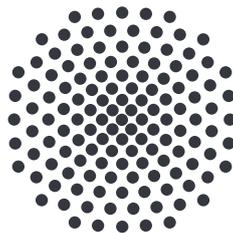


Übergangsraten eines getriebenen Spinsystems unter Berücksichtigung von Relaxation

Masterarbeit von
Michael Maihöfer

11. Januar 2021

Erster Prüfer: Prof. Dr. Jörg Main
Zweiter Prüfer: Prof. Dr. Udo Seifert



Institut für Theoretische Physik I
Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 57, 70550 Stuttgart

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
1.1	Aufbau der Arbeit	6
2	Grundlagen	9
2.1	Spindynamik	9
2.1.1	Spin und Magnetisierung	9
2.1.2	Landau-Lifschitz-Gilbert Gleichung	10
2.1.3	Magnetische Felder im Festkörper	11
2.1.4	Breathing-Fermisurface Modell	14
2.1.5	Eigenschaften der erweiterten LLG-Gleichung	17
2.1.6	Analogie zu einem klassischen Kreisel	20
2.2	Transition State Theory	22
2.2.1	Einführung	22
2.2.2	Allgemeine Systeme mit Rang-1 Sattel	23
2.2.3	Reaktionskonstanten	26
2.2.4	Lagrangedeskriptor und Zeitdeskriptor	28
2.2.5	Binary Contraction Method	31
3	Ergebnisse und Diskussion	33
3.1	Trajektorien und Phasenraumstrukturen	34
3.1.1	Lösungen der Bewegungsgleichungen	34
3.1.2	Bestimmung eines Reaktionsgebiets	38
3.1.3	Phasenraumstrukturen	39
3.1.4	Phasenraumstruktur bei kleinen Relaxationszeiten	41
3.2	Dynamik auf der NHIM	44
3.2.1	Statischer Fall	44
3.2.2	Getriebener Fall	45
3.3	Raten	50
3.3.1	Ratenberechnung	50
3.3.2	Einfluss eines zeitabhängigen Treibens	54
3.3.3	Einfluss der Relaxation	56

4 Zusammenfassung und Ausblick	59
A Berechnung der NHIM-Trajektorie in der Linearisierung	61
Literatur	63
Danksagung	67

1 Einleitung

Der Magnetismus hat die Menschen schon lange fasziniert. Obwohl viele Aspekte des Magnetismus geklärt sind, ist dieser in der Festkörperphysik auch heute noch ein offenes und aktives Forschungsgebiet. Das liegt nicht zuletzt daran, dass der Magnetismus ein kollektives Phänomen sehr vieler miteinander interagierender Teile bildet, deren magnetische Eigenschaften sich oft von denen der zugrundeliegenden Atome unterscheiden.

Ein Trend der Forschung in diesem Gebiet ist es dabei, die Dimensionen des Festkörpers bis auf die Größenordnung von wenigen Atomen schrumpfen zu lassen und die dabei auftretenden magnetischen Eigenschaften von niedrigdimensionalen Festkörpern zu untersuchen. Diese Bemühungen waren auch sehr fruchtbar, und es wurde, um ein Beispiel zu nennen, der Giant Magnetoresistance Effect entdeckt, was seinen Entdeckern Albert Fert und Peter Grünberg 2007 den Nobelpreis in Physik einbrachte. Der Effekt bezeichnet das Auftreten eines magnetfeldrichtungsabhängigen elektrischen Widerstands in einem aus sich abwechselnden ferromagnetischen und nicht-magnetischen Dünnschichten bestehenden Material.

Der Trend der Größenreduktion setzte sich fort, sodass nun auch die lateralen Dimensionen unterhalb der Größenordnung der charakteristischen Längenskalen, wie z.B. der Größe der magnetischen Domänen, gebracht wurden. Damit war das Feld des Mikromagnetismus (engl. *micromagnetics*) geboren. In gewisser Hinsicht vereinfacht dies die Beschreibung des Systems: Einerseits ist das System nun klein genug, sodass magnetische Domänen relevant werden, andererseits ist es groß genug, dass eine quantenmechanische Beschreibung noch nicht zwingend vonnöten ist. Oftmals reicht daher eine semiklassische Beschreibung des Makrospins über die bereits im Jahre 1955 phänomenologisch aufgestellte Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) Gleichung aus. Neuere Experimente [1] legen allerdings nahe, dass im Bereich von Pikosekunden Abweichungen von Voraussagen der LLG-Gleichung auftreten und diese durch einen zusätzlichen Relaxationsterm ergänzt werden muss.

Die in diesem Gebiet gewonnenen Erkenntnisse sind für viele technische Anwendungen relevant. Für die Entwicklung von magnetischen bzw. magneto-optischen Speichern ist die Erhöhung der Speicherdichte und der Lese- und Schreibgeschwindigkeit durch ein besseres Verständnis der magnetischen Anordnung und der Magnetisierungsumkehr, relevant. Ferner besteht die Hoffnung der *Spintronics* (abgeleitet aus den englischen

Wörtern *spin* und *electronics*) die Informationsverarbeitung nicht mehr – wie in der Elektronik – durch elektrische Ladungen oder Ströme zu realisieren, sondern durch die Ausrichtung des magnetischen Moments der Elektronen. Demnach ist die Untersuchung der Umklappprozesse der Magnetisierung von zentralem Interesse.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es die Rate zu bestimmen, mit der solche Umklappprozesse in einem Zweischichtenmodell stattfinden. Dies wird mithilfe der Methoden der Transition State Theory untersucht. Dieselbe Fragestellung wurde für die LLG-Gleichung bereits in [2] bearbeitet. Im Vergleich dazu wird nun in dieser Arbeit die um den Relaxationsterm erweiterte LLG-Gleichung herangezogen. Im Gegensatz zur LLG-Gleichung, die eine Differentialgleichung erster Ordnung ist, erlaubt die erweiterte LLG-Gleichung als Differentialgleichung zweiter Ordnung eine reichere Dynamik des Spinsystems.

Die Transition State Theory (TST) wurde ursprünglich in der Chemie zur Bestimmung von Übergangsraten von chemischen Reaktionen entwickelt. Die grundlegende Idee der Transition State Theory ist dabei, den Ablauf einer chemischen Reaktion als eine klassische Trajektorie zwischen einem Ausgangs- und einem Endzustand zu beschreiben. Dabei muss diese Bahn eine Potentialhürde überwinden, die der Aktivierungsenergie der chemischen Reaktion entspricht. Die wesentliche Dynamik findet in der Nähe des Sattelpunktes statt, also der energiegunstigsten Stelle der Potentialhürde. Diese lokale Dynamik ist dann auch für die Übergangsraten zwischen den beiden Zuständen wesentlich und wird im Rahmen dieser Arbeit für das getriebene Spinsystem näher untersucht.

Die Methoden der TST können auch die Landau-Lifshitz-Gilbert Gleichung bzw. der erweiterten LLG-Gleichung mit Relaxation hergestellt werden. Diese Bewegungsgleichung, zusammen mit einem effektiven Magnetfeld, welche eine bevorzugte Achse sowie eine Potentialbarriere darstellt, beschreibt Übergänge der Magnetisierung.

1.1 Aufbau der Arbeit

In Kapitel 2 werden im ersten Teil die Bewegungsgleichungen hergeleitet, mit denen die Magnetisierungsdynamik beschrieben wird. Dies beginnt mit der LLG-Gleichung und den relevanten Magnetfeldern in einem Zweischichtenmodell und geht weiter mit der Herleitung einer erweiterten LLG-Gleichung im Rahmen des Breathing-Fermisurface Modells. Schließlich wird die Analogie zu einem klassischen Kreisel zur Veranschaulichung der Bewegungsgleichungen erläutert. Im zweiten Teil der Grundlagen geht es um das Vorgehen der Transition State Theory zur Ratenberechnung und die numerischen Methoden die in dieser Arbeit Anwendung finden.

Kapitel 3 beschäftigt sich mit den Ergebnissen dieser Arbeit. Zunächst wird die Dynamik des Spinsystems beleuchtet, bevor die numerischen Methoden der TST auf dieses angewandt werden. Damit werden schließlich Übergangsraten bestimmt, und die Einflüsse auf diese diskutiert. Dabei werden die Ergebnisse für das Spinsystem mit und ohne Relaxation verglichen.

Kapitel 4 fasst dann die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit zusammen und gibt einen Ausblick auf weiterführende Fragestellungen.

2 Grundlagen

2.1 Spindynamik

In diesem Kapitel sollen die Grundlagen zu dem in dieser Arbeit betrachteten Modell dargestellt werden. Dazu beginnen wir mit einer kurzen Einführung des Spinbegriffs und leiten dann die für die Beschreibung der Magnetisierung in einem Festkörper gängige Landau-Lifschitz-Gilbert Gleichung her. Anschließend folgt ein kurzer Abriss über die Berechnung der magnetischen Konfiguration, und das verwendete magnetische Potential. Im nächsten Schritt werden wir die Erweiterung der LLG-Gleichung mit einem Relaxationsterm im Rahmen des Breathing-Fermi-Surface Modells darstellen. Dabei folgen wir in Teilen der Darstellung in den Referenzen [3–6].

2.1.1 Spin und Magnetisierung

Der Magnetismus von makroskopischen Objekten, wie z.B. einem Festkörper, beruht darauf, dass die Elementarteilchen, aus denen sie aufgebaut sind, ein magnetisches Moment besitzen, welches auf ihren Spin zurückgeht. Im Rahmen der nichtrelativistischen Quantenmechanik wird dieser mithilfe eines Spinoperators \hat{S} mit Komponenten in die drei Raumrichtungen $\hat{S}_x, \hat{S}_y, \hat{S}_z$, beschreiben. Für ein Elektron mit Spin $\frac{1}{2}$ können diese in einer Basis mit den Pauli-Matrizen dargestellt werden.

Der Kommutator der Komponenten der Spinoperatoren ist

$$[\hat{S}_i, \hat{S}_j] = i\hbar\epsilon_{ijk}\hat{S}_k. \quad (2.1)$$

Dabei ist ϵ_{ijk} das Levi-Civita Symbol und \hbar das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum. Dem Elektron, als geladenes Teilchen mit Spin, kann ferner ein magnetisches Moment

$$\hat{\mu} = \frac{g\mu_B}{\hbar}\hat{S} \quad (2.2)$$

zugeschrieben werden, wobei g der gyromagnetische Faktor und μ_B das Bohrsche Magneton ist.

Um nun zu einer Kontinuumsbeschreibung zu gelangen, wird die Magnetisierung

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}, t) = \frac{\sum_i \boldsymbol{\mu}_i}{V_{\mathbf{r}}} \quad (2.3)$$

eingeführt. An jedem Ort \mathbf{r} werden alle magnetischen Dipolmomente $\boldsymbol{\mu}_i$ in einer kleinen Umgebung summiert und durch das Volumen $V_{\mathbf{r}}$ dieser Umgebung geteilt. Die Umgebungen sind dabei genügend groß, sodass die Magnetisierung kontinuierlich variiert, und klein genug, dass alle magnetischen Momente innerhalb der Umgebung ungefähr parallel stehen. Es ist nützlich die Magnetisierung

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}, t) = M_s(\mathbf{r}, t) \mathbf{m}(\mathbf{r}, t) \quad (2.4)$$

in den Betrag $M_s(\mathbf{r}, t)$ und den Einheitsvektor $\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)$ in Richtung der Magnetisierung, aufzuteilen. In den folgenden Abschnitten wird ersichtlich, dass die Bewegungsgleichungen den Betrag der Magnetisierung erhalten.

