμικής των ηλεκτρονίων, των φωτονίων και της μαγνήτισης, όπως αυτή διαμορφώνεται μετά από εφαρμογή fs laser παλμών. Και τα τρία αυτά υποσυστήματα θα αντιμετωπιστούν μεν φαινομενολογικά, αλλά σε μικροσκοπική βάση. Αρχικά, θα δοθεί έμφαση στην αλληλεπίδραση των υποσυστημάτων ηλεκτρονίων και φωνονίων τόσο με τους παλμούς laser, όσο και μεταξύ τους. Στα αρχικά στάδια, η σύζευξη ηλεκτρομαγνητικού πεδίου του fs laser παλμού με το σύστημα ηλεκτρονίων του μετάλλου (24), (38), οδηγεί στο σχηματισμό μίας συνεκτικής και συλλογικής πόλωσης του νέφους των ηλεκτρονίων, η οποία εξαφανίζεται, σχεδόν, αμέσως ( $< 10$ fs) (16). Εν συνεχεία, διαμέσου ανελαστικών σκεδάσεων ηλεκτρονίου-ηλεκτρονίου προκύπτει μια θερμή κατανομή ηλεκτρονίων (39). Μετά τη θέρμανση του νέφους των ηλεκτρονίων, παραμένει ακόμα θερμική ανισορροπία μεταξύ ηλεκτρονίων και πλέγματος. Η σύζευξη ηλεκτρονίων-φωνονίων επιτρέπει τη μεταφορά της πλεονάζουσας ενέργειας από το σύστημα των ηλεκτρονίων στο σύστημα των φωνονίων (40), (41). Πέρα από την αρχική, συνεκτική σύζευξη μεταξύ του ηλεκτρομαγνητικού πεδίου του laser και των ηλεκτρονίων, η υπόλοιπη ακολουθία μπορεί να περιγραφεί με το μοντέλο των δυο θερμοκρασιών (2TM-two temperature model) (42).



*Εικόνα 3-1:* Υπερταχεία απομαγνήτιση σιδηρομαγνητικού Ni, επαγόμενη από ένα 60 fs laser παλμό (43)

### 3.1 Υπερταχείες μαγνητικές διαδικασίες επαγόμενες από παλμούς laser: από την αρχική αλληλεπίδραση σπιν-φωτονίου ως την έναρξη της μαγνητικής μεταβολής

#### 3.1.1 Χρονική κλίμακα και μηχανισμοί

Η μελέτη της δυναμική της υπερταχείας μαγνήτισης βασίζεται στις εξής δύο θεωρήσεις: τις θερμικές (thermal effects) επιδράσεις και στις σύμφωνες επιδράσεις (coherent effects). Οι πρώτες αφορούν τις εκτός ισορροπίας καταστάσεις των συστημάτων των ηλεκτρονίων, των σπιν και των φωνονίων, ενώ οι δεύτερες σχετίζονται με την τροχιακή και σπιν γωνιακή στροφορμή.

Από τα πειραματικά αποτελέσματα της εργασίας (16) (Εικόνα 3-1) προέκυψε ότι τα σπιν εμπλέκονται στην κλίμακα χρόνου μικρότερη από τα ps, η οποία, τυπικά, συμπίπτει με το χρόνο στον οποίο τα ηλεκτρόνια ισορροπούν με το πλέγμα, σε ένα μέταλλο που έχει διεγερθεί με παλμούς laser. Καταδεικνύεται, κατά αυτό τον τρόπο, η σημασία των θερμικών επιδράσεων, οι οποίες μπορούν να εξηγηθούν με το μοντέλο των τριών θερμοκρασιών (3TM), όπου τα ηλεκτρόνια (φορτία), σπιν και φωνόνια έχουν διαφορετικές, μεταβατικές (transient) θερμοκρασίες, χωρίς περαιτέρω δικαιολόγηση της σύζευξης μεταξύ των φορτίων και των σπιν.

Παράλληλα με τη μελέτη του ρόλου της θερμοποίησης των ηλεκτρονίων στην ταχεία απομαγνήτιση, διάφορες ερευνητικές ομάδες εστίασαν στο ρόλο των σύμφωνων διαδικασιών. Τριών ειδών πειράματα αναβίωσαν την ιδέα της χρήσης των σύμφωνων επιδράσεων μαζί με τις θερμικές προς τον έλεγχο της

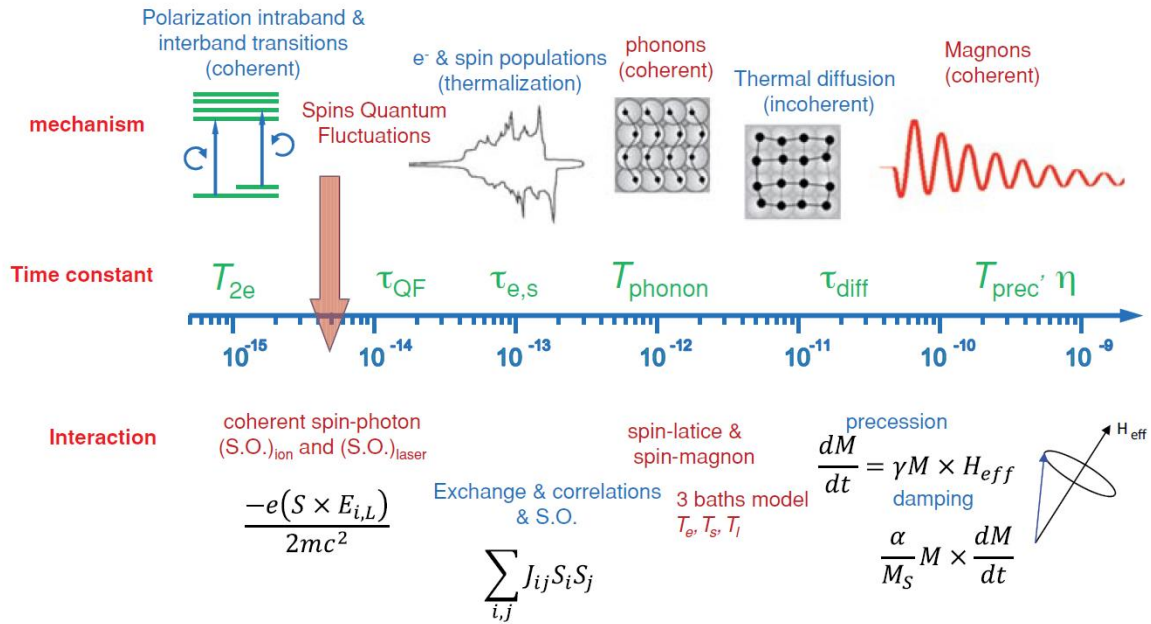
μαγνήτισης σε υλικά με συστήματα σπιν σε τάξη και σε κλίμακες χρόνους μικρότερες από τα ps. Το πρώτο πείραμα περιελάμβανε την αντιστροφή ενός σιδηρομαγνητικού υμενίου  $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ , με επαγωγή ανισοτροπίας, η οποία προκλήθηκε από ένα ισχυρό ηλεκτρικό πεδίο της τάξης των  $10^9 \text{ Vm}^{-1}$  και διάρκειας 70fs, το οποίο παράχθηκε στον γραμμικό επιταχυντή του Stanford. Από τα αποτελέσματα αυτού του πειράματος προέκυψε ότι η δυναμική της μαγνήτισης μπορεί να μεταβληθεί με σύμφωνο τρόπο, επάγοντας ανισοτροπία, εξαιτίας της παραμόρφωσης του νέφους των ηλεκτρονίων σθένους, τα οποία είναι συζευγμένα με τα σπιν μέσω της αλληλεπίδρασης σπιν-τροχιάς. Σε άλλο πείραμα χρησιμοποιήθηκαν οπτικοί παλμοί διάρκειας 50 fs και δείχτηκε ότι το ηλεκτρικό πεδίο του παλμού laser μπορεί να τροποποιήσει τη μαγνητο-οπτική απόκριση λεπτών υμενίων Ni και  $\text{CoPt}_3$ . Η παραπάνω επίδραση αποδόθηκε στο ηλεκτρομαγνητικό δυναμικό του πεδίου του laser, το οποίο συνεισφέρει στην αλληλεπίδραση σπιν τροχιάς μαζί με το δυναμικό των ιόντων. Τέλος, ο έλεγχος της μαγνήτισης με σύμφωνο τρόπο δείχτηκε και στην εργασία, όπου επιτεύχθηκε αντιστροφή σε λεπτά υμένα  $\text{GdFeCo}$  με κυκλικά πολωμένους παλμούς fs παλμούς. Από τα παραπάνω προκύπτει ότι τόσο οι θερμικές, όσο και οι σύμφωνες διαδικασίες μπορούν να χρησιμοποιηθούν για τον έλεγχο της μαγνήτισης σε fs κλίμακες χρόνου.

Συνοψίζοντας τους διάφορους μηχανισμούς που εμπλέκονται στις χρονικές εκφάνσεις της υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης θα πρέπει να ληφθεί υπόψη η κλίμακα χρόνου που σχετίζεται με τις διάφορες αλληλεπιδράσεις. Στην Εικόνα 3-2 απεικονίζονται οι διάφοροι μηχανισμοί αλληλεπίδρασης. Στις μικρές κλίμακες χρόνου η σύμφωνη αλληλεπίδραση σπιν μετριάζεται από τις διπολικές μεταπτώσεις, οι οποίες διεγείρουν επιλεκτικά ενεργειακές ζώνες με δεδομένη τροχιακή στροφορμή και με σύζευξη με τα σπιν μέσω της αλληλεπίδρασης σπιν τροχιάς. Η διεργασία που προκύπτει είναι σύμφωνη και φθίνει με χαρακτηριστικό χρόνο  $T_{2e}$  των ηλεκτρονιακών επιπέδων, όπου στα μέταλλα είναι της τάξης απόσβεσης του ηλεκτρονιακού πλάσματος ( $\sim 0.1 \text{ fs}$  για το συμπαγές και  $\sim 1 \text{ fs}$  για τα επιφανειακά πλασμόνια). Αυτές οι διαδικασίες περιλαμβάνουν μεταπτώσεις μεταξύ των ζωνών (interband) και μέσα στη ζώνη (intra-band), οι οποίες έχουν ως αποτέλεσμα διαφορετική φασματική εξάρτηση των οπτικών και μαγνητο-οπτικών αποκρίσεων. Στην ίδια κλίμακα χρόνου κβαντικές διακυμάνσεις (quantum fluctuations) της μαγνήτισης είναι επίσης σημαντικές. Αντιστοιχούν στις τοπικές μεταβολές της μαγνήτισης, οι οποίες είναι αποτέλεσμα του ευρέος ενεργειακού φάσματος  $W$ , που σχετίζεται με την κατανομή των σπιν. Δεδομένου ότι ο τελεστής της πυκνότητας των σπιν δεν αντιμετατίθεται με τη Χαμιλτονιανή, αναμένεται ότι οι τοπικές διακυμάνσεις των σπιν με τυπικό χρόνο  $\tau_{QF} = \frac{2\pi\hbar}{W} \sim 1 \text{ fs}$ .

Στην κλίμακα χρόνου των 100 fs, ο χρόνος θερμοποίησης  $\tau_{e,s}$  των πληθυσμών των φορτίων και των σπιν είναι αποτέλεσμα της ανακατανομής των ηλεκτρονίων στον k-χώρο, τα οποία έχουν διεγερθεί πάνω από το επίπεδο Fermi. Η θωρακισμένη αλληλεπίδραση Coulomb ( $E_{Coul} \sim 1 \text{ eV}$ ) και η αλληλεπίδραση ανταλλαγής  $E_{exch} \sim 0.5 \text{ eV}$  είναι οι βασικές, εμπλεκόμενες διεργασίες, οι οποίες οδηγούν σε ανελαστική σκέδαση των ηλεκτρονίων και πλήρωση της ζώνης κοντά στο επίπεδο Fermi (εξαιτίας της αρχής του Pauli).

Οι αντίστοιχοι χρόνοι σκέδασης προκύπτουν από την αρχή της απροσδιοριστίας ενέργειας χρόνου του Heisenberg:  $\Delta E \Delta t \geq 2\pi\hbar$ , αλλά η κλίμακα χρόνου της συνολικής διαδικασίας προκύπτει από ολοκλήρωση στην τελική πυκνότητα των καταστάσεων. Ανάλογα με το βαθμό εντοπισμού των ηλεκτρονίων (εντοπισμένος και μη εντοπισμένος σιδηρομαγνητισμός) αναμένεται η διατήρηση κάποιας τοπικής τάξης, με περιοχές που εκτείνονται ως μερικά νανόμετρα. Αυτές οι περιοχές εξαφανίζονται

εξαιτίας των θερμικών διακυμάνσεων κατά τη θέρμανση του πλέγματος και μετριάζονται από τις αλληλεπιδράσεις ηλεκτρονίων - φωνονίων ( $E_{phon} \sim 10^{-3} eV$ ). Η συνολική θέρμανση του πλέγματος επιτυγχάνεται σε κλίμακα χρόνου  $\sim 1ps$  και εξαρτάται από την ειδική θερμότητα των ηλεκτρονίων και των σπιν. Σημειώνεται ότι η αλληλεπίδραση ηλεκτρονίων – φωνονίων περιέχει μια σύμφωνη συνεισφορά, η οποία σχετίζεται με την αρχική διαστολή του πλέγματος, εξαιτίας της θέρμανσης από παλμό laser. Αν το υλικό έχει σημαντικό πάχος (μεγαλύτερο από το βάθος απορρόφησης του φωτός στο μέταλλο), διαδίδεται ένας διαμήκης, ακουστικός παλμός, ο οποίος οδηγεί σε ενδιαφέροντα μαγνητο-ακουστικά φαινόμενα. Στην κλίμακα χρόνου από μερικά ps ως ns, η δυναμική των σπιν καθορίζεται από τη μεταπτωτική κίνηση της μαγνήτισης, με τους δύο χαρακτηριστικούς χρόνους  $T_{prec}$  (περίοδος μετάπτωσης) και  $\eta$  την απόσβεση της μετάπτωσης. Στη συνέχεια γίνεται προσπάθεια διαχωρισμού μεταξύ των δύο τάξεων μηχανισμών: «θερμικών» και «σύμφωνων».



**Εικόνα 3-2:** Μηχανισμοί και αλληλεπιδράσεις που σχετίζονται με τη δυναμική της μαγνήτισης: χρονική απεικόνιση (44)

### 3.1.2 Σύμφωνη αλληλεπίδραση σπιν-φωτονίων

Η έννοια της σύμφωνης αλληλεπίδρασης έχει δύο διαφορετικές εκφάνσεις όταν μελετάται η δυναμική της μαγνήτισης, επαγόμενη από παλμούς laser. Η πρώτη αναφέρεται στη σχέση φάσης μεταξύ του παλμού laser και των συναρτήσεων των κυμάτων σπιν (Coherent spin-photon dynamics), ενώ η δεύτερη στη φάση του κύματος μαγνήτισης αναφορικά με μια ξαφνική διαταραχή της μαγνητικής, γωνιακής στροφορμής (μαγνητικός παλμός ή απομαγνήτιση), η οποία προκαλεί μεταπτωτική κίνηση.

Στην περίπτωση της δυναμικής των σπιν λόγω της αλληλεπίδρασης με το laser, η μεταβολή της μαγνήτισης, εμφανώς, καταλήγει από οπτικές μεταβάσεις σε διεγερμένες καταστάσεις σπιν. Αυτές οι οπτικές μεταβάσεις μπορούν να θεωρηθούν, σε πρώτη προσέγγιση, ως διπολικές οπτικές μεταβάσεις, οι οποίες στην απλούστερη περίπτωση τους ενός διεγερμένου ηλεκτρονίου, περιγράφονται από τη

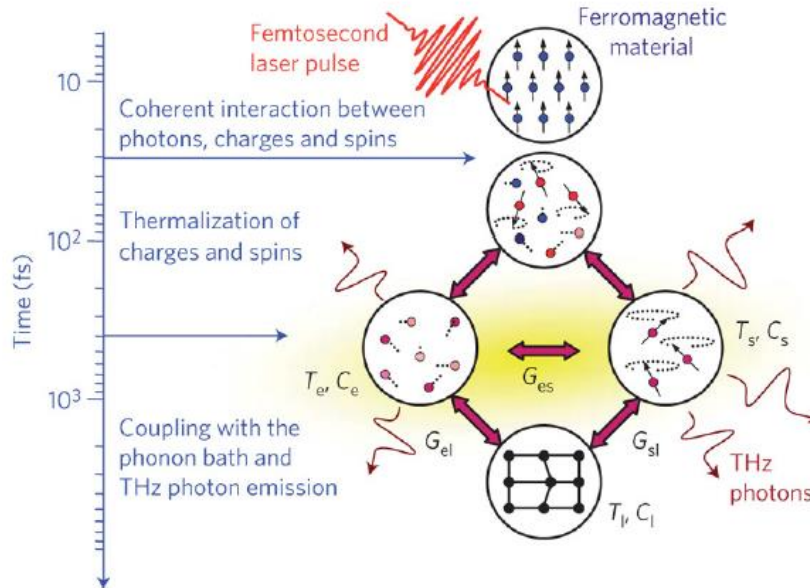
Χαμιλτονιανή αλληλεπίδρασης  $H_{int} = e\Pi\mathbf{A}_L/m$ , όπου  $\mathbf{A}_L$  είναι το διάνυσμα δυναμικού του πεδίου του laser και  $\Pi$  είναι η γενικευμένη ορμή των ηλεκτρονίων. Αυτή η γενικευμένη ορμή περιλαμβάνει την κινητική ορμή  $\mathbf{p}$ , η οποία είναι υπεύθυνη για τις οπτικές μεταπτώσεις και δεν περιλαμβάνει τα σπιν με στοιχεία πίνακα αλληλεπίδρασης  $\langle j|\mathbf{p}\mathbf{A}_L|i\rangle$  μεταξύ των κβαντικών καταστάσεων  $|i\rangle$  και  $|j\rangle$  και τη στροφορμή  $-e(\mathbf{S} \times \mathbf{E}_{ion})/2mc^2$  εξαιτίας της αλληλεπίδρασης σπιν τροχιάς μεταξύ του διανύσματος σπιν  $\mathbf{S}$  και του πεδίου  $\mathbf{E}_{ion}$  των ιόντων και περιγράφεται από τη σχέση :  $(S.O.)_{ion} = e^2\langle j|(\mathbf{S} \times \mathbf{E}_{ion})\mathbf{A}_L|i\rangle/2m^2c^2$ . Ένας άλλος παράγοντας που θα πρέπει να ληφθεί υπ' όψιν είναι εκείνος που αντιστοιχεί στην αλληλεπίδραση των σπιν με το δυναμικό του πεδίου του laser και είναι παρόμοιος με τον παράγοντα αλληλεπίδρασης σπιν-τροχιάς. Ο παράγοντας αυτός δίνεται από τη σχέση:  $(S.O.)_{laser} = -e\langle j|(\mathbf{p} \times \mathbf{S})\mathbf{E}_L|i\rangle/2m^2c^2$ .

Συνοψίζοντας οι τρεις παράγοντες αλληλεπίδρασης είναι η κινητική ορμή, ο παράγοντας  $(S.O.)_{ion}$  και ο παράγοντας  $(S.O.)_{laser}$ .

### 3.1.3 Θερμικές επιδράσεις της διέγερσης με laser

Στα πειράματα φασματοσκοπίας pump-probe, όπως αναφέρθηκε ανωτέρω, χρησιμοποιείται ένας παλμός fs laser για τη διέγερση του υλικού. Η απορρόφηση της ενέργειας, που μεταφέρεται από τον παλμό, επάγει μια κατάσταση ανισορροπίας μεταξύ των εμπλεκόμενων υποσυστημάτων: ηλεκτρονίων, φωτονίων και σπιν. Η

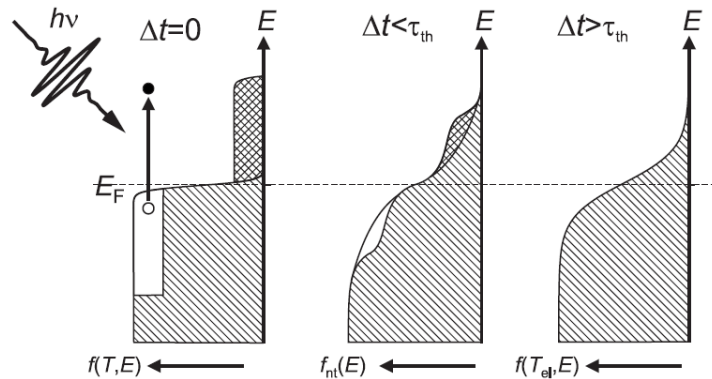
Εικόνα 3-3 αποτελεί σχηματική αναπαράσταση της όλης ακολουθίας των διεργασιών που προκύπτει μετά από την αλληλεπίδραση του μαγνητικού υλικού με τον παλμό laser. Στη συνέχεια γίνεται επικέντρωση του ενδιαφέροντος στην εκτός ισορροπίας δυναμική μεταξύ των συστημάτων των ηλεκτρονίων και των φωτονίων.



**Εικόνα 3-3:** Σχηματική αναπαράσταση των μηχανισμών που λαμβάνουν χώρα στην υπερταχεία δυναμική της μαγνήτισης (43)

## 3.1.3.1 Συλλογική δυναμική των ηλεκτρονίων

Στην περίπτωση της θερμικής ισορροπίας και πριν την αλληλεπίδραση με τον παλμό laser, τα ηλεκτρόνια σε ένα μέταλλο ακολουθούν κατανομή Fermi – Dirac με καλώς ορισμένη θερμοκρασία  $T_e$ . Αυτή η θερμοκρασία συμπίπτει με τη μακροσκοπική θερμοκρασία του δείγματος  $T_0$ . Η διέγερση με ένα ισχυρό fs παλμό laser οδηγεί το σύστημα εκτός ισορροπίας. Στα μέταλλα σχεδόν όλη η ενέργεια εναποτίθεται στο σύστημα των ηλεκτρονίων, όπου ο fs παλμός διεγείρει τα ηλεκτρόνια σε υψηλότερα επίπεδα. Η απορρόφηση ενός fs παλμού laser έχει ως αποτέλεσμα μια συνεκτική και συλλογική πόλωση του πληθυσμού των ηλεκτρονίων (24). Αυτή η συλλογική κίνηση των ηλεκτρονίων καταστρέφεται από ελαστικά φαινόμενα σκεδάσεων ηλεκτρονίων-ηλεκτρονίων, ηλεκτρονίων-φωνονίων, και ηλεκτρονίων-ατελειών. Κατά συνέπεια, δημιουργείται ένα σύνολο μη συνεκτικών ζευγών ηλεκτρονίων-οπών, που δεν ακολουθούν τη στατιστική Fermi-Dirac. Η εικόνα που ακολουθεί είναι σχηματική αναπαράσταση της κατανομής που προκύπτει (39). Ο συνολικός αριθμός των μη θερμικών ηλεκτρονίων που έχει διεγερθεί, καθορίζεται από την ενέργεια του παλμού και την πυκνότητα της απορροφούμενης ενέργειας. Μετά τη θερμοποίηση των ηλεκτρονίων προκύπτει μια καλώς ορισμένη Fermi-Dirac κατανομή σε χρονικό διάστημα μερικών fs. Έτσι, τα ηλεκτρόνια αποκτούν μια καλώς ορισμένη θερμοκρασία, η οποία μπορεί να μετρηθεί με πειράματα φωτοεκπομπής. Εξαιτίας της μικρής θερμοχωρητικότητας του ηλεκτρονιακού συστήματος, αυτή η θερμοκρασία μπορεί να είναι αρκετά υψηλή, της τάξεως των μερικών χιλιάδων K. Το σύστημα των φωνονίων παραμένει, σχεδόν, αμετάβλητο από τα φωτόνια laser, οδηγώντας έτσι σε μια κατάσταση ανισορροπίας μεταξύ των ηλεκτρονίων και των φωνονίων. Η δυναμική της επακόλουθης χαλάρωσης εξαρτάται από τις σκεδάσεις ηλεκτρονίων-φωνονίων, αλλά και από τις διαδικασίες διάχυσης και μεταφοράς. Η εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων και των φωνονίων μπορεί να προσομοιωθεί με χρήση του μοντέλου των δύο θερμοκρασιών.



**Εικόνα 3-4:** Σχηματική αναπαράσταση της χαλάρωσης του συστήματος των ηλεκτρονίων του μετάλλου, μετά από διέγερση με παλμό laser. Ξεκινώντας από κατανομή Fermi-Dirac  $f(E, T)$  σε ισορροπία, ο παλμός laser δημιουργεί μια ισχυρή μη-θερμική κατανομή ηλεκτρονίων  $f_{nl}$ , η οποία θερμοποιείται σε χρόνο  $\tau_{th}$ , μέσω των αλληλεπιδράσεων μεταξύ των ηλεκτρονίων και διέγερση δευτερογενών ηλεκτρονίων (43)

### 3.1.3.2 Θερμοποίηση των ηλεκτρονίων

Μετά από κάποιο χρόνο  $\tau_{th}$  (χρόνος θερμοποίησης) τα οπτικά διεγερμένα ηλεκτρόνια αγωγιμότητας θερμοποιούνται μέσω αλληλεπιδράσεων μεταξύ των ηλεκτρονίων και από τη διέγερση δευτερογενών ηλεκτρονίων. Αυτή η διαδικασία (βλέπε και Εικόνα 3-4) είναι γνωστή ως ηλεκτρονιακή θερμοποίηση και έχει ως αποτέλεσμα μια κατανομή Fermi θερμών ηλεκτρονίων, τα οποία χαρακτηρίζονται από τη θερμοκρασία  $T_e$ . Ηλεκτρονιακή θερμοκρασία της τάξης των μερικών 1000K μπορεί να επιτευχθεί μέσω της σύζευξης των φωνονίων, πριν τη μεταφορά σημαντικού ποσού ενέργειας. Αυτές οι υψηλές θερμοκρασίες ηλεκτρονίων μπορούν και αναπτύσσονται εξαιτίας της μικρής θερμοχωρητικότητας του ηλεκτρονιακού συστήματος συγκριτικά με εκείνο των φωνονίων.

Η απορρόφηση της ενέργειας από ένα παλμό laser δεν είναι ομογενής μέσα στο δείγμα, αλλά φθίνει εκθετικά από την επιφάνεια (38). Αυτή η ανομοιογενής διέγερση καταλήγει σε χωρική βαθμίδα, στην οποία οφείλεται η αποτελεσματική μεταφορά ενέργειας εκτός από τη διεγερμένη περιοχή. Αυτή η διαδικασία μεταφοράς καλείται «βαλλιστική μεταφορά» και αναπτύσσεται στην ταχύτητα Fermi και συναγωνίζεται με σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων και ηλεκτρονίων-φωνονίων για την ανακατανομή της φωτο-εκπεμπόμενης ενέργειας μέσα στη διεγερμένη περιοχή. Εξαιτίας της βαλλιστικής μεταφοράς, η ενέργεια μπορεί να κατανεμηθεί ταχύτατα σε μεγάλες αποστάσεις και σε μεγαλύτερο βάθος στο δείγμα (45). Επιπλέον, η βαθμίδα της θερμοκρασίας οδηγεί τα θερμά ηλεκτρόνια σε βαθύτερα σημεία του δείγματος, με μικρότερη ταχύτητα από αυτή της βαλλιστικής μεταφοράς.

Οι διαδικασίες της ηλεκτρονιακής θερμοποίησης που περιεγράφηκαν ανωτέρω λαμβάνουν χώρα σε κλιμακικές χρόνους της τάξης των 10-100 fs (

Εικόνα 3-3) και εξαρτάται από το υλικό, ενώ το ηλεκτρονιακό σύστημα μπορεί να περιγραφεί από μια χρονοεξαρτώμενη συνάρτηση  $T_e(t)$ .

### 3.1.3.3 Φαινομενολογικό μοντέλο δύο θερμοκρασιών (2TM)

Κατά τη μελέτη της επίπτωσης των παλμών laser φεμτοδευτερολέπτων, πρέπει να είναι δυνατή η προσομοίωση της επίδρασης της θέρμανσης που προκύπτει. Ένα μεγάλο πόσο της ενέργειας επικάθεται στο υλικό, σε μικρό χρονικό διάστημα και, κατά αυτόν τον τρόπο οι διάφορες αποθήκες θερμότητας βγαίνουν εκτός ισορροπίας. Οι πιο σχετικές αποθήκες θερμότητας είναι εκείνες των συστημάτων σπιν, ηλεκτρονίων και φωνονίων. Στα πικοδευτερολέπτα που ακολουθούν (τυπική κλιμακία χρόνου για τα μέταλλα) υπάρχει ακόμα ανισορροπία μεταξύ ηλεκτρονίων και πλέγματος, που υποτίθεται ότι είναι σε τοπική, θερμική ισορροπία με θερμοκρασία  $T_p$ . Η σύζευξη ηλεκτρονίων-φωνονίων επιτρέπει τη μεταφορά ενέργειας μεταξύ των θερμών ηλεκτρονίων και των φωνονίων. Η μεταφορά ενέργειας, με τη σειρά της, έχει ως αποτέλεσμα τη μείωση της ηλεκτρονιακής θερμοκρασίας και την αύξηση της θερμοκρασίας του πλέγματος, μέχρι να υπάρχει εξισορρόπηση μεταξύ των δύο υποσυστημάτων. Η ισχύς της σύζευξης μεταξύ των δύο υποσυστημάτων καθορίζει το διάστημα του χρόνου, μέσα στο οποίο θα ολοκληρωθεί η μεταφορά της ενέργειας. Η όλη ακολουθία της διέγερσης και της θερμοποίησης μπορεί να περιγραφεί από το «μοντέλο των δύο θερμοκρασιών-2TM», το οποίο αντιμετωπίζει τα συστήματα των ηλεκτρονίων και των φωνονίων ως συζευγμένα λουτρά θερμότητας (heat baths) (42). Αυτό το μοντέλο λαμβάνει τη δημιουργία των μη θερμών ηλεκτρονίων και την επακόλουθη αποκατάσταση σε θερμοποιημένα ηλεκτρόνια ως απείρως ταχεία. Τα λουτρά θερμότητας των ηλεκτρονίων και των φωνονίων δεν μπορούν να προσομοιωθούν απευθείας, αλλά μπορεί να γίνει

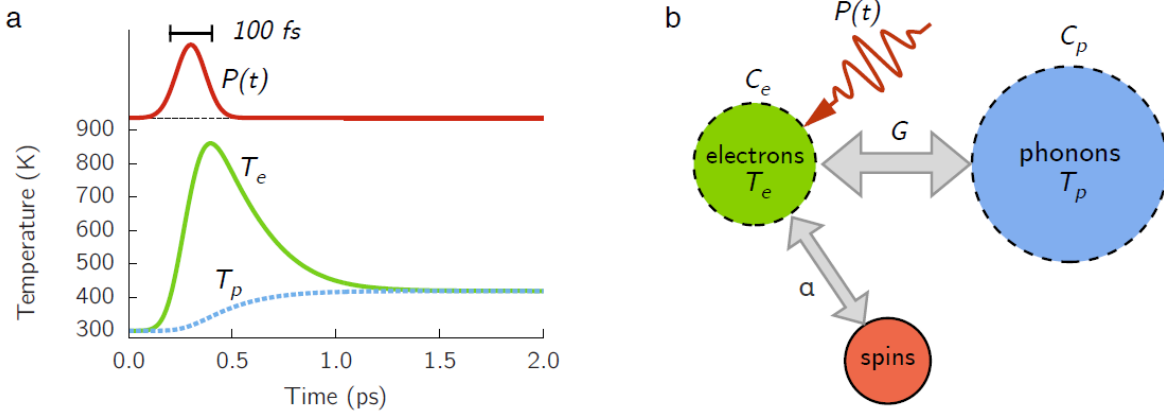


μοντελοποίηση της θερμοκρασίας τους με το μοντέλο των δύο θερμοκρασιών. Το συγκεκριμένο μοντέλο υποθέτει ότι η θερμότητα, αρχικά, εναποτίθεται, από το laser στο λουτρό θερμότητας των ηλεκτρονίων, μια μετά επέρχεται θερμοδυναμική ισορροπία με το λουτρό θερμότητας των φωνονίων (46). Αυτό περιγράφεται από τη σχέση:

$$C_e \frac{dT_e}{dt} = -G_{ep}(T_e - T_p) + P(t) \quad (3-1)$$

$$C_p \frac{dT_p}{dt} = G_{ep}(T_e - T_p) \quad (3-2)$$

Όπου  $T_e$  και  $T_p$  είναι οι θερμοκρασίες των ηλεκτρονίων και των φωνονίων,  $C_e$  και  $C_p$  είναι οι θερμοχωρητικότητες και  $G_{ep}$  αντιστοιχεί στον παράγοντα σύζευξης μεταξύ ηλεκτρονίων και φωνονίων. Η τιμή του  $G_{ep}$  καθορίζει το ρυθμό με τον οποίο η θερμική ενέργεια μεταφέρεται από το σύστημα των ηλεκτρονίων στο λουτρό θερμότητας των φωνονίων. Το λουτρό θερμότητας των ηλεκτρονίων θεωρείται ότι διαθέτει μικρότερη θερμοχωρητικότητα από το λουτρό θερμότητας των φωνονίων, και, κατά συνέπεια η θερμοκρασία των ηλεκτρονίων μπορεί να αυξηθεί σε σύντομο χρονικό διάστημα από τη στιγμή της εφαρμογής του παλμού laser, όπως φαίνεται και στην **Εικόνα 3-5**. Το σύστημα σπιν επηρεάζεται ισχυρά από τη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, στην κλίμακα των πικοδευτερολέπτων (47).