2.1.2 Landau-Lifschitz-Gilbert Gleichung

Im Folgenden wollen wir eine Bewegungsgleichung für die Magnetisierung in einem äußeren magnetischen Feld herleiten[6]. Für einen magnetischen Dipol ist die Energie abhängig vom Winkel zum Magnetfeld. Dies kommt im Zeeman-Hamiltonoperator

$$\hat{\mathcal{H}} = -\gamma \hat{S} \cdot \mathbf{H}(t) \quad (2.5)$$

zum Ausdruck, wobei $\mathbf{H}(t)$ das äußere Magnetfeld ist und γ das gyromagnetische Verhältnis. Im Heisenbergbild, bei dem die implizite Zeitabhängigkeit im Gegensatz zum Schrödingerbild in den Operatoren steckt, ist die Zeitentwicklung des Spinoperators durch die Bewegungsgleichung

$$\frac{d}{dt} \hat{S}(t) = \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathcal{H}}, \hat{S}] + \frac{\partial \hat{S}}{\partial t} \quad (2.6)$$

gegeben. Da der Spinoperator nicht explizit zeitabhängig ist, entfällt der letzte Term auf der rechten Seite der Gleichung. Aufgrund der großen Zahl an Spin reicht es den Erwartungswert $\langle \hat{S} \rangle$ zu betrachten. Bildung des Erwartungswerts auf beiden Seiten ergibt

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{S}(t) \rangle = \frac{i}{\hbar} \langle [\hat{\mathcal{H}}, \hat{S}] \rangle. \quad (2.7)$$

Der Kommutator ist dabei unter Ausnutzung des Hamiltonoperators (2.5) und der Kommutatorregel für den Spinoperator (2.1)

$$[\hat{\mathcal{H}}, \hat{S}]_i = -\gamma [H_j \hat{S}_j, \hat{S}_i] = -\gamma H_j i \hbar \epsilon_{jik} \hat{S}_k = i \hbar \gamma \epsilon_{ijk} H_j \hat{S}_k. \quad (2.8)$$

Somit ergibt sich

$$\frac{d}{dt}\langle\hat{S}(t)\rangle = -\gamma\langle\hat{S}(t)\rangle \times \mathbf{H}(t). \quad (2.9)$$

Zusammen mit Gleichungen (2.2) und (2.3) ergibt sich die Präzessionsgleichung für das magnetische Moment

$$\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} = -\gamma\mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}(t). \quad (2.10)$$

Die Lösungen dieser Gleichung bei einem zeitlich konstanten, homogenen äußeren Magnetfeld ist eine Präzessionsbewegung mit der Frequenz

$$\omega = \gamma|\mathbf{H}| \quad (2.11)$$

um die Magnetfeldrichtung. Die experimentelle Beobachtung hingegen findet eine Ausrichtung der Magnetisierung in die Magnetfeldrichtung. Um dieses Problem zu beheben, führte Gilbert [7] einen phänomenologischen Dämpfungsterm über das Magnetfeld

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H}(t) - \frac{\alpha}{\gamma M_s} \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad (2.12)$$

ein. Dadurch ergibt sich die Landau-Lifschitz-Gilbert Gleichung (LLG-Gleichung)

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}(t) + \frac{\alpha}{M_s}\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt}. \quad (2.13)$$

Dabei bleibt der Betrag der Magnetisierung erhalten, da alle Terme auf der rechten Seite senkrecht auf der Magnetisierung stehen. Daher folgt mit Gleichung (2.4)

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}(t) + \alpha\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt}. \quad (2.14)$$

Bildung des Kreuzprodukts mit der Magnetisierung auf beiden Seiten und Einsetzen in die ursprüngliche Gleichung ergibt die explizite Form der LLG-Gleichung

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2}\mathbf{m} \times \mathbf{H}(t) - \frac{\gamma\alpha}{1+\alpha^2}\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}(t)). \quad (2.15)$$

In einem konstanten Magnetfeld sind die Lösungen der LLG-Gleichung Spiralbahnen um die Magnetfeldachse, die sich mit der Zeit in Richtung des Magnetfelds ausrichten.

2.1.3 Magnetische Felder im Festkörper

Die einzelnen magnetischen Momente innerhalb des betrachteten magnetischen Festkörpers wechselwirken untereinander, sodass bestimmte Konfigurationen bevorzugt, und

andere benachteiligt werden. Dies wird durch ein Energiefunktional $U[\mathbf{m}(\mathbf{r}, t)]$ ausgedrückt, wobei die Ableitung nach der Magnetisierung das vom magnetischen Moment gespürte effektive Feld

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = -\frac{1}{M_s} \frac{dU(\mathbf{m})}{d\mathbf{m}} \quad (2.16)$$

ergibt. Um die Gleichgewichtskonfiguration zu bestimmen, wird die Energie minimiert. Das Energiefunktional besteht dabei im Wesentlichen aus fünf Komponenten [7]:

$$U = U_{\text{ex}} + U_{\text{an}} + U_{\text{a}} + U_{\text{d}} + U_{\text{el}} \quad (2.17)$$

Die einzelnen Beiträge sind:

1. Die *Austauschenergie*,

$$U_{\text{ex}} = A \int_V ((\nabla m_x)^2 + (\nabla m_y)^2 + (\nabla m_z)^2) dV, \quad (2.18)$$

die die quantenmechanische Wechselwirkung der benachbarten magnetischen Momente phänomenologisch darstellt und minimal ist, wenn alle Momente parallel ausgerichtet sind.

2. Die *Anisotropieenergie*

$$U_{\text{an}} = \int_V F_{\text{an}}(\mathbf{m}) dV \quad (2.19)$$

mit $F_{\text{an}} = -\frac{1}{2}H_k M_s m_x^2$ im Falle einer Vorzugsrichtung in x -Richtung. Sie wird minimal für Konfigurationen, die in die Richtung der Vorzugsrichtung ausgerichtet sind.

3. Die *Zeemanenergie*

$$U_{\text{a}} = - \int_V \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_a dV \quad (2.20)$$

beschreibt die Wechselwirkung mit einem außen angelegten Feld.

4. Die *Energie des Demagnetisierungsfelds*

$$U_{\text{d}} = - \int_V \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_d dV \quad (2.21)$$

beschreibt die Wechselwirkung der Magnetisierung mit den durch die einzelnen magnetischen Dipolen erzeugten Magnetfeldern. Entsprechend ist das Demagnetisierungsfeld $\mathbf{H}_d = \frac{-1}{4\pi} \int_V \nabla \cdot \mathbf{M} \frac{\mathbf{r}}{r^3} d^3\mathbf{r}$. Die Energie des Demagnetisierungsfelds ist minimal, wenn keine magnetischen Ladungen auftreten. Für eine in der y - z -Ebene liegende, unendlich ausgedehnte Ebene wird das Demagnetisierungsfeld $\mathbf{H}_d = M_x \mathbf{e}_x$.

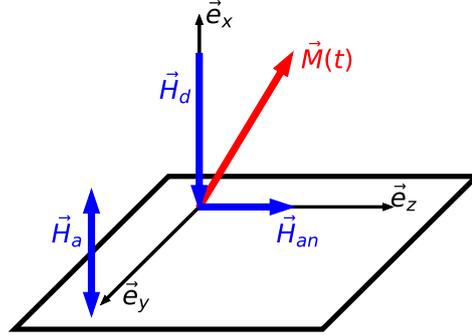


Abbildung 2.1: Darstellung der betrachteten Anordnung für eine Dünnschicht im Magnetfeld.

5. Die *magnetoelastische Energie* U_{el} gibt die Energie, die in dem Gitter gespeichert ist, an.

Als Modell betrachten wir eine homogen magnetisierte Dünnschicht mit einer einachsigen Vorzugsrichtung. Dies ist ein gängiges Modell zur Untersuchung von Magnetisierungs-umkehr, z.B. in [8]. Zusammen mit einer weiteren, durch eine nicht-magnetische Schicht getrennte Dünnschicht, die eine festgehaltene Magnetisierung besitzt, ergibt sich ein Zweischichtenmodell [9], das zur Untersuchung von *spin-transfer-torque* genutzt wird.

In diesem Modell, in Abbildung 2.1 dargestellt, verschwindet die Austauschenergie aufgrund der homogenen Magnetisierung und elastische Effekte werden vernachlässigt. Das Demagnetisierungsfeld steht dabei senkrecht auf der Dünnschicht und das Anisotropiefeld zeigt in Richtung der z -Achse. Zudem wirkt ein homogenes, zeitabhängiges äußeres Magnetfeld auf die Anordnung. Insgesamt ist damit die magnetische Energie

$$U(\mathbf{m}) = -\frac{1}{2}H_k M_s m_z^2 + \frac{1}{2}M_s^2 m_x^2 + M_s \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_a. \quad (2.22)$$

Das Potential (2.22) ist in Abbildung 2.2 in Kugelkoordinaten dargestellt. Dabei sind insbesondere sechs Extremstellen zu erkennen. Das Potential hat zwei Maxima bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = 0$ bzw. $\phi = \pi$, zwei Minima bei $\theta = 0$ und $\theta = \pi$ und zwei Sattelpunkte bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = \pi/2$ bzw. $\phi = 3\pi/2$.

Aus dem magnetischen Potential (2.22) kann durch Ableitung nach der Magnetisierung das effektive Magnetfeld

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = H_k m_z \mathbf{e}_z - M_s m_x \mathbf{e}_x + \mathbf{H}_a \quad (2.23)$$

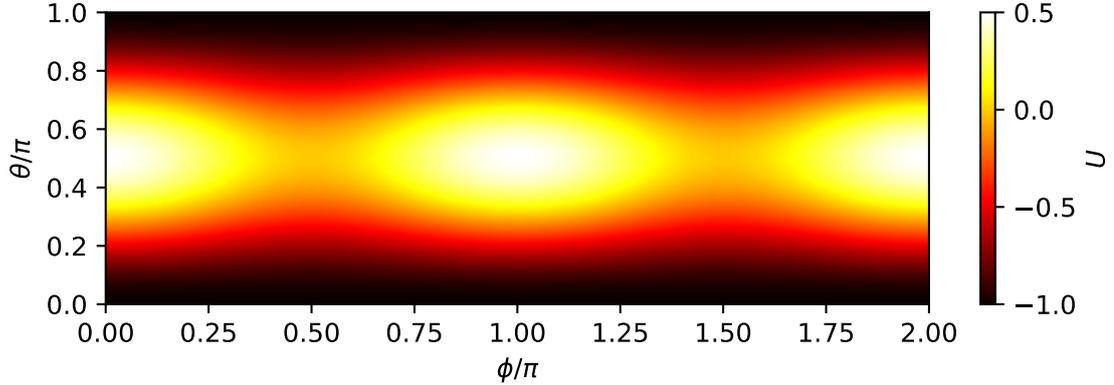


Abbildung 2.2: Modellpotential (2.22) in Kugelkoordinaten bei konstantem Radius $r = 1$ mit Parametern $M_s = 1.0$, $H_k = 2.0$ ohne äußeres Magnetfeld $\mathbf{H}_a = 0$. Das Potential ist farbcodiert dargestellt, wobei Bereiche mit geringem Potential schwarz und Bereiche mit hohem Potential weiß dargestellt werden.

berechnet werden. Zusammen mit der LLG-Gleichung (2.14) ergibt das effektive Magnetfeld die Bewegungsgleichung für die Magnetisierung ohne Berücksichtigung der Relaxation.

2.1.4 Breathing-Fermisurface Modell

In diesem Abschnitt führen wir das Breathing-Fermisurface Modell [3, 4] ein, um Relaxationseffekte zu berücksichtigen. Dies resultiert in einer Bewegungsgleichung [5], die zusätzlich zu den Termen der LLG-Gleichung einen Term mit der zweiten Ableitung der Magnetisierung enthält. Wie neuere Experimente [1] andeuten, treten Effekte bei Magnetisierungssumkehr im niedrigen Pikosekundenbereich auf, die durch die Einführung der Relaxation erklärt werden können. Ferner kann der in Abschnitt 2.1.2 phänomenologisch eingeführte Gilbert-Dämpfungsterm elegant im Rahmen des Breathing-Fermisurface Modell erklärt werden.

Ausgehend von der Präzessionsgleichung (2.10) wollen wir das effektive Magnetfeld herleiten, welches den Gilbert-Dämpfungsterm enthält. Hierzu betrachten wir die Gesamtenergie in einem Festkörper

$$E = \sum_{l,\mathbf{k}} n_{l,\mathbf{k}} \epsilon_{l,\mathbf{k}} \quad (2.24)$$

als Summe über alle Bänder nummeriert mit l und allen Wellenvektoren \mathbf{k} . Hierbei gibt $n_{l,\mathbf{k}}$ die Besetzungszahl und $\epsilon_{l,\mathbf{k}}$ die Einzelelektronenenergie des Zustands l, \mathbf{k} an.