**Εικόνα 3-5:** Προφίλ θερμοκρασιών μοντέλου δύο θερμοκρασιών. Μια δέσμη laser με Γκαουσιανή κατανομή  $P(t)$  θερμαίνει το ηλεκτρονιακό σύστημα στο οποίο είναι συζευγμένα τα σπιν. Η μικρή θερμοχωρητικότητα του ηλεκτρονιακού συστήματος ( $C_e$ ) έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση σε υψηλές θερμοκρασίες. Η σύζευξη με το σύστημα των φωνονίων αφαιρεί θερμότητα από το σύστημα των ηλεκτρονίων

### 3.1.3.4 Φαινομενολογικό μοντέλο τριών θερμοκρασιών (3TM)

Από τα πρώτα κιάλας πειράματα με χρήση laser για τον έλεγχο της μαγνήτισης, έγινε φανερό ότι η απομαγνήτιση είναι μία σύνθετη διαδικασία, όπου συμμετέχουν πολλές συνιστώσες που περιλαμβάνουν πολλές διεργασίες χαλάρωσης. Οι αλληλεπιδράσεις σε ένα τέτοιο σύστημα μπορούν ποιοτικά να περιγραφούν με τη βοήθεια ενός απλού μοντέλου που περιέχει τρεις διαφορετικές, αλλά αλληλοεπιδρούσες αποθήκες, δηλαδή τα ηλεκτρόνια, το πλέγμα και τα σπιν (**Εικόνα 3-6**). Αυτές οι τρεις αποθήκες συνδέονται με αλληλεπιδράσεις διαφορετικής προέλευσης, ενώ μπορεί να τεθεί σε καθεμιά

από αυτές μια συγκεκριμένη ενεργή θερμοκρασία. Σημειώνεται ότι μπορεί να τεθεί θερμοκρασία μόνο αν υποθεθεί ισορροπία μέσα στο υπό θεώρηση υποσύστημα. Λαμβανομένων των σύντομων κλιμάκων χρόνου, αυτή η υπόθεση δεν ισχύει πάντα και θέτει έτσι όριο στην ισχύ του μοντέλου. Το μοντέλο των τριών θερμοκρασιών περιγράφει την χρονική εξέλιξη του συστήματος με τρεις διαφορικές εξισώσεις:

$$\frac{C_e d(T_e)}{dt} = -G_{el}(T_e - T_l) - G_{es}(T_e - T_s) + P(t)$$

$$\frac{C_s d(T_s)}{dt} = -G_{es}(T_s - T_e) - G_{sl}(T_s - T_l)$$

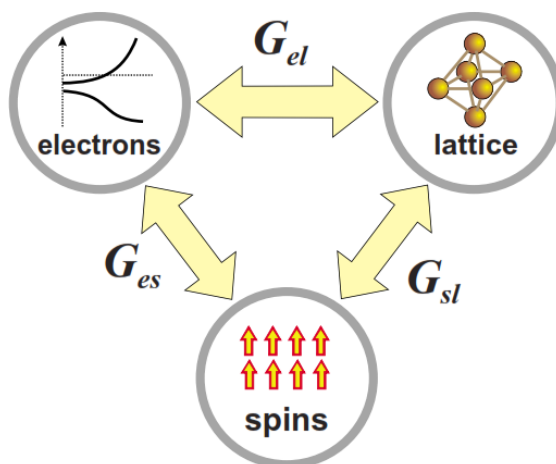
$$\frac{C_l d(T_l)}{dt} = -G_{el}(T_l - T_e) - G_{sl} \quad (3-3)$$

Όπου το  $G_{ij}$  αναπαριστά τη σύζευξη μεταξύ του  $i$  και  $j$  λουτρού, το  $C_i$  περιγράφει τη θερμοχωρητικότητα τους,  $T_i$  είναι η θερμοκρασία κάθε συστήματος και  $P(t)$  είναι η οπτική παράμετρος. Οι συνιστώσες  $G_{ij}$  είναι φαινομενολογικές παράμετροι, οι οποίες αφού προσδιοριστούν δίνουν πληροφορίες για το πόσο ισχυρός είναι ένας συγκεκριμένος δεσμός, αλλά παράλληλα, δεν δίνουν καμία πληροφορία για τη φύση της αλληλεπίδρασης. Ανάλογα με τις θερμοχωρητικότητες  $C_i$ , οι διαφορές μεταξύ των ενεργών θερμοκρασιών μπορεί να είναι πολύ μεγάλες. Για παράδειγμα, από τη στιγμή που η θερμοχωρητικότητα των ηλεκτρονίων είναι, τυπικά, δύο τάξεις μεγέθους μικρότερη από εκείνη του πλέγματος, η  $T_e$  μπορεί να φτάσει τις μερικές χιλιάδες Kelvin μέσα στα πρώτα δέκα φεμτοδευτερόλεπτα από τη στιγμή της διέγερσης, ενώ το πλέγμα παραμένει σχετικά ψυχρό, ακόμα και μετά τη επίτευξη ισορροπίας (48). Η διαδικασία της ισορροπίας μεταξύ των διαφορετικών αποθηκών, μετά από τη διέγερση με παλμό laser, δίνεται σχηματικά στην Εικόνα 3-7.

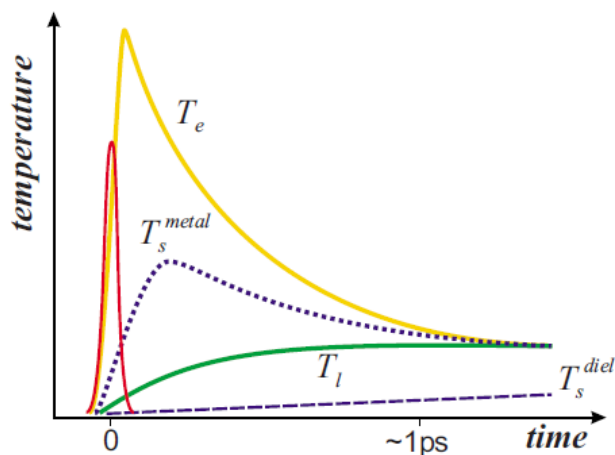
Ένα τυπικό σενάριο των διεργασιών που οδηγούν στην απομαγνήτιση λόγω της αλληλεπίδρασης με laser είναι το ακόλουθο: Στις οπτικό φάσμα συχνοτήτων μόνο τα ηλεκτρόνια είναι σε θέση να ανταποκριθούν στην ηλεκτρομαγνητική διέγερση, είτε μέσω απορρόφησης είτε μέσω σκέδασης φωτονίων, η οποία γίνεται, πρακτικά, στιγμιαία. Έτσι, σε πρώτο στάδιο (i) η ακτίνα laser χτυπά πάνω στο δείγμα και δημιουργεί ζεύγη ηλεκτρονίων-οπών (θερμά ηλεκτρόνια) σε μία κλίμακα χρόνου της τάξης του  $\sim 1\text{fs}$ , ενώ σε δεύτερο στάδιο (ii) το σύστημα των ηλεκτρονίων ισορροπεί σε αυξημένες θερμοκρασίες  $T_e$ , μέσω αλληλεπιδράσεων μεταξύ των ηλεκτρονίων και σε διάστημα από 50-500fs. Στο τρίτο στάδιο, οι ηλεκτρονιακές διεγέρσεις αποσβένονται (phonon cascades) σε κλίμακα χρόνου που δίνεται από την αλληλεπίδραση μεταξύ ηλεκτρονίων και φωνονίων (100fs-1ps για τα μέταλλα) και θερμαίνεται το πλέγμα, αυξάνοντας έτσι την  $T_l$ . Κατά συνέπεια, στο τέλος ενός πικοδευτερολέπτου, έχει επιτευχθεί θερμική ισορροπία μεταξύ των συστημάτων των ηλεκτρονίων και του πλέγματος.

Όσον αφορά τα σπιν, δεδομένου ότι ο ακρογωνιαίος λίθος της μαγνήτισης είναι η γωνιακή στροφορμή, πέρα από τη διατήρηση της ενέργειας, στα μαγνητικά συστήματα θα πρέπει να ληφθεί υπ' όψιν και η διατήρηση της γωνιακής στροφορμής. Κατά την απομαγνήτιση, ένα συγκεκριμένο ποσοστό γωνιακής στροφορμής θα πρέπει να αφαιρεθεί από το σύστημα των σπιν. Είναι, επομένως, σημαντικό να φανερωθούν τα πιθανά κανάλια μεταφοράς της γωνιακής στροφορμής, όταν μελετώνται οι διάφορες διεργασίες που λαμβάνουν χώρα κατά την απομαγνήτιση.

Γενικότερα, τόσο το σύστημα των ηλεκτρονίων, όσο και το σύστημα του πλέγματος θα πρέπει να είναι σε θέση να απορροφήσουν αυτή τη γωνιακή στροφορμή ακόμα και προσωρινά. Η αλληλεπίδραση σπιν-πλέγματος, συνήθως, θεωρείται ότι είναι της ίδιας τάξης μεγέθους με την μαγνητοκρυσταλλική ανισοτροπία. Η τελευταία είναι ασθενής ( $\sim 100$   $\mu\text{eV}$ ) για τα μέταλλα μετάπτωσης, εξαιτίας του επαγόμενου, λόγω κρυσταλλικού πεδίου, παγώματος των ηλεκτρονιακών τροχιακών (crystal-field-induced quenching). Κατά συνέπεια, ο χρόνος αλληλεπίδρασης αναμένεται να είναι αρκετά μεγάλος ( $\sim 300$  ps για το Ni) (49). Παρόλα αυτά, στα μέταλλα υπάρχει ισχυρότερη σύζευξη μεταξύ των σπιν και των δύο άλλων αποθηκών. Μηχανισμοί αποτελεσματικής σύζευξης ηλεκτρονίων σπιν και φωνονίων σπιν, υπεύθυνοι για απομαγνήτιση ταχύτερη από τα 100 fs, είναι αντικείμενο της τρέχουσας έρευνας.



**Εικόνα 3-6:** Αλληλοεπιδρούσες αποθήκες φορτίων, σπιν και πλέγματος στα πλαίσια του μοντέλου των τριών θερμοκρασιών. Κάποιες από τις αλληλεπιδράσεις, όπως εκείνες των σπιν-πλέγματος και ηλεκτρονίων-φωνονίων, θεωρούνται ότι έχουν κατανοηθεί σε ικανοποιητικό επίπεδο. Η άμεση σύζευξη ηλεκτρονίων-σπιν είναι αντικείμενο της τρέχουσας έρευνας (12)



**Εικόνα 3-7:** Χρονική συμπεριφορά των θερμοκρασιών των ηλεκτρονίων, των σπιν και του πλέγματος, μετά από τη διέγερση με ένα παλμό laser fs. Η συμπεριφορά της θερμοκρασίας των σπιν απεικονίζεται τόσο για την ισχυρή σύζευξη μεταξύ μετάλλων, όσο και για την ασθενή σύζευξη μεταξύ διηλεκτρικών (12)

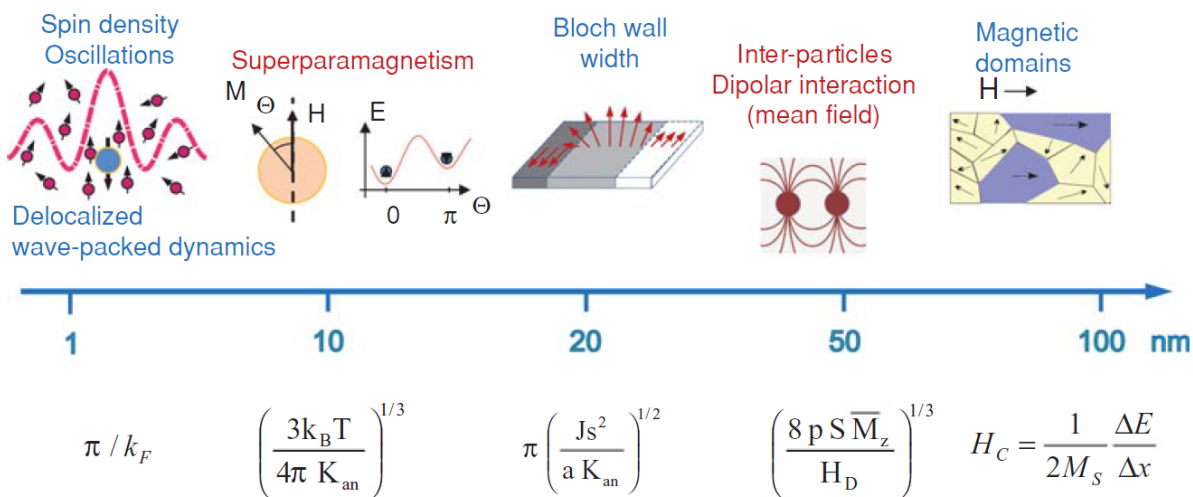
### 3.1.4 Χωρική κλίμακα και μηχανισμοί

Η μελέτη της δυναμικής της υπερταχείας μαγνήτισης περιλαμβάνει το συνδυασμό των χωρικών και χρονικών αναλύσεων και, κατά αυτό τον τρόπο, προκύπτει η ανάγκη εφαρμογής διαφορετικών στρατηγιών, ανάλογα με την χωρική και χρονική κλίμακα των μελετώμενων φαινομένων. Στη συνέχεια γίνεται επικέντρωση σε χωρικές κλίμακες που εκτείνονται από μερικά νανόμετρα ως και 1  $\mu\text{m}$ . Μερικοί από τους πιο σημαντικούς μηχανισμούς μπορούν να ταξινομηθούν ως ακολούθως:

- Διεργασίες διάχυσης ηλεκτρονίων και σπιν, οι οποίες συμβαίνουν σε κλίμακα χώρου της τάξης του  $\mu\text{m}$ . Τυπικά, ένα σπιν χάνει την πόλωση του μετά από πολλαπλές σκεδάσεις με φωνόνια. Ο αντίστοιχος χρόνος διάχυσης είναι  $\tau_{diff} = \frac{l}{v_F} \sim 500\text{fs}$  για ηλεκτρόνια με ταχύτητα Fermi ίση με  $2 \times 10^6\text{ms}^{-1}$ . Από τους fs παλμούς laser παράγεται βαλλιστική μεταφορά ηλεκτρονίων, με μεγαλύτερη ταχύτητα. Κατά συνέπεια, διαφορετικές διεργασίες διάχυσης συμμετέχουν στη θερμοποίηση των φορτίων και των σπιν. Είναι εμφανές ότι η μελέτη της διάχυσης θα πρέπει να γίνεται σε υλικά τα οποία διαθέτουν πάχος μερικών δεκάδων nm.
- Το μέγεθος των μαγνητικών περιοχών εξαρτάται από το υλικό (μαλακό ή σκληρό μαγνητικό). Τυπικά, βρίσκεται μεταξύ των 100 nm και των 10  $\mu\text{m}$  για συμπαγή σιδηρομαγνητικά υλικά. Οι μαγνητικές μονοπεριοχές (magnetic monodomains) είναι μικρότερες από 30 nm σε σιδηρομαγνητικά νανοσωματίδια.
- Ο υπερπαραμαγνητισμός σε νανοσωματίδια αντιστοιχεί σε διακυμάνσεις της κατεύθυνσης της μαγνήτισης και συμβαίνει όταν το ενεργειακό φράγμα της ανισοτροπίας είναι μικρότερο από τη θερμική ενέργεια:  $K_{an}V < k_B T$ , όπου V είναι ο όγκος του νανοσωματιδίου και  $K_{an}$  είναι η ανισοτροπία. Τυπικά, η έννοια του υπερπαραμαγνητισμού εξαρτάται από την κλίμακα αχρόνου του οργάνου ανίχνευσης (probing).
- Το πλάτος του τοιχώματος Bloch δίνεται από τη σχέση:  $d_{BW} = \pi \left( \frac{Js^2}{aK_{an}} \right)^{1/2}$ , όπου J είναι η σταθερά της αλληλεπίδραση ανταλλαγής ( $J \sim 10^{-21}$  για δύο σπιν  $s = 1/2$  και απόστασης  $a = 2,5 \times 10^{-10}\text{m}$ ). Γενικά, ισχύει ότι  $d_{BW} \sim 20\text{nm}$ .
- Το εύρος των ταλαντώσεων της πυκνότητας των σπιν κοντά σε μαγνητική ατέλεια (Friedel ταλαντώσεις) είναι ένας άλλος σημαντικός παράγοντας που θα πρέπει να ληφθεί υπ' όψιν. Δίνεται προσεγγιστικά από το αντίστροφο του διανύσματος του κύματος Fermi  $\pi/k_F \sim 2 \times 10^{-10}\text{m}$ . Όταν εμπλέκονται ταυτόχρονα χωρικές και υπερταχείες χρονικές διαστάσεις, τότε θα πρέπει να ληφθεί υπ' όψιν η διάδοση των διεγέρσεων των σπιν. Στην περίπτωση συνεχών συστημάτων (λεπτά υμένα ή μεγάλες νανοδομές) είναι απαραίτητος ο συνυπολογισμός των συσχετισμών μακράς κλίμακας και των αναπηδήσεων από σημείο σε σημείο, συμπεριλαμβανομένων και των θερμικών διακυμάνσεων.
- Η μαγνητική διπολική αλληλεπίδραση επάγει συλλογικές επιδράσεις μεταξύ των γειτονικών νανοσωματιδίων, όταν αυτά απέχουν απόσταση μερικών nm.

- Η σκέδαση των σπιν σε επιφάνειες έχει θεωρηθεί ότι είναι υπεύθυνη για την αύξηση του παράγοντα Gilbert  $\alpha$ , όταν μειώνεται το μέγεθος των σωματιδίων. Αυτός ο μηχανισμός είναι υπεύθυνος για νανοσωματίδια με διάμετρο μικρότερη από 5nm.

Οι διάφορες διεργασίες απεικονίζονται στην (). Το πλατύ χωρικό εύρος, στο οποίο εκτείνονται οι διάφορες διεργασίες εντείνει την ανάγκη για χρήση διαφορετικών πειραματικών στρατηγιών, προκειμένου να μελετηθεί η δυναμική των νανοδομών.



**Εικόνα 3-8:** Μηχανισμοί και διεργασίες αλληλεπίδρασης που σχετίζονται με τη δυναμική της μαγνήτισης: χωρική απεικόνιση (44)

### 3.1.5 Πλήρης αντιστροφή του σπιν και μεταφορά γωνιακής στροφορμής στα μέταλλα

Η αλληλεπίδραση που είναι υπεύθυνη για τη ροή της γωνιακής στροφορμής μέσα στις τροχιάς των ηλεκτρονίων είναι η σύζευξη σπιν-τροχιάς (της τάξης των 50 meV στα σιδηρομαγνητικά μέταλλα). Αυτό αντιστοιχεί σε ελάχιστο χρόνο χαλάρωσης  $\sim 20$ fs, που είναι αρκετά μικρός, ώστε να εξηγήσει το παρατηρούμενα φαινόμενα. Υπάρχουν τρεις κύριοι μηχανισμοί, μέσω των οποίων ένα διεγερμένο ηλεκτρόνιο μπορεί να υποστεί αντιστροφή του σπιν σε ένα σιδηρομαγνητικό μέταλλο και αυτοί είναι οι εξής: (i) διέγερση Stoner η οποία είναι ενεργή σε σχετικά υψηλές ενέργειες, (ii) η ανελαστική σκέδαση κυμάτων σπιν-ηλεκτρονίων, η οποία είναι ενεργή σε περιπτώσεις σχετικά χαμηλής ενέργειας διέγερσης φωτονίων και (iii) ο μηχανισμός Elliot-Yafet (αντιστροφή του σπιν ενός σωματιδίου λόγω σκέδασης με φωνόνια ή προσμείξεις). Αυτοί οι τρεις μηχανισμοί χαρακτηρίζονται από μικρές κλιμακικές χρόνου και μπορούν να οδηγήσουν σε παρατηρούμενες αλλαγές της μαγνήτισης (μικρότερες από ps), μετά από διέγερση με παλμό laser, όσον αφορά τη χαλάρωση της ενέργειας. Η χαλάρωση της ενέργειας στο πλέγμα συμβαίνει παράλληλα με αυτό και μπορεί να θεωρηθεί ως περιοριστικός παράγοντας του μεγέθους της απομαγνήτισης, εξαιτίας της τόσο γρήγορης διασποράς ενέργειας.

Στην περίπτωση των μετάλλων, η πιθανότητα πλήρους αντιστροφής του σπιν επηρεάζεται σημαντικά από τη δομή των ζωνών. Οι αλληλεπιδράσεις ηλεκτρονίου-ηλεκτρονίου σε περιοδεύοντα (itinerant) συστήματα ηλεκτρονίων, οδηγεί σε ηλεκτρονιακές ζώνες για σπιν πάνω και σπιν κάτω ηλεκτρόνια. Όταν το επίπεδο Fermi βρίσκεται κάτω από αυτά τα δύο επίπεδα, οι χαμηλής ενέργειας, με σπιν πάνω, καταστάσεις (πλειονότητας) είναι κατειλημμένες, ενώ οι υψηλότερης ενέργειας, με σπιν κάτω, καταστάσεις (μειονότητας) δεν είναι. Αυτή η διαφορά οδηγεί σε καθαρή πόλωση των σπιν των ηλεκτρονίων αγωγιμότητας. Επιπλέον, στάθμες που είναι διαχωρισμένες εξαιτίας της ανταλλαγής, κατά μήκος του επιπέδου Fermi, μπορούν να παρουσιάσουν, επίσης, την πιθανότητα μαγνητικής διεγερσης ενός μοναδικού σωματιδίου. Ένα ηλεκτρόνιο μπορεί να αφαιρεθεί από μια κατειλημμένη στάθμη πλειονότητας, να υποστεί αντιστροφή του σπιν και να τοποθετηθεί σε προηγούμενη μη κατειλημμένη στάθμη μειονότητας. Το ζεύγος ηλεκτρονίου-οπής που προκύπτει, με αντίθετα σπιν και διάνυσμα  $q$  καλείται διεγερση Stoner. Σημειώνεται ότι για κάθε συνδυασμό  $q$  και σπιν είναι πιθανή μια κατανομή από Stoner διεγέρσεις.

Δεδομένου ότι οι διεγέρσεις Stoner περιλαμβάνουν αντιστροφή του σπιν, αποτελούν τις θεμελιώδεις μαγνητικές διεγέρσεις ενός σωματιδίου σε μαγνητικά υλικά με περιοδεύοντα ηλεκτρόνια. Σε χαμηλές θερμοκρασίες και κυματόνυσμα, η διαμόρφωση των ηλεκτρονιακών σταθμών δεν επιτρέπονται οι μεμονωμένες διεγέρσεις Stoner. Σε αυτή την περίπτωση οι συνεκτικές υπερθέσεις των εικονικών διεγέρσεων του κυματανύσματος  $q$  μπορεί να παράγει μια συλλογή μαγνητική διεγερση  $q$  (η οποία καλείται κύμα spin), σε χαμηλές θερμοκρασίες. Σε αυτές τις περιοχές χώρου ενέργειας-ορμής, όπου οι μεμονωμένες διεγέρσεις Stoner (σχεδόν) επιτρέπονται, τα κύματα σπιν και οι διεγέρσεις Stoner υπόκεινται σε σύζευξη και τα πρώτα αποσβένονται ισχυρά.

Από τα παραπάνω είναι εμφανές ότι τα κύματα σπιν κυριαρχούν έναντι των διεγέρσεων Stoner. Αυτό ισχύει στην περίπτωση των περισσοτέρων (όχι όμως όλων) πειραμάτων δυναμικής της μαγνήτισης που διαμορφώνεται από την επίδραση του laser με μήκος κύματος 800 nm, που αντιστοιχούν σε ενέργεια φωτονίου της τάξης του 1.5 eV.

Γενικά, ένας πιθανός μηχανισμός για αντιστροφή ενός σπιν σε μέταλλο, μελετήθηκε πριν περίπου χρόνια και καλείται σκέδαση Elliott-Yafet (50), (51). Σε αυτή τη θεωρία η σκέδαση ενός διεγερμένου ηλεκτρονίου από ένα φωνόνιο μεταβάλλει την πιθανότητα εύρεσης ενός ηλεκτρονίου σε μια από τις καταστάσεις σπιν  $|\uparrow\rangle$  ή  $|\downarrow\rangle$ , μεταφέροντας, έτσι, γωνιακή στροφορμή από το ηλεκτρονιακό σύστημα στο πλέγμα. Εξαιτίας της σύζευξης σπιν-τροχιάς, η ηλεκτρονιακή κατάσταση σε ένα στερεό είναι μίξη και των δύο σπιν καταστάσεων π.χ μιας κυρίαρχης σπιν επάνω συνεισφοράς και μιας μικρότερης σπιν κάτω, προσδιορίζοντας έτσι συνολική κυματοσυνάρτηση (52).

$$\psi_{\mathbf{k},\uparrow} = a_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|\uparrow\rangle + b_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|\downarrow\rangle \quad (3-4)$$

Όπου  $\mathbf{k}$  είναι το κυματόνυσμα. Το δυναμικό που περιγράφει την αλληλεπίδραση ενός ηλεκτρονίου με ένα φωνόνιο κυματανύσματος  $\mathbf{q}$ , αποτελείται από δύο μέρη:

$$U_{\mathbf{q}} = U_{\mathbf{q}}^0 + U_{\mathbf{q}}^{spin-orbit} \quad (3-5)$$

Όπου  $U_{\mathbf{q}}^0$  αποτελεί παράγοντα ανεξάρτητο του σπιν και, αντίστοιχα,  $U_{\mathbf{q}}^{spin-orbit}$  είναι ο εξαρτώμενος, από το σπιν, παράγοντας του δυναμικού σκέδασης. Το στοιχείο που έχει ενδιαφέρον για την απομαγνήτιση είναι το στοιχείο της αντιστροφής του σπιν μεταξύ της κατάστασης με σπιν πάνω  $\psi_{\mathbf{k},\uparrow}$  και κατάστασης με σπιν κάτω  $\psi_{\mathbf{k},\downarrow}$ :

$$m_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\downarrow;\mathbf{k},\uparrow} = \langle \psi_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\downarrow} | U_{\mathbf{q}}^0 + U_{\mathbf{q}}^{spin-orbit} | \psi_{\mathbf{k},\uparrow} \rangle \quad (3-6)$$

Στην εργασία (52) υπολογίστηκαν πρόσφατα οι παράμετροι ανάμειξης των σπιν, σε διάφορα μέταλλα μετάπτωσης, με χρήση ab initio υπολογισμών. Οι υπολογισμοί έδειξαν ότι στα μέταλλα Co, Ni, και Fe οι παράμετροι ανάμειξη των σπιν είναι περίπου 25 φορές μεγαλύτεροι συγκριτικά με την τιμή που χρησιμοποιείται για την περίπτωση του Cu. Αν και αυτά τα αποτελέσματα υποστηρίζουν ότι η διαδικασία της μεταφοράς της γωνιακής στροφορμής από τα σπιν στο πλέγμα, μέσω του μηχανισμού Elliot-Yafet έχει σημαντικό ρόλο στην fs απομαγνήτιση, θα πρέπει, επίσης, να λαμβάνεται υπ' όψιν το γεγονός ότι πρόκειται για μοντέλο ενός ηλεκτρονίου και, κατά συνέπεια, η αλληλεπίδραση ανταλλαγής δεν υπολογίζεται, με αποτέλεσμα τα συμβάντα αντιστροφής του σπιν να θεωρούνται ανεξάρτητα. Η απευθείας εφαρμογή αυτών των συμπερασμάτων σε υλικά με μαγνητική τάξη θα οδηγούσε σε ένα απλουστευμένο μοντέλο, το οποίο παραβλέπει σημαντικά στοιχεία του μαγνητισμού.

Η πρόβλεψη της κλίμακας χρόνου fs απομαγνήτισης των μετάλλων επιχειρήθηκε στα πλαίσια της υπόθεσης ότι η ταχύτητα της απομαγνήτισης εξαρτάται από την ταχύτητα των διαδικασιών αντιστροφής του σπιν μέσω του μηχανισμού Elliot-Yafet (53). Με χρήση της εξίσωσης Landau-Lifshitz-Gilbert προέκυψε μια αναλυτική έκφραση, η οποία συνδέει τη σταθερά χρόνου απομαγνήτισης με τον παράγοντα Gilbert  $\alpha$ , μέσω της θερμοκρασίας Curie. Αυτή ήταν μια προσπάθεια σύνδεσης των χαρακτηριστικών χρόνων σκέδασης των μαγνόνιων στο κέντρο και στην άκρη της ζώνης Brillouin.

### 3.2 Αλληλεπίδραση μεταξύ φωτονίων και σπιν - Μαγνητοοπτική και Οπτομαγνητισμός

Στην παρούσα ενότητα μελετάται η πιθανότητα της άμεσης αλληλεπίδρασης μεταξύ φωτονίων και σπιν, κάνοντας χρήση ενεργειακών θεωρήσεων. Μπορεί να δειχθεί ότι το δυναμικό  $\Phi$  ενός ισότροπου, μη απορροφητικού, με μαγνητική τάξη υλικού και στατική μαγνήτιση  $\mathbf{M}(0)$  σε πεδίο μονοχρωματικού φωτός  $\mathbf{E}(\omega)$ , περιλαμβάνει έναν όρο:

$$\Phi = \alpha_{ijk} E_i(\omega) M_k(0), \quad (3-7)$$

Όπου  $\alpha_{ijk}$  είναι η μαγνητο-οπτική επιτρεπτότητα. Στην προσέγγιση του ηλεκτρικού διπόλου, η γραμμική οπτική απόκριση του μέσου σε πεδίο  $\mathbf{E}(\omega)$  ορίζεται από την οπτική πόλωση  $\mathbf{P}(\omega) = \frac{\partial \Phi}{\partial \mathbf{E}(\omega)^*}$ . Από την εξίσωση  $\Phi = \alpha_{ijk} E_i(\omega) M_k(0)$ , (3-7), είναι φανερό ότι η οπτική πόλωση  $\mathbf{P}(\omega)$ , θα πρέπει να έχει συνεισφορά  $\mathbf{P}^{(m)}$ , ανάλογη της μαγνήτισης  $\mathbf{M}$ ,

$$P_i^{(m)}(\omega) = \alpha_{ijk} E_j(\omega) M_k(0) \quad (3-8)$$

Από την παραπάνω εξίσωση προκύπτει ότι όταν το γραμμικά πολωμένο φως διαδίδεται μέσω ενός μαγνητισμένου μέσου, το επίπεδο πόλωσης του φωτός σταδιακά περιστρέφεται με γωνία  $\theta_F$ , η οποία δίνεται από τη σχέση:

$$\theta_F = \frac{\alpha_{ijk} M_k(0) \omega L}{cn} \quad (3-9)$$

Όπου  $c$  είναι η ταχύτητα του φωτός στο κενό,  $n$  είναι ο παράγοντας διάθλασης του μέσου και  $L$  είναι η απόσταση διάδοσης του φωτός στο μέσο. Η εξίσωση  $\theta_F = \frac{\alpha_{ijk} M_k(0) \omega L}{cn}$  (3-9) περιγράφει το μαγνητο-οπτικό φαινόμενο ή φαινόμενο Faraday. Αυτή η περιστροφή της πόλωσης είναι το αποτέλεσμα της αλληλεπίδρασης σπιν-τροχιάς, που δημιουργεί ασυμμετρία στις κυματοσυναρτήσεις των ηλεκτρονίων, οδηγώντας στην περιστροφή των διεγερμένων διπολικών ρευμάτων.

Το μαγνητο-οπτικό φαινόμενο καταδεικνύει ότι ένα υλικό με μαγνητική τάξη μπορεί, πράγματι, να επηρεάσει τα φωτόνια και να μεταβάλλει την πόλωση του φωτός. Το ερώτημα που εγείρεται είναι αν είναι εφικτό το αντίστροφο, όπου τα πολωμένα φωτόνια θα έχουν επιρροή στη μαγνήτιση. Από την εξίσωση  $\Phi = \alpha_{ijk} E_i(\omega)^* M_k(0)$ , (3-7) φαίνεται ότι ένα ηλεκτρικό πεδίο με φως, συχνότητας  $\omega$  θα επιδράσει στη μαγνήτιση ως ένα ενεργό μαγνητικό πεδίο  $\mathbf{H}^{\text{eff}}$ , το οποίο θα κατευθύνεται κατά μήκος του κυματανύσματος του φωτός  $\mathbf{k}$ .

$$H_k = -\frac{\partial \Phi}{\partial M_k} = \alpha_{ijk} E_i(\omega) E_j(\omega)^* \quad (3-10)$$

Σε ένα ισοτροπικό μέσο το  $\alpha_{ijk}$  είναι ένας πλήρως αντισυμμετρικός τανυστής, με ένα ανεξάρτητο στοιχείο  $\alpha$ . Άρα η εξίσωση  $H_k = -\frac{\partial \Phi}{\partial M_k} = \alpha_{ijk} E_i(\omega) E_j(\omega)^*$  (3-10) μπορεί να ξαναγραφεί ως:

$$\mathbf{H} = \alpha [\mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{E}(\omega)^*] \quad (3-11)$$

Από τα παραπάνω είναι εμφανές ότι αριστερόστροφα και δεξιόστροφα κυκλικά, πολωμένα κύματα μπορούν να δράσουν ως μαγνητικά πεδία αντίθετου προσήμου.

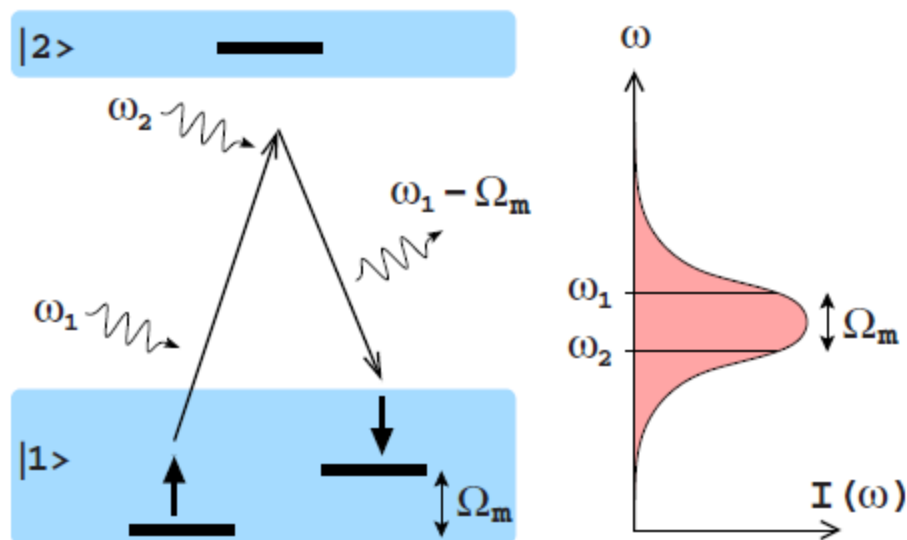
Κατά συνέπεια, από την εξίσωση  $\mathbf{H} = \alpha [\mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{E}(\omega)^*]$  (3-11), φαίνεται ότι επιπλέον του γνωστού μαγνητο-οπτικού φαινομένου Faraday, όπου η πόλωση του φωτός επηρεάζεται από τη μαγνήτιση  $\mathbf{M}$ , η ίδια επιδεικνύει και το αντίστροφο οπτικο-μαγνητικό φαινόμενο: κυκλικά πολωμένο φως επιδρά στη μαγνήτιση μέσω του αντιστρόφου φαινομένου Faraday. Έτσι, σύμφωνα με μια θερμοδυναμική προσέγγιση, η επίδραση του φωτός στα σπιν ενός υλικού με μαγνητική τάξη, μπορεί να περιγραφεί από την εξίσωση Landau – Lifshitz, όπου το μαγνητικό πεδίο δημιουργείται από το φως, διαμέσου του αντιστρόφου φαινομένου Faraday.

Στο σημείο αυτό αξίζει να σημειωθεί ότι η εξίσωση  $\mathbf{H} = \alpha [\mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{E}(\omega)^*]$  (3-11) έχει προκύψει από μονοχρωματική οπτική διεγερση, σε προσέγγιση θερμοδυναμικής ισορροπίας. Έχει, επομένως ιδιαίτερο ενδιαφέρον να μελετηθεί η περίπτωση κατά την οποία το γινόμενο  $\mathbf{E}(\omega) \times \mathbf{E}(\omega)^*$  μεταβάλλεται πιο γρήγορα από τις θεμελιώδεις κλίμακες χρόνου στα υλικά με μαγνητική τάξη, που



δίνονται από την περίοδο της μεταπτωτικής κίνησης (precession) των σπιν και από το χρόνο χαλάρωσης σπιν-πλέγματος. Έστω ότι επιτυγχάνεται διέγερση των σπιν από παλμό laser με διάρκεια  $\Delta t = 100 \text{ fs}$ . Με χρήση μετασχηματισμού Fourier, είναι εμφανές ότι ενώ ένας τέτοιος παλμός είναι υπερβραχύς (ultrashort) στο πεδίο του χρόνου, έχει πλατύ φάσμα ( $\Delta\omega \sim 5 \text{ THz}$ ). Μία τέτοια διέγερση των σπιν προτιμάται να περιγράφεται στο πεδίο των συχνοτήτων (Εικόνα 3-9). Αρχικά, το ηλεκτρόνιο βρίσκεται στη θεμελιώδη κατάσταση  $|1\rangle$  και έχει σπιν επάνω. Αν αυτή η κατάσταση δεν είναι εκφυλισμένη, η σύζευξη σπιν-τροχιάς, για το ηλεκτρόνιο σε αυτή την κατάσταση, μπορεί να παραλειφθεί. Αν σε αυτό το ηλεκτρόνιο επιδράσει ένα φωτόνιο, τότε κατά τη διάρκεια της οπτικής μετάπτωσης, η κυματοσυνάρτηση του ηλεκτρονίου γίνεται υπέρθεση πολλών ιδιοκαταστάσεων. Αυτό θα επηρεάσει σημαντικά την τροχιακή στροφορμή του ηλεκτρονίου και θα έχει ως αποτέλεσμα την αυξημένη σύζευξη σπιν-τροχιάς και θα οδηγήσει στην εντατικοποίηση της διαδικασίας αντιστροφής του σπιν. Αν η ενέργεια του φωτονίου είναι μικρότερη από το κενό μεταξύ της θεμελιώδους κατάστασης  $|1\rangle$  και της πλησιέστερης διεγερμένης  $|2\rangle$ , το φωτόνιο δε θα διεγείρει καμία πραγματική ηλεκτρονιακή μετάπτωση, αλλά θα καταλήξει σε αντιστροφή του σπιν στη θεμελιώδη κατάσταση. (Καθώς η διέγερση περιλαμβάνει μια εικονική κατάσταση, η διαδικασία αποδιέγερσης είναι πολύ γρήγορη). Με άλλα λόγια η αντιστροφή του σπιν στη θεμελιώδη κατάσταση γίνεται εξαιτίας του γεγονότος ότι κυκλικά πολωμένο φως αναμειγνύει ένα μέρος της κυματοσυνάρτησης της διεγερμένης κατάστασης στη θεμελιώδη κατάσταση (2). Αυτή η διαδικασία συνοδεύεται από τη σύμφωνη επανεικπομπή ενός φωτονίου ενέργειας  $\hbar\omega_2 = \hbar(\omega_1 - \Omega_m)$ . Σε υλικά με μαγνητική τάξη, ο όρος  $\hbar\Omega_m$  αντιστοιχεί στην ενέργεια ενός μαγνηνίου. Επιπλέον, μια τέτοια αντιστροφή του σπιν, προκύπτουσα από την αλληλεπίδραση με το laser, εξαναγκάζεται στην περίπτωση που είναι παρούσες και οι δύο συχνότητες  $\omega_1$  και  $\omega_2$  στον παλμό laser (Εικόνα 3-9). Ο χρόνος της διαδικασίας αντιστροφής του σπιν  $\tau_{sf}$  δίνεται από την ενέργεια της αλληλεπίδρασης σπιν-τροχιάς στη διαταραγμένη θεμελιώδη κατάσταση  $E_{so}$ . Για υλικά με μεγάλη μαγνητο-οπτική επιδεικτικότητα, η ενέργεια της σύζευξης σπιν-τροχιάς μπορεί να υπερβεί τα  $50 \text{ meV}$  και έτσι η διαδικασία αντιστροφής του σπιν μπορεί να ταχέια με χρόνο της τάξης των  $\tau_{sf} \sim \hbar/E_{so} \sim 20 \text{ fs}$ . Αξίζει να σημειωθεί ότι η διαδικασία της αντιστροφής του σπιν επιτρέπεται στα πλαίσια της προσέγγισης του ηλεκτρικού διπόλου. Σε αντίθεση με τις μεταπτώσεις του μαγνητικού διπόλου, αυτό ο μηχανισμός είναι πιο αποτελεσματικός και δεν περιλαμβάνει την απορρόφηση φωτονίου. Αυτό σημαίνει ότι η μεταφορά ενέργειας από τα φωτόνια στα σπιν (μαγνόνια) πραγματοποιείται μέσω διαδικασιών ανελαστικών σκεδάσεων. Ενώ μερικά φωτόνια χάνουν ένα μικρό μέρος της ενέργειά τους, ο συνολικός αριθμός των φωτονίων παραμένει αμετάβλητος. Είναι σημαντικό να σημειωθεί ότι σε μια αντιστροφή του σπιν με εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, όπως περιεγράφηκε ανωτέρω, τα εξαναγκασμένα και επανεικπεμπόμενα φωτόνια έχουν όμοια πόλωση, καταδεικνύοντας έτσι ότι η αντιστροφή του σπιν δε συνοδεύεται από απώλεια της γωνιακής στροφορμής των φωτονίων.

Συνοψίζοντας τα παραπάνω, με χρήση φαινομενολογικής και μικροσκοπικής προσέγγισης προκύπτει ότι ένα κυκλικά πολωμένο φως μπορεί να αποτελέσει ένα αποτελεσματικό μέσο για τον έλεγχο των υλικών με μαγνητική τάξη και κλίμακα χρόνου φεμτοδευτερολέπτων. Ο προτεινόμενος μηχανισμός του ελέγχου των σπιν με χρήση laser δεν περιλαμβάνει απορρόφηση φωτονίων και η αντιστροφή του σπιν δεν περιλαμβάνει απώλεια της γωνιακής στροφορμής των φωτονίων.



**Εικόνα 3-9:** Απεικόνιση εξαναγκασμένης συνεκτικής σκέδασης Raman που μπορεί να θεωρηθεί ως ένας πιθανός μικροσκοπικός μηχανισμός, υπεύθυνος για τη δημιουργία υπερ-βραχέος μαγνητικού πεδίου. Στη διαδικασία λαμβάνουν μέρος συνιστώσες δύο συχνοτήτων της ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας από ένα πλατύ παλμό laser. Η συχνότητα  $\omega_1$  προκαλεί τη μετάβαση σε μία κατάσταση με ισχυρή σύζευξη σπιν – τροχιάς. Ακτινοβολή με συχνότητα  $\omega_2$  διεγείρει την επιστροφή πίσω στην θεμελιώδη κατάσταση με τη δημιουργία ενός μαγνητίου (12).

### 3.3 Πειραματικές τεχνικές που χρησιμοποιούνται κατά τη μελέτη της υπερταχείας δυναμικής των σπιν

#### 3.3.1 Μέθοδος pump and probe

Η μελέτη της υπερταχείας δυναμικής των σπιν, που έχει προκύψει από παλμό laser πικοδευτερολέπτου (ή και μικρότερο από πικοδευτερολέπτο) απαιτεί μεθόδους που επιτρέπουν την ανίχνευση των μεταβολών της μαγνήτισης σε ένα μέσο, με χρονική διακριτότητα μικρότερη από το πικοδευτερολέπτο. Πρακτικά, όλες οι μελέτες της υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης επαγόμενη από τη χρήση laser παλμών, χρησιμοποιούν κάποιο είδος τεχνικής pump and probe, όπου η δυναμική της μαγνήτισης ενεργοποιείται από έναν παλμό laser, στο οπτικό εύρος (pump), ενώ η ανίχνευση (probe) των μαγνητικών μεταβολών γίνεται με τη βοήθεια ενός δεύτερου παλμού ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας (54). Η ανάλυση των ιδιοτήτων του παλμού ανίχνευσης (probe), μετά από την αλληλεπίδραση με το μέσο, για διαφορετικούς χρόνους διαχωρισμού μεταξύ των παλμών ενεργοποίησης και ανίχνευσης (pump and probe), επιτρέπουν την αναδόμηση των μεταβολών που λαμβάνουν χώρα. Η διάρκεια του παλμού ενεργοποίησης ορίζει τη χρονική διακριτότητα, ενώ το φασματικό εύρος της ανίχνευσης είναι σημαντικό για την ευαισθησία τέτοιων μετρήσεων. Η επιλογή του παλμού ανίχνευσης στο εύρος της άπω υπέρυθρης, οπτικής, υπεριώδους ή ακτινών X ακτινοβολίας δίνει τη δυνατότητα προσδιορισμού των ηλεκτρονικών μεταπτώσεων που είναι υπεύθυνες για την αλληλεπίδραση του παλμού ενεργοποίησης με το μέσο. Κατά συνέπεια, όλες αυτές οι φασματοσκοπικές μέθοδοι χαρακτηρίζονται από τη διαφορετική ευαισθησία που επιδεικνύουν στους βαθμούς ελευθερίας των σπιν και των τροχιακών. Μετρήσεις στα

φασματικά εύρη του άπω υπέρυθρου, οπτικού, υπεριώδους ή ακτινών X επιτρέπει την απόκτηση τεσσάρων διαφορετικών οπτικών για το ίδιο φαινόμενο και, έτσι, προκύπτει πιο ολοκληρωμένη εικόνα.

### 3.3.2 Οπτικός παλμός ανίχνευσης

Η αλληλεπίδραση του μέσου με ένα παλμό ανίχνευσης στο εύρος του ορατού ή στην εγγύτητα των 0.4-10μm, μπορεί να περιγραφεί από την προσέγγιση του ηλεκτρικού διπόλου. Χρησιμοποιώντας ενεργειακές θεωρήσεις, μπορεί να αναλυθεί μια τέτοια αλληλεπίδραση θεωρώντας το θερμοδυναμικό δυναμικό  $\Phi$ . Για ένα ισοτροπικό, χωρίς απώλειες, με μαγνητική τάξη και στατική μαγνήτιση  $\mathbf{M}(\mathbf{0})$  ή αντισιδηρομαγνητικό διάνυσμα  $\mathbf{I}(\mathbf{0})$  σε ένα πεδίο μονοχρωματικού φωτός  $\mathbf{E}(\omega)$  και παραλείποντας του όρους που είναι ανώτερης τάξης από 3 στο  $\mathbf{E}(\omega)$ , το  $\Phi$  μπορεί να γραφεί ως εξής:

$$\begin{aligned} \Phi = & \chi_{ij}^{(l)} E_i(\omega) * E_j(\omega) + \alpha_{ijk}^{(l)} E_i(\omega) E_j(\omega) M(\mathbf{0})_k \\ & + \beta_{ijk}^{(l)} E_i(\omega) * E_j(\omega) l(\mathbf{0})_k + \chi_{ijk}^{(nl)} E_i(2\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) \\ & + \alpha_{ijkl}^{(nl)} E_i(\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) M(\mathbf{0})_l \\ & + \beta_{ijkl}^{(nl)} E_i(2\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) l(\mathbf{0})_l \quad (3-12) \end{aligned}$$

Όπου  $\chi_{ij}^{(l)}$ ,  $\alpha_{ijk}^{(l)}$ ,  $\beta_{ijk}^{(l)}$ ,  $\chi_{ijk}^{(nl)}$ ,  $\alpha_{ijkl}^{(nl)}$  και  $\beta_{ijkl}^{(nl)}$  είναι ταυστές που καθορίζουν τις οπτικές ιδιότητες του μέσου και οι εκθέτες (l) και (nl) υποδεικνύουν τη γραμμική (ή μη γραμμική) απόκριση αντίστοιχα (55).

Η Εξίσωση  $+\beta_{ijkl}^{(nl)} E_i(2\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) l(\mathbf{0})_l$  (3-12) είναι γενίκευση της εξίσωσης  $\Phi = \alpha_{ijk} E_i(\omega) * M_k(\mathbf{0})$ , (3-7) από όπου προέκυψε το φαινόμενο Faraday.

Ομοίως, εξαιτίας της πόλωσης  $\mathbf{P}(\mathbf{m})$  μπορεί να επιτευχθεί η περιστροφή της πόλωσης του φωτός μετά από αντανάλλαση από μαγνητικό μέσο. Το φαινόμενο αυτό καλείται μαγνητο-οπτικό φαινόμενο KERR (MOKE). Κατά συνέπεια, τα γραμμικά, μαγνητο-οπτικά φαινόμενα μπορούν να χρησιμοποιηθούν για την ανίχνευση της μαγνήτισης ενός μέσου (56).

Λαμβάνοντας υπ' όψιν στην εξίσωση  $+\beta_{ijkl}^{(nl)} E_i(2\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) l(\mathbf{0})_l$  (3-12) τους γραμμικούς όρους στο αντισιδηρομαγνητικό διάνυσμα  $\mathbf{I}(\mathbf{0})$ , γίνεται εμφανές ότι οι γραμμικές οπτικές ιδιότητες μπορούν να χρησιμεύσουν ως ανίχνευση της μαγνητικής τάξης σε γεωμετρίες όπου δεν υπάρχει παρουσία φαινομένων Faraday και Kerr ή σε υλικά που δεν έχουν μαγνήτιση όπως τα αντισιδηρομαγνητικά και τα σιδηριμαγνητικά (57). Αξίζει να σημειωθεί ότι όλα τα μαγνητο-οπτικά φαινόμενα παρουσιάζουν ευαισθησία σε συγκεκριμένες προβολές των μαγνητικών διανυσμάτων (M και D) και μπορούν να παρατηρηθούν σε μέσα ανεξάρτητα από την κρυσταλλική τους συμμετρία ή τον κρυσταλλογραφικό τους προσανατολισμό (58), (59).

Στη μη γραμμική, οπτική προσέγγιση της εξίσωσης  $+\beta_{ijkl}^{(nl)} E_i(2\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) l(\mathbf{0})_l$  (3-12) πρέπει να ληφθούν υπ' όψιν οι όροι της τρίτης τάξης αναφορικά με το ηλεκτρικό πεδίο του φωτός. Σε αυτή την προσέγγιση το οπτικό πεδίο  $\mathbf{E}(\omega)$  είναι ικανό να επάγει πόλωση στο μέσο με διπλάσια συχνότητα  $\mathbf{P}(2\omega)$ . Η εμφάνιση αυτής της πόλωσης έχει ως αποτέλεσμα την εμφάνιση του φαινομένου της γένεσης δεύτερης αρμονικής, όπου όταν το μέσο διεγείρεται με οπτικό πεδίο  $\mathbf{E}(\omega)$  παράγει φως

διπλάσιας συχνότητας  $2\omega$ . Η ένταση του φωτός της δεύτερης αρμονικής στα σιδηρομαγνητικά υλικά ή στα αντισιδηρομαγνητικά υλικά βρίσκεται ως ακολούθως:

$$I(2\omega) \sim |P(2\omega)_i|^2$$

$$= \left[ \chi_{ijk}^{(nl)} E_j(\omega) E_k(\omega) + \alpha_{ijkl}^{(nl)} E_j(\omega) E_k(\omega) M(0)_l \right]^2$$

ή  $\left[ \chi_{ijk}^{(nl)} E_j(\omega) E_k(\omega) + \alpha_{ijkl}^{(nl)} E_j(\omega) E_k(\omega) l(0)_l \right]^2$ , αντιστοίχως

Από τα παραπάνω συμπεραίνεται ότι η γένεση της δεύτερης αρμονικής μπορεί, επίσης να χρησιμοποιηθεί για τη μέτρηση της μαγνήτισης  $\mathbf{M}(0)$  ή του αντισιδηρομαγνητικού διανύσματος  $\mathbf{I}(0)$  στο μέσο. Παρόλα αυτά, και σε αντίθεση με τα γραμμικά, μαγνητο-οπτικά φαινόμενα, η δεύτερη αρμονική στην προσέγγιση του ηλεκτρικού διπόλου, γεννάται μόνο σε μέσα, στα οποία η κρυσταλλική συμμετρία δεν περιέχει κέντρο αναστροφής. Στα κεντροσυμμετρικά μέσα η γένεση της δεύτερης αρμονικής επιτρέπεται μόνο στις επιφάνειες και στις διεπιφάνειες, όπου η ολική συμμετρία (bulk symmetry) έχει καταστραφεί. Κατά συνέπεια, η τεχνική της (μαγνητικής) γένεσης της δεύτερης αρμονικής (MSHG) μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως ένα εργαλείο για τη μελέτη της επιφανειακού και διεπιφανειακού μαγνητισμού (60).

Δεδομένου ότι η οπτική απόκριση των μέσων στο ορατό εύρος συχνοτήτων κυριαρχείται από τις μεταπτώσεις των ηλεκτρικών διπόλων και οι κανόνες επιλογής για αυτές τις μεταπτώσεις δεν επιτρέπουν την πλήρη αντιστροφή του σπιν (spin flip), η ευαισθησία του φωτός στη μαγνητική τάξη στις περιπτώσεις τόσο των γραμμικών, όσο και των μη γραμμικών μαγνητο-οπτικών φαινομένων, απαιτούν ισχυρή αλληλεπίδραση σπιν-τροχιάς. Μια ισχυρή σύζευξη μεταξύ των σπιν και των τροχιακών έχει ως αποτέλεσμα τις ουσιαστικές τιμές για τις  $\alpha$  και  $\beta$  συνιστώσες στην Εξίσωση  $+\beta_{ijklm} \mathbf{E}_i(2\omega) * E_j(\omega) E_k(\omega) l(0)_l$  (3-12), έτσι ώστε να μπορούν να χρησιμοποιηθούν τα μαγνητο-οπτικά φαινόμενα προς απόκτηση της πληροφορίας σχετικά με τη μαγνητική κατάσταση ενός μέσου.

Η ερμηνεία των αποτελεσμάτων των μαγνητο-οπτικών μελετών στα στερεά είναι περίπλοκη εξαιτίας του γεγονότος ότι η οπτικές μεταπτώσεις στο φάσμα συχνοτήτων του ορατού είναι σχετικά ευρείες. Οι αντίστοιχες φασματικές γραμμές συχνά υπεριοικλύπτονται ακόμα και στα διηλεκτρικά υλικά. Για την ανάλυση των οπτικών διεγέρσεων στα μέταλλα, θα πρέπει να θεωρηθεί μια συνεχής αλληλουχία (φάσμα) μεταπτώσεων, καθιστώντας, έτσι, τη θεωρητική περιγραφή των μαγνητο-οπτικών φασμάτων αρκετά δύσκολη. Επιπλέον, για να εφαρμοστούν σε μελέτες ultrafast θα πρέπει να ληφθεί υπ' όψιν η ειτός ισορροπίας συμπεριφορά του συστήματος, που επίσης επηρεάζει τη μαγνητο-οπτική απόκριση (61).

Επιπλέον, τα μαγνητο-οπτικά φαινόμενα είναι μόνο αναλογικά στα  $M$  και  $I$  και είναι, έτσι, μόνο έμμεσα μέσα ανίχνευσης της τάξης των σπιν. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα την εισαγωγή ενός πλήθους παραγόντων αβεβαιότητας κατά την ερμηνεία των μαγνητο-οπτικών μετρήσεων χρονικής ανάλυσης (time-resolved magneto-optical measurements). Η διέγερση με laser μπορεί να μεταβάλλει τον πληθυσμό των διεγερμένων καταστάσεων (bleaching) και να τροποποιήσει τη συμμετρία της διεγερμένης κατάστασης, όπου το αποτέλεσμα θα είναι οι μεταβολές στη μαγνητο-οπτική απόκριση του μέσου, ακόμα και αν η μαγνητική τάξη και το διάνυσμα μαγνήτισης δεν έχουν επηρεαστεί (62), (63). Σε όρους θερμοδυναμικής

περιγραφής των μαγνητο-οπτικών φαινομένων, μία τέτοια κατάσταση αντιστοιχεί στις επαγόμενες από το laser μεταβολές στους ταυιστές  $\alpha_{ijk}^{(l)}$ ,  $\beta_{ijk}^{(l)}$ ,  $\alpha_{ijkl}^{(nl)}$  και  $\beta_{ijkl}^{(nl)}$ .

Παρόλα αυτά, τονίζεται ότι αν και η θερμοδυναμική περιγραφή είναι κατάλληλη για να γίνει εμφανές το γεγονός ότι τα οπτικά φαινόμενα μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως ανίχνευση της μαγνητικής τάξης, μια εξήγηση των επαγόμενων από το laser φαινομένων, σε όρους χρονοεξαρτώμενων ταυιστών δεν αναμένεται να περιγράφουν πλήρως τα φαινόμενα που λαμβάνουν χώρα στην υπερταχεία κλίμακα χρόνου. Μαγνητο-οπτικά φαινόμενα Kerr και Faraday που έχουν προκύψει από την αλληλεπίδραση με laser, σε πειράματα pump-probe, μπορούν να περιγραφούν σε όρους μη γραμμικής πόλωσης τρίτης τάξης (64), (62) (65).

### 3.3.3 Ανίχνευση υπεριώδους και με ηλεκτρόνια πολωμένου σπιν

Η διέγερση ενός μέσου με φωτόνια ενέργειας μεγαλύτερης από τη συνάρτηση έργου μπορεί να έχει ως αποτέλεσμα την εκπομπή ηλεκτρονίων από την επιφάνεια. Η φασματοσκοπία ηλεκτρονίων μπορεί να διευκολύνει την πρόσβαση στην ηλεκτρονιακή κατάσταση της συμπυκνωμένης ύλης, καθώς μπορεί να εξαχθεί πληροφορία σχετικά με την κατανομή της ενέργειας και της ορμής των ηλεκτρονίων. Με αισθητήρες οι οποίοι παρουσιάζουν ευαισθησία στο σπιν, είναι δυνατή η ανίχνευση της μέσης πόλωσης σπιν των εκπεμπόμενων ηλεκτρονίων, παρέχοντας έτσι άμεση πρόσβαση στην κατανομή των σπιν του ηλεκτρονιακού νέφους. Αυτό έρχεται σε αντίθεση με τις μαγνητο-οπτικές μεθόδους, οι οποίες είναι έμμεσες. Για αυτό το λόγο η ερμηνεία των πειραμάτων φωτοεκπομπής είναι πιο σαφής, συγκριτικά με εκείνη που προκύπτει από τις μαγνητο-οπτικές μετρήσεις. Τα μειονεκτήματα των πειραμάτων φωτοεκπομπής είναι οι αυστηρές απαιτήσεις σχετικά με την αγωγιμότητα της επιφάνειας. Κατά συνέπεια, η τεχνική μπορεί να εφαρμοστεί σε ένα περιορισμένο αριθμό υλικών, κυρίως σε μέταλλα και ημιμέταλλα. Κατά βάση, σημαντική πληροφόρηση σχετικά με τη διεργασίες δυναμικής και χαλάρωσης των διεγερμένων ηλεκτρονίων, μπορεί να προκύψει με τη βοήθεια της φωτοεκπομπής δύο φωτονίων (two-photon photoemission-2PPE), η οποία είναι χρονικής ανάλυσης ως προς το σπιν και την ενέργεια. Η φωτοεκπομπή δύο ηλεκτρονίων είναι μια διαδικασία δύο βημάτων, όπου ένας παλμός laser διεγείρει τα ηλεκτρόνια από το επίπεδο Fermi και ο μεταβατικός πληθυσμός της ενδιάμεσης διέγερσης ανιχνεύεται από ένα δεύτερο παλμό, που προωθεί τα ακόμα διεγερμένα ηλεκτρόνια στο κενό, όπου και αναλύεται η ενέργειά τους.

### 3.3.4 Ανίχνευση άπω υπέρυθρου (Far infrared probe)

Η ενέργεια των άπω υπέρυθρου φωτονίων πέφτει στο εύρος όπου τα μέταλλα έχουν έντονη απόκριση των ελευθέρων ηλεκτρονίων τους. Αυτή η απόκριση Drude των ελευθέρων ηλεκτρονίων στο ηλεκτρικό πεδίο επιτρέπει την απόκτηση πληροφόρησης σχετικά με την αγωγιμότητα του υλικού. Αν η αγωγιμότητα του αερίου των ελευθέρων ηλεκτρονίων είναι ευαίσθητη στη μαγνητική τάξη, μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως έμμεση ανίχνευση των μεταπτώσεων των μαγνητικών φάσεων, επίσης. Αξίζει να σημειωθεί ότι οι συχνότητες του μαγνητικού συντονισμού στα περισσότερα αντισιδηρομαγνητικά υλικά βρίσκονται στο εύρος από 100 GHz ως 3 THz. Επίσης, πολλά ιόντα σπάνιων γαιών έχουν μεταπτώσεις πλήρους αντιστροφής του σπιν τους στο εύρος από 100 GHz ως 10 THz. Έτσι, η THz φασματοσκοπία μπορεί να δώσει άμεση πρόσβαση στο σύστημα σπιν και να αποτελέσει μια μοναδική μέθοδο ανίχνευσης μεταβολών επαγόμενες από το laser.

### 3.3.5 Ανίχνευση με ακτίνες X

Η ανάπτυξη των σύγχροτων πηγών Ακτινών X έχει κάνει ικανή τη γένεση γραμμικής και κυκλικής, πολωμένης ακτινοβολίας, με εντάσεις επαρκείς για τις μετρήσεις του κυκλικού και γραμμικού, μαγνητικού διχρωισμού στην περιοχή των ακτινών X (XMCD και XMLD αντίστοιχα). Παρόμοια με τα μαγνητο-οπτικά φαινόμενα στο φάσμα του ορατού, οι τεχνικές XMCD και XMLD μπορούν να αξιοποιηθούν για να εξαχθούν συμπεράσματα σχετικά με τον προσανατολισμό της μαγνήτισης και του αντισιδηρομαγνητικού διανύσματος, αντίστοιχα. Εν αντιθέσει με ότι ισχύει για το οπτικό φάσμα, τα μαγνητικά υλικά στο φάσμα των ακτινών X χαρακτηρίζονται από σχετικά στενές μεταπτώσεις, σε καλώς ορισμένες ενέργειες, έτσι ώστε οι τεχνικές απορρόφησης των ακτινών X χαρακτηρίζονται από στοιχειακή και χημική ακρίβεια. Επιπλέον, επειδή οι φασματικές γραμμές στην περιοχή των ακτινών X είναι στενές και καλώς διαχωρισμένες, μπορεί κανείς να χρησιμοποιήσει κανόνες αθροίσματος για να αποκτήσει ποσοτικές πληροφορίες για τις τροχιακές ροπές και το σπιν στη θεμελιώδη κατάσταση. Εξαιτίας των πλεονεκτημάτων των τεχνικών ακτινών X, οι μετρήσεις XMCD, με κάτω από πικοδευτερόλεπτο χρονική διακριτότητα, μπορούν να παρέχουν καινοτόμες και μοναδικές γνώσεις για τις υπερταχείς μαγνητικές μεταβολές επαγόμενες από τη χρήση laser .