Insbesondere ist die Besetzungszahl $n_{l,\mathbf{k}}$ ohne äußere Anregung gleich der Fermi-Dirac Verteilung $f_{l,\mathbf{k}}$. Ist der Festkörper zusätzlich im Grundzustand, sind alle Zustände mit der Energie $\epsilon_{l,\mathbf{k}}$ bis zur Fermienergie ϵ_F voll gefüllt. Die Gesamtenergie hängt vom Verlauf der Magnetisierungsrichtung $\mathbf{m}(t)$ ab, d.h. sie ist ein Funktional $E = E[\mathbf{m}(t)]$. Diese Abhängigkeit der Einzelelektronenenergie und damit der Fermi-Dirac-Verteilung von der Magnetisierungsrichtung ist im Fall eines kollinearen Spinsystems wesentlich der Spin-Bahn-Kopplung geschuldet. Bei einer kleinen Änderung $\delta\mathbf{m}(t)$ ändert sich die Gesamtenergie um

$$\delta E[\mathbf{m}(t)] = \sum_{l,\mathbf{k}} \delta n_{l,\mathbf{k}} \epsilon_{l,\mathbf{k}} + \sum_{l,\mathbf{k}} n_{l,\mathbf{k}} \delta \epsilon_{l,\mathbf{k}}. \quad (2.25)$$

In guter Näherung ändern sich die Besetzungszahlen der Zustände nur in der Nähe der Fermikante, sodass der erste Term auf der rechten Seite sich zu

$$\sum_{l,\mathbf{k}} \delta n_{l,\mathbf{k}} \epsilon_{l,\mathbf{k}} \approx \epsilon_F \sum_{l,\mathbf{k}} \delta n_{l,\mathbf{k}} = 0 \quad (2.26)$$

vereinfacht. Das letzte Gleichheitszeichen gilt, da die Gesamtzahl der Zustände konstant bleibt und sich somit alle Änderungen zu Null addieren müssen. Damit ist das effektive Magnetfeld

$$\mathbf{H} = -\frac{1}{M_s} \frac{\partial E}{\partial \mathbf{m}} = -\frac{1}{M_s} \sum_{l,\mathbf{k}} n_{l,\mathbf{k}} \frac{\partial \epsilon_{l,\mathbf{k}}}{\partial \mathbf{m}}. \quad (2.27)$$

In einem adiabatischen Falle, d.h. $\mathbf{m}(t)$ ändert sich wesentlich langsamer als die Streuzeiten der Elektronen, bleiben alle Elektronen in dem selben Eigenzustand l, \mathbf{k} . Dabei ändern sich nur die Einzelelektronenenergien $\epsilon_{l,\mathbf{k}}(t)$ mit der Zeit, während die Besetzungszahlen konstant der Fermi-Dirac-Verteilung entsprechen. In diesem Falle gibt es nur die Präzessionsbewegung. Um die Dämpfung zu erhalten nehmen wir einen nur leicht nicht-adiabatischen Fall an, bei dem die Besetzungszahlen der Fermi-Dirac-Verteilung leicht hinterherhinken, indem wir für die Besetzungszahlen einen Relaxationszeitansatz

$$\dot{n}_{l,\mathbf{k}}(t) = \frac{1}{\tau} (n_{l,\mathbf{k}}(t) - f_{l,\mathbf{k}}(t)) \quad (2.28)$$

wählen. Dabei sind in der Relaxationszeit τ alle Effekte, die eine Energieübertragung von magnetischen auf nicht-magnetische Freiheitsgrade bewirken können, enthalten. Insbesondere wollen wir annehmen, dass die Relaxationszeit in guter Näherung unabhängig vom Zustand l, \mathbf{k} ist. Die Fermi-Diracverteilung ist dabei gegeben durch

$$f_{l,\mathbf{k}}[\mathbf{m}(t)] = \frac{1}{e^{-(\epsilon_{l,\mathbf{k}}[\mathbf{m}(t)] - \mu)/k_B T} + 1}. \quad (2.29)$$

Die homogene Lösung für die Differentialgleichung (2.28) für jeden Zustand l, \mathbf{k} ist

$$n_h(t) = n(t_0) e^{-(t-t_0)/\tau} \quad (2.30)$$

und die partikuläre Lösung bestimmt sich über Variation der Konstanten zu

$$n_p(t) = \int_{t_0}^t \frac{1}{\tau} f(t') e^{-(t-t')/\tau} dt'. \quad (2.31)$$

Da wir den fast-adiabatischen Zustand betrachten wollen, setzen wir $t_0 = -\infty$, sodass der exponentielle Zerfall, beschrieben durch die homogene Lösung (2.30), bereits abgeklungen ist. Für kleine $(t - t')$ kann die Fermi-Dirac-Verteilung $f(t')$ in eine Taylorreihe

$$f(t') = f(t) + \dot{f}(t)(t' - t) + \ddot{f}(t)\frac{1}{2}(t' - t)^2 + \dots \quad (2.32)$$

um $t' = t$ entwickelt werden. Eingesetzt in Gleichung (2.31) wird die Besetzungszahl damit

$$n(t) = f e^{-t/\tau} \int_{-\infty}^t \frac{1}{\tau} e^{t'/\tau} dt' + \dot{f} e^{-t/\tau} \int_{-\infty}^t \frac{t' - t}{\tau} e^{t'/\tau} dt' + \ddot{f} e^{-t/\tau} \int_{-\infty}^t \frac{(t' - t)^2}{2\tau} e^{t'/\tau} dt'. \quad (2.33)$$

Auswertung der Integrale ergibt

$$n(t) = f(t) - \tau \dot{f}(t) + \tau^2 \ddot{f}(t) + \dots \quad (2.34)$$

Damit haben wir einen Ausdruck in Ordnungen der Relaxationszeit. Bricht man die Entwicklung nach dem linearen Term ab und setzt diese in den Ausdruck für das effektive Feld (2.27), so erhält man die LLG-Gleichung (2.14). Zunächst ist die Ableitung der Fermi-Dirac-Verteilung (2.29) nach der Kettenregel

$$\frac{d}{dt} f = \frac{df}{d\epsilon} \frac{d\epsilon}{dm_i} \frac{dm_i}{dt}. \quad (2.35)$$

Das resultierende Magnetfeld ist

$$\mathbf{H} = \sum_{l,\mathbf{k}} \left(f_{l,\mathbf{k}} + \tau \frac{d}{dt} f_{l,\mathbf{k}} \right) \frac{d\epsilon_{l,\mathbf{k}}(t)}{d\mathbf{m}} = \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{1}{\gamma M_s} \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (2.36)$$

mit den Abkürzungen

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = - \sum_{l,\mathbf{k}} f_{l,\mathbf{k}} \frac{d\epsilon_{l,\mathbf{k}}}{d\mathbf{m}}, \quad (2.37)$$

wobei hier \mathbf{H}_{eff} alle im vorherigen Abschnitt beschriebenen Wechselwirkungen zusammenfasst, und

$$\alpha_{ij} = - \frac{\gamma}{M_s} \sum_{l,\mathbf{k}} \tau \frac{df}{d\epsilon} \frac{d\epsilon}{dm_i} \frac{d\epsilon}{dm_j}. \quad (2.38)$$

Damit hat Gleichung (2.36) zusammen mit der Präzessionsgleichung (2.10) die Form der LLG-Gleichung

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \mathbf{m} \times \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (2.39)$$

mit dem Unterschied, dass die Dämpfung α nun eine Matrix anstatt eines Skalars ist. Um zur LLG-Gleichung zurückzukommen, nehmen wir an, dass eine Beschreibung mit $\alpha_{ij} = \alpha \delta_{ij}$ für das vorhandene Spinsystem ausreichend genau ist.

Mithilfe des Breathing-Fermisurface Modells ist es einfach einen zusätzlichen Inertialterm zu erhalten. Dieser folgt direkt, wenn die Potenzreihe (2.34) erst nach der Ordnung quadratisch in τ abgebrochen wird. Die zweite Ableitung ist dabei

$$\frac{d^2 f}{dt^2} = \frac{d^2 f}{d\epsilon^2} \left(\frac{d\epsilon}{dm_i} \cdot \frac{dm_i}{dt} \right)^2 + \frac{df}{d\epsilon} \left(\frac{d^2 \epsilon}{dm_i dm_j} \cdot \frac{dm_i}{dt} \right) \cdot \frac{dm_j}{dt} + \frac{df}{d\epsilon} \frac{d\epsilon}{dm_i} \frac{d^2 m_i}{dt^2}. \quad (2.40)$$

Unter Vernachlässigung der ersten beiden Terme der rechten Seite in Formel (2.40) führt das Einsetzen der zweiten Ordnung der Taylorreihe in Gleichung (2.27) zu

$$\mathbf{H} = \sum_{l,\mathbf{k}} \left(-f_{l,\mathbf{k}} + \tau \frac{d}{dt} f_{l,\mathbf{k}} - \tau^2 \frac{d^2}{dt^2} f_{l,\mathbf{k}} \right) \frac{d\epsilon_{l,\mathbf{k}}(t)}{dm} = \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{1}{\gamma M_s} \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} - \frac{1}{\gamma M_s} \alpha \tau \frac{d^2 \mathbf{m}}{dt^2}. \quad (2.41)$$

wobei α wie in Gleichung (2.38) definiert ist und zur Vereinfachung als Skalar angenommen wird. Damit ergibt sich die Erweiterung der LLG-Gleichung mit Relaxation

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \mathbf{m} \times \alpha \frac{d\mathbf{m}}{dt} + \mathbf{m} \times \alpha \tau \frac{d^2 \mathbf{m}}{dt^2}. \quad (2.42)$$

2.1.5 Eigenschaften der erweiterten LLG-Gleichung

Erhaltung des Betrags der Magnetisierung

Die erweiterte LLG-Gleichung erhält den Betrag der Magnetisierung \mathbf{m} . Skalarmultiplikation der Gleichung (2.42) mit \mathbf{m} ergibt

$$\mathbf{m} \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} = \gamma \mathbf{m} \cdot (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \mathbf{m} \cdot \left(\mathbf{m} \times \alpha \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) + \mathbf{m} \cdot \left(\mathbf{m} \times \alpha \tau \frac{d^2 \mathbf{m}}{dt^2} \right). \quad (2.43)$$

Alle Kreuzprodukte auf der rechten Seite stehen senkrecht auf \mathbf{m} , sodass das Skalarprodukt mit diesem verschwindet. Damit ist

$$\frac{d}{dt}(\mathbf{m}^2) = 2\mathbf{m} \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} = 0. \quad (2.44)$$

Nach Integration dieser Gleichung ist klar, dass der Betrag von \mathbf{m} , wie bereits durch die Schreibweise angedeutet, erhalten ist.

Umformung in explizite Form

Die Bewegungsgleichung (2.42) ist in impliziter Form gegeben, für die weitere Betrachtung ist allerdings eine Umformung in eine explizite Form sinnvoll. Dazu definieren wir zunächst

$$R := \frac{1}{\alpha\tau} \left(\frac{d\mathbf{m}}{dt} - \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \mathbf{m} \times \alpha \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right), \quad (2.45)$$

sodass die LLG-Gleichung als $R = 0$ geschrieben werden kann und die erweiterte LLG-Gleichung die Form

$$\mathbf{m} \times \ddot{\mathbf{m}} = R \quad (2.46)$$

annimmt. Bilden des Kreuzprodukts mit \mathbf{m} auf beiden Seiten ergibt

$$\begin{aligned} \mathbf{m} \times R &= \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \ddot{\mathbf{m}}) = (\mathbf{m} \cdot \ddot{\mathbf{m}})\mathbf{m} - (\mathbf{m} \cdot \mathbf{m})\ddot{\mathbf{m}} \\ &= \left(\frac{d}{dt} (\dot{\mathbf{m}} \cdot \mathbf{m}) - \dot{\mathbf{m}}^2 \right) \mathbf{m} - \ddot{\mathbf{m}} = -\dot{\mathbf{m}}^2 \mathbf{m} - \ddot{\mathbf{m}}. \end{aligned} \quad (2.47)$$

Daraus ergibt sich die explizite Form der erweiterten LLG-Gleichung

$$\ddot{\mathbf{m}} = -\mathbf{m} \times \left[\frac{1}{\alpha\tau} \left(\frac{d\mathbf{m}}{dt} - \gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \mathbf{m} \times \alpha \cdot \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \right] - \dot{\mathbf{m}}^2 \mathbf{m}. \quad (2.48)$$

Einige Terme auf der rechten Seite der Gleichung lassen sich mittels der Relation (2.44) weiter vereinfachen:

$$\frac{1}{\tau} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt}) = -\frac{1}{\tau} \frac{d\mathbf{m}}{dt}. \quad (2.49)$$

Damit ist die LLG-Gleichung mit Relaxation

$$\tau \ddot{\mathbf{m}} = -\frac{1}{\alpha} \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} - \frac{\gamma}{\alpha} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \frac{d\mathbf{m}}{dt} - \tau \dot{\mathbf{m}}^2 \mathbf{m}. \quad (2.50)$$

Darstellung in Kugelkoordinaten

Da der Betrag von \mathbf{m} erhalten bleibt, bietet es sich an die Bewegungsgleichung in Kugelkoordinaten darzustellen. Dann reduzieren sich die ursprünglich drei gekoppelten Differentialgleichungen zweiter Ordnung zu zwei Gleichungen. Damit erhalten wir

$$\ddot{\theta} - \dot{\phi}^2 \sin \theta \cos \theta = \frac{1}{\alpha\tau} \dot{\phi} \sin \theta + \frac{\gamma}{\alpha\tau} H_\theta - \frac{1}{\tau} \dot{\theta}, \quad (2.51a)$$

$$\ddot{\phi} \sin \theta - 2\dot{\phi}\dot{\theta} \cos \theta = \frac{-1}{\alpha\tau} \dot{\theta} + \frac{\gamma}{\alpha\tau} H_\phi - \frac{1}{\tau} \dot{\phi} \sin \theta. \quad (2.51b)$$

Hierbei sind H_θ und H_ϕ die θ - bzw. ϕ -Anteile des effektiven Magnetfelds, welche selbst von θ sowie ϕ abhängen. Diese lassen sich als Gradient der Potentialfunktion (2.22) in Kugelkoordinaten schreiben

$$E(\theta, \phi) = \frac{1}{2}M_s^2(\sin\theta \cos\phi)^2 - \frac{1}{2}M_s H_k \cos^2\theta + M_s \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_a. \quad (2.52)$$

Damit ist das effektive Magnetfeld ohne äußeres Feld

$$H_\theta = -M_s \cos^2\phi \sin\theta \cos\theta - H_k \cos\theta \sin\theta, \quad (2.53a)$$

$$H_\phi = M_s \sin\theta \cos\phi \sin\phi. \quad (2.53b)$$

Linearisierung in Kugelkoordinaten

Für die eine analytische Ratenbestimmung wird die Linearisierung am Fixpunkt benötigt. Mittels der Jakobimatrix J lässt sich die ursprüngliche Differentialgleichung linearisieren

$$\dot{\mathbf{x}} = F(\mathbf{x}) \approx J\mathbf{x}. \quad (2.54)$$

Die Jakobimatrix

$$J_{ij} = \left. \frac{\partial F_i}{\partial x_j} \right|_{\mathbf{x}_0} \quad (2.55)$$

ist dabei die Matrix der partiellen Ableitungen ausgewertet an der Stelle \mathbf{x}_0 . Um die Gleichungen (2.51) auf die Form (2.54) zu bringen, verwenden wir

$$\mathbf{x} = \begin{pmatrix} \dot{\theta} \\ \dot{\phi} \\ \theta \\ \phi \end{pmatrix}. \quad (2.56)$$

Damit ergibt sich die Jakobi-Matrix für die erweiterte LLG-Gleichung:

$$J = \begin{pmatrix} -\frac{1}{\tau} & 2\dot{\phi} \sin\theta \cos\theta + \frac{\sin\theta}{\alpha\tau} & \frac{\dot{\phi} \cos\theta}{\alpha\tau} + \dot{\phi}^2 \cos 2\theta + \frac{\gamma}{\alpha\tau} \frac{\partial H_\theta}{\partial \theta} & \frac{\gamma}{\alpha\tau} \frac{\partial H_\theta}{\partial \phi} \\ 2\dot{\phi} \cot\theta - \frac{1}{\alpha\tau \sin\theta} & 2\dot{\theta} \cot\theta - \frac{1}{\tau} & \frac{-2\dot{\theta}\dot{\phi}}{\sin^2\theta} + \frac{\dot{\theta} \cos\theta}{\alpha\tau \sin^2\theta} + \frac{\gamma}{\alpha\tau} \frac{\partial H_\phi}{\partial \theta} & \frac{\gamma}{\alpha\tau \sin\theta} \frac{\partial H_\phi}{\partial \phi} \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.57)$$

Die Komponenten des Magnetfelds in die θ - bzw ϕ -Richtung sind in Gleichung (2.53) gegeben.

2.1.6 Analogie zu einem klassischen Kreisel

Die LLG-Gleichung (2.14), und insbesondere LLG-Gleichung mit Relaxation (2.42) ist der Bewegungsgleichung eines rotierenden symmetrischen Kreisels sehr ähnlich. Diese Analogie ermöglicht eine intuitiveres Verständnis der Bewegungsgleichung. Um die LLG-Gleichung zu erhalten musste Gilbert annehmen, dass zwei der drei Trägheitsmomente verschwinden müssen, allerdings gibt es zu solch einem Kreisel kein klassisches Pendant. Die Analogie zu einem klassischen Kreisel werden von der erweiterten LLG-Gleichung insofern vervollständigt, als dass die zwei in der LLG-Gleichung verschwindenden Hauptträgheitsmomente gerade für die Trägheit sorgen. Dieser Abschnitt orientiert sich an der Darstellung in [10, 11].

Für einen Kreisel gilt die Relation

$$\mathbf{L} = I\boldsymbol{\omega}, \quad (2.58)$$

wobei \mathbf{L} der Drehimpuls, I der Trägheitstensor und $\boldsymbol{\omega}$ die Winkelgeschwindigkeit ist. Geht man in ein mitrotierendes Koordinatensystem über, so kann der Trägheitstensor als

$$I = \begin{pmatrix} I_1 & 0 & 0 \\ 0 & I_2 & 0 \\ 0 & 0 & I_3 \end{pmatrix} \quad (2.59)$$

mit den Hauptträgheitsmomenten I_1 , I_2 und I_3 geschrieben werden, wobei bei einem symmetrischen Kreisel zwei der Trägheitsmomente gleich sind, z.B. $I_1 = I_2$. Das mitrotierende Koordinatensystem wird in Eulerkoordinaten durch

$$\omega_1 = \dot{\phi} \sin \theta \sin \psi + \dot{\theta} \cos \psi, \quad (2.60a)$$

$$\omega_2 = \dot{\phi} \sin \theta \cos \psi + \dot{\theta} \sin \psi, \quad (2.60b)$$

$$\omega_3 = \dot{\phi} \cos \theta + \dot{\psi} \quad (2.60c)$$

beschrieben. Damit können wir eine Lagrangefunktion \mathcal{L} aufstellen

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} (I_1(\omega_1^2 + \omega_2^2) + I_3\omega_3^2) - V(\theta, \phi), \quad (2.61)$$

die in den Eulerkoordinaten aus Gleichung (2.60) die Form

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} \left(I_1(\dot{\phi}^2 \sin^2 \theta + \dot{\theta}^2) + I_3(\dot{\phi} \cos \theta + \dot{\psi})^2 \right) - V(\theta, \phi) \quad (2.62)$$

annimmt. Ferner wollen wir Reibung über die Reyleighsche Dissipationsfunktion

$$\mathcal{R} = \frac{\eta}{2}(\omega_1^2 + \omega_2^2) = \frac{\eta}{2}(\dot{\phi}^2 \sin^2 \theta + \dot{\theta}^2) \quad (2.63)$$

eingeführen. Die Bewegungsgleichungen ergeben sich aus den Euler-Lagrange Gleichungen

$$\frac{d}{dt} \frac{d\mathcal{L}}{d\dot{q}_i} - \frac{d\mathcal{L}}{dq_i} + \frac{d\mathcal{R}}{d\dot{q}_i} = 0. \quad (2.64)$$

Daraus ergeben sich mit $q_1 = \theta$, $q_2 = \phi$ und $q_3 = \psi$:

$$I_1 \ddot{\theta} - I_1 \dot{\phi}^2 \sin \theta \cos \theta + I_3 \dot{\phi} \sin \theta (\dot{\phi} \cos \theta + \dot{\psi}) = -\frac{d\mathcal{R}}{d\dot{\theta}} - \frac{dV}{d\theta}, \quad (2.65a)$$

$$\frac{d}{dt} [I_1 \dot{\phi} \sin^2 \theta + I_3 \cos \theta (\dot{\phi} \cos \theta + \dot{\psi})] = -\frac{d\mathcal{R}}{d\dot{\phi}} - \frac{dV}{d\phi}, \quad (2.65b)$$

$$\frac{d}{dt} (I_3 (\dot{\phi} \cos \theta + \dot{\psi})) = 0. \quad (2.65c)$$

Aus Gleichung (2.65c) folgt mit Gleichung (2.60)

$$\frac{d}{dt} (I_3 \omega_3) = \frac{dL_3}{dt} = 0. \quad (2.66)$$

Somit bleibt die Drehimpulskomponente L_3 erhalten. Damit werden aus den Gleichungen (2.65) durch Ausführung der verbliebenen Ableitungen und Einsetzen von $F_\theta = \frac{dV}{d\theta}$ bzw. $F_\phi = \frac{1}{\sin \theta} \frac{dV}{d\phi}$:

$$I_1 \ddot{\theta} - I_1 \dot{\phi}^2 \sin \theta \cos \theta + L_3 \dot{\phi} \sin \theta = -\eta \dot{\theta} - F_\theta, \quad (2.67a)$$

$$I_1 \ddot{\phi} \sin^2 \theta + 2I_1 \dot{\phi} \dot{\theta} \sin \theta \cos \theta + L_3 \dot{\theta} \sin \theta = -\eta \dot{\phi} \sin^2 \theta - F_\phi \sin \theta. \quad (2.67b)$$

Dies führt nach Ersetzung von

$$I_1 \leftrightarrow \alpha \tau, \quad L_3 \leftrightarrow 1, \quad \eta \leftrightarrow \alpha, \quad F_\theta \leftrightarrow \gamma H_\theta, \quad F_\phi \leftrightarrow \gamma H_\phi \quad (2.68)$$

auf die erweiterte LLG-Gleichung in Kugelkoordinaten (2.51).

Der Zusammenhang zwischen Drehimpuls und seinem Dipolmoment kann bis auf den gyromagnetischen Faktor klassisch veranschaulicht werden. Dazu nehmen wir ein Elektron gedanklich auf einer Kreisbahn oszillierend an. Der Ortsvektor zu dem Elektron soll \mathbf{r} sein, und der Normalenvektor auf der durch die Kreisbahn mit Fläche A umschlossene Fläche sei \mathbf{n} . Diese so erzeugte Stromschleife hat die Stromdichte $j = \frac{ev}{2\pi r}$. Für eine solche Leiterschleife ist das magnetische Moment

$$\boldsymbol{\mu} = j A \mathbf{n} = \frac{evr}{2} \mathbf{n}. \quad (2.69)$$

Gleichzeitig ist der Drehimpuls des Elektrons um den Mittelpunkt

$$\mathbf{L} = m_e \mathbf{r} \times \mathbf{v} = m_e r v \mathbf{n}. \quad (2.70)$$

Zusammen ergibt dies

$$\boldsymbol{\mu} = \frac{ge}{2m_e} \mathbf{L}, \quad (2.71)$$

wobei in dieser klassischen Betrachtung $g = 1$ gilt.

2.2 Transition State Theory

Zur Untersuchung der Rate von Spinflips nutzen wir die Transition State Theory (TST). Das in Abschnitt 2.1.3 vorgestellte Modell besitzt zwei stabile Zustände, nämlich die Ausrichtung entlang der Vorzugsrichtung, welche nur durch das Einnehmen energieun günstigerer Zustände ineinander überführt werden können. Für diese Ausgangssituation kann die TST, die im folgenden Abschnitt dargestellt wird, angewandt werden.

Die TST wurde von Eyring [12] und Wigner [13] ursprünglich zur Bestimmung von Übergangsraten von chemischen Reaktionen entwickelt. Inzwischen hat die TST auch Anwendung in anderen Gebieten, wie z.B in der Atomphysik [14], gefunden. In diesem Kapitel folgen wir der Darstellung der TST in [15–18].

2.2.1 Einführung

Die Transition State Theory wurde anfangs dazu entwickelt um die Reaktionsrate von chemischen Reaktionen theoretisch zu beschreiben. Betrachten wir also eine Reaktion



in der Edukte E zu den Produkten P reagieren. In der Regel sind der Edukt- und der Produktzustand metastabil, d.h. es muss erst Energie von außen zugeführt werden, bevor die Reaktion abläuft. Es müssen zunächst mindestens ein energetisch ungünstigerer Zustand, die sogenannte Transition State, durchlaufen werden, bevor der Produktzustand erreicht ist. Der Energieverlauf im Laufe der Reaktion, durch die Reaktionskoordinate r beschrieben, sieht demnach schematisch wie in Abbildung 2.3 dargestellt aus.

Hier setzt die klassische Transition State Theory an: Anstatt die Reaktion vollständig quantenmechanisch zu beschreiben, wird der elektronische Anteil durch die Potentialfläche vorgegeben, und die Bewegung der Kerne klassisch, auf der Potentialfläche beschrieben.

Die Grundannahmen der TST sind nach Wigner [13]:

- Die Born-Oppenheimer Näherung gilt, d.h. die Kernbewegung und die Elektronenbewegung können separat betrachtet werden, da sich der Kern um Größenordnungen langsamer als die Elektronen bewegt.
- Die Kernbewegung kann durch die klassische Mechanik beschrieben werden. Insbesondere sind damit Tunneleffekte nicht berücksichtigt.
- Die Reaktanden sind im thermischen Quasi-Gleichgewicht.