## Υπολογιστικό Μέρος

## 4 Μοντελοποίηση της υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης με χρήση laser

Οι δυναμικές ιδιότητες της μαγνήτισης μελετήθηκαν μέσω του λογισμικού VAMPIRE<sup>1</sup> (15). Πρόκειται για λογισμικό ανοιχτού κώδικα, το οποίο επιτρέπει την μοντελοποίηση μαγνητικών υλικών με ατομική διακριτότητα, από Ångstroms μέχρι μικρόμετρα. Το λογισμικό VAMPIRE διαθέτει έναν αριθμό λειτουργιών για τη δημιουργία ενός ατομικού συστήματος με την προσέγγιση του πλησιέστερου γείτονα. Το κύριο πλεονέκτημα της προσέγγισης πλησιέστερου γείτονα είναι η απλότητα και η δυνατότητα θεώρησης ενός ευρέως φάσματος φυσικών επιδράσεων, όπως σιδηριμαγνητικά και αντισιδηρομαγνητικά υλικά, επιφάνειες κλπ. Το συγκεκριμένο λογισμικό διαθέτει, επίσης, τη δυνατότητα «χτισίματος» δομών σωματιδίων προς διευκόλυνση της δημιουργίας συστημάτων με απλά γεωμετρικά σχήματα, όπως σφαίρες, κυλίνδρους, οκτάεδρα και κύβους.

Το πρώτο βήμα περιλαμβάνει τη δημιουργία ενός κρυσταλλικού πλέγματος του επιθυμητού σχήματος και διαστάσεων, επαρκώς μεγάλων για την πλήρη ενσωμάτωση του συστήματος προς προσομοίωση. Για τις πολύπλοκες δομές, ο χρήστης πρέπει να προσδιορίσει πλήρως τη Χαμιλτονιανή του συστήματος, λαμβάνοντας υπ' όψιν ρεαλιστικές διεπιφάνειες μεταξύ των διαφόρων κρυστάλλων. Το λογισμικό χρησιμοποιεί τη μοναδιαία κυψελίδα ως το ουσιαστικό στοιχείο της ατομικής δομής, δεδομένου ότι οι αλληλεπιδράσεις ανταλλαγής των ατόμων μεταξύ γειτονικών μοναδιαίων κυψελίδων είναι γνωστές πριν τη δημιουργία της δομής. Ο συνολικός κρύσταλλος δημιουργείται με αναπαραγωγή της βασικής, μοναδιαίας κυψελίδας σε ένα κάναβο  $x$ ,  $y$ , και  $z$ . Εν συνέχεια, η κρυσταλλική δομή κόβεται στην επιθυμητή γεωμετρία, (πχ σε ενιαίο νανοσωματίδιο, ή σε δομή Voronoi κλπ.), αφαιρώντας άτομα από τον συμπληρωμένο κρύσταλλο.

### 4.1 Χαρακτηριστικά του λογισμικού

Τα κύρια στοιχεία (input files) του κώδικα του λογισμικού VAMPIRE ταξινομούνται σε τρεις κύριες κατηγορίες: 1)Παράμετροι του υλικού 2)Δομικές παράμετροι και 3)Παράμετροι προσομοίωσης

- ✓ Παράμετροι σχετικές με το υλικό: Οι παράμετροι του υλικού, ουσιαστικά, καθορίζουν της μαγνητικές ιδιότητες της τάξης των ατόμων, συμπεριλαμβανομένων των μαγνητικών ροπών, των αλληλεπιδράσεων ανταλλαγής, των σταθερών απόσβεσης κλπ.
- ✓ Δομικές παράμετροι: Οι δομικές παράμετροι αφορούν, ιδιότητες όπως το μέγεθος του συστήματος, το σχήμα, το μέγεθος του σωματιδίου κλπ. Σε συνδυασμό με τις παραμέτρους του υλικού καθορίζουν το σύστημα που πρόκειται να προσομοιωθεί.
- ✓ Παράμετροι προσομοίωσης: Το λογισμικό δίνει τη δυνατότητα προσδιορισμού των πιο κοινών μαγνητικών ιδιοτήτων ενός συστήματος. Μεταξύ άλλων συμπεριλαμβάνονται η θερμοκρασία Curie, βρόχοι υστέρησης κλπ. Στο ίδιο αρχείο εισαγωγής προστίθενται και παράμετροι όπως το επιβαλλόμενο πεδίο, μέγιστη-ελάχιστη θερμοκρασία, βήμα αύξησης της θερμοκρασίας, ενέργεια και χρονική διάρκεια παλμού κλπ.

---

<sup>1</sup> VAMPIRE software package version 5.0 διαθέσιμο από <https://vampire.york.ac.uk>



## 4.2 Αρχεία εισαγωγής και αρχεία αποτελεσμάτων

Το λογισμικό απαιτεί τουλάχιστον δύο αρχεία εισαγωγής για την πραγματοποίηση κάθε προσομοίωσης. Το πρώτο αντιστοιχεί στο αρχείο όπου περιγράφονται οι παράμετροι των υλικών (material file), ενώ το δεύτερο αντιστοιχεί στο αρχείο εισαγωγής των παραμέτρων της κάθε προσομοίωσης (input file). Στη συνέχεια δίνονται παραδείγματα των δύο παραπάνω αρχείων (Co.mat και laser.input).

Στο αρχείο των αποτελεσμάτων (output file) καταγράφονται όλα τα δεδομένα που προέκυψαν από την προσομοίωση, όπως η μαγνήτιση, τα βήματα χρόνου, θερμοκρασία κλπ. Το είδος των αποτελεσμάτων που θα υπολογιστούν και παρουσιαστούν έχει προεπιλεγεί από το χρήστη και έχει καταγραφεί στο αρχείο εισαγωγής των παραμέτρων της προσομοίωσης. Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας επελέγησαν να παρουσιαστούν ως αποτελέσματα των προσομοιώσεων, η κανονικοποιημένη μαγνήτιση, ο χρόνος, η θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και η θερμοκρασία των φωνονίων.

### 4.2.1 Αρχείο εισαγωγής παραμέτρων υλικών

Στη συνέχεια αναλύονται κάποιες από τις πιο βασικές εισαγωγικές παραμέτρους των αρχείων των υλικών.

#### 4.2.1.1 Παράμετροι των υλικών (material parameters)

- ✓ Σταθερά απόσβεσης (**material: damping-constant = float [0.0-10.0; default 1.0]**): Προσδιορίζει το φαινομενολογικό ρυθμό χαλάρωσης σε δυναμικές προσομοιώσεις, που γίνεται χρήση της LLG εξίσωσης. Για ιδιότητες που μελετώνται σε καταστάσεις ισορροπίας, προτείνεται να τίθεται η σταθερά απόσβεσης ίση με 1 (κρίσιμη απόσβεση: critical damping), ενώ για ρεαλιστική μελέτη της δυναμική η σταθερά απόσβεσης πρέπει να είναι αντιπροσωπευτική του υλικού. Τυπικές τιμές κυμαίνονται από 0,005 ως 0.1 για τα περισσότερα υλικά.
- ✓ Ενέργεια ανταλλαγής (**material: exchange-matrix[index] = float [default 0.0 J/link]**): Προσδιορίζει την, κατά ζεύγη ενέργεια (pairwise), ανταλλαγής μεταξύ ατόμων. Η, κατά ζεύγη, ενέργεια ανταλλαγής είναι ανεξάρτητη από τον αριθμό συνδιάταξης και το συνολικό ολοκλήρωμα ανταλλαγής εξαρτάται από τον αριθμό των πλησιέστερων γειτόνων στο κρυσταλλικό πλέγμα. Η ενέργεια ανταλλαγής πρέπει να έχει προσδιοριστεί για όλα τα διαφορετικά είδη ζευγών υλικών, που συμμετέχουν στο πλέγμα. Οι θετικές τιμές αναπαριστούν σιδηρομαγνητική σύζευξη, ενώ οι αρνητικές τιμές αντιστοιχούν σε αντισιδηρομαγνητική σύζευξη. Για ένα σιδηρομαγνητικό υλικό η κατά ζεύγη ενέργεια ανταλλαγής μπορεί να βρεθεί από τη θερμοκρασία Curie μέσω της έκφρασης:

$$J_{ij} = \frac{3k_B T_c}{\epsilon z} \quad (4-1)$$

Όπου  $J_{ij}$  είναι η ενέργεια ανταλλαγής,  $k_B$  είναι ο παράγοντας Boltzmann,  $T_c$  είναι η θερμοκρασία Curie,  $z$  είναι ο αριθμός συνδιάταξης και  $\epsilon$  είναι ένας συντελεστής διόρθωσης, που σχετίζεται με τις διακυμάνσεις των spin σε διαφορετικά κρυσταλλικά πλέγματα. Για τις προσομοιώσεις της παρούσας εργασίας, οι τιμές  $J_{ij}$  αντλήθηκαν από (15).

- ✓ Ατομική ροπή spin (**material:atomic-spin-moment = float [0.01+ μB, default 1.72 μB]**): Προσδιορίζει την τοπική, ενεργή ροπή spin για κάθε ατομική θέση. Οι ατομικές ροπές μπορούν να βρεθούν από ab-initio υπολογισμούς ή να εξαχθούν από μετρήσεις, σε χαμηλές

θερμοκρασίες, της μαγνήτισης κορεσμού. Οι ατομικές ροπές σπιν σχετίζονται με τη μακροσκοπική μαγνήτιση μέσω της έκφρασης:

$$\mu_S = \frac{M_S a^3}{n} \quad (4-2)$$

Όπου  $a$  είναι η σταθερά πλέγματος,  $n$  είναι ο αριθμός των ατόμων ανά μοναδιαία κυψελίδα και  $M_S$  είναι η μαγνήτιση κορεσμού, με μονάδες  $J/T/m^3$  ( $A/m$ ). Στα πλαίσια της παρούσης εργασίας, οι τιμές της ατομικής ροπής σπιν, για κάθε υλικό αντλήθηκαν από (66).

- ✓ Σταθερά μονοαξονικής ανισοτροπίας (**uniaxial-anisotropy-constant = float [default 0.0 J/atom]**): Προσδιορίζει την τοπική δεύτερης τάξης μαγνητοκρυσταλλική ανισοτροπία σε κάθε ατομική θέση. Η ενέργεια ανισοτροπίας δίνεται από την έκφραση:

$$E_i = -k_2(S_i \cdot e_i)^2 \quad (4-3)$$

Όπου  $S_i$  είναι η διεύθυνση του σπιν και  $e_i$  είναι το μοναδιαίο διάνυσμα, που αντιστοιχεί στον εύκολο άξονα. Θετικές τιμές του  $k_2$  αντιστοιχούν στον προτιμητέο άξονα, ενώ αρνητικές τιμές αντιστοιχούν στον προσανατολισμό του επιπέδου του σπιν που είναι κάθετο στην κατεύθυνση του εύκολου άξονα.

#### 4.2.1.2 Παράμετροι αρχείου εισόδου (input-simulation parameters)

- ✓ Μέθοδος ολοκλήρωσης (**sim:integrator = exclusive string [default llg-heun]**): Οι διαθέσιμες επιλογές ολοκληρωτών είναι οι εξής
  1. llg-heun
  2. monte-carlo
  3. llg-midpoint
  4. constrained-monte-carlo
  5. hybrid-constrained-monte-carlo

Στην παρούσα εργασία ως μέθοδος ολοκλήρωσης έχει επιλεγεί η llg-heun, καθώς θεωρήθηκε ότι είναι η πιο κατάλληλη για τη μελέτη δυναμικών φαινομένων.

#### 4.2.1.3 Παράμετροι αρχείου εξόδου (output parameters)

- ✓ Θερμοκρασία (**output:temperature**): Δίνεται η θερμοκρασία του συστήματος σε Kelvin
- ✓ Μαγνήτιση (**output:magnetization**): Δίνεται η μαγνήτιση του συστήματος. Τα δεδομένα ταξινομούνται σε τέσσερις στήλες  $\widehat{m}_x, \widehat{m}_y, \widehat{m}_z, |m|$ , τα οποία δίνουν την κατεύθυνση του διανύσματος μαγνήτισης και την κανονικοποιημένη μαγνήτιση, αντίστοιχα. Η κανονικοποιημένη μαγνήτιση δίνεται από τη σχέση  $|m| = \frac{|\sum_i \mu_i S_i|}{\sum \mu_i}$  (4-4):

$$|m| = \frac{|\sum_i \mu_i S_i|}{\sum \mu_i} \quad (4-4)$$

και προκύπτει από το άθροισμα όλων των ροπών του συστήματος, αν υποθεθεί ευθυγράμμιση όλων των σπιν (σιδηρομαγνητικό υλικό).

- ✓ Θερμοκρασία ηλεκτρονίων (**output:electron-temperature**): Δίνεται η θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, όπως υπολογίζεται από το μοντέλο των δύο θερμοκρασιών.

- ✓ Θερμοκρασία φωνονίων (**output:phonon-temperature**): Δίνεται η θερμοκρασία των φωνονίων (πλέγματος), όπως υπολογίζεται από το μοντέλο των δύο θερμοκρασιών.

```
create:periodic-boundaries-z
#-----
# System Dimensions:
#-----
dimensions:unit-cell-size-x = 2.501 !A
dimensions:unit-cell-size-y = 2.501 !A
dimensions:unit-cell-size-z = 4.033 !A
dimensions:system-size-x = 4.0 !nm
dimensions:system-size-y = 4.0 !nm
dimensions:system-size-z = 4.0 !nm

#-----
# Material Files:
#-----
material:file=Co.mat

#-----
# Simulation attributes:
#-----
sim:temperature=300.0
sim:minimum-temperature=0
sim:maximum-temperature=800
sim:temperature-increment=25
sim:time-steps-increment=1
sim:equilibration-time-steps=1000
sim:loop-time-steps=1000
sim:time-step=1.0E-16
sim:equilibration-time-steps=10000
sim:total-time-steps=50000

sim:laser-pulse-time = 80 !fs
sim:laser-pulse-power=2
sim:laser-pulse-temporal-profile=two-temperature

output:real-time
output:electron-temperature
output:phonon-temperature
output:magnetisation-length

#-----
# Program and integrator details
#-----
sim:program=laser-pulse
sim:integrator=llg-heun
sim:time-step=1.0e-16

#-----
# data output
#-----
output:real-time
output:electron-temperature
output:phonon-temperature
output:magnetisation-length
```

**Εικόνα 4-1:** Απεικόνιση του αρχείου εισόδου – laser input

```

#=====
# Sample vampire material file V5
#=====

#-----
# Number of Materials
#-----
material:num-materials=1
#-----
# Material 1 Cobalt Generic
#-----
material[1]:material-name=Co
material[1]:damping-constant=1.0
material[1]:exchange-matrix[1]=6.064e-21
material[1]:atomic-spin-moment=1.659 !muB
material[1]:second-order-uniaxial-anisotropy-constant=1.0e-24
material[1]:material-element=Co
material[1]:minimum-height=0.0
material[1]:maximum-height=1.0

```

Εικόνα 4-2: Απεικόνιση του αρχείου εισαγωγής παραμέτρων των υλικών – Co.mat

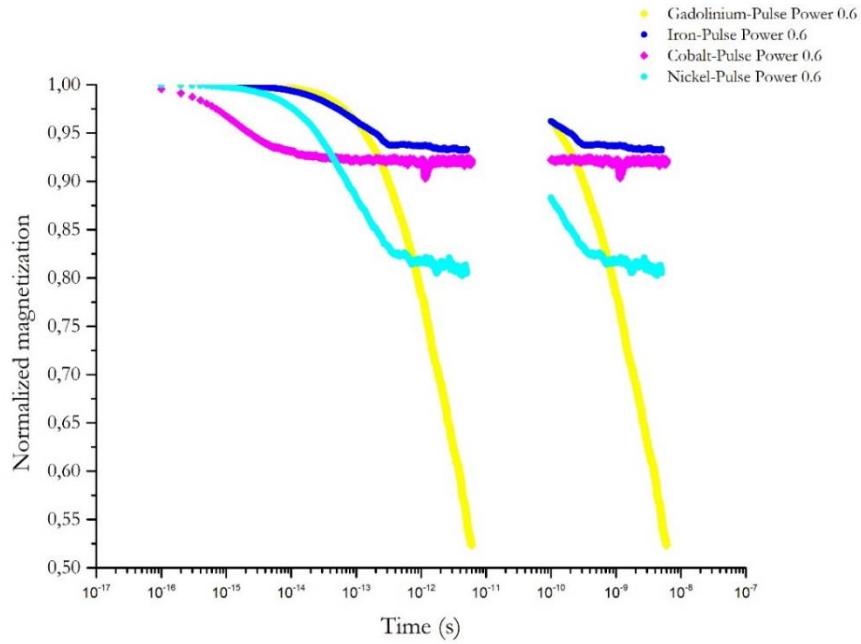
## 5 Αποτελέσματα Προσομοιώσεων

Στα πλαίσια της παρούσας εργασίας μελετήθηκε η επίδραση των δύο παραμέτρων της ενέργειας του παλμού και της χρονικής διάρκειας του παλμού στη μαγνήτιση στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και των φωνονίων. Ως προς την επίδραση της ενέργειας παλμού, επελέγησαν 7 διαφορετικά επίπεδα ροής ενέργειας (0.2, 0.6, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0 και 5 mJ/cm<sup>2</sup>), ενώ ως προς τη διάρκεια παλμού επελέγησαν οι τιμές 80, 100, 150 και 200 fs. Στη συνέχεια, παρουσιάζονται διαγράμματα με τα αποτελέσματα της επίδρασης της ενέργειας παλμού και της χρονικής διάρκειας του παλμού στη μαγνήτιση, στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και των φωνονίων, για κάθε ένα από τα Fe, Co, Ni και Gd. Στη συνέχεια, παρατίθενται συγκριτικά διαγράμματα της χρονικής εξέλιξης της μαγνήτισης, συνολικά και για τα τέσσερα στοιχεία συναρτήσει της ενέργειας του παλμού.

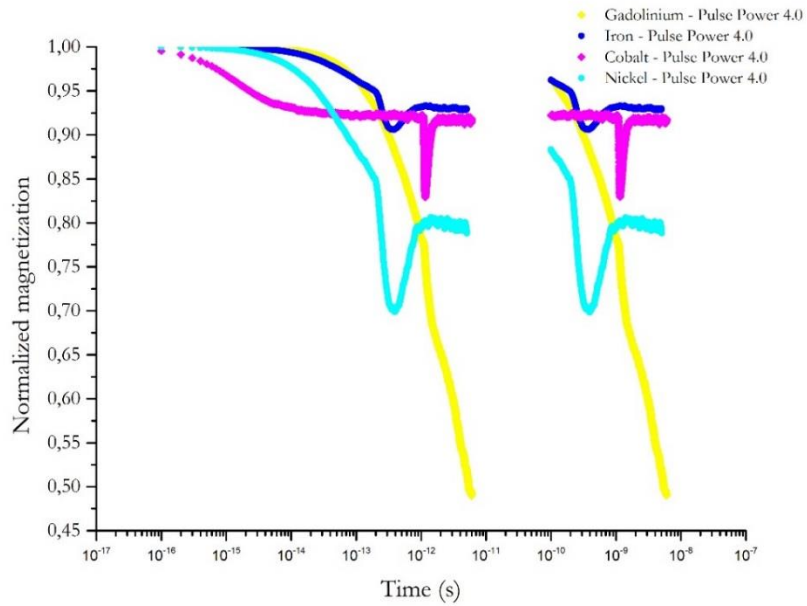
Τα διαγράμματα που ακολουθούν αποτελούν μια συγκριτική αναπαράσταση της απόκρισης των Fe, Co, Ni και Gd στην εφαρμογή fs παλμών laser. Επελέγησαν τα συγκριτικά διαγράμματα ενός χαμηλού επιπέδου ενέργειας (0.6 mJ/cm<sup>2</sup>) ενός υψηλού επιπέδου ενέργειας (4.0 mJ/cm<sup>2</sup>) για να αποτυπωθεί ευκρινέστερα η επίδραση του επιπέδου ενέργειας του παλμού στην εξέλιξη της δυναμικής της μαγνήτισης των επιλεγμένων υλικών. Παρατηρείται ότι και τα τέσσερα υλικά παρουσιάζουν δύο πανομοιότυπα συμβάντα απομαγνήτισης μετά από την αλληλεπίδραση με τους fs παλμούς laser, στο χρονικό διάστημα από  $10^{-17}$  –  $10^{-7}$  s. Επίσης, είναι εμφανής η διαφορετική συμπεριφορά του Gd, συγκριτικά με τα τρία στοιχεία μετάπτωσης Fe, Co και Ni, καθώς δεν εμφανίζει ανάκαμψη της μαγνήτισης, ενώ δεν είναι εμφανής η επίδραση του επιπέδου ενέργειας του παλμού, εν αντιθέσει με τα άλλα τρία στοιχεία που μελετώνται. Στη συνέχεια, η περίπτωση του Gd μελετάται χωριστά, λόγω της ιδιαίτερης συμπεριφοράς

του. Επίσης, ο Fe και το Ni παρουσιάζουν τα συμβάντα απομαγνήτισης την ίδια, περίπου χρονική στιγμή, ενώ το Co παρουσιάζει υστέρηση σε σχέση με τα άλλα δύο στοιχεία μετάπτωσης.

### 5.1 Σύγκριση απόκρισης μαγνήτισης Fe, Co, Ni & Gd



**Διάγραμμα 5-1:** Συγκριτικό διάγραμμα απομαγνήτισης όλων των στοιχείων που μελετήθηκαν, για παλμούς laser ενέργειας 0.6eV

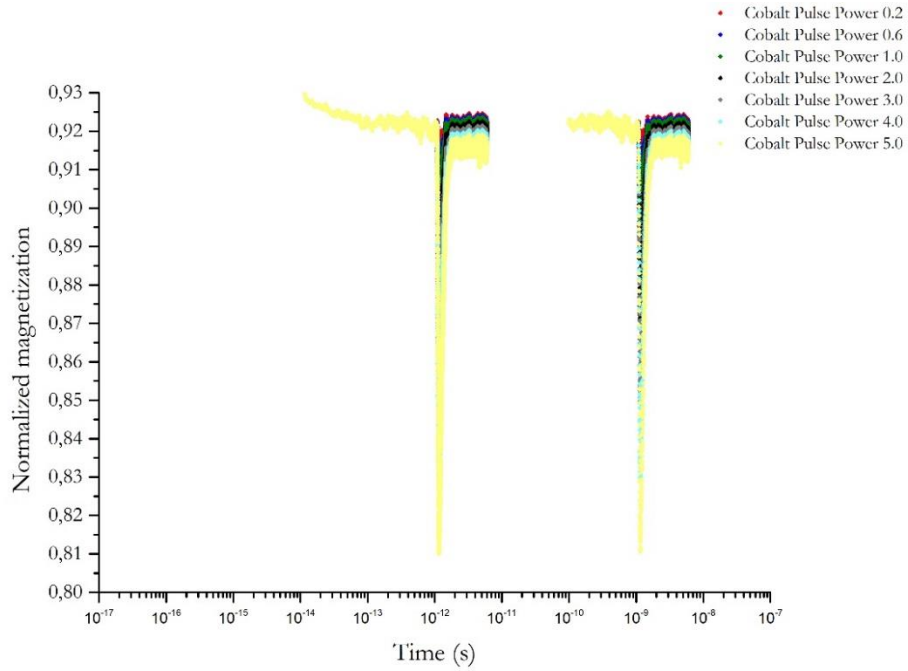


**Διάγραμμα 5-2:** Συγκριτικό διάγραμμα απομαγνήτισης όλων των στοιχείων που μελετήθηκαν, για παλμούς laser ενέργειας 4.0 eV

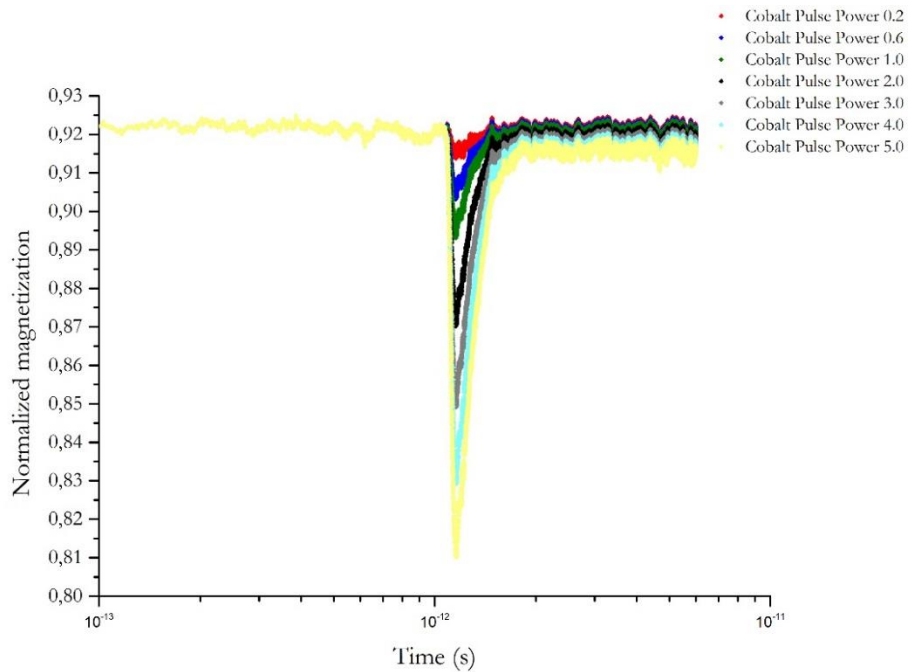
## 5.2 Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Co

### 5.2.1 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση

#### 5.2.1.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη μαγνήτιση

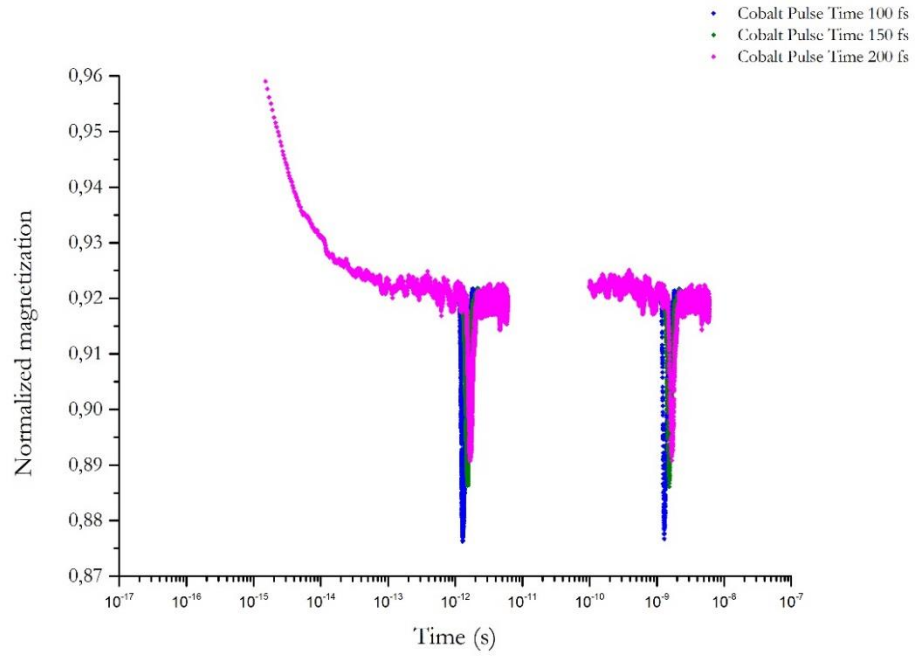


**Διάγραμμα 5-3:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Co, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

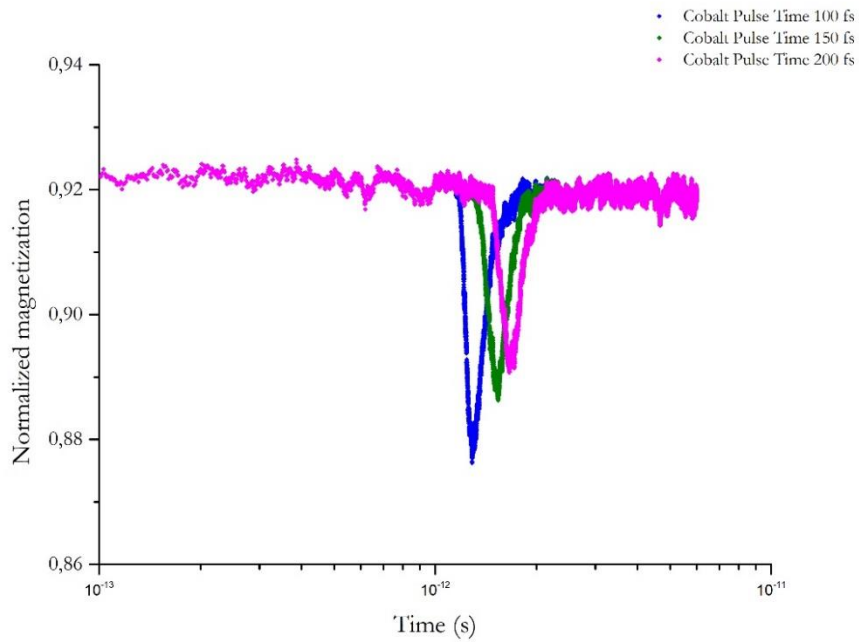


**Διάγραμμα 5-4:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Co, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο).