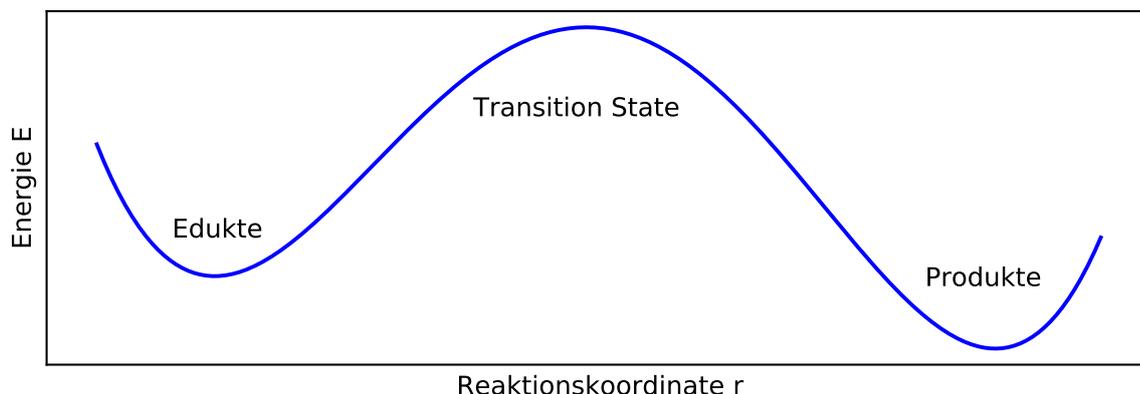


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Potentialfläche mit Aktivierungsenergie.

- Es existiert eine Trennfläche, die sogenannte Dividing Surface (DS), die Edukt- und Produktzustände trennt und von allen reagierenden Trajektorien genau einmal durchlaufen wird.

Die Grundlegende Idee ist es dann, die Übergangsraten von Edukt- zur Produktseite über die Rate der die DS durchquerenden Trajektorien zu bestimmen. Da die DS nur genau einmal durchquert wird, und die Edukte im thermischen Gleichgewicht sind, genügt es ein relativ kleines Ensemble zu propagieren und den Schnitt dieser mit der DS zu berechnen.

2.2.2 Allgemeine Systeme mit Rang-1 Sattel

Die Methoden der TST können auf Systeme verallgemeinert werden, die nicht zwangsläufig mit chemischen Reaktionen zusammenhängen müssen. In dieser Fassung ist ein Modellsystem gegeben, welches durch eine Hamiltonfunktion und die kanonischen Gleichungen beschrieben wird. Die Problematik der TST besteht dann darin, eine rückläuferfreie DS für das Modellsystem zu konstruieren, die es erlaubt Edukt- und Produktgebiete zu definieren und die Übergangsraten zwischen diesen zu bestimmen.

Für die TST sind wir generell an Systemen interessiert, die zwei Reservoirs besitzen, die durch eine Potentialbarriere voneinander getrennt sind. Ausgangspunkt zur Beschreibung ist also die Hamiltonfunktion $H(\mathbf{q}, \mathbf{p}, t)$ zusammen mit den kanonischen Gleichungen

$$\dot{\mathbf{q}} = \frac{\partial H}{\partial \mathbf{p}}, \quad \dot{\mathbf{p}} = -\frac{\partial H}{\partial \mathbf{q}}. \quad (2.73)$$

In einer Phasenraumformulierung lässt sich dies auch schreiben als

$$\dot{\mathbf{x}} := (\mathbf{q}, \mathbf{p})^T = F(\mathbf{x}) := \left(\frac{\partial H}{\partial \mathbf{p}}, -\frac{\partial H}{\partial \mathbf{q}} \right)^T. \quad (2.74)$$

Um die Barriere zwischen den beiden Reservoirs abzubilden, fordern wir dass das in der Hamiltonfunktion enthaltene Potential $V(\mathbf{q})$ einen Rang 1-Sattel besitzt. Das bedeutet, dass für das Potential an der Stelle des Sattels \mathbf{q}_0

$$\frac{d}{d\mathbf{q}}V(\mathbf{q})|_{\mathbf{q}_0} = 0 \quad (2.75)$$

gilt und die Linearisierung am Ort des Sattels

$$H_{ij}(\mathbf{q}_0) = \frac{\partial^2 V}{\partial q_i \partial q_j} \quad (2.76)$$

einen instabilen, d.h. negativen Eigenwert und sonst positive Eigenwerte besitzt. Die Richtung des Eigenvektors zum negativen Eigenwert entspricht der Richtung, in der die Reaktion abläuft, und heißt im folgenden Reaktionskoordinate. Die übrigen Eigenvektoren zu positiven Eigenwerten werden im folgenden Badkoordinaten genannt.

Ein solcher Rang-1-Sattel erzeugt einen hyperbolischen Fixpunkt in den Bewegungsgleichungen. Dieser führt zu einer lokal festen geometrischen Struktur im Phasenraum. Mithilfe dieser Struktur lässt sich dann eine rückläuferfreie DS konstruieren. Ein Fixpunkt hat die Eigenschaft, dass $\mathbf{F}(\mathbf{x}_f) = 0$ an der Stelle \mathbf{x}_f des Fixpunkts. Betrachtet man die Linearisierung von F um diese Stelle

$$J_{ij}(\mathbf{x}) = \frac{dF_i(\mathbf{x})}{dx_j}|_{\mathbf{x}_f} \quad (2.77)$$

so hat diese zwei reelle Eigenwerte mit unterschiedlichen Vorzeichen, $\pm\lambda$ und sonst imaginäre Eigenwerte $\pm i\omega_k$, wobei $k = 2, \dots, d$.

Um diesen hyperbolischen Fixpunkt herum werden die wesentlichen dynamischen Eigenschaften bereits durch die linearisierten Bewegungsgleichungen

$$\dot{\mathbf{x}} = J(\mathbf{x}_f) \mathbf{x} \quad (2.78)$$

beschrieben, deren lokale Lösung dann durch

$$\mathbf{x} = e^{tJ(\mathbf{x}_f)} \mathbf{x}_0 \quad (2.79)$$

gegeben ist. Entlang der Eigenvektoren \mathbf{v}_i von J , die reelle Eigenwerte besitzen, vereinfacht sich die Matrixexponentialfunktion in Gleichung (2.79) zu einer reellen Exponentialfunktion $e^{\pm\lambda t}$, d.h. Anfangsbedingungen \mathbf{x}_0 , die in Richtung dieser Eigenvektoren starten,

laufen gegen den Fixpunkt für $t \rightarrow \pm\infty$. Dies motiviert die Einführung der stabilen Mannigfaltigkeit, die als

$$\mathcal{W}_s = \{\mathbf{x}_0 : \mathbf{x}(t) \rightarrow \mathbf{x}_f \text{ für } t \rightarrow +\infty\} \quad (2.80)$$

definiert wird, sowie der instabilen Mannigfaltigkeit

$$\mathcal{W}_u = \{\mathbf{x}_0 : \mathbf{x}(t) \rightarrow \mathbf{x}_f \text{ für } t \rightarrow -\infty\}. \quad (2.81)$$

In einem zeitabhängigen Fall wird die Definition so angepasst, dass die Trajektorien anstatt gegen einen Fixpunkt zu laufen nur noch in der Sattelpunktregion für alle Zeiten gefangen sein müssen. Wichtig zu bemerken ist, dass diese Mannigfaltigkeiten Kodimension 1 haben, d.h. Dimension $2d - 1$. Der Schnitt der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeiten ist die sogenannte Normal Hyperbolic Invariant Manifold (NHIM) [18] mit Kodimension 2. Dabei bedeutet invariant, dass jeder Punkt in der NHIM für immer in der NHIM bleibt. Damit eine invariante Mannigfaltigkeit normal hyperbolisch ist, darf einerseits das Spektrum orthogonal zur Mannigfaltigkeit keinen Eigenwert mit Realteil null besitzen. Andererseits müssen die Realteile der Eigenwerte in Richtung der invarianten Mannigfaltigkeit kleiner als diejenigen orthogonal zur Mannigfaltigkeit sein.

Diese NHIM verallgemeinert das Konzept des hyperbolische Fixpunkts, und lässt sich insbesondere auch für zeitabhängige Systeme einsetzen. In diesem Falle besteht die NHIM aus Trajektorien, die für immer in der NHIM bleiben.

Eine graphische Darstellung der Mannigfaltigkeiten, sowie der NHIM in einem eindimensionalen Fall ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Anschaulich entspricht die stabile Mannigfaltigkeit in einem eindimensionalen, zeitunabhängigen System einer Trajektorie mit der Sattelpunktenergie, die gerade auf den Sattel konvergiert, während die instabile Mannigfaltigkeit eine Trajektorie repräsentiert, die dicht am Sattel startet und von dort aus wegläuft. Die NHIM entspricht in diesem einfachen Fall dem Ort des Sattelpunkts und Impuls 0.

Die Wichtigkeit dieser Mannigfaltigkeiten besteht darin, dass sie den Phasenraum in vier disjunkte Gebiete aufteilt, die qualitativ unterschiedlichen Reaktionsarten entsprechen. Da sich aufgrund der Eindeutigkeit Phasenraumtrajektorien nicht schneiden können, also insbesondere die stabile bzw. instabile Mannigfaltigkeit nicht geschnitten werden kann, ist die Zuordnung zu einem der Gebiete eindeutig. Die einzelnen Gebiete sind:

- Gebiet I: Die Trajektorie startet in der Produktregion und endet in der Produktregion, ohne den Sattel zu überqueren.
- Gebiet II: Es erfolgt eine Reaktion von Edukt zu Produkt, dabei wird der Sattel überquert.

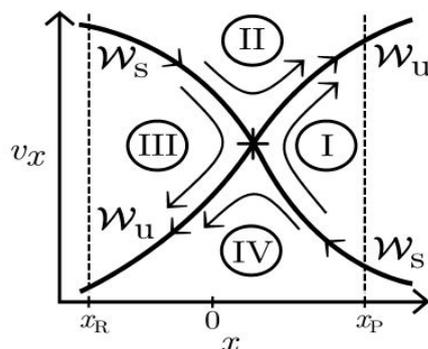


Abbildung 2.4: Darstellung der Struktur in einem eindimensionalen Fall bzw. einem Schnitt des mehrdimensionalen Phasenraums. Abbildung entnommen aus [16].

- Gebiet III: Die Trajektorie startet in der Eduktregion und endet in der Eduktregion, ohne den Sattel zu überqueren.
- Gebiet IV: Die Trajektorie reagiert von Produkt zu Edukt und überquert dabei den Sattel.

Da Reaktionen nur in den Gebieten II und IV stattfinden, muss die DS an der NHIM befestigt sein und dabei die Gebiete II und IV zerschneiden. Diese so gewählte DS ist dann in der Nähe der NHIM rückläuferfrei.

2.2.3 Reaktionskonstanten

Mit einer DS, die an der zeitabhängigen Position der NHIM angeheftet ist lässt sich die Übergangsrates k bestimmen. Dazu wird ein Ensemble auf der Eduktseite initialisiert, welches dann mit der Zeit die DS überquert und zu einem Produkt reagiert. Ist $N(t)$ die Zahl der Teilchen auf der Eduktseite bei einer bestimmten Zeit, so ist die Rate formal als

$$k(t) = -\frac{\dot{N}(t)}{N(t)} \quad (2.82)$$

definiert.

Der Verlauf der Teilchenpopulation $N(t)$ kann direkt numerisch durch Lösen der Bewegungsgleichung für Teilchen mit verschiedenen Anfangsbedingungen (\mathbf{x}_0, t_0) auf der Eduktseite, berechnet werden. In der Nähe der NHIM ist es jedoch möglich, mithilfe der Linearisierung einen einfachen analytischen Ausdruck für die Rate zu erhalten,

der Local Manifold Analysis (LMA) [17, 19]. Für eine im Allgemeinen zeitabhängige Bewegungsgleichung

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{F}(\mathbf{x}, t) \quad (2.83)$$

betrachten wir hier die Linearisierung an der Stelle einer Trajektorie $\mathbf{y}(t)$ der NHIM

$$J_{ij}(t) = \left. \frac{dF_i(\mathbf{x}, t)}{dx_j} \right|_{\mathbf{y}(t)}. \quad (2.84)$$

Damit ist das Fundamentalsystem $\sigma(t)$ durch

$$\frac{d}{dt}\sigma(t) = J(t)\sigma(t) \quad (2.85)$$

mit der Anfangsbedingung $\sigma(t_0) = 1$ gegeben. Die Eigenvektoren der Fundamentalmatrix zeigen die Richtung der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeit an. Die stabile Mannigfaltigkeit ist lokal die Ebene aufgespannt durch die $2n - 1$ Eigenvektoren bis auf den Eigenvektor $\mathbf{v}^u(t)$ zum negativen Eigenwert. Entsprechend ist die instabile Mannigfaltigkeit lokal die Ebene aufgespannt durch die Eigenvektoren bis auf den Eigenvektor $\mathbf{v}^s(t)$ zum positiven Eigenwert. Die NHIM ist dann lokal der Aufspan der $2n - 2$ Vektoren, die weder der stabilen noch instabile Eigenvektor sind. Die DS ist hier ohne Beschränkung der Allgemeinheit in einem geeigneten Koordinatensystem als Ebene orthogonal zum Einheitsvektor in \mathbf{e}_1 -Richtung gewählt.

Wir wählen hier ein Ensemble von Teilchen, die parallel zur instabilen Mannigfaltigkeit starten. Dieses kann dann mit einem einzelnen Vektor und einem Parameter $a \in [0, 1]$ beschrieben werden:

$$\mathbf{x}(t_0; a) = \mathbf{v}^s(t_0) + a\mathbf{v}^u(t_0) \quad (2.86)$$

Die Länge der Vektoren $\mathbf{v}^s(t_0)$ und $\mathbf{v}^u(t_0)$ werden so gewählt, dass dieses Ensemble zur Startzeit t_0 die DS gerade bei $a_{\text{DS}}(t_0) = 1$ schneidet. Insbesondere ist damit $a_{\text{DS}}(t)$ proportional zur Population $N(t)$. Mit einem so gewählten Ensemble ist die instantane Rate nach Gleichung (2.82)

$$k(t_0) = -\frac{\dot{a}(t_0)}{a(t_0)} = -\dot{a}(t_0). \quad (2.87)$$

Mit der Zeit bewegt sich das Ensemble mit

$$\mathbf{x}(t; a) = \sigma(t)\mathbf{x}(t_0; a) \quad (2.88)$$

und wird die DS für einen anderen Wert von a schneiden. Dieser Schnittpunkt wird über

$$0 = \mathbf{x}(t; a(t)) \cdot \mathbf{e}_x \quad (2.89)$$

berechnet. Mit Gleichung (2.88) ist der Schnittpunkt in Komponenten

$$a(t) = \frac{\sigma_{1j}(t)v_j^s}{\sigma_{1j}(t)v_j^u}. \quad (2.90)$$

Die Ableitung ist

$$\dot{a}(t) = \frac{(\dot{\sigma}_{1j}(t)v_j^s)(\sigma_{1j}(t)v_j^u)}{(\sigma_{1j}(t)v_j^u)^2} - \frac{(\dot{\sigma}_{1j}(t)v_j^u)(\sigma_{1j}(t)v_j^s)}{(\sigma_{1j}(t)v_j^u)^2}. \quad (2.91)$$

Für die instantane Rate vereinfacht sich der Ausdruck mit $\sigma(t_0) = 1$ und $v_1^u = v_1^s$ zu

$$\dot{a}(t_0) = \frac{\dot{\sigma}_{1j}(t_0)(v_j^s - v_j^u)}{v_1^u}. \quad (2.92)$$

Zur numerischen Bestimmung der Rate wird ein 2-dimensionaler Schnitt betrachtet, sodass sich der Ausdruck in dieser Ebene mit Gleichung (2.87) und $\dot{\sigma}(t_0) = J(t_0)$ zu

$$k_0 = J_{12} \frac{v_2^s - v_2^u}{v_1^u} \quad (2.93)$$

vereinfacht. Dies ist die effektive Rate für ein zweidimensionales System. Für ein höherdimensionales System muss dann noch eine Bewegung aus der Schnittebene berücksichtigt werden. Dies wird durch einen weiteren Anteil der Rate

$$k_1 = -\frac{x_{\text{DS}}(t_0 + \delta t) - x_{\text{DS}}(t_0)}{v_1^u \delta t} \quad (2.94)$$

beschrieben, die die Verschiebung der DS-Position x_{DS} durch Verlassen der Schnittebene nach einer kurzen Zeit δt beinhaltet. Die Gesamtrate ist dann

$$k = k_0 + k_1. \quad (2.95)$$

2.2.4 Lagrangedeskriptor und Zeitdeskriptor

Die numerische Bestimmung der relevanten Strukturen im Phasenraum, d.h. der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeiten, ist für komplexe zeitabhängige Systeme nicht trivial. Wie in Abschnitt 2.2.2 definiert sind stabile und instabile Mannigfaltigkeiten durch das Verhalten der sie definierenden Trajektorien für $t \rightarrow \infty$ bzw. $t \rightarrow -\infty$ gegeben. Andererseits ist jede numerische Berechnung der Trajektorie nur für ein endliches Zeitintervall möglich.

Eine mögliche Methode zur Bestimmung der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeiten ist der Lagrangedeskriptor, der ausführlicher in [20] beschrieben wird. Hier werden wir den Lagrangedeskriptor $L(x_0, t_0)$ als

$$L(x_0, t_0) = \int_{t_0-\tau}^{t_0+\tau} \|v(x(t), t)\| dt \quad (2.96)$$

am Ort x_0 und Zeitpunkt t_0 definieren. Es wird also die Bogenlänge der Trajektorie $x(t)$ über einen festen Zeitraum von 2τ gemessen. Berechnet man den Lagrangedeskriptor für Punkte in einer Umgebung der stabilen oder instabilen Mannigfaltigkeit, so stellt sich an diesen Mannigfaltigkeiten eine Diskontinuität heraus. Abbildung 2.5a zeigt farbcodiert den Wert des Lagrangedeskriptors für das Spinsystem in einem Raster in der Umgebung der NHIM dar. Deutlich zu erkennen sind die gelben, also deutlich erhöhten Werte des Lagrangdeskriptors, im Kontrast zur roten Umgebung, die hier die stabile und instabile Mannigfaltigkeit zeigen, sowie die NHIM am Schnittpunkt dieser Mannigfaltigkeiten. Die Funktionsweise lässt sich qualitativ so zusammenfassen: werden zwei Trajektorien nah bei einander gestartet, so entfernen diese sich maximal exponentiell schnell voneinander. Das gilt allerdings nur, wenn sich die Trajektorien qualitativ ähneln. Sind diese zum Beispiel durch die stabile Mannigfaltigkeit getrennt, so können Sprünge auftreten.

Für den Zeitdeskriptor ist die Definition eines Reaktionsgebietes notwendig, das so gewählt wird, dass Trajektorien das Reaktionsgebiet hinreichend schnell verlassen und die das Reaktionsgebiet verlassende Trajektorien eindeutig Produkten oder Edukten zugeordnet werden kann. Der Zeitdeskriptor ist dann definiert durch die Zeit, die eine Trajektorie bei (x_0, t_0) startend benötigt, um das Reaktionsgebiet als Edukt oder Produkt zu verlassen. Trajektorien nahe der stabilen Mannigfaltigkeit zeichnen sich dadurch aus, dass sie besonders lange im Reaktionsgebiet verweilen, während Trajektorien nahe der instabilen Mannigfaltigkeit durch hohe Zeiten bei Propagation in negativer Zeitrichtung auszeichnen. In Abbildung 2.5b ist farbcodiert die Summe des Zeitdeskriptors in Vorwärts-Zeitrichtung und Rückwärts-Zeitrichtung dargestellt. Dies hat den Vorteil, dass sowohl stabile als auch instabile Mannigfaltigkeit als Maximum dieser Funktion erkennbar ist.

Ferner hat die Definition eines Reaktionsgebiets den Vorteil, jede mögliche Startpostion (x_0, t_0) im Reaktionsgebiet numerisch einer der vier Phasenraumgebiete aus Abschnitt 2.2.2 zuzuordnen. Diese Zuordnung erfolgt je nachdem an welcher Stelle die Trajektorie in Vorwärts- und Rückwärtszeitrichtung das Gebiet verlässt. Eine entsprechende Klassifikation ist in Abbildung 2.5c dargestellt. Deutlich zu sehen sind wiederum die stabile bzw. instabile Mannigfaltigkeit als Grenze zwischen den einzelnen Gebieten im Phasenraum.

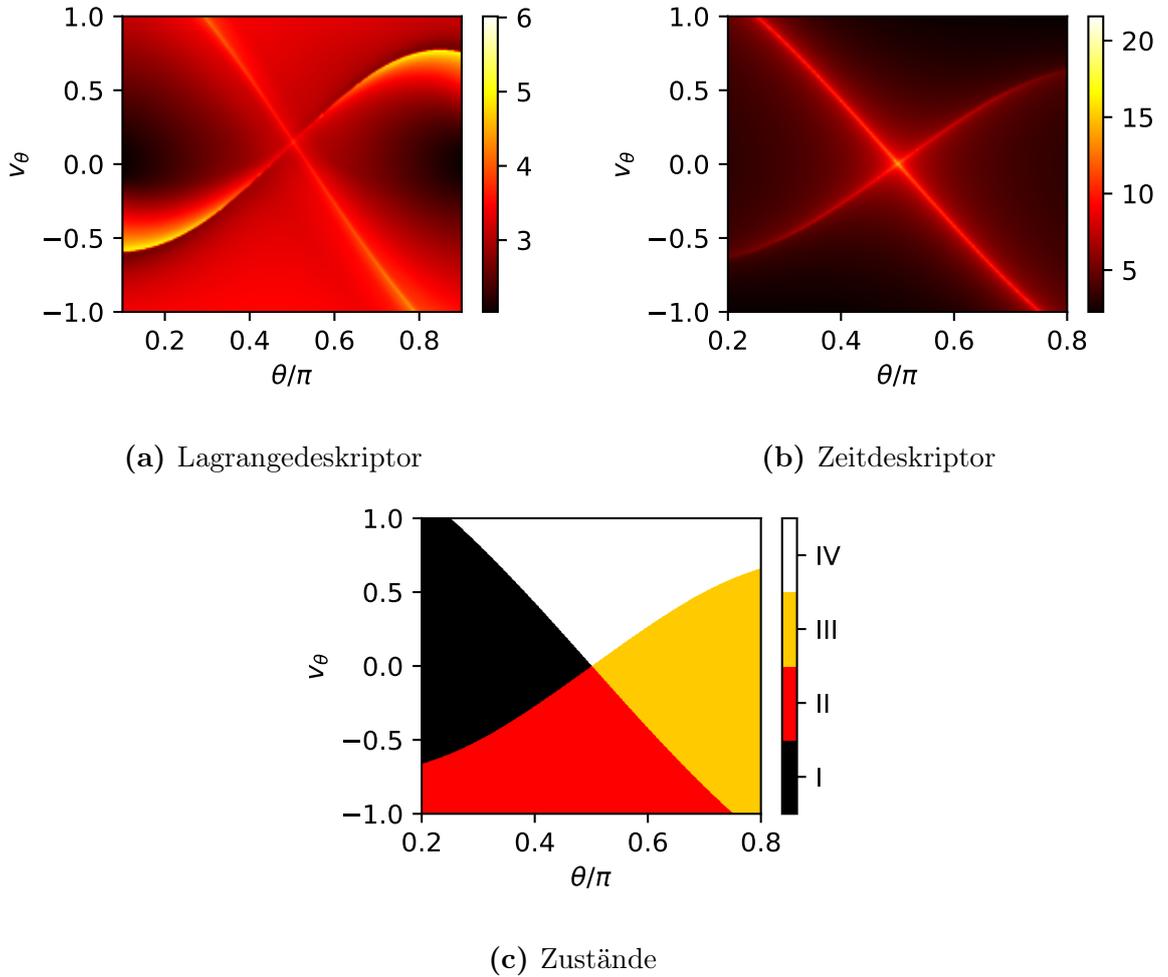


Abbildung 2.5: Exemplarische Diagramme für (a) Lagrangedeskriptor, (b) Zeitdeskriptor und (c) die Einteilung der Gebiete für das Spinsystem. Hier ist die Relaxationszeit $\tau = 2$, die Dämpfungskonstante $\alpha = 1$, das Anisotropiefeld $H_k = 2$ und das äußere Feld $\mathbf{H}_a = 0$. Die Abbildungen sind jeweils in der θ - v_θ -Ebene bei $\phi = \frac{\pi}{2}$ und $v_\phi = 0$ dargestellt. Wert des Lagrangedeskriptors und Zeitdeskriptors in beliebigen Einheiten und die Einteilung der Gebiete I - IV wie in Abschnitt 2.2.2.

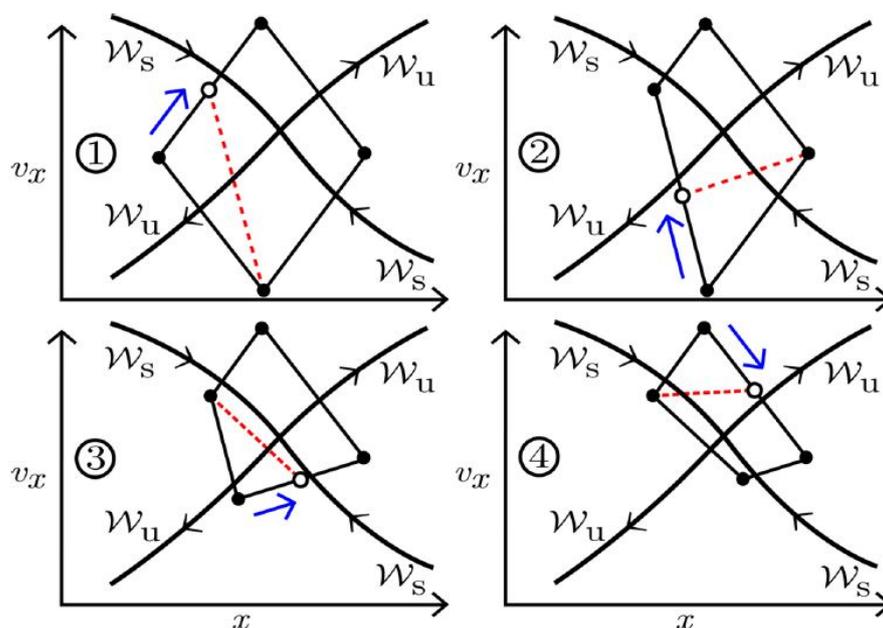


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung der Schritte der Binary Contraction Method. Abbildung entnommen aus [16].