5.2.1.2 Επίδραση χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση



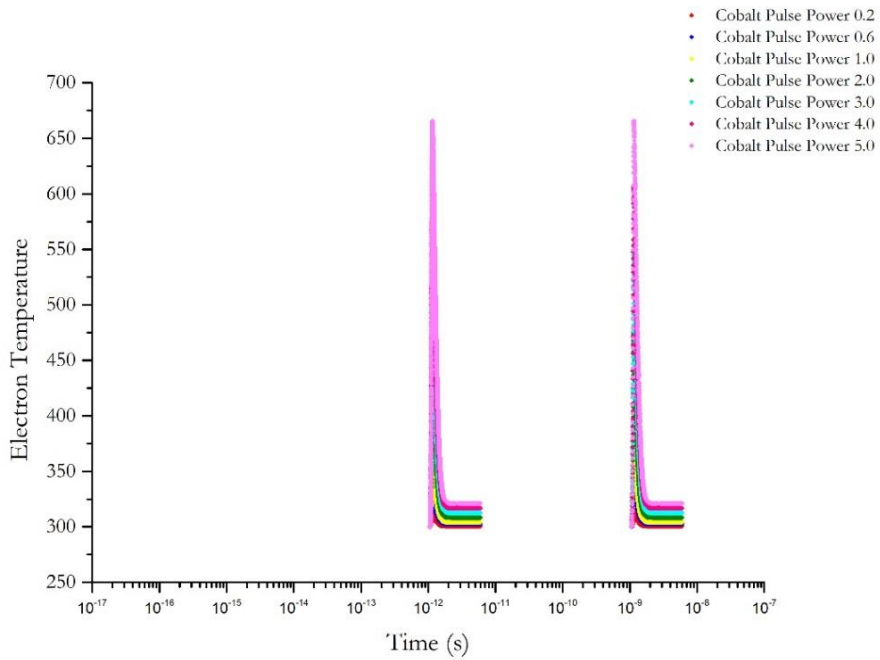
**Διάγραμμα 5-5:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Co, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



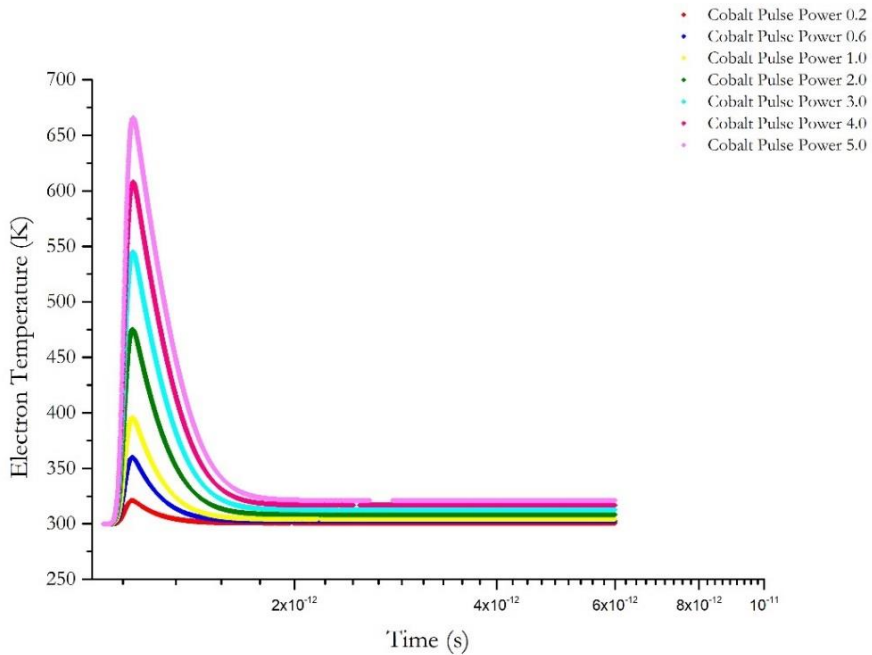
**Διάγραμμα 5-6:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Co, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (1<sup>ο</sup> στάδιο)

5.2.2 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

5.2.2.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων



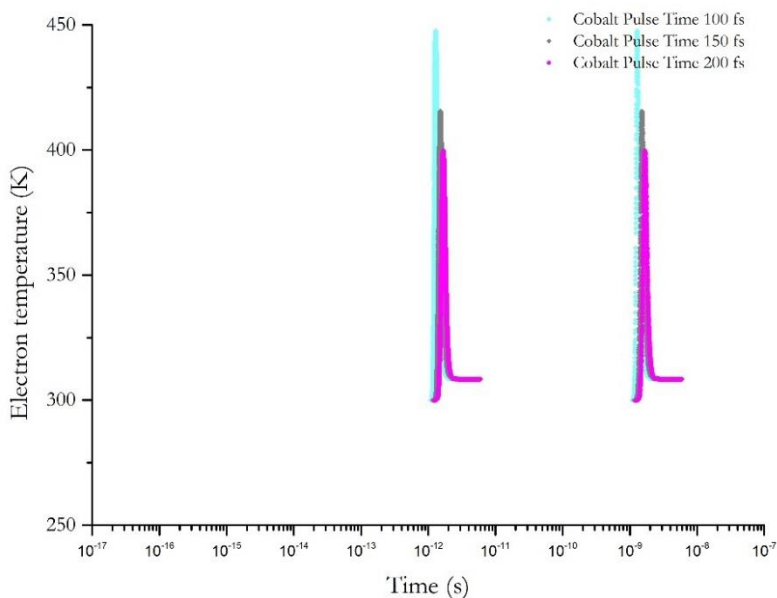
Διάγραμμα 5-7: Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού



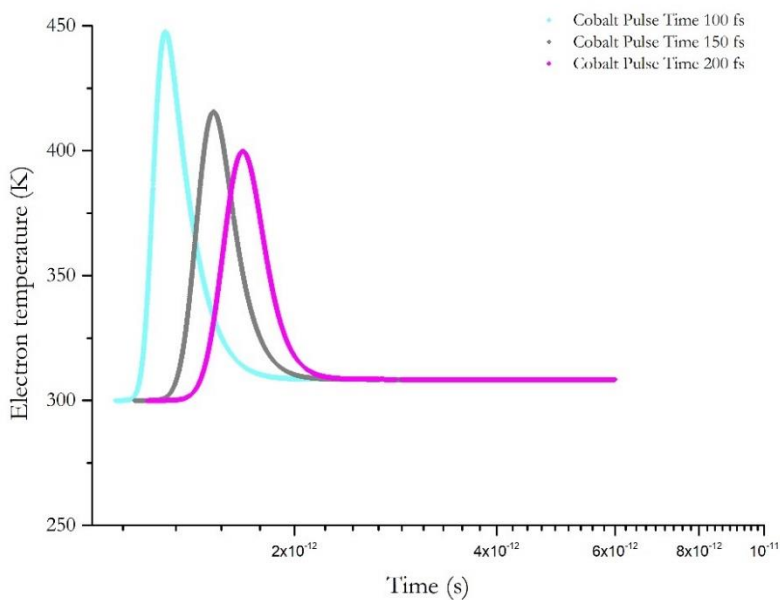
Διάγραμμα 5-8: Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)



5.2.2.2 Επίδραση χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων



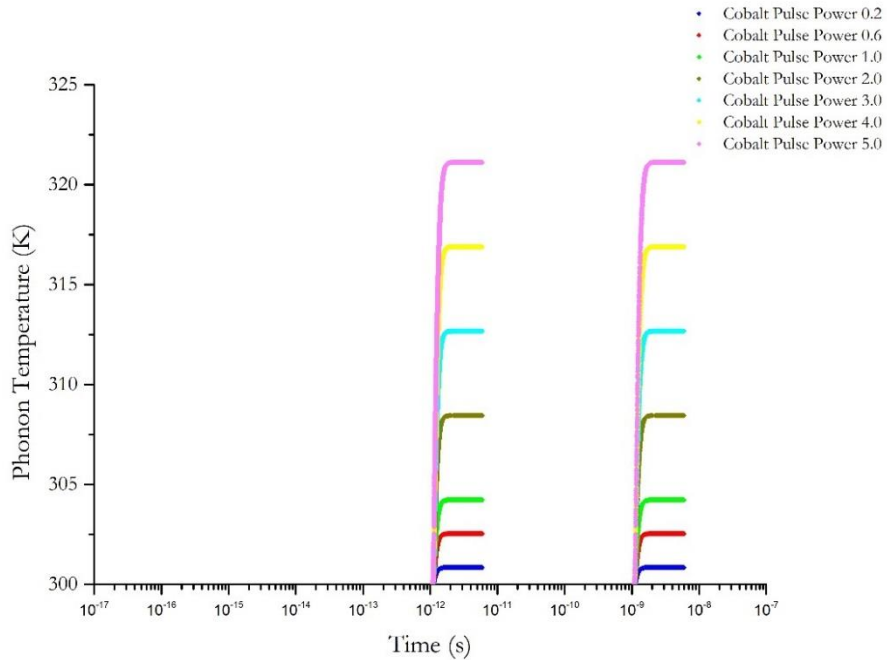
**Διάγραμμα 5-9:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



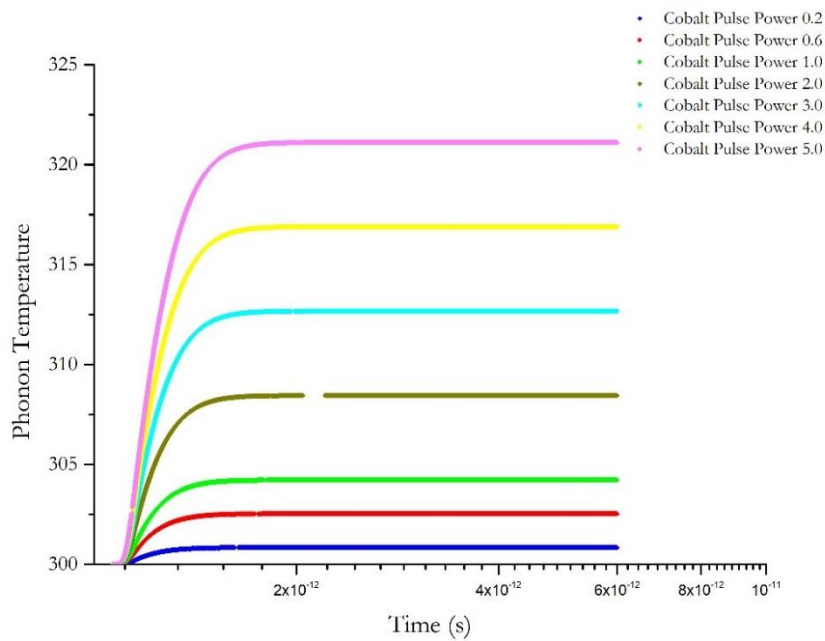
**Διάγραμμα 5-10:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.2.3 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

5.2.3.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

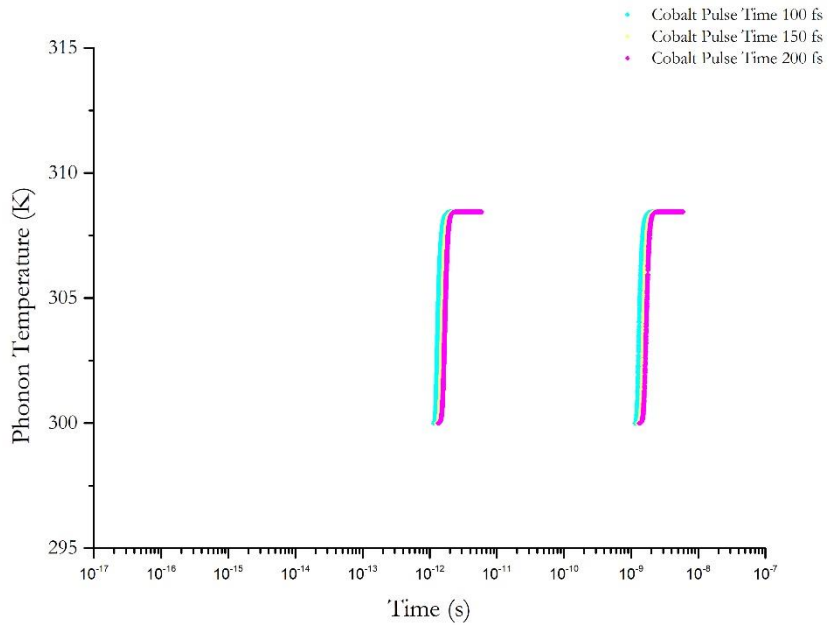


**Διάγραμμα 5-11:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

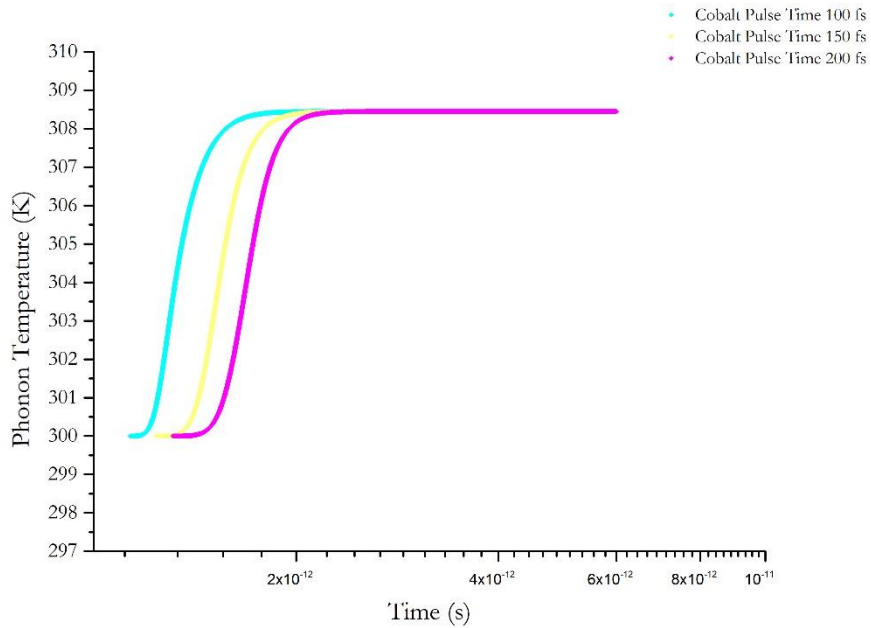


**Διάγραμμα 5-12:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.2.3.2 Επίδραση διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων



**Διάγραμμα 5-13:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



**Διάγραμμα 5-14:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Co όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

#### 5.2.4 Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Co

Σύμφωνα με τα αποτελέσματα που προέκυψαν από την ατομιστική προσομοίωση της απομαγνήτισης του Co, μέσω χρήσης παλμών laser, τα οποία αποτυπώνονται στα διαγράμματα 5.3 ως 5.14, προκύπτει ότι εμφανίζονται δύο συμβάντα απομαγνήτισης και ανάκαμψης (recovery), στο χρονικό διάστημα από  $10^{-17}$  ως  $10^{-7}$ .

Ως προς τη χρονική εξέλιξη της κανονικοποιημένης μαγνήτισης παρατηρείται ότι η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα εντονότερη απομαγνήτιση και, ίσως πιο αργή ανάκαμψη αυτής. Η χρονική διάρκεια του παλμού δεν έχει την ίδια επίδραση στη κανονικοποιημένη μαγνήτιση, καθώς η μείωση της χρονικής διάρκειας του παλμού φαίνεται να έχει ως αποτέλεσμα την εντονότερη απομαγνήτιση και τη πιο σύντομη εμφάνιση της κορυφής. Επίσης, δεν υπήρξε εμφανής διαφορά μεταξύ της καμπύλης που προέκυψε για 80 fs και εκείνης που προέκυψε για 100 fs.

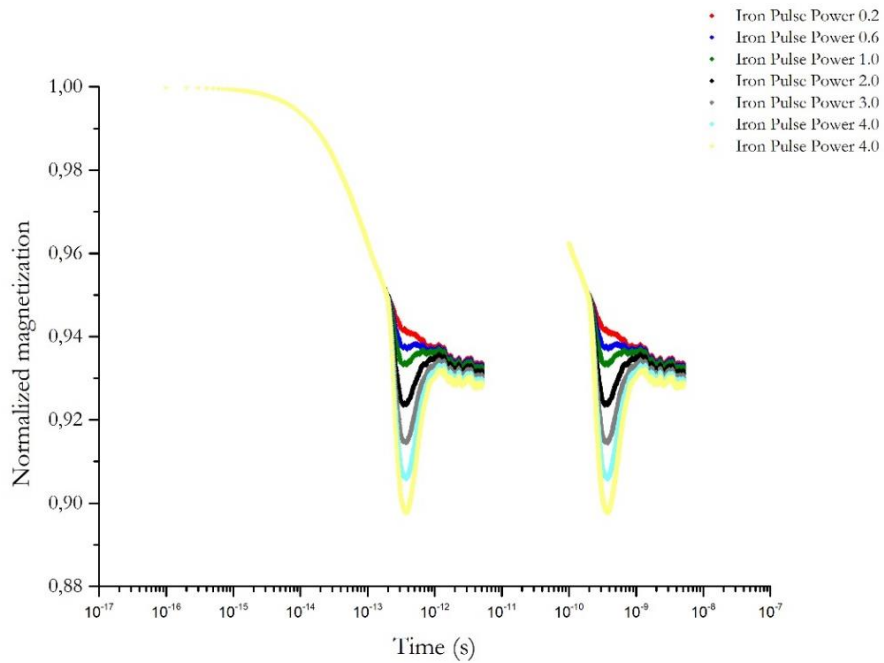
Η ενέργεια του παλμού επιδρά στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, μετατοπίζοντας την κάθε κορυφή σε ολόένα και υψηλότερη θερμοκρασία, ενώ φαίνεται, και από αυτή την ομάδα διαγραμμάτων, η πιο αργή ανάκαμψη της μαγνήτισης. Η αύξηση της χρονικής διάρκειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την μείωση των μεγίστων θερμοκρασιών των ηλεκτρονίων και την πιο αργή εμφάνιση τους.

Η θερμοκρασία των φωνονίων παρουσιάζει αύξηση και στη συνέχεια σταθεροποιείται. Η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση των εμφανιζόμενων θερμοκρασιών, ενώ η μεγαλύτερη χρονική διάρκεια παλμού επιδρά με μετατόπιση της καμπυλών, καθυστερώντας την εμφάνιση τους. Επίσης, η διάρκεια του παλμού δεν έχει επίδραση στη μέγιστη θερμοκρασία των φωνονίων, εν αντιθέσει με την επίδραση στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων.

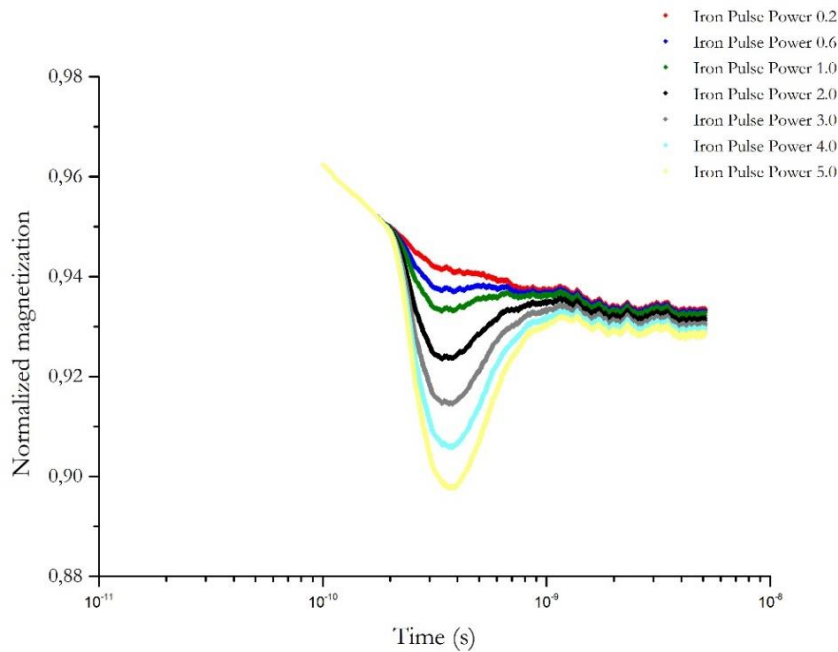
### 5.3 Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Fe

#### 5.3.1 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση

##### 5.3.1.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη μαγνήτιση

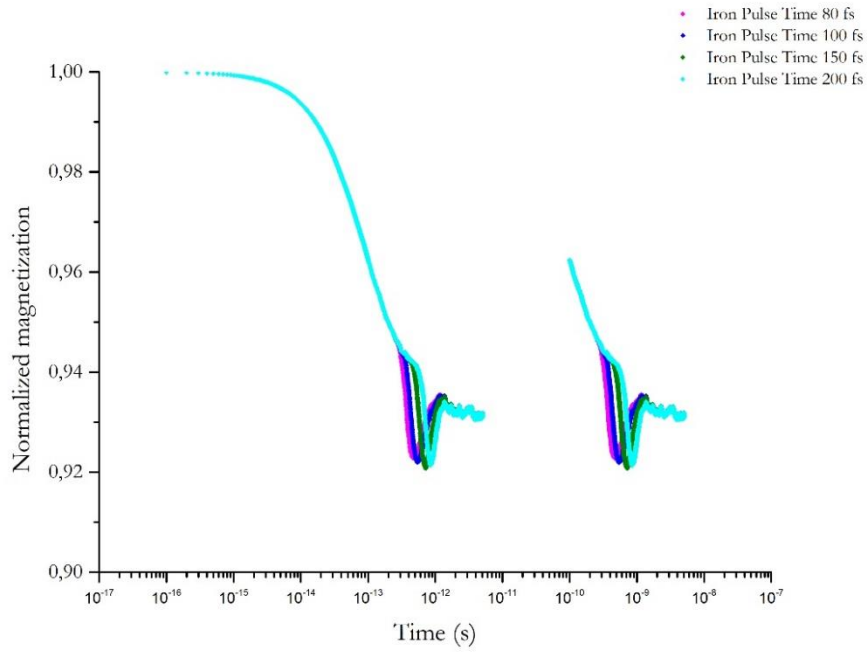


**Διάγραμμα 5-15:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

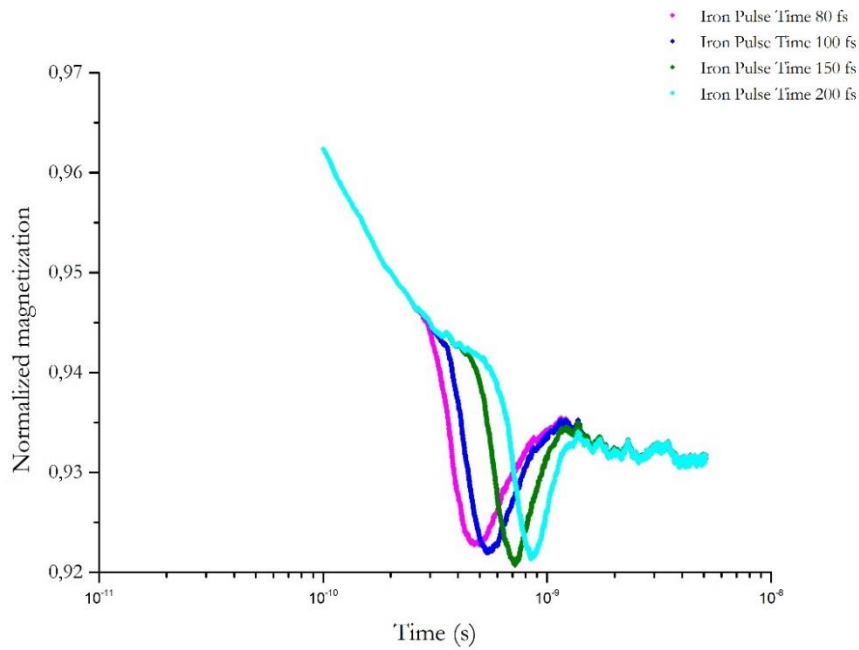


**Διάγραμμα 5-16:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.3.1.2 Επίδραση χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση



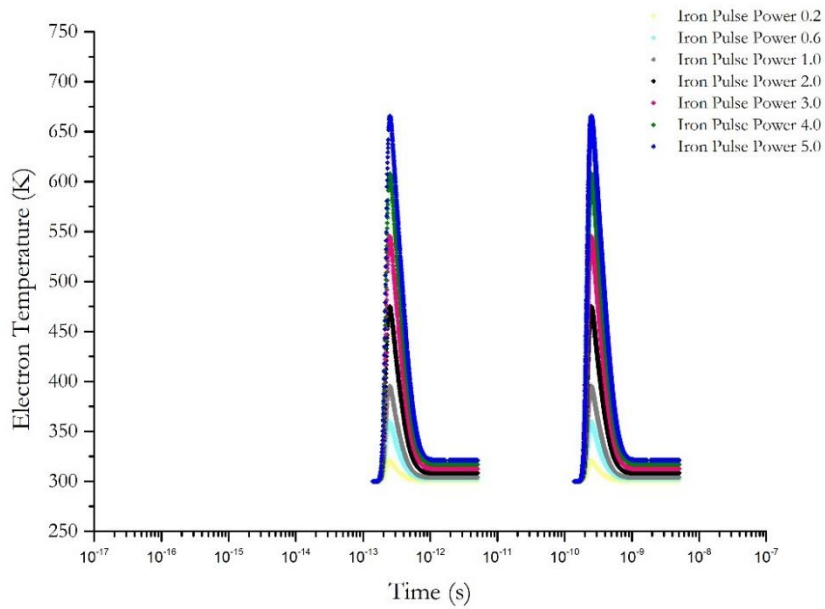
Διάγραμμα 5-17: Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



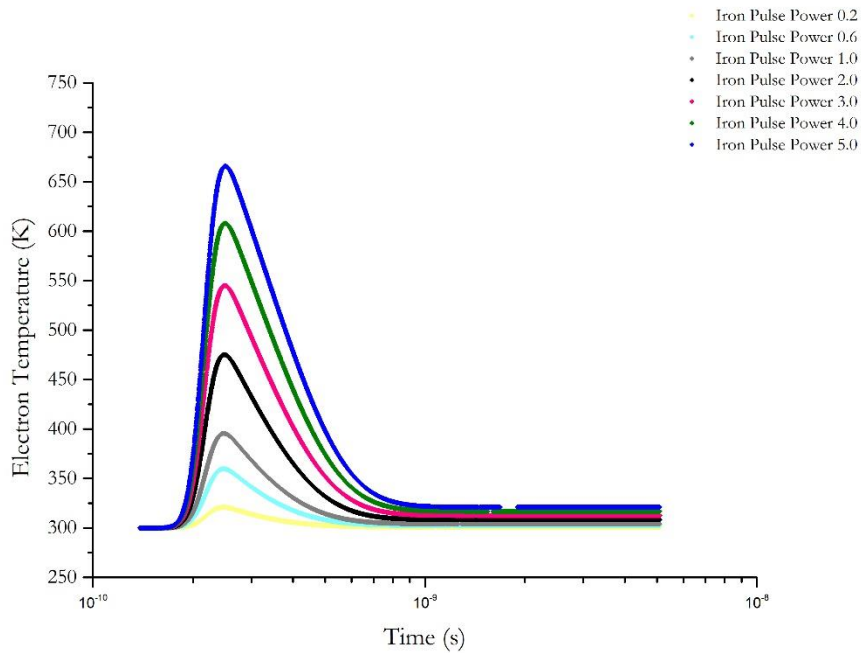
Διάγραμμα 5-18: Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.3.2 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

5.3.2.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

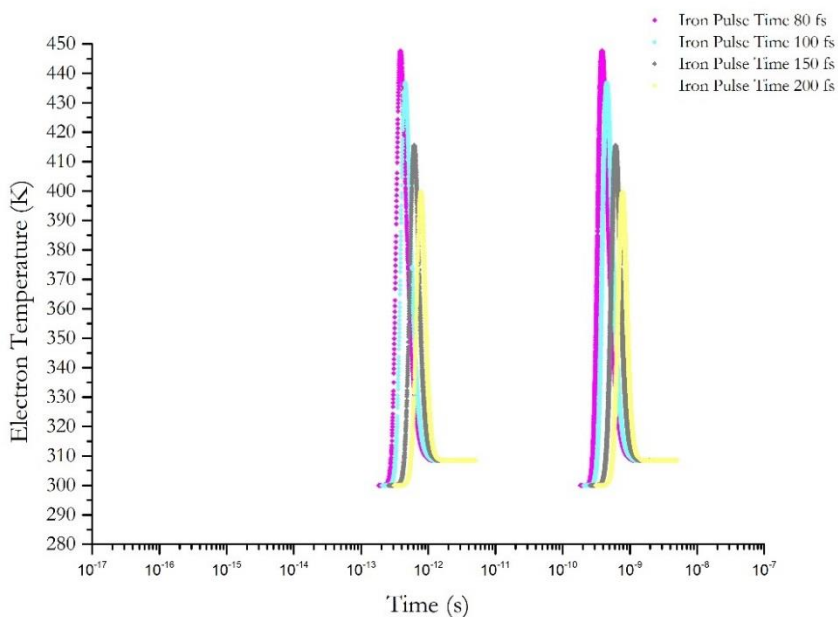


**Διάγραμμα 5-19:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

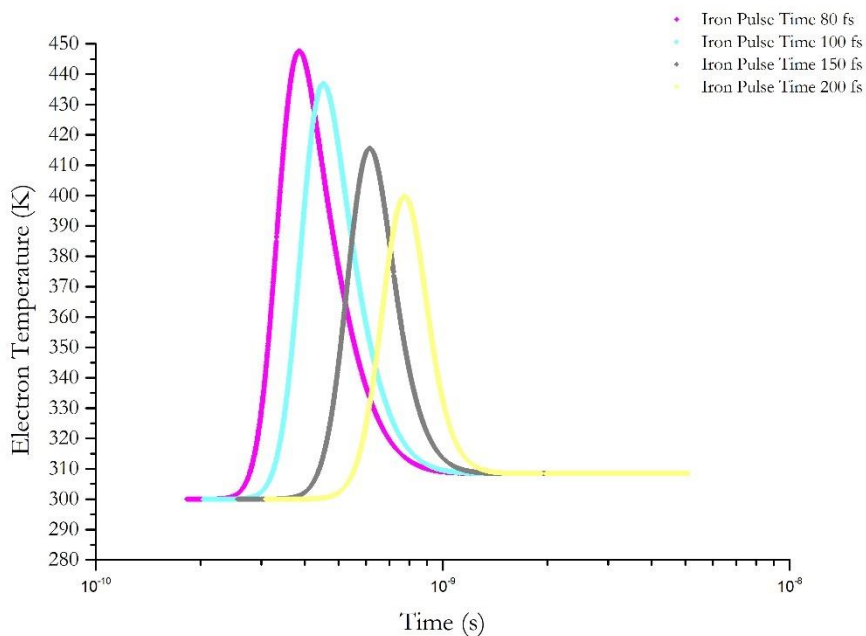


**Διάγραμμα 5-20:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2ο στάδιο)

5.3.2.1 Επίδραση χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων για το Fe



**Διάγραμμα 5-21:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού

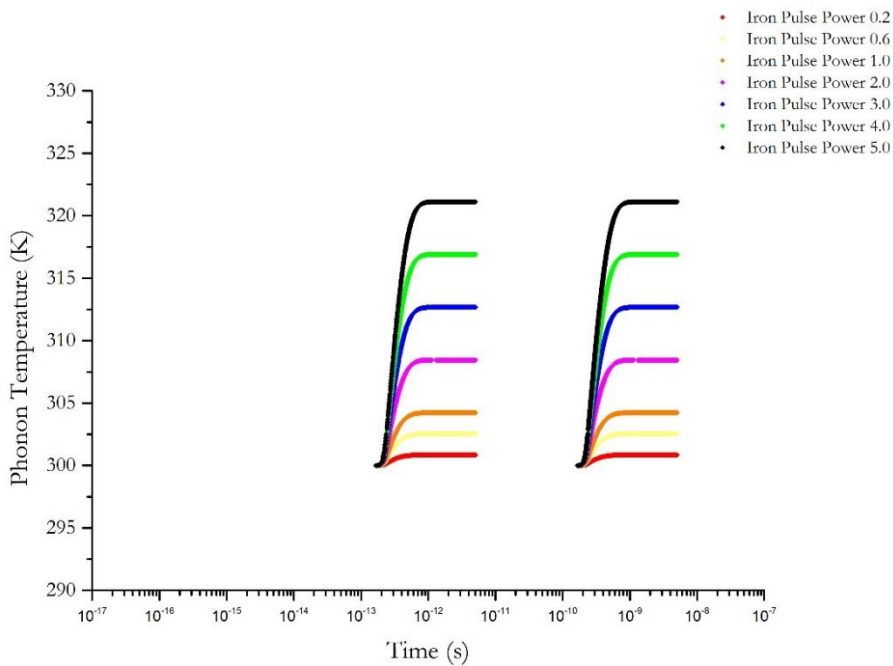


**Διάγραμμα 5-22:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

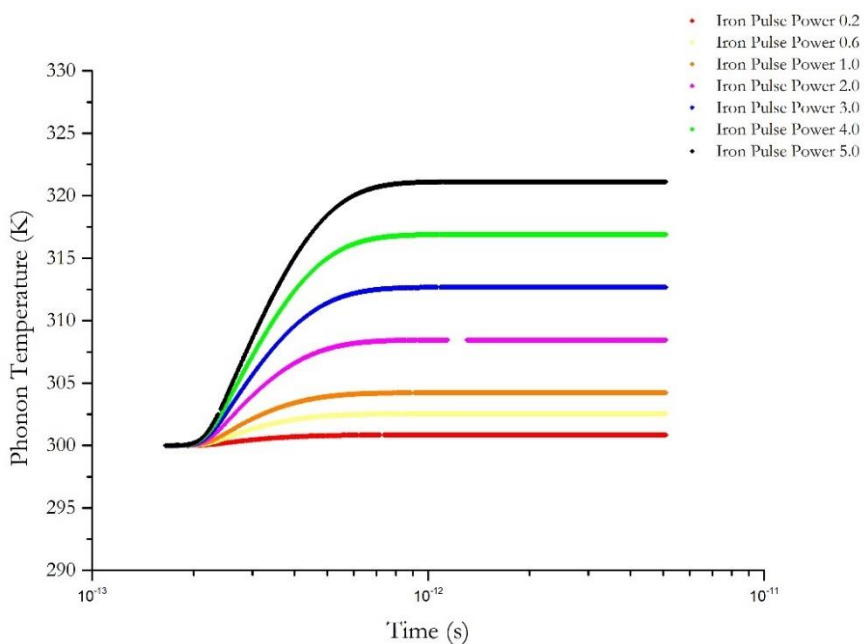


5.3.3 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

5.3.3.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

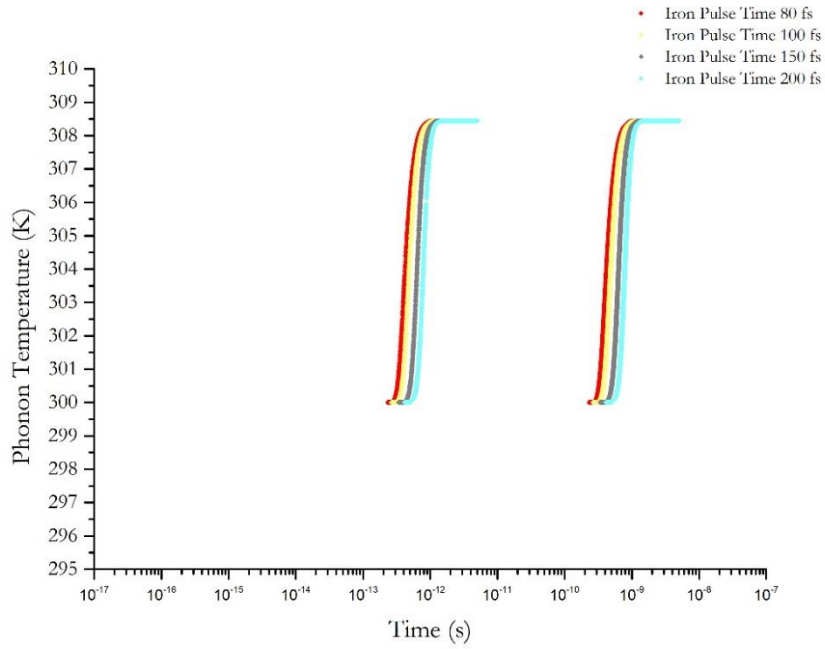


**Διάγραμμα 5-23:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

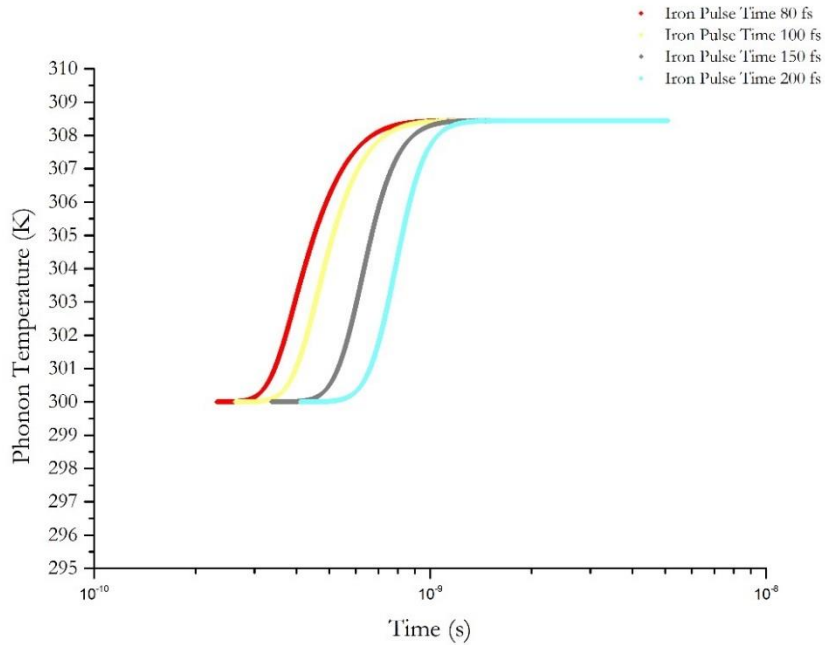


**Διάγραμμα 5-24:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.3.3.2 Επίδραση διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων



**Διάγραμμα 5-25:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



**Διάγραμμα 5-26:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Fe, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

### 5.3.4 Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Fe

Στα διαγράμματα 5.15 ως 5.26 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα της ατομιστικής προσομοίωσης της θερμικής απομαγνήτισης με fs laser, για την περίπτωση του Fe. Όπως παρατηρήθηκε και στην περίπτωση του Co, εμφανίζονται στο επιλεγμένο χρονικό διάστημα ( $10^{-17}$  ως  $10^{-7}$ ) δύο συμβάντα απομαγνήτισης, ακολουθούμενα από ανάκαμψη της μαγνήτισης. Η μορφή των καμπυλών απομαγνήτισης του Fe διαφέρουν αισθητά από εκείνες του Co, καθώς, είναι πιο ευρείες, υποδεικνύοντας κατά αυτόν τον τρόπο πιο αργή ανάκαμψη, ενώ, επίσης, εμφανίζονται πιο σύντομα.

Αναφορικά με την επίδραση της ενέργειας του παλμού στην κανονικοποιημένη μαγνήτιση, παρατηρείται ότι με αύξηση της ενέργειας προκύπτει εντονότερη απομαγνήτιση, ενώ δε φαίνεται να επηρεάζεται η ανάκαμψη της μαγνήτισης. Η αύξηση της χρονικής διάρκειας έχει ως αποτέλεσμα τη μετατόπιση της εμφάνισης των κορυφών σε μεταγενέστερους χρόνους, ενώ δεν έχει επίδραση στην ένταση της απομαγνήτισης, εν αντιθέσει με την περίπτωση του Co. Τέλος, υπάρχει σαφής διαχωρισμός μεταξύ της καμπύλης που προέκυψε για 80 fs και εκείνης που προέκυψε για 100 fs.

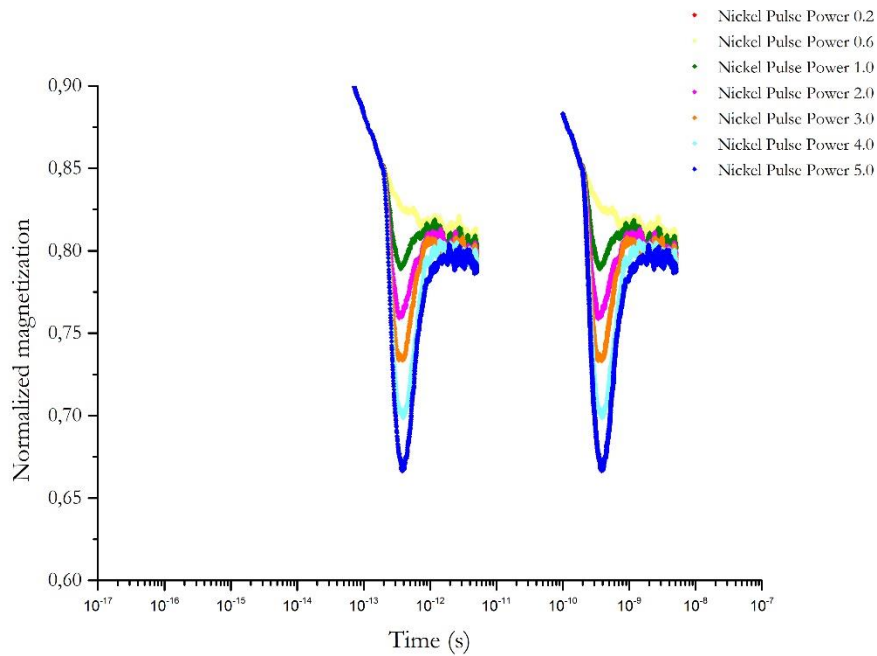
Ως προς την επίδραση της ενέργειας του παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, προκύπτει ότι η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την συνεχή αύξηση των μεγίστων θερμοκρασιών, ενώ επιβεβαιώνεται η πιο αργή ανάκαμψη της μαγνήτισης. Αναφορικά με την επίδραση της χρονικής διάρκειας του παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, παρατηρείται ανάλογη συμπεριφορά με την περίπτωση του Co, όπου η αύξηση της χρονικής διάρκειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα τη μείωση των μεγίστων θερμοκρασιών των ηλεκτρονίων και καθυστέρηση στην εμφάνισή τους.

Τέλος, η θερμοκρασία των φωνονίων παρουσιάζει, αρχικά, αυξανόμενη συμπεριφορά, η οποία στη συνέχεια σταθεροποιείται. Η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση των εμφανιζόμενων θερμοκρασιών. Όσον αφορά την επίδραση της χρονικής διάρκειας στη θερμοκρασία των φωνονίων είναι σε συμφωνία με την επίδραση στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και, κατά συνέπεια, η αύξηση της διάρκειας οδηγεί σε καθυστέρηση της εμφάνισής τους, ενώ δεν έχει επίδραση στις μέγιστες θερμοκρασίες που σημειώνονται.

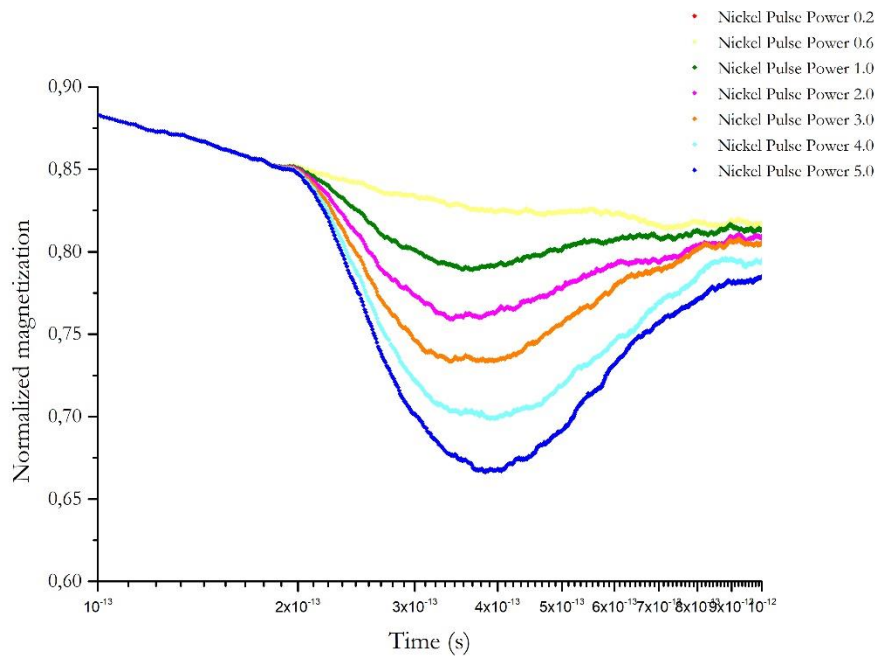
## 5.4 Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Ni

### 5.4.1 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση

#### 5.4.1.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη μαγνήτιση για το Ni

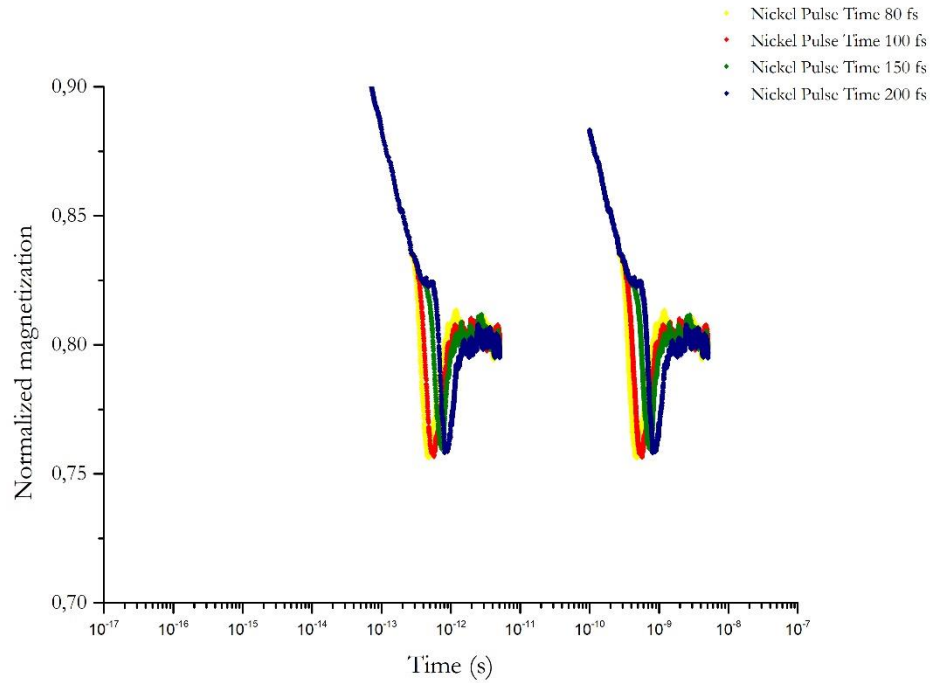


**Διάγραμμα 5-27:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

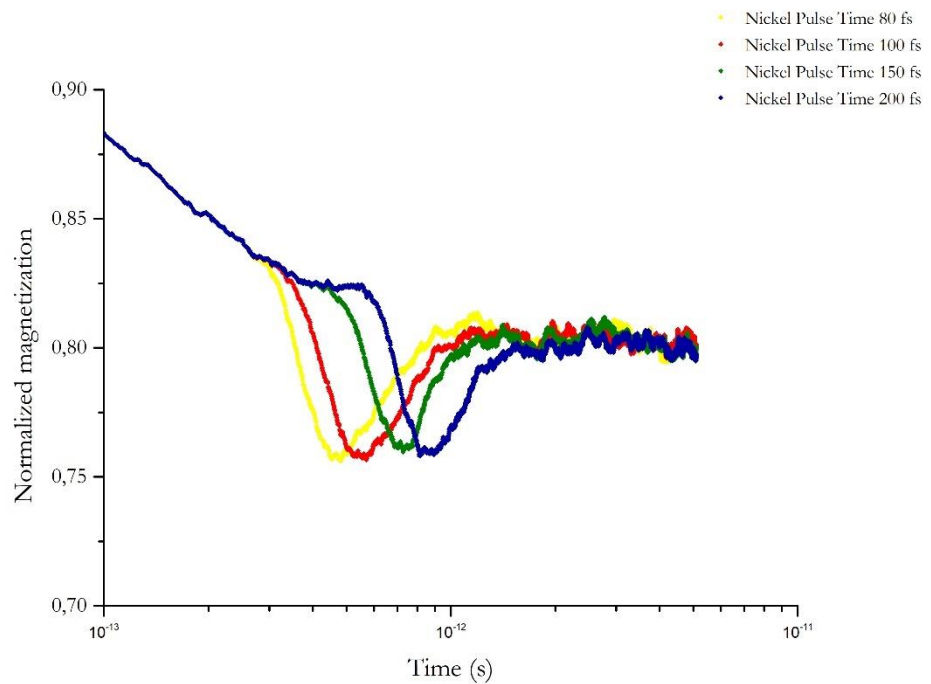


**Διάγραμμα 5-28:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (1<sup>ο</sup> στάδιο)

5.4.1.2 Επίδραση διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση για το Ni



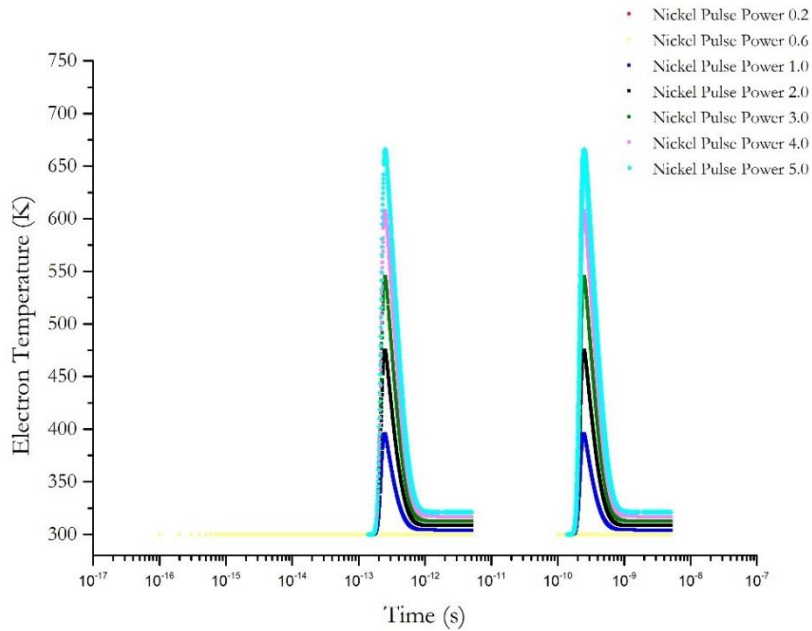
Διάγραμμα 5-29: Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



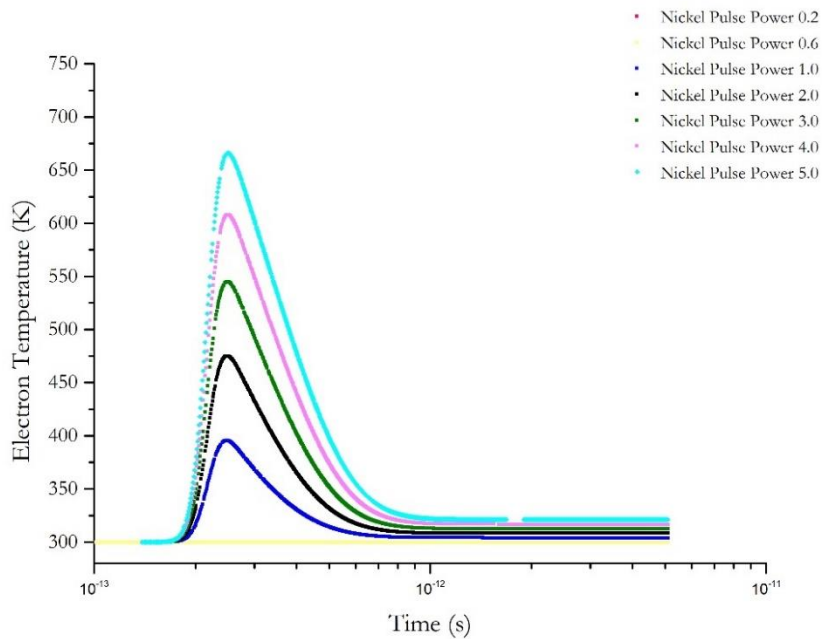
Διάγραμμα 5-30: Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού

5.4.2 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

5.4.2.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

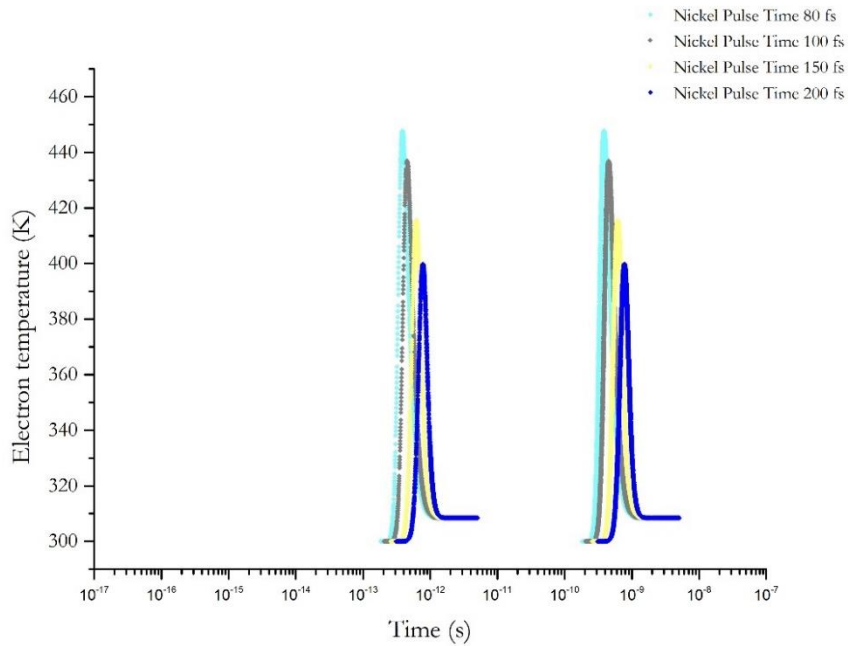


**Διάγραμμα 5-31:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

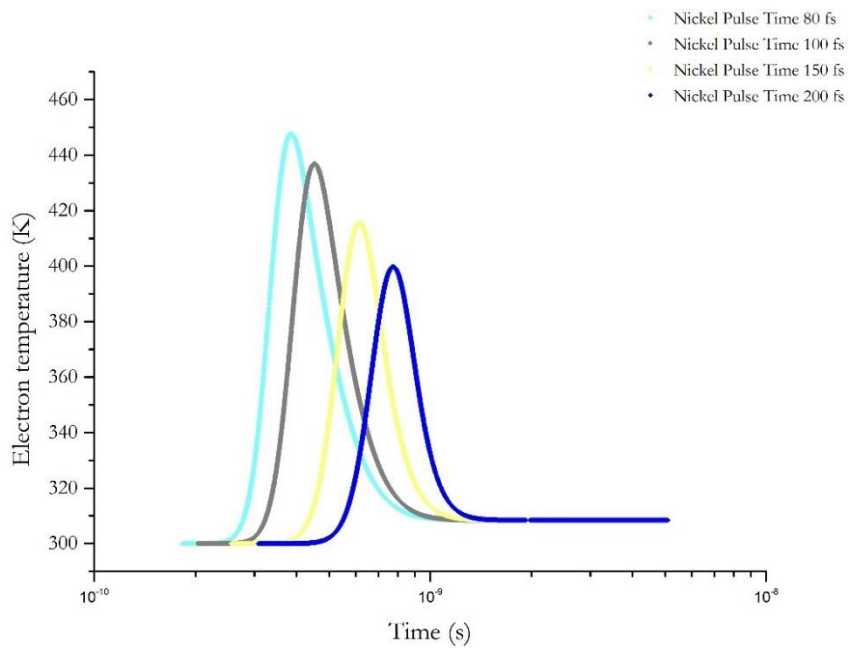


**Διάγραμμα 5-32:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.4.2.2 Επίδραση διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων για το Ni



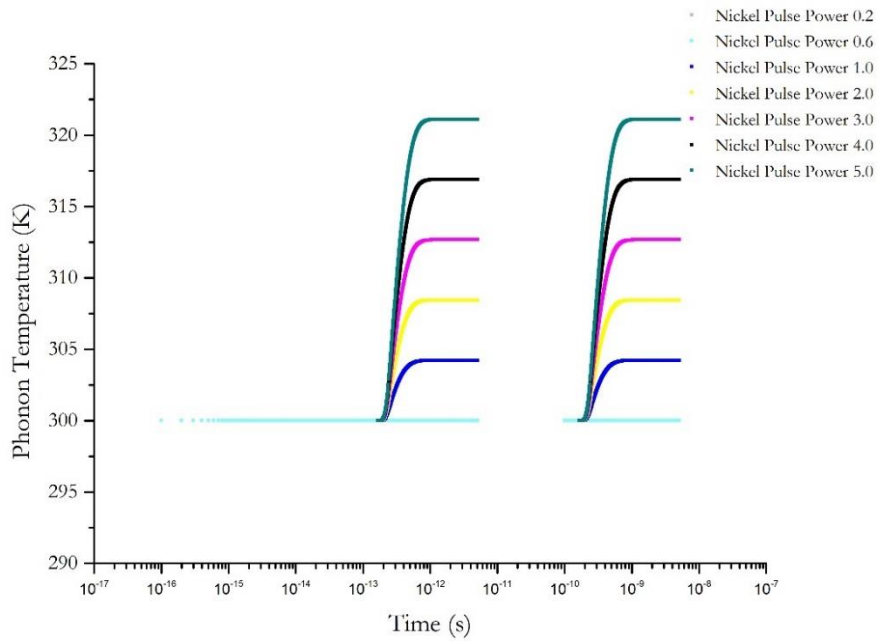
**Διάγραμμα 5-33:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



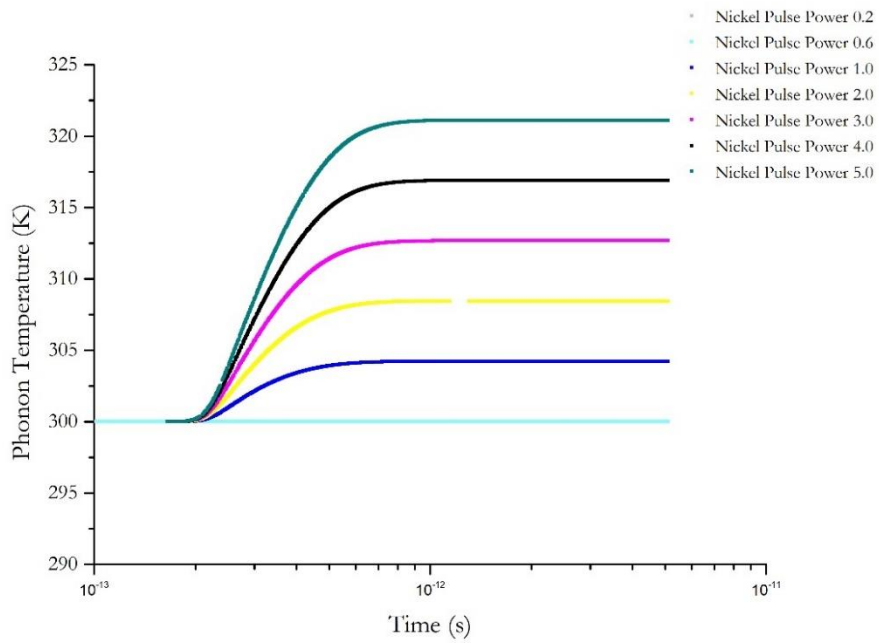
**Διάγραμμα 5-34:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.4.3 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

5.4.3.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων



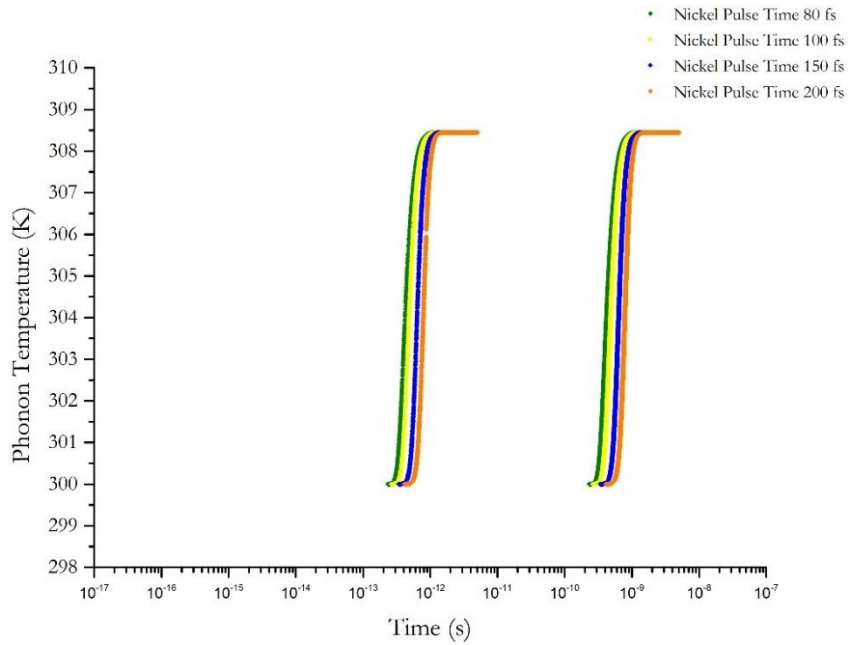
**Διάγραμμα 5-35:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού



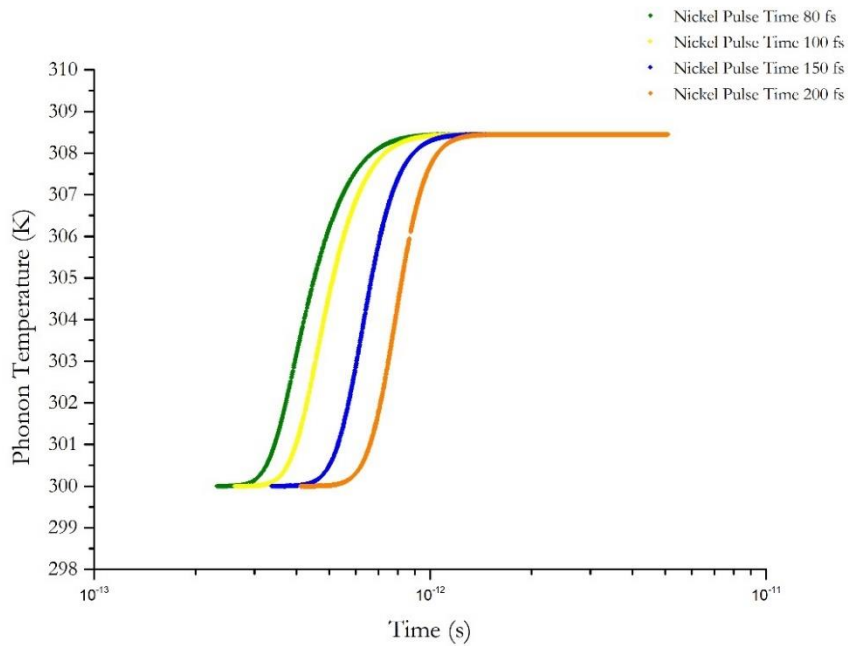
**Διάγραμμα 5-36:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού



5.4.3.2 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων



**Διάγραμμα 5-37:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



**Διάγραμμα 5-38:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Ni, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού

#### 5.4.4 Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Ni

Στα διαγράμματα 5.27 ως 5.38 απεικονίζονται τα αποτελέσματα που προέκυψαν από την ατομιστική προσομοίωση της θερμικής απομαγνήτισης του Ni. Όπως παρατηρήθηκε και στην περίπτωση του Co και του Fe, στο χρονικό διάστημα από ( $10^{-17}$  ως  $10^{-7}$ ) παρατηρούνται δύο γεγονότα απομαγνήτισης, τα οποία ακολουθούνται από ανάκαμψη της μαγνήτισης. Μορφολογικά οι καμπύλες κανονικοποιημένης μαγνήτισης του Fe και του Ni παρουσιάζουν μεταξύ τους περισσότερες ομοιότητες, σε σύγκριση με εκείνες του Co, καθώς είναι πιο ευρείες, υποδεικνύοντας κατά αυτόν τον τρόπο πιο αργή ανάκαμψη, ενώ παρατηρούνται, σχεδόν, τις ίδιες χρονικές στιγμές. Διαφοροποιούνται ως προς την ένταση της απομαγνήτισης, η οποία είναι πιο ασθενής για την περίπτωση του Fe.

Αναφορικά με την επίδραση της ενέργειας του παλμού στην κανονικοποιημένη μαγνήτιση, παρατηρείται ότι με αύξηση της ενέργειας προκύπτει εντονότερη απομαγνήτιση, ενώ δε φαίνεται να επηρεάζεται η ανάκαμψη της μαγνήτισης. Η αύξηση της χρονικής διάρκειας έχει ως αποτέλεσμα τη μετατόπιση της εμφάνισης των κορυφών σε μεταγενέστερους χρόνους, ενώ δεν έχει επίδραση στην ένταση της απομαγνήτισης, εν αντιθέσει με την περίπτωση του Co. Τέλος, υπάρχει σαφής διαχωρισμός μεταξύ της καμπύλης που προέκυψε για 80 fs και εκείνης που προέκυψε για 100 fs.