2.2.5 Binary Contraction Method

Mit dem Lagrangedeskriptor und dem Zeitdeskriptor haben wir im vorigen Abschnitt numerische Methoden zur Darstellung der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeit kennengelernt. Für die Bestimmung der DS und damit der Reaktionsraten ist eine effiziente numerische Berechnung der NHIM notwendig. Dazu wurde in [21] die Binary Contraction Method (BCM) vorgeschlagen.

Abbildung 2.6 zeigt schematisch das Verfahren der BCM. Es benötigt analog zum Zeitdeskriptor im vorigen Abschnitt eine gute Definition eines Reaktionsgebiets.

1. Zunächst werden für die vier durch die stabilen und instabilen Mannigfaltigkeit getrennten Gebiete jeweils eine Startposition (x_i, t_0) mit $i \in 1, 2, 3, 4$ bestimmt (Punkte in Schwarz). Diese vier Startpositionen bilden damit ein Viereck mit vier Kanten.
2. Der Mittelpunkt einer dieser Kanten wird bestimmt (nicht ausgefüllter Punkt).
3. Die Zugehörigkeit dieses Mittelpunktes zu einer der vier Gebiete wird berechnet
4. Der neu berechnete Punkt ersetzt den Eckpunkt, der im selben Reaktionsgebiet war.

5. Punkte 2-4 werden abwechselnd für alle Kanten wiederholt, bis die benötigte Genauigkeit erreicht ist.

3 Ergebnisse und Diskussion

Grundlage der Berechnung der Übergangsraten mit den Methoden der TST ist die Berechnung von Trajektorien der Bewegungsgleichung. Für den Fall des Spinsystems mit Relaxation ist es die erweiterte LLG-Gleichung

$$\tau \ddot{\mathbf{m}} = -\frac{1}{\alpha} \dot{\mathbf{m}} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} - \frac{\gamma}{\alpha} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) - \frac{d\mathbf{m}}{dt} - \tau \dot{\mathbf{m}}^2 \mathbf{m}, \quad (3.1)$$

die im Kapitel 2.1 hergeleitet wurde. Diese Bewegungsgleichung erhält dabei den Betrag der Magnetisierung, sodass diese im Folgenden in Kugelkoordinaten bei konstantem Radius $r = 1$ dargestellt wird. Damit existieren nur zwei unabhängige Koordinaten der Magnetisierung, sodass der Phasenraum insgesamt vier Dimensionen besitzt. Das effektive Feld aus Kapitel 2.1.3 ist

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = H_k M_s m_z \mathbf{e}_z + M_s^2 m_x \mathbf{e}_x + \mu_0 M_s H_a \sin(\omega t) \mathbf{e}_z. \quad (3.2)$$

Dieses effektive Feld und das dazugehörige Potential ist symmetrisch gegenüber einer Verschiebung in ϕ -Richtung um π , sodass hier ohne Beschränkung der Allgemeinheit $\phi \in [0, \pi]$ gewählt wird.

Die Lösungen der Bewegungsgleichung werden numerisch mithilfe des Runge-Kutta Verfahrens berechnet. Da der Fokus in dieser Arbeit auf die Durchführbarkeit der Ratenberechnung liegt, sind die in obigen Gleichungen auftretenden Konstanten ohne Anwendung auf ein spezifisches experimentelles System gewählt. In einem Einheitensystem, in dem das gyromagnetische Verhältnis den Wert $\gamma = 1$ besitzt und die Sättigungsmagnetisierung $M_s = 1$ ist, haben die hier gewählten Konstanten die Werte

$$\alpha = 1, \quad H_k = 2. \quad (3.3)$$

Im zeitunabhängigen Fall $H_a = 0$ ergeben sich die Stabilitätseigenschaften des Sattelpunkts bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = \pi/2$ durch die linearisierte Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned} \tau \ddot{\theta} &= -\dot{\theta} + \frac{1}{\alpha} \dot{\phi} + \frac{\gamma}{\alpha} M_s H_k (\theta - \pi/2), \\ \tau \ddot{\phi} &= -\dot{\phi} - \frac{1}{\alpha} \dot{\theta} - \frac{\gamma}{\alpha} M_s^2 (\phi - \pi/2). \end{aligned} \quad (3.4)$$

Gleichung (3.1) hat die Form einer Bewegungsgleichung eines Partikels in einem Potential. Besonders ist hier das Auftreten eines Reibungsterms $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$ und eines nichtlinearen Terms $\frac{1}{\alpha}\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt}$, die die Anwendung der Methoden der TST erschweren können.

Ein Schwerpunkt der Arbeit liegt auf der Untersuchung des Einflusses der Relaxation auf die Ratenbestimmung. Daher werden die Ergebnisse, die für das System mit Relaxation gewonnen werden mit denen ohne Relaxation verglichen. Dazu wird die LLG-Gleichung ohne Relaxation

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\frac{\gamma}{1+\alpha^2}\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{\gamma\alpha}{1+\alpha^2}\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}), \quad (3.5)$$

in dem selben magnetischen Feld (3.2), herangezogen. Diese entsteht formal aus Gleichung (3.1) im Grenzwert verschwindender Relaxationszeit $\tau \rightarrow 0$, und wird deswegen im Folgenden vereinfachend als Fall $\tau = 0$ bezeichnet. Dies wird besonders deutlich beim Vergleich der Gleichungen (2.42) und (2.14) vor den im Kapitel 2.1 erläuterten Umformungen. Die Schwierigkeit bei der Betrachtung dieses Grenzfalles ist, dass der Term der höchsten Ableitung dabei verschwindet. Dies reduziert den zunächst vierdimensionalen Phasenraum auf einen zweidimensionalen Phasenraum.

3.1 Trajektorien und Phasenraumstrukturen

3.1.1 Lösungen der Bewegungsgleichungen

Zunächst betrachten wir qualitativ den Verlauf der Magnetisierung ohne äußeres Feld. Eine exemplarische Lösung der LLG-Gleichung mit und ohne Relaxation ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Die Trajektorie in Vorwärtszeitrichtung (blau) vollführt dabei Präzessionsbewegungen um die Pole, die ohne einen Dämpfungsterm auf Äquipotentiallinien verlaufen würden. Die Dämpfung sorgt dafür, dass die Bahn in Richtung einer der Pole läuft. Schließlich bewirkt die Relaxation, dass eine Nutationsbewegung auftritt. In Rückwärtszeitrichtung (türkis) sorgt die Dämpfung dafür, dass das System mit Relaxation zunehmend Energie erhält und eine zunehmend schnellere Rotationsbewegung um eine Achse vollführt. Für das System ohne Relaxation ergibt sich hingegen eine Ausrichtung in Richtung eines der Potentialmaxima bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = 0$ bzw. $\phi = \pi$, welcher der Richtung der x -Achse entspricht.

Abbildung 3.2 zeigt Trajektorien, die am selben Phasenraumpunkt starten, bei verschiedenen Relaxationszeiten τ . Zunächst zeigt Abbildung 3.2a, dass sich die Bahnen mit kleiner werdender Relaxation von blau über grün nach rot der Trajektorie erster Ordnung annähern (schwarz). Die Darstellung von $\theta(t)$ und $v_\theta(t)$ in Abbildung 3.2b besitzt für

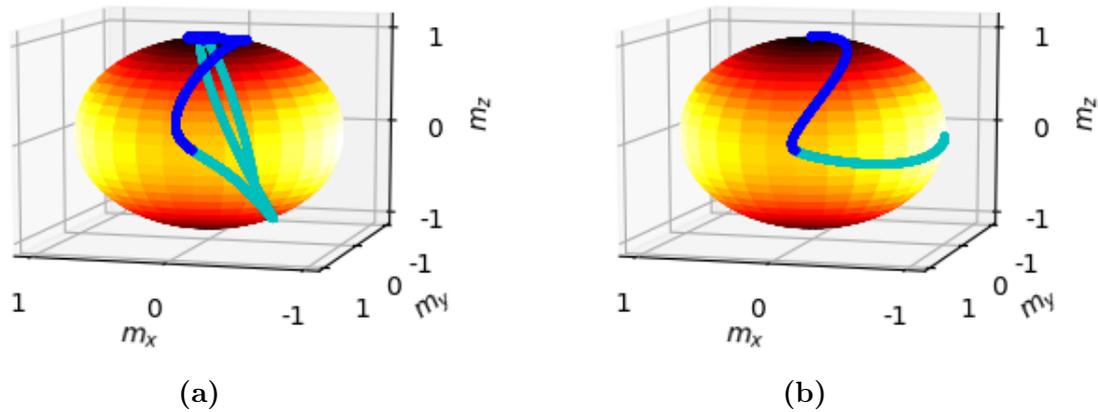
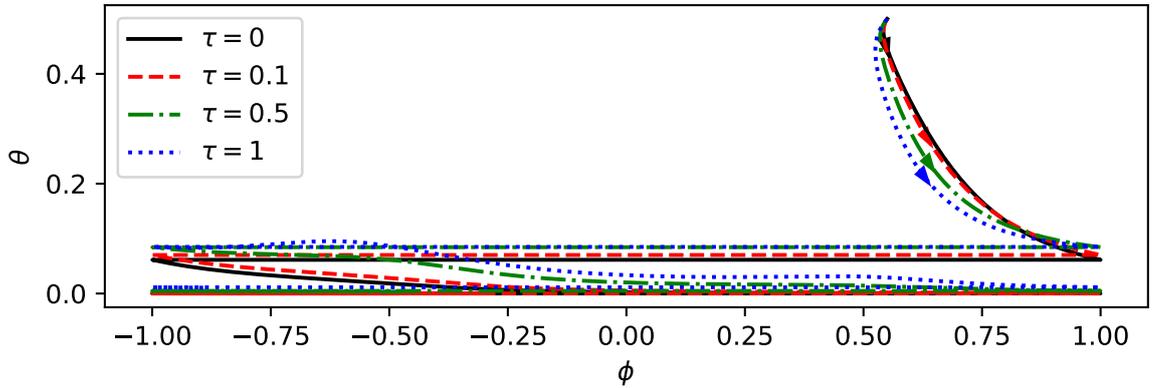
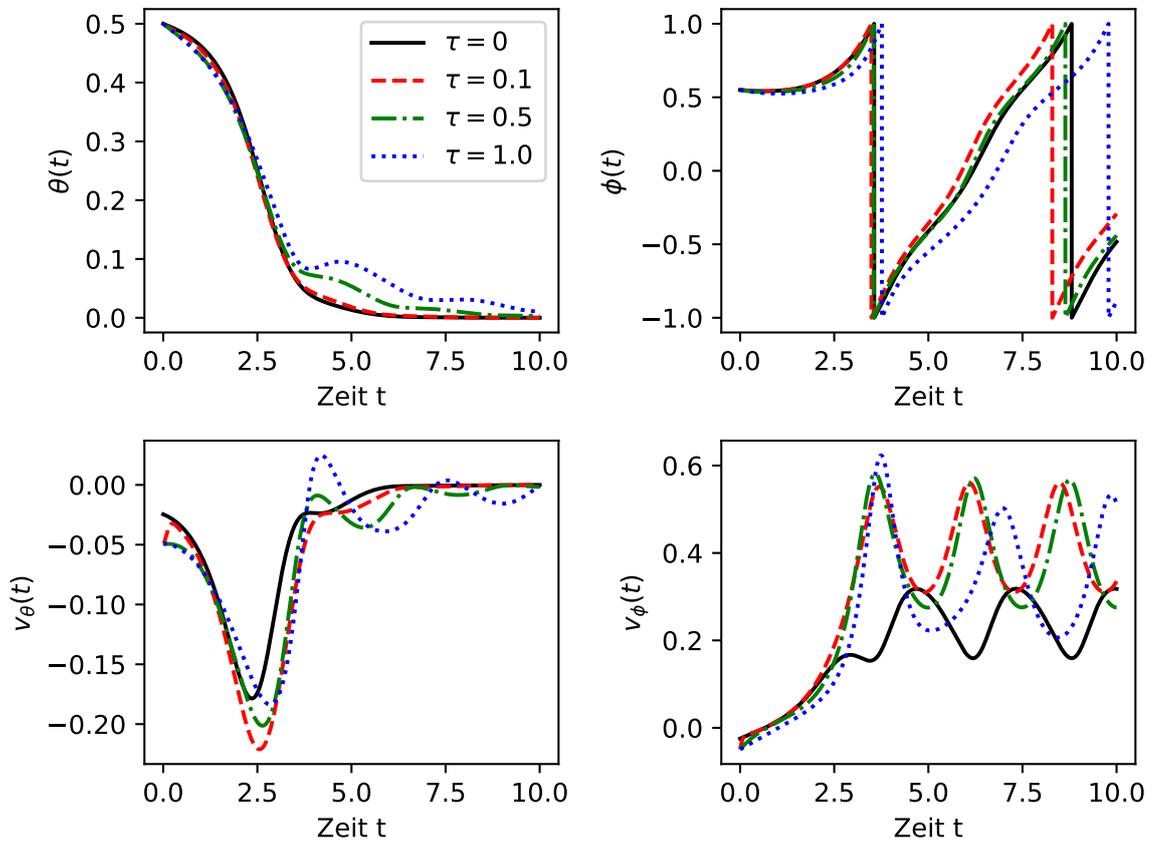