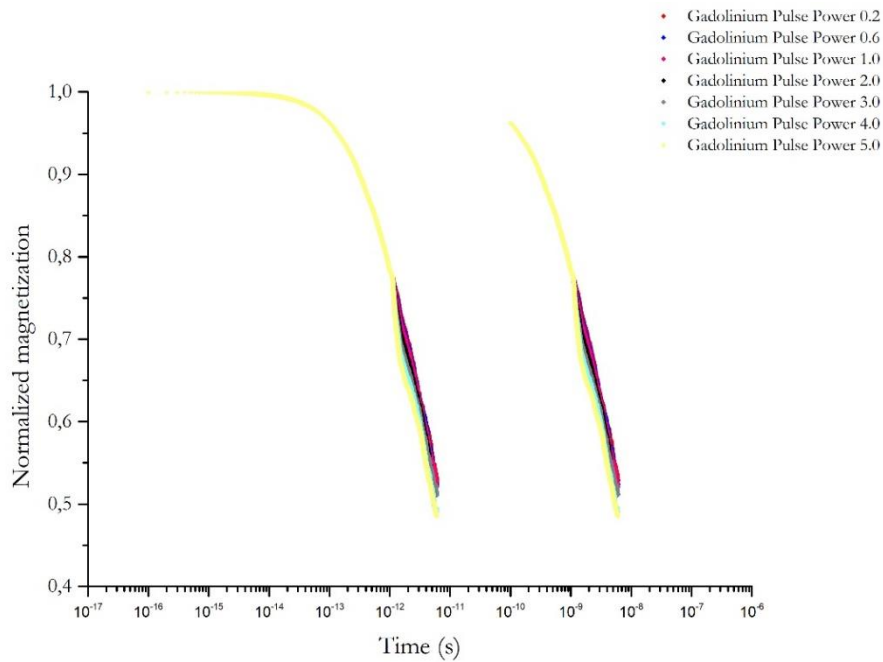
Ως προς την επίδραση της ενέργειας του παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, προκύπτει ότι η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την συνεχή αύξηση των μεγίστων θερμοκρασιών. Για την περίπτωση του Ni, σε αντίθεση με τις περιπτώσεις του Co και του Fe, η καμπύλη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για ενέργεια παλμού  $0.2 \text{ mJ/cm}^2$ , συμπίπτει με εκείνη για  $0.6$ . Αναφορικά με την επίδραση της χρονικής διάρκειας του παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, παρατηρείται ανάλογη συμπεριφορά με τις περιπτώσεις του Co και του Fe, όπου η αύξηση της χρονικής διάρκειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την μείωση των μεγίστων θερμοκρασιών των ηλεκτρονίων και καθυστέρηση στην εμφάνισή τους.

Τέλος, η θερμοκρασία των φωνονίων παρουσιάζει, αρχικά, αυξανόμενη συμπεριφορά, η οποία στη συνέχεια σταθεροποιείται. Η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την αύξηση των εμφανιζόμενων θερμοκρασιών. Σε αντίθεση με τις περιπτώσεις των άλλων δύο στοιχείων μετάπτωσης, παρατηρείται για την περίπτωση του Ni, ότι η θερμοκρασία των φωνονίων δε μεταβάλλεται για ροές ενέργειας  $0.2$  και  $0.6 \text{ mJ/cm}^2$ . Όσον αφορά την επίδραση της χρονικής διάρκειας στη θερμοκρασία των φωνονίων είναι σε συμφωνία με την επίδραση στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και, κατά συνέπεια, η αύξηση της διάρκειας οδηγεί σε καθυστέρηση της εμφάνισης τους, ενώ δεν έχει επίδραση στις μέγιστες θερμοκρασίες που σημειώνονται.

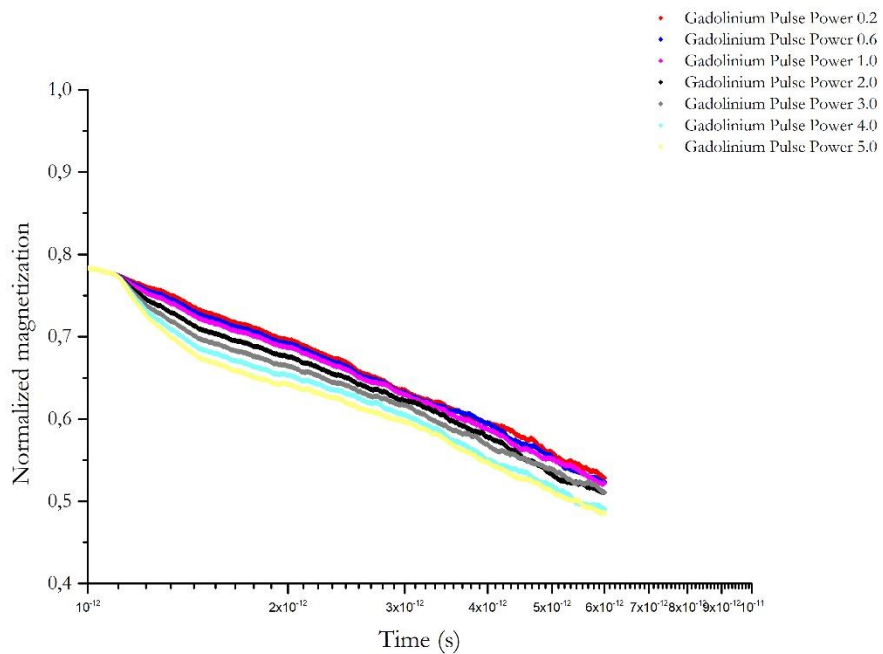
## 5.5 Μοντελοποίηση υπερταχείας απομαγνήτισης - Περίπτωση Gd

### 5.5.1 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση

#### 5.5.1.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη μαγνήτιση

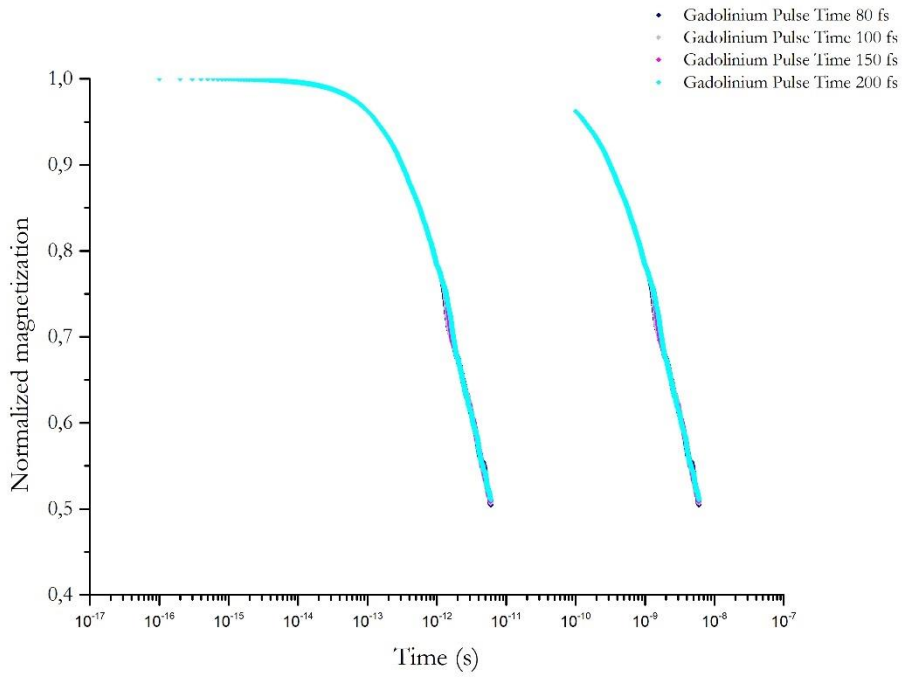


**Διάγραμμα 5-39:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Gd, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού.

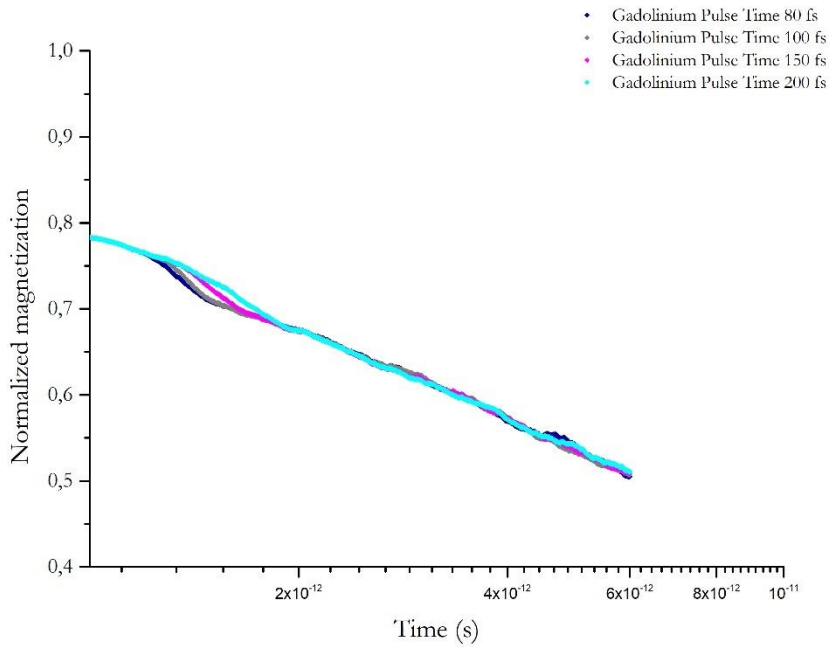


**Διάγραμμα 5-40:** Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Gd, όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο).

5.5.1.2 Επίδραση χρονικής διάρκειας παλμού στη μαγνήτιση



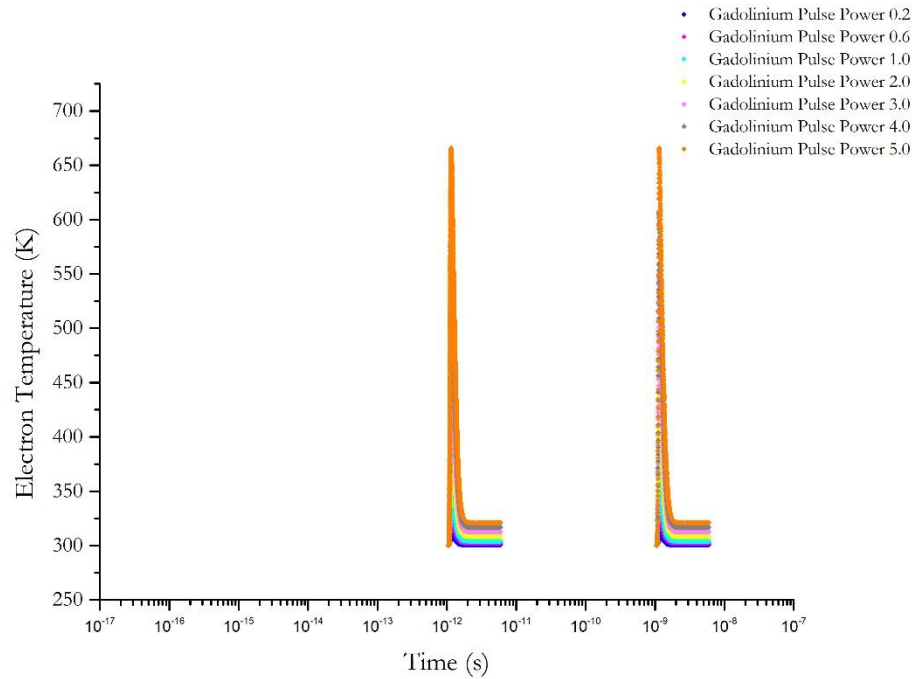
Διάγραμμα 5-41: Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Gd, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



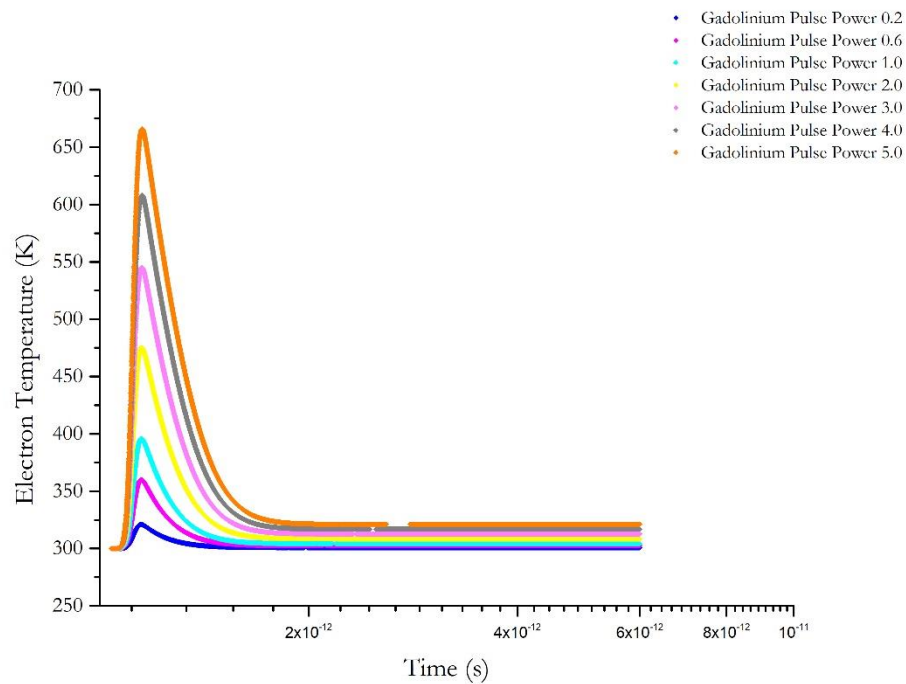
Διάγραμμα 5-42: Χρονική εξέλιξη της μαγνήτισης του Gd, όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2ο στάδιο)

5.5.2 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

5.5.2.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων

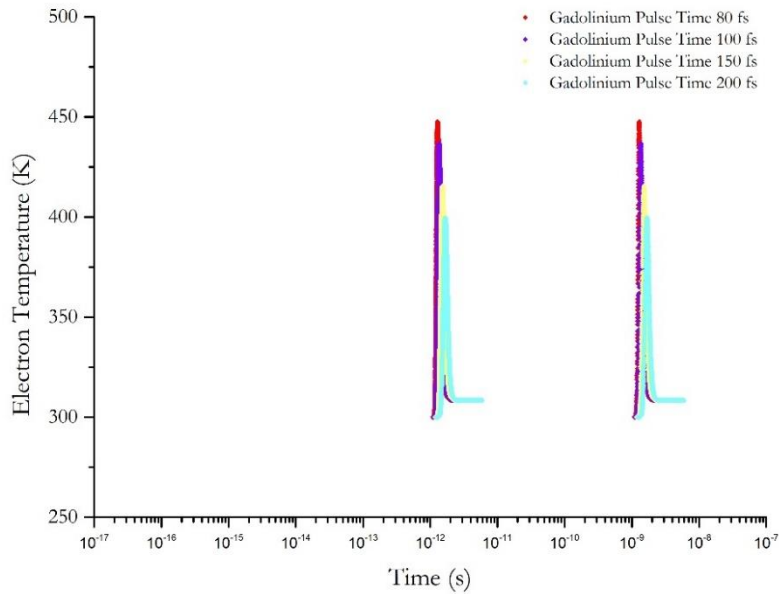


**Διάγραμμα 5-43:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού

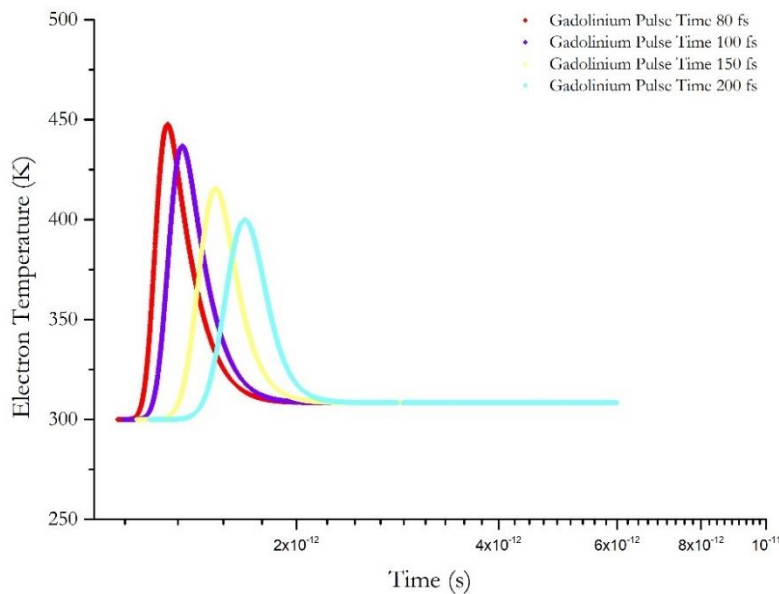


**Διάγραμμα 5-44:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού (2<sup>ο</sup> στάδιο)

5.5.2.2 Επίδραση χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων



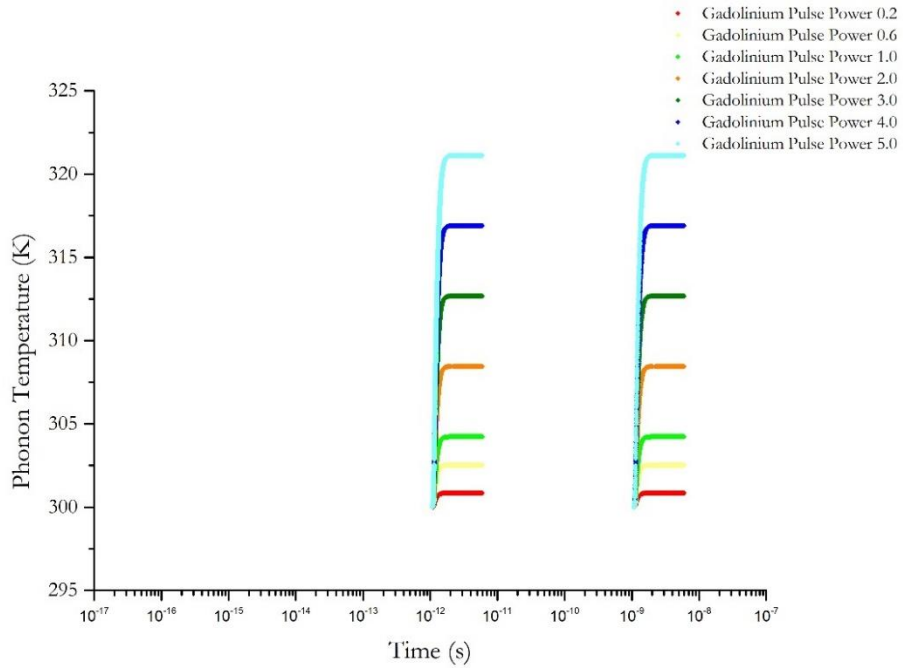
**Διάγραμμα 5-45:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



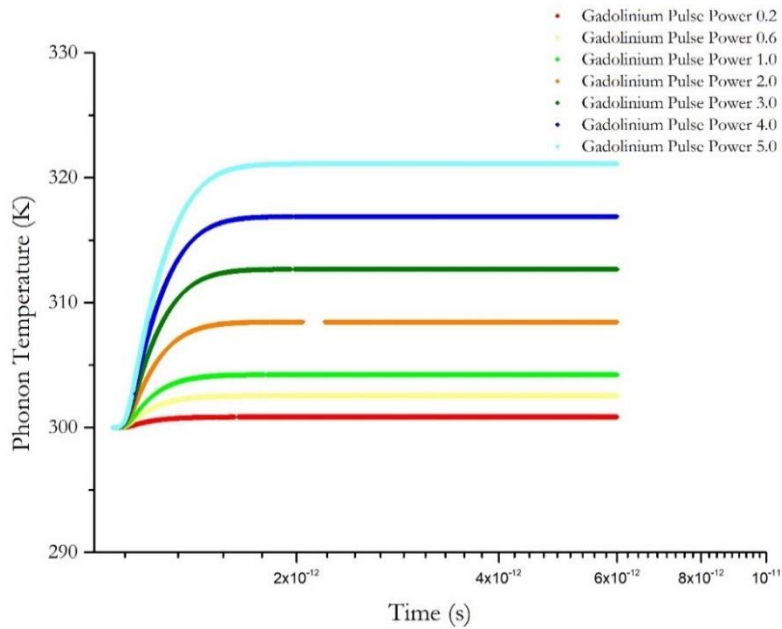
**Διάγραμμα 5-46:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των ηλεκτρονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού (2ο στάδιο)

5.5.3 Επίδραση ενέργειας και χρονικής διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

5.5.3.1 Επίδραση ενέργειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων

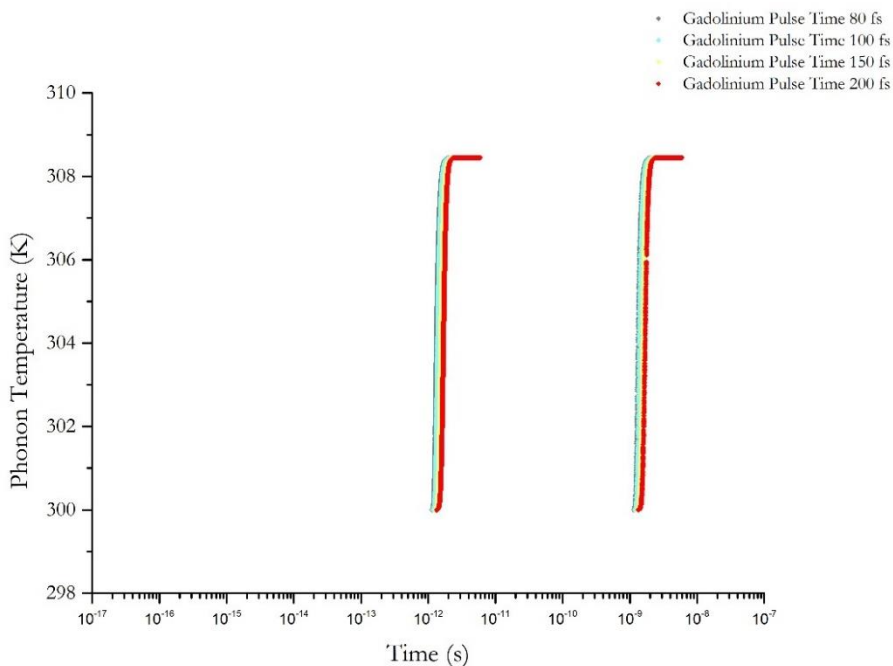


*Διάγραμμα 5-47: Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού*

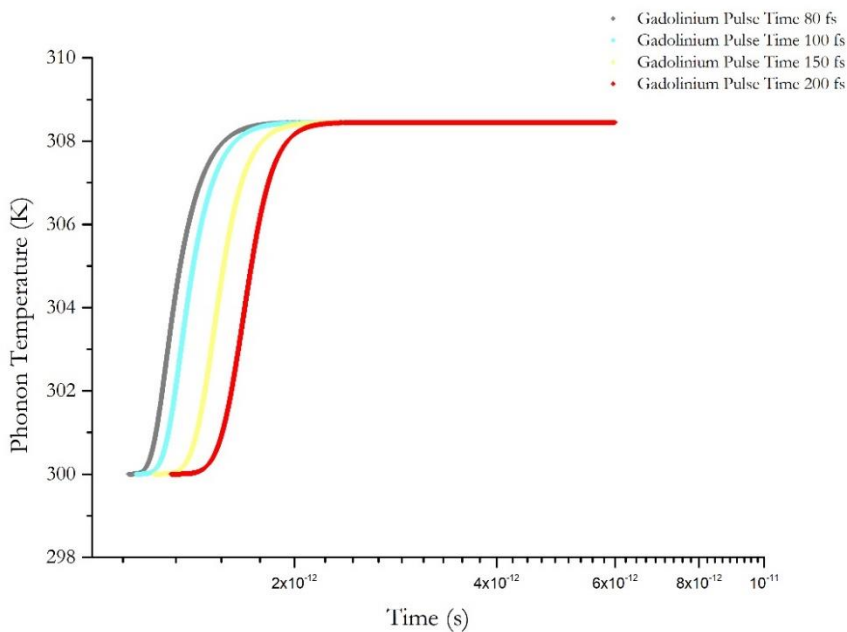


*Διάγραμμα 5-48: Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της ενέργειας του παλμού*

5.5.3.2 Επίδραση διάρκειας παλμού στη θερμοκρασία των φωνονίων



**Διάγραμμα 5-49:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



**Διάγραμμα 5-50:** Χρονική εξέλιξη της θερμοκρασίας των φωνονίων για το Gd όπου φαίνεται η επίδραση της διάρκειας του παλμού



#### 5.5.4 Ανάλυση αποτελεσμάτων απομαγνήτισης με fs laser για την περίπτωση του Gd

Στα διαγράμματα 5.39 ως 5.50 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα της ατομιστικής προσομοίωσης της θερμικής απομαγνήτισης με fs laser, για την περίπτωση του Gd. Όπως παρατηρήθηκε και στις προηγούμενες περιπτώσεις, εμφανίζονται στο επιλεγμένο χρονικό διάστημα ( $10^{-17}$  ως  $10^{-7}$ ) δύο συμβάντα απομαγνήτισης. Η μορφή των καμπυλών απομαγνήτισης του Gd διαφέρει αισθητά από τις τρεις προηγούμενες περιπτώσεις των στοιχείων μετάπτωσης, καθώς δεν εμφανίζεται ανάκαμψη της μαγνήτισης μετά την απομαγνήτιση.

Αναφορικά με την επίδραση της ενέργειας του παλμού στην κανονικοποιημένη μαγνήτιση, παρατηρείται ότι με αύξηση της ενέργειας προκύπτει εντονότερη απομαγνήτιση, η οποία δεν είναι τόσο εμφανής, όπως στις προηγούμενες περιπτώσεις. Η αύξηση της χρονικής διάρκειας φαίνεται να έχει μικρή επίδραση στα αποτελέσματα της κανονικοποιημένης μαγνήτισης, με εμφάνιση τάσης μετατόπισης σε μεταγενέστερους χρόνους, ενώ δε φαίνεται να επηρεάζεται η ένταση της απομαγνήτισης.

Ως προς την επίδραση της ενέργειας του παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, προκύπτει ότι η αύξηση της ενέργειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα την συνεχή αύξηση των μεγίστων θερμοκρασιών, ενώ υπάρχει μεγάλη ομοιότητα με τις καμπύλες που προέκυψαν για την περίπτωση του Co. Αναφορικά με την επίδραση της χρονικής διάρκειας του παλμού στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων, παρατηρείται ανάλογη συμπεριφορά με τις περιπτώσεις των μετάλλων μετάπτωσης, όπου η αύξηση της χρονικής διάρκειας του παλμού έχει ως αποτέλεσμα τη μείωση των μεγίστων θερμοκρασιών των ηλεκτρονίων και καθυστέρηση στην εμφάνισή τους.

Τέλος, η θερμοκρασία των φωνονίων παρουσιάζει, αρχικά, αυξανόμενη συμπεριφορά, η οποία στη συνέχεια σταθεροποιείται. Η αύξηση της ενέργειας του παλμού επιδρά αυξάνοντας τις εμφανιζόμενες θερμοκρασίες. Όσον αφορά την επίδραση της χρονικής διάρκειας στη θερμοκρασία των φωνονίων είναι σε συμφωνία με την επίδραση στη θερμοκρασία των ηλεκτρονίων και, κατά συνέπεια, η αύξηση της διάρκειας οδηγεί σε καθυστέρηση της εμφάνισής τους, ενώ δε φαίνεται να έχει επίδραση στις μέγιστες θερμοκρασίες που προκύπτουν.

## 5.6 Συγκριτική ανάλυση αποτελεσμάτων όλων των στοιχείων

### 5.6.1 Απομαγνήτιση των τριών στοιχείων μετάπτωσης Co, Fe, Ni

Από τα αποτελέσματα των ατομιστικών προσομοιώσεων της απομαγνήτισης, με χρήση fs laser των τριών στοιχείων μετάπτωσης Co, Fe, Ni προκύπτει ότι παρουσιάζουν σημαντικές ομοιότητες στην απόκρισή τους.

Για την εξήγηση της υπερταχείας απομαγνήτισης των τριών, προαναφερθέντων στοιχείων μετάπτωσης έχουν προταθεί πολλές θεωρητικές υποθέσεις, χωρίς μέχρι στιγμής να έχουν κατανοηθεί πλήρως οι εμπλεκόμενοι μηχανισμοί. Αποδεχόμενοι ότι πληρούνται οι συνθήκες για διατήρηση της στροφορμής, τότε η διατήρησή της μπορεί να γραφεί ως:

$$\Delta\langle J \rangle = \Delta\langle L_e \rangle + \Delta\langle S_e \rangle + \Delta\langle L_l \rangle + \Delta\langle L_{ph} \rangle = 0 \quad (5-1)$$

Όπου  $\Delta$  υποδεικνύει τη διαφορά και  $\langle J \rangle$ ,  $\langle L_e \rangle$ ,  $\langle S_e \rangle$ ,  $\langle L_l \rangle$  και  $\langle L_{ph} \rangle$  είναι οι αναμενόμενες τιμές για τη συνολική στροφορμή, για την τροχιακή στροφορμή, για τη ροπή του σπιν των ηλεκτρονίων, για τη στροφορμή του πλέγματος και των φωτονίων του laser, αντίστοιχα. Για την περίπτωση των 3d μετάλλων μετάπτωσης η  $\langle L_e \rangle$  δε λαμβάνεται υπ' όψιν. Στη συνέχεια παρατίθενται οι διάφοροι μηχανισμοί που έχουν προταθεί για την εξήγηση της απομαγνήτισης στα 3d μέταλλα μετάπτωσης Co, Fe, Ni

- 1) Αλληλεπίδραση με φωτόνια laser: Αρχετοί ερευνητές (67), (68), (26), (69) έχουν προτείνει ως την απευθείας αλληλεπίδραση με τα φωτόνια του laser ως τον υπεύθυνο μηχανισμό, αλλά από πρόσφατα πειράματα (70), (71) δεν προέκυψε απόδειξη αξιοσημείωτης απομαγνήτισης μόνο από τα φωτόνια του laser.
- 2) Εκπομπή φωτονίων: Η εκπομπή φωτονίων κατά τη διάρκεια της υπερταχείας απομαγνήτισης έχει μετρηθεί (72), (73) και έχει βρεθεί ότι το εκπεμπόμενο φως είναι γραμμικά πολωμένο και σε εύρος συχνοτήτων THz. Έχει προταθεί η επαναπορρόφηση των εκπεμπόμενων φωτονίων, όπου σε ένα διχρωϊκό υλικό αυτό θα είχε ως αποτέλεσμα στην εμφάνιση προτιμητέας κατεύθυνσης των διεργασιών ηλεκτρονίων-φωτονίων και αντιστροφής του σπιν (θα υπήρχαν περισσότερες σκεδάσεις), συνεισφέροντας, έτσι, στην απομαγνήτιση. Παρόλα αυτά, γενικά πιστεύεται ότι η απομαγνήτιση, προκαλούμενη από τα εκπεμπόμενα φωτόνια είναι ασθενής.
- 3) Αλληλεπιδράσεις ηλεκτρονίων-φωτονίων: Ένας άλλος μηχανισμός εξήγησης της υπερταχείας απομαγνήτισης στα μέταλλα μετάπτωσης αποτελεί η αντιστροφή των σπιν με σκέδαση ηλεκτρονίων φωτονίων, μέσω του μηχανισμού Elliott-Yafet (51), (74) που έχει ως αποτέλεσμα τη μεταφορά στροφορμής από  $\langle S_e \rangle$  σε  $\langle L_l \rangle$ . Παρόλα αυτά, από ab initio υπολογισμούς που έχουν πραγματοποιηθεί για το Ni (fcc), το Fe (bcc) και το Co (fcc) (27), (75), (76) έχει προκύψει ότι η αντιστροφή του σπιν λόγω σκέδασης ηλεκτρονίων-φωτονίων, ήταν πολύ ασθενής για να εξηγήσει την απομαγνήτισή τους.
- 4) Αλληλεπιδράσεις ηλεκτρονίου-ηλεκτρονίου: Οι σκεδάσεις ηλεκτρονίων-ηλεκτρονίων είναι μεγάλης σημασίας, καθώς οι αλληλεπίδραση Coulomb κυριαρχεί και οι σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων είναι ταχύτερες διαδικασίες. Χωρίς την αλληλεπίδραση σπιν-τροχιάς δεν είναι δυνατό να υπάρξει μεταβολή της αναμενόμενης τιμής  $\langle S_e \rangle$  εξαιτίας του παραπάνω τύπου σκεδάσεων. Μέσω της σύζευξης σπιν-τροχιάς είναι δυνατή η μεταβολή της  $\langle S_e \rangle$ , μέσω ροής στροφορμής από  $\langle S_e \rangle$  σε  $\langle L_e \rangle$ . Οι Krauss κ.α (77), μετά από υπολογισμούς μοντέλων,

κατέληξαν στο συμπέρασμα ότι οι σκεδάσεις μεταξύ των ηλεκτρονίων θα μπορούσαν να είναι υπεύθυνες για την υπερταχεία απομαγνήτιση των μετάλλων μετάπτωσης. Κατά συνέπεια, γίνεται υπόθεση κατά την οποία η στροφορμή των ηλεκτρονίων μεταφέρεται ταχύτατα στο πλέγμα. Η ομάδα των Mueller κ.α (78), πραγματοποίησαν, επίσης, υπολογισμούς που περιλάμβαναν τόσο τις σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων, όσο και ηλεκτρονίων-φωτονίων. Κατέληξαν στο συμπέρασμα ότι οι σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων είναι ουσιώδεις για την επίτευξη απομαγνήτισης (ενώ η φύξη των φωτονίων είναι απαραίτητη για την επαναμαγνήτιση). Έτσι, η στροφορμή των ηλεκτρονίων μεταφέρεται ταχύτατα στο πλέγμα  $\langle L_I \rangle$ .

- 5) Αλληλεπιδράσεις ηλεκτρονίων-μαγνόνιων: Σε ένα σύστημα χωρίς σύζευξη σπιν-τροχιάς δεν είναι δυνατή η μεταβολή της στροφορμής των σπιν μέσω σκέδασης ηλεκτρονίων μαγνόνιων. Αντιθέτως, σε ένα σύστημα με σύζευξη σπιν-τροχιάς είναι δυνατή η μείωση της  $\langle S_e \rangle$  μέσω σκέδασης ηλεκτρονίων-μαγνόνιων. Στην (19)) προτείνεται ότι η στροφορμή μεταφέρεται από  $\langle S_e \rangle$  σε  $\langle L_e \rangle$  μέσω σκέδασης ηλεκτρονίων-μαγνόνιων και, ακολούθως, η  $\langle L_e \rangle$  αποσβένεται από το κρυσταλλικό πεδίο.
- 6) Σκεδάσεις των ηλεκτρονίων λόγω ύπαρξης ατελειών και διεπιφανείων: Πειράματα απομαγνήτισης έχουν πραγματοποιηθεί σε διάφορα δοκίμια, όπως επιταξιακά λεπτά υμένα, πολυκρυσταλλικά υμένα και επιφάνειες μονοκρυστάλλων (79). Τα αποτελέσματα απομαγνήτισης ήταν παρόμοια και, κατά συνέπεια, μπορεί να υποθεθεί ότι ο χρόνος απομαγνήτισης είναι μια ενδογενής ιδιότητα, ανεξάρτητη από τις σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων και ατελειών και τις σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων και διεπιφανείων.
- 7) Αλληλεπιδράσεις μεταξύ φωτονίων: Στο φαινόμενο Einstein-de Haas, η απότομη μεταβολή της μαγνήτισης ενός παραμαγνητικού κυλίνδρου συσχετίζεται με την περιστροφή του κυλίνδρου εξαιτίας της διατήρησης της στροφορμής. Το ίδιο φαινόμενο μελετάται και στα πλαίσια πειραμάτων υπερταχείας απομαγνήτισης (80), όπου εγείρεται το ερώτημα σχετικά με το αν η μείωση της  $\langle S_e \rangle$  μπορεί να έχει ως αποτέλεσμα την περιστροφή της περιοχής που έχει ακτινοβοληθεί. Στην (81) αναφέρεται ότι οι αλληλεπιδράσεις μεταξύ φωτονίων είναι πολύ αργές για μια κλίμακα χρόνου 100 fs και, κατά συνέπεια, ο μηχανισμός Einstein-de Haas δεν είναι δυνατό να συσχετιστεί με την υπερταχεία απομαγνήτιση. Ο παραπάνω ισχυρισμός συναντάται και στην (80)
- 8) Αλληλεπιδράσεις μεταξύ φωτονίων και μαγνόνιων: Οι διαδικασίες σκέδασης μεταξύ φωτονίων και μαγνόνιων είναι πολύ πιο αργές (σε κλίμακες χρόνου της τάξης των 100 ps), συγκριτικά με εκείνες μεταξύ ηλεκτρονίων και φωτονίων (κλίμακα χρόνου της τάξης των 20 fs). Γενικά, πιστεύεται ότι οι σκεδάσεις μεταξύ φωτονίων και μαγνόνιων είναι πολύ αργές ώστε να συσχετιστούν με τη δυναμική της υπερταχείας απομαγνήτισης των μετάλλων μετάπτωσης (82), αλλά ίσως θα μπορούσε να συσχετιστεί με την απομαγνήτιση του Gd του Tb.
- 9) Υπερδιαχυτική μεταφορά σπιν: Στη (10) παρουσιάζονται αποτελέσματα από τα οποία προκύπτει ότι η απομαγνήτιση θα μπορούσε να εξηγηθεί λαμβάνοντας υπ' όψιν ότι τα ηλεκτρόνια πλειονότητας διαχέονται ταχύτερα στο υπόστρωμα, από τα ηλεκτρόνια μειονότητας, μέσω υπερδιαχυτικής μεταφοράς σπιν. Σε πρόσφατες μετρήσεις (31) υποστηρίζεται ότι ο παραπάνω μηχανισμός θα μπορούσε να συνεισφέρει στην απομαγνήτιση, αλλά αυτή η συνεισφορά εξαρτάται από τη σύσταση του συστήματος, ενώ δεν είναι το βασικό

φαινόμενο για την περίπτωση των απλών σιδηρομαγνητικών υμενίων πάνω σε μονωτικά υποστρώματα.

### 5.6.2 Απομαγνήτιση του Gd

Το Gd αποτελεί ένα σημαντικό παράδειγμα υλικού που παρουσιάζει, αισθητά, διαφορετική απόκριση συγκριτικά με τα άλλα τρία μέταλλα μετάπτωσης. Για την περιγραφή της απομαγνήτισης του Gd έχουν προταθεί διάφοροι μηχανισμοί: Elliot-Yafet σκέδαση, μηχανισμός διάχυσης και η απευθείας αλληλεπίδραση σπιν-φωονίων που προκαλείται από τη σύζευξη σπιν-τροχιάς, όπως είναι οι διαδικασίες Raman. Από τις μοντελοποιήσεις που προέκυψαν δεν μπορούν να διαχωριστούν δύο φαινόμενα απομαγνήτισης, όπως αναφέρεται στη βιβλιογραφία εξαιτίας της ύπαρξης των δύο διαφορετικών συστημάτων σπιν.

#### 5.6.2.1 Ηλεκτρονική δομή και μαγνητικές ιδιότητες Gd

Το Gd αποτελεί ένα από τα 15 της ομάδα των λανθανίδων. Εκτός από το λουτήτιο, όλες οι λανθανίδες, ξεκινώντας από το λανθάνιο, πληρώνουν την 4f στιβάδα. Κατά συνέπεια, όπου οι μαγνητικές τους ιδιότητες κυριαρχούνται από τα σπιν των 4f ηλεκτρονίων.

Το Gd κρυσταλλώνεται στο hcp πλέγμα και έχει ατομικό αριθμό 64. Καθένα από τα 4f τροχιακά είναι πληρωμένο με ένα ηλεκτρόνιο το οποίο έχει ατομική ροπή 5d. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα μια μεγάλη μαγνητική ροπή, ίση με  $\mu_{4f} = 7 \mu_B$ . Μια επιπλέον συνεισφορά στη συνολική μαγνητική ροπή προέρχεται από τα περιοδεύοντα ηλεκτρόνια 5d, τα οποία πολώνονται από τις 4f μαγνητικές ροπές μέσω της ισχυρής σύζευξης ανταλλαγής  $J_{int}$ . Η πόλωση της ζώνης αγωγιμότητας οδηγεί σε i) έμμεση αλληλεπίδραση ανταλλαγής (RKKY αλληλεπίδραση), η οποία είναι υπεύθυνη για τη σιδηρομαγνητική τάξη του υλικού ( $T_c=293$  K) και ii) σε συνεισφορά στη μαγνητική ροπή ίση με  $\mu_{5d6s} = 0.58 \mu_B$  από τα περιοδεύοντα ηλεκτρόνια. Οι επαγόμενες ροπές των 5 ηλεκτρονίων είναι σταθερές και δεν εξαφανίζονται, ακόμα και σε θερμοκρασίες πάνω από το  $T_c$ , όπου οι 4f μαγνητικές ροπές είναι τυχαία προσανατολισμένες. Εξαιτίας του ισχυρού εντοπισμού τους, τα 4f ηλεκτρόνια δεν χαρακτηρίζονται από αλληλοεπικαλύψεις με τα γειτονικά άτομα και δεν εμφανίζουν άμεση αλληλεπίδραση ανταλλαγής.

Το Gd θεωρείται ως πρωτότυπο του σιδηρομαγνήτη του Heisenberg, καθώς οι 4f κυματοσυναρτήσεις εξαιτίας του ισχυρού εντοπισμού τους στο επίπεδο του πυρήνα και παρουσιάζοντας μικρή αλληλοεπικάλυψη με τις αντίστοιχες κυματοσυναρτήσεις των γειτονικών ατόμων, εμφανίζεται ασθενής, άμεση αλληλεπίδραση μεταξύ των 4f ροπών.

Κατά συνέπεια, η συνολική μαγνήτιση  $M$  του Gd, σε κατάσταση ισορροπίας, είναι ίση με το άθροισμα των συνεισφορών 5d και 4f. Η εξήγηση της απόκρισης του Gd μπορεί να απαιτεί ξεχωριστή αντιμετώπιση των εντοπισμένων από τα ηλεκτρόνια αγωγιμότητας. Τα ηλεκτρόνια αγωγιμότητας είναι υπεύθυνα για τις οπτικές ιδιότητες, μετριάζουν την αλληλεπίδραση ανταλλαγής μεταξύ εντοπισμένων μαγνητικών ροπών και διευκολύνουν τη σύζευξή τους με το πλέγμα, μέσω της σύζευξης σπιν-τροχιάς. Η απορρόφηση οπτικών φωονίων από τα 5d ηλεκτρόνια οδηγεί σε e-h διεγέρσεις στη ζώνη αγωγιμότητας. Η διεγερση των 4f απαιτεί υπεριώδη ακτινοβολία ή ακτίνες X.

Από πειραματικά αποτελέσματα έχει προκύψει ότι για την περίπτωση του Gd μόνο τα 5d ηλεκτρόνια διεγείρονται τους παλμούς laser ενέργειας κοντά στο 1.55 eV. Κατά συνέπεια, μόνο τα 5d ηλεκτρόνια

μπορούν να «αισθανθούν» τις υψηλές θερμοκρασίες των ηλεκτρονίων μετά από τη διέγερση με παλμούς laser. Αντιθέτως, τα 4f ηλεκτρόνια δεν επηρεάζονται και υπόκεινται σε σύζευξη μόνο με τη φωνονική θερμοκρασία του συστήματος, μέσω της ενδοατομικής ανταλλαγής 4f-5d.

## 6 Συμπεράσματα και προτάσεις για μελλοντική εργασία

Η παρούσα εργασία ασχολήθηκε με τη μοντελοποίηση της υπερταχείας δυναμικής της μαγνήτισης, σε υλικά με μαγνητική τάξη, μέσω χρήσης ατομιστικών μοντέλων. Η μελέτη προσανατολίστηκε στην επίδραση που έχουν δύο βασικές παράμετροι του χρησιμοποιούμενου laser: η ροή ενέργειας και η διάρκεια του παλμού. Από τα αποτελέσματα που προέκυψαν φαίνεται η ροή ενέργειας, ως αναμενόμενα, επιδρά καθοριστικά στις διαδικασίες απομαγνήτισης, δεδομένου ότι ελέγχει το επίπεδο της διέγερσης των ηλεκτρονίων. Η διάρκεια του παλμού, επίσης, φάνηκε ότι έχει σημαντική επίδραση στις απομαγνήτισεις των υλικών, καθώς αποτελεί κεντρικό χαρακτηριστικό της διέγερσης με laser.

Σε κάθε περίπτωση η μελέτη της δυναμικής της μαγνήτισης, όπως διαμορφώνεται εξαιτίας της χρήσης fs laser, αποτελεί ένα πολύ ενδιαφέρον πεδίο έρευνας, τόσο λόγω των διαφόρων μηχανισμών που εμπλέκονται, και χρήζουν περαιτέρω μελέτης για την κατανόησή τους, όσο και εξαιτίας του πλήθους και της χρησιμότητας των πιθανών, μελλοντικών εφαρμογών. Κατά συνέπεια, επιπλέον θεωρητικές και πειραματικές μελέτες είναι απαραίτητες για να κατανοηθούν οι διαφορές, κβαντομηχανικής προέλευσης, διαδικασίες, όπως οι σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων, οι Elliot-Yafet σκεδάσεις μεταξύ ηλεκτρονίων και φωνονίων κ.α

Σαν πρόταση μελλοντικής έρευνας θα μπορούσε να αποτελέσει η μελέτη της επίδρασης και άλλων παραμέτρων του laser, όπως το μήκος κύματος. Επίσης, θα μπορούσαν να πραγματοποιηθούν ατομιστικές προσομοιώσεις με πιο πολύπλοκα υλικά, όπως σιδηριμαγνητικά και αντισιδηρομαγνητικά υλικά.

## 7 Βιβλιογραφία

1. I. Tudosa, C. Stamm, A. B. Kashuba, F. King, H. C. Siegmann, J. Stohr, G. Ju, B. Lu, and D. Weller. The ultimate speed of magnetic switching in granular recording media. . Nature. 2004, σσ. 831-833.
2. Alexey Kimel, Andrei Kirilyuk, Theo Rasing. Femtosecond opto-magnetism: ultrafast laser manipulation of magnetic materials. Laser & Photonics Review. 2007, Τόμ. 1, 3, σσ. 275–287.
3. J. Hohlfeld, Th. Gerrits, M. Bilderbeek, Th. Rasing, H. Awano, and N. Ohta. Fast magnetization reversal of GdFeCo induced by femtosecond laser pulses. Physical Review B. 2001, Τόμ. 65.
4. Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel, and Theo Rasing. Ultrafast optical manipulation of magnetic order. , 82:2731 {2784. Rev. Mod. Phys. 2010, Τόμ. 82, σσ. 2731-2784.
5. B. Skubic, J. Hellsvik, L. Nordstrom, and O. Eriksson. A method for atomistic spin dynamics simulations: implementation and examples. A method for atomistic spin dynamics simulations: implementation and examples. IOP Science, 2008, Τόμ. 20.
6. Schellekens, A. J.&Koopmans, B. Comparing ultrafast demagnetization rates between competing models for finite temperature magnetism. Phys. Rev. Lett. 2013, Τόμ. 110.
7. Barker, Joseph. Atomistic models of magnetic systems with combined ferromagnetic and antiferromagnetic order. Thesis. University of York : s.n., 2013.
8. B.L. Gyorffy, A.J. Pindor, J. Staunton, G.M. Stocks and H. Winter. A first-principles theory of ferromagnetic phase transitions in metals. Journal of Physics F: Metal Physics. IOP Science, Τόμ. 15.
9. C. Illg, M. Fahnle and. Electron theory of fast and ultrafast dissipative magnetization dynamics. Journal of Physics: Condensed Matter. 2011, Τόμ. 23, 49.
10. Battiato, M. & Carva, K. Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization. Phys. Rev. Lett. (2010), Τόμ. 105.
11. Bauer, David. Atomistic spin-dynamics in confined magnetic nano-structures. Thesis. Institut für Festkörperforschung (IFF) Forschungszentrum Jülich : s.n., 2008.
12. Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel, Theo Rasing. Ultrafast optical manipulation of magnetic order. Reviews of modern physics, Volume 82, The American Physical Society. July - September 2010, σσ. 2734-2735.
13. Thijssen, J. M. Computational Physics. 2nd. s.l. : Cambridge University Press.
14. D. Hinzke, U. Nowak. Monte Carlo simulation of magnetization switching in a Heisenberg model for small ferromagnetic particles. Computer Physics Communications. Elsevier, 1999, Τόμ. 121-122.
15. R. F. L. Evans, W. J. Fan, P. Chureemart, T. A. Ostler, M. O. A. Ellis and R. W. Chantrell. Atomistic spin model simulations of magnetic nanomaterials. J. Phys.: Condens. Matter . 2014, Τόμ. 26, 103202.
16. E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J. Y. Bigot. Ultrafast Spin dynamics in ferromagnetic nickel. Phys. Rev. Lett., 76. 1996, Τόμ. 76.
17. J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K. H. Bennemann. Nonequilibrium magnetization dynamics of nickel. Phys. Rev. Lett., 1997., Τόμ. 78.

18. A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, and W. Eberhardt. Ultrafast spin dynamics of ferromagnetic thin resolved two-photon photoemission. *Phys. Rev. Lett.* 1997, Τόμ. 79.
19. E. Carpene, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, and S. De Silvestri. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron. *Phys. Rev. B.* 2008, Τόμ. 78.
20. M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Real Space Trajectory of the Ultrafast Magnetization Dynamics in Ferromagnetic Metals. *Phys. Rev. Lett.* 2005, Τόμ. 94.
21. J. Wang, L. Cywinski, C. Sun, J. Kono, H. Munekata, and L. J. Sham. Femtosecond demagnetization and hot-hole relaxation in ferromagnetic Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As. *Phys. Rev. B.* 2008, Τόμ. 77.
22. Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel, and Theo Rasing. Ultrafast optical manipulation of magnetic order manipulation of magnetic order. *Rev. Mod. Phys.* 2010, Τόμ. 82, σσ. 2731-2784.
23. A. Vaterlaus, T. Beutler, and F. Meier. Spin-lattice relaxation time of ferromagnetic gadolinium determined with time-resolved spin-polarized photoemission. *Phys. Rev. Lett.* 1991, Τόμ. 67, σσ. 3314-3317.
24. Jean-Yves Bigot, Mircea Vomir & Eric Beaurepaire. Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses. *Nature Physics.* 2009, Τόμ. 5.
25. Hubner, G. P. Zhang and W. Laser-induced ultrafast demagnetization in ferromagnetic metals. *Physical Review Letters.* 2000, Τόμ. 85, 14.
26. J.-Y. Bigot, M. Vomir, and E. Beaurepaire. Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses. *Nature Physics.* 2009, Τόμ. 5, 7.
27. K. Carva, M. Battiato, and P. M. Oppeneer. Ab Initio Investigation of the Elliott-Yafet electron phonon mechanism in laser-induced ultrafast demagnetization. *Physical Review Letters.* 2011, Τόμ. 107, 20.
28. E. Carpene, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, and S. D. Silvestri. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films. *Physical Review B.* 2008, Τόμ. 78, 17.
29. A. B. Schmidt, M. Pickel, M. Donath, P. Buczek, A. Ernst, V. P. Zhukov, P. M. Echenique, L. M. Sandratskii, E. V. Chulkov, and M. Weinelt. Ultrafast Magnon Generation in an Fe Film on Cu(100). *Physical Review Letters.* 2010, Τόμ. 105, 19.
30. M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer. Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization. *Physical Review Letters.* 2010, Τόμ. 105, 2.
31. A. Eschenlohr, M. Battiato, P. Maldonado, N. Pontius, T. Kachel, K. Holldack, R. Mitzner, A. Föhlisch, P. M. Oppeneer, and C. Stamm. Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization. *Nature Materials.* 2013, Τόμ. 12, 4.
32. N. Kazantseva, U. Nowak, R. W. Chantrell, J. Hohlfeld, and A. Rebei. Slow recovery of the magnetisation after a sub-picosecond heat pulse. *Europhysics Letters.* 2008, Τόμ. 81, 2.
33. N. Kazantseva, D. Hinzke, R. W. Chantrell, and U. Nowak. Linear and elliptical magnetization reversal close to the Curie temperature. *Europhysics Letters.* 2009, Τόμ. 86, 27006.
34. Munzenberg, M. Djordjevic and M. Connecting the timescales in picosecond remagnetization experiments. *Physical Review B.* 2007, Τόμ. 75, 1.

35. A. Melnikov, H. Prima-Garcia, M. Lisowski, T. Giessel, R. Weber, R. Schmidt, C. Gahl, N. Bulgakova, U. Bovensiepen, and M. Weinelt. Nonequilibrium Magnetization Dynamics of Gadolinium Studied by Magnetic Linear Dichroism in Time-Resolved 4f Core-Level Photoemission. *Physical Review Letters*. 2008, Τόμ. 100, 10.
36. J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K. H. Bennemann. Nonequilibrium Magnetization Dynamics of Nickel. *Physical Review Letters*. 1997, Τόμ. 78, 25.
37. M. Wietstruk, A. Melnikov, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, M. Sultan, C. Gahl, M. Weinelt, H. A. Durr, and U. Bovensiepen. Hot-Electron-driven enhancement of spin-lattice coupling in Gd and Tb 4f ferromagnets observed by femtosecond X-Ray magnetic circular dichroism. *Physical Review Letters*. 2011, Τόμ. 106, 12.
38. J. Hohlfeld, S.S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. [επιμ.] Elsevier. *Chemical Physics*. 2000, Τόμ. 251.
39. Bovensiepen, U. Coherent and incoherent excitations of the Gd(0001) surface on ultrafast timescales. *Journal of Physics: Condensed Matter*. 2007, Τόμ. 19.
40. Grimvall, G. *The Electron-Phonon Interaction*. North-Holland Publishing Co. 1981.
41. Allen, P. B. Theory of thermal relaxation of electrons in metals. *Phys. Rev. Lett.* 1987, Τόμ. 59.
42. M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, and L. V. Tanatarov.-. Relaxation between electrons and the crystalline lattice. *Soviet Physics JETP*. 1957, Τόμ. 4.
43. Macizo, Unai Atxitia. Modeling of ultrafast laser-induced magnetization dynamics within the Landau-Lifshitz-Bloch approach. Thesis. Department Condensed Matter, Universidad Autonoma de Madrid : s.n., 2012.
44. Vomir, Jean-Yves Bigot and Mircea. Ultrafast magnetization dynamics of nanostructures. *Ann. Phys. (Berlin)*. Wiley, 2013, Τόμ. 525.
45. S.D. Brorson, J.G. Fujimoto and E.P. Ippen. Femtosecond electronic heat-transport dynamics in thin gold. *Physical Review Letters*. 1987, Τόμ. 59, σσ. 1962-1965.
46. Chen, J. K., Tzou, D. Y. & Beraun, J. E. A semiclassical two-temperature model for ultrafast laser heating . *Int. J. Heat Mass Transfer*. 2006, Τόμ. 49.
47. Kazantseva, N., Nowak, U., Chantrell, R. W., Hohlfeld, J. & Rebei, A. Slow recovery of the magnetisation after a sub-picosecond heat pulse. *Europhys. Lett.* (2007), Τόμ. 81.
48. N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann, S. Tzortzakis, D. Christofilos, and F. Vallée. Nonequilibrium electron dynamics in noble metals. *Physica Review B*. 2000, Τόμ. 61, 16956.
49. Zhang, W. Hübner and G. P. Ultrafast spin dynamics in nickel. *Physical Review B*. 1998, Τόμ. 58, R5920(R).
50. Elliott, R. J. Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. *Physical Review Journals Archive*. 1954, Τόμ. 96, 266.
51. Y. Yafet. g Factors and Spin-Lattice Relaxation of Conduction Electrons. *Solid State Physics*. 1963, Τόμ. 14.
52. Fähnle, D. Steiauf and M. Elliott-Yafet mechanism and the discussion of femtosecond magnetization dynamics. *Phys. Rev. B* . 2009, Τόμ. 79, 140401 (R).
53. B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. Dalla Longa, and W. J. M. de Jonge. Unifying Ultrafast Magnetization Dynamics. *Physical Review Letters*. 2005, Τόμ. 95 , 267207.



54. Shah, J. Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures. Berlin : s.n., 1996. Vol. 115 .
55. Pershan, P. S. Nonlinear Optical Properties of Solids: Energy Considerations. 1963, Τόμ. 130, 919.
56. Z.Q.Qiu, S.D.Bader. Surface magneto-optic Kerr effect (SMOKE). Journal of Magnetism and Magnetic Materials. , 1999, Τόμ. 200, 1-3, σσ. 664-678.
57. P. Chaudhari, J.J. Cuomo, and R.J. Gambino. Amorphous metallic films for magneto-optic applications . Applied Physics Letters. 1973, Τόμ. 22, 337.
58. G A Smolenskii, R V Pisarev and I G Siniĭ. Birefringence of light in magnetically ordered crystals. [επιμ.] American Institute of Physics. Soviet Physics Uspekhi. 1975, Τόμ. 18.
59. Gehring, J Ferre and G A. Linear optical birefringence of magnetic crystals. [επιμ.] IOP Science. Reports on Progress in Physics. Τόμ. 47.
60. Rasing, Andrei Kirilyuk and Theo. Magnetization-induced-second-harmonic generation from surfaces and interfaces. Journal of the Optical Society of America B. 2005, Τόμ. 22, 1, σσ. 148-167.
61. Liesch, P M Oppeneer and A. Ultrafast demagnetization in Ni: theory of magneto-optics for non-equilibrium electron distributions. [επιμ.] IOP Publishing. Journal of Physics: Condensed Matter. 2005, Τόμ. 16.
62. B.Koopmans, H.H.J.E.Kicken, M.van Kampen, W.J.M.de Jonge. Microscopic model for femtosecond magnetization dynamics. [επιμ.] Elsevier. Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2005, Τόμ. 286, σσ. 271-275.
63. H. Regensburger, R. Vollmer, and J. Kirschner. Time-resolved magnetization-induced second-harmonic generation from the Ni(110) surface. Phys. Rev. B. 2000, Τόμ. 61, 14716.
64. Weinberger, A. Vernes and P. Formally linear response theory of pump-probe experiments. Phys. Rev. B 71. 2005, Τόμ. 71, 165108.
65. G.P.Zhang, W. Hübner, Georgios Lefkidis, Yihua Bai & Thomas F. George. Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism. Nature Physics. 499–502, Τόμ. 5, σσ. 499–502.
66. MAterials project. <https://materialsproject.org>. [Ηλεκτρονικό]
67. Zhang, M.S. Si and G.P. Resolving photon-shortage mystery in femtosecond magnetism. Journal of Physics: Condensed Matter. IOP Publishing Ltd, 2010, Τόμ. 22, 7.
68. G. P. Zhang, W. Hübner, Georgios Lefkidis, Yihua Bai & Thomas F. George. Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism. Nature Physics. 2009, Τόμ. 5.
69. Hübner, G. P. Zhang and W. Laser-Induced Ultrafast Demagnetization in Ferromagnetic Metals. Physical Review Letters. 2000, Τόμ. 85.
70. F. Dalla Longa, J. T. Kohlhepp, W. J. M. de Jonge, and B. Koopmans. Influence of photon angular momentum on ultrafast demagnetization in nickel. Physical Review B 75. 2007, Τόμ. 224431.
71. Eschenlohr, A., Battiato, M., Maldonado, P. et al. Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization. Nature Materials. 2013, Τόμ. 12.
72. D. J. Hilton, R. D. Averitt, C. A. Meserole, G. L. Fisher, D. J. Funk, J. D. Thompson, and A. J. Taylor. Terahertz emission via ultrashort-pulse excitation of magnetic metal films. Optics Letters . 2004, Τόμ. 29, 15.

73. Beaurepaire, E. Coherent terahertz emission from ferromagnetic films excited by femtosecond laser pulses . Appl. Phys. Lett. . 2004, Τόμ. 84, 3465.
74. Elliott, R. J. Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. Phys. Rev. . 1954, Τόμ. 96, 266.
75. Schneider, Sven Essert and Hans Christian. Electron-phonon scattering dynamics in ferromagnetic metals and their influence on ultrafast demagnetization processes. Phys. Rev. B 84. 2011, Τόμ. 84, 224405.
76. —. Electron-phonon scattering dynamics in ferromagnets on ultrafast timescales: Influence of the phonon temperature . Journal of Applied Physics . 2012, Τόμ. 111, 07C514.
77. Michael Krauß, Tobias Roth, Sabine Alebrand, Daniel Steil, Mirko Cinchetti, Martin Aeschlimann, and Hans Christian Schneider. Ultrafast demagnetization of ferromagnetic transition metals: The role of the Coulomb interaction. Phys. Rev. B . 2009, Τόμ. 80, 180407(R) .
78. B Y Mueller, T Roth, M Cinchetti, M Aeschlimann and B Rethfeld. Driving force of ultrafast magnetization dynamics. New Journal of Physics. IOP Publishing and Deutsche Physikalische Gesellschaft, 2011, Τόμ. 13.
79. Koopmans, Bert. Laser-Induced Magnetization Dynamics. Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II . 2003, σσ. 256-323.
80. B Koopmans, M van Kampen and W J M de Jonge. Experimental access to femtosecond spin dynamics. Journal of Physics: Condensed Matter. Τόμ. 15, 5.
81. Manfred Fähnle, Michael Haag, Christian Illg. Is the angular momentum of a ferromagnetic sample after exposure to a fs laser pulse conserved? Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2013, Τόμ. 347.
82. B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti & M. Aeschlimann. Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization. Nature Materials . 2010, Τόμ. 9.
83. M.Stafe, A.Marcu, N.N.Puscas. Pulsed laser ablation of solids-Basics, theory and applications. Berlin Heidelberg : Springer Verlag, 2014.
84. Silicon Sam's Technology Resource. [Ηλεκτρονικό] [Παρομοιότητα: ] <http://repairfaq.cis.upenn.edu/sam/laserop.gif>.
85. Marta Castillejo, Paolo M. Ossi, Leonid Zhigilei. Lasers in material science. Switzerland : Springer, 2014.
86. J.Hohlfeld, S.S.Wellershoff, J.Gudde, U.Conrad, V.Jahnke and E. Matthias. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. Chem.Phys. 2000, σ. 251:237.
87. Landau, L. & Lifshitz, E. M. Reprint: On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies. Ukr. J. Phys. . 2008, Τόμ. 53.
88. Gurevich, A. & Melkov, G. A. Magnetization Oscillations and Waves. s.l. : CRC, 1996.
89. Honeycutt, R. Stochastic runge-kutta algorithms. I. White noise. Phys. Rev. A. 1992, Τόμ. 45.
90. A. V. Kimel, B. A. Ivanov, R. V. Pisarev, P. A. Usachev, A. Kirilyuk, and T. Rasing. Inertia-driven spin switching in antiferromagnets. Nature Physics. 2009, Τόμ. 5, σσ. 727–731.
91. —. Inertia-driven spin switching in antiferromagnets. Nature Physics. 2009, Τόμ. 5, σσ. 727–731.
92. T. Kampfrath, A. Sell, G. Klatt, A. Pashkin, S. Ma, T. Dekorsy, M. Wolf, M. Fiebig, A. Leitenstorfer, and R. Huber. Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves . Nature Photonics. 2011, Τόμ. 5, σσ. 31-34.

93. C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and T. Rasing. All-Optical Magnetic Recording with Circularly Polarized Light. *Physical Review Letters* . 2007, Τόμ. 99(4):047601.
94. I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. D'urr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk T. Rasing, and A. V. Kimel. Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins. *Nature*,. 2011, Τόμ. 472, σσ. 205-208.
95. T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, U. Atxitia, O. Chubykalofesenko, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, Nolting, A. Tsukamoto, A. Itoh, D. Afanasiev, B. A. Ivanov, A. M. Kalashnikova, K. Vahaplar, J. H. Mentink. Ultrafast heating as a sufficient stimulus for magnetization reversal in a ferrimagnet. *Nature Communications*. 2012, Τόμ. 666.
96. M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Real Space Trajectory of the Ultrafast Magnetization Dynamics in Ferromagnetic Metals. . *Phys. Rev. Lett.* 2005, Τόμ. 94.
97. M. van Kampen, C. Jozsa, J. T. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W. J. M. de Jonge, and B. Koopmans. All-Optical Probe of Coherent Spin Waves. *Phys. Rev. Lett.* 2002, Τόμ. 88.
98. R. Gómez-Abal, O. Ney, K. Satitkovitchai, and W. Hübner. All-Optical Subpicosecond Magnetic Switching in NiO(001). *Physical Review Letters*. 2004, Τόμ. 92, 227402.