Abbildung 3.1: Trajektorien startend bei $\theta = \pi/2$, $\phi = 0.55\pi$ sowie $v_\theta = -0.049$, $v_\phi = -0.049$ in Vorwärtszeitrichtung (blau) und Rückwärtszeitrichtung (türkis) der (a) Gilbertgleichung mit Relaxation und (b) Gilbertgleichung ohne Relaxation. Im Hintergrund ist die Potentialstruktur farbkodiert dargestellt, wobei helle Farben ein hohes und dunkle Farben tiefes Potential andeuten.

große τ ab ca. $t = 4$ kleinere Oszillationen, welche die Nutation aufgrund der Relaxation sind. Diese verschwinden mit kleiner werdenden Relaxationszeit τ . Für die rückwärts propagierten Bahnen in Abbildung 3.3 gehen die Trajektorien jedoch im Falle $\tau \rightarrow 0$ nicht in die Trajektorie der Gilbertgleichung ohne Relaxation über. Stattdessen beschreibt die Bahn im Falle mit Relaxation eine immer stärker werdende Drehbewegung, während die Bahn ohne Relaxation gegen eines der Potentialmaxima strebt.

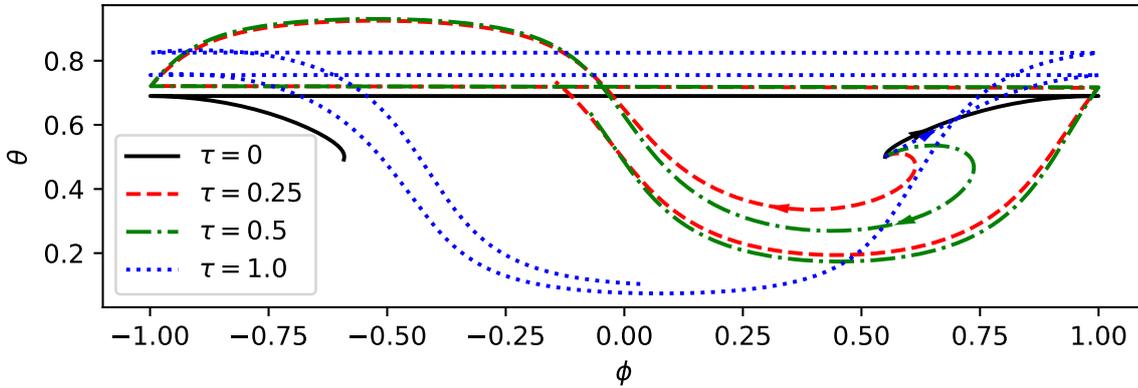


(a)

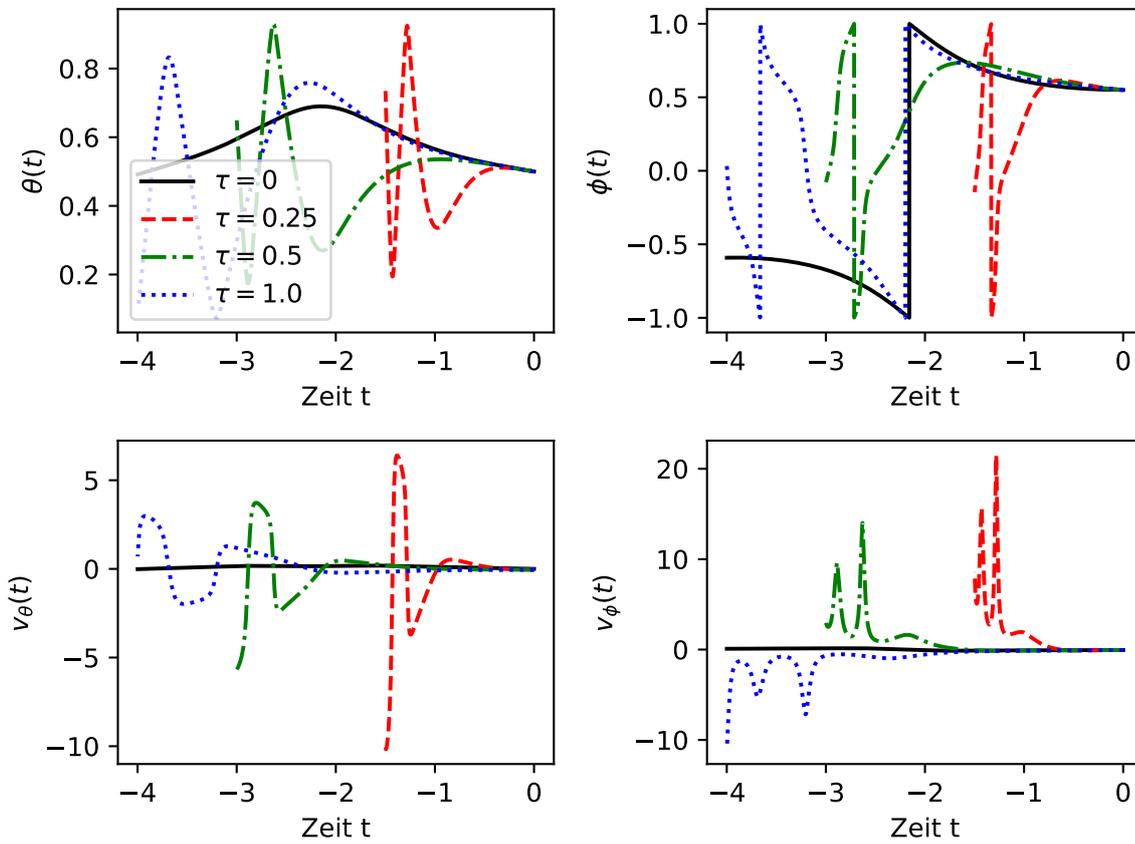


(b)

Abbildung 3.2: Trajektorien bei verschiedenen Relaxationszeiten τ im Vergleich mit der Trajektorie erster Ordnung. Diese starten bei $\theta = \pi/2$, $\phi = 0.55\pi$ und den Geschwindigkeiten der ersten Ordnung $v_\theta = -0.049$, $v_\phi = -0.049$. (a) In $\theta - \phi$ -Ebene und (b) Koordinaten über der Zeit.



(a)



(b)

Abbildung 3.3: Trajektorien bei verschiedenen Relaxationszeiten τ im Vergleich mit der Trajektorie erster Ordnung rückwärts in der Zeit propagiert. Diese starten bei $\theta = \pi/2$, $\phi = 0.55\pi$ und den Geschwindigkeiten der ersten Ordnung $v_\theta = -0.049$, $v_\phi = -0.049$. (a) In $\theta - \phi$ -Ebene und (b) Koordinaten über der Zeit.

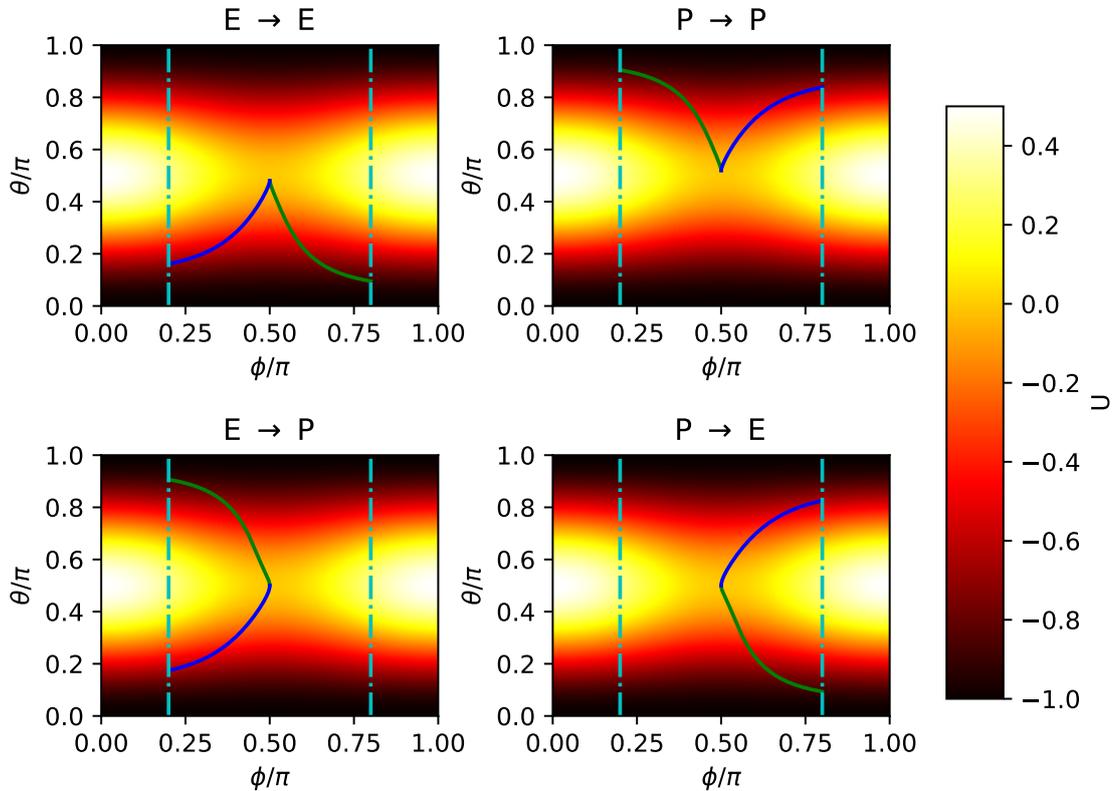


Abbildung 3.4: Trajektorien aus jedem der vier Phasenraumgebiete in Vorwärtszeitrichtung (grün) und Rückwärtszeitrichtung (blau) bis zum Rand des Reaktionsgebiets (türkis) propagiert. a) $\theta = 0.48\pi$, $v_\theta = 0$; b) $\theta = 0.52\pi$, $v_\theta = 0$; c) $\theta = 0.5\pi$, $v_\theta = 0.1$; d) $\theta = 0.5\pi$, $v_\theta = -0.1$. Im Hintergrund ist jeweils die Potentialstruktur farbkodiert aufgetragen.

3.1.2 Bestimmung eines Reaktionsgebiets

Für das weitere Vorgehen wird ein Reaktionsgebiet definiert, sodass eine Trajektorie, die das Reaktionsgebiet verlässt, als Produkt oder Edukt klassifiziert werden kann. Dabei schließt das Reaktionsgebiet im Wesentlichen den Rang-1-Sattel ein. Es ist üblich, das Reaktionsgebiet in der instabilen Richtung, d.h. im Falle des Spinsystems die θ -Richtung, abzuschneiden. Allerdings richtet sich die Trajektorie in Rückwärtszeitrichtung nicht in Richtung der Pole aus, sodass unter Umständen eine Trajektorie ein so gewähltes Reaktionsgebiet nie verlässt und daher nicht klassifiziert werden kann. Stattdessen wird in ϕ -Richtung abgeschnitten und dank der Präzessionsbewegung ist sichergestellt, dass das Reaktionsgebiet immer verlassen wird. Sobald das Reaktionsgebiet verlassen wird, wird die Trajektorie als Produkt oder Edukt klassifiziert, je nachdem ob θ größer oder

kleiner als $\pi/2$ ist. Konkret ist der Eduktzustand

$$E : (\phi < 0.2\pi \text{ oder } \phi > 0.8\pi) \text{ und } \theta > \pi/2 \quad (3.6)$$

und der Produktzustand

$$P : (\phi < 0.2\pi \text{ oder } \phi > 0.8\pi) \text{ und } \theta < \pi/2. \quad (3.7)$$

Mit dieser Definition sind in Abbildung 3.4 jeweils eine Trajektorie aus jedem Phasenraumgebiet gezeigt, die vorwärts und rückwärts bis zu den Abschneidepunkten laufen, und dadurch klassifiziert werden. Wie in Kapitel 2 erläutert, kann damit jeder Punkt des Phasenraums in eines der vier Gebiete eingeteilt werden, je nachdem, wohin die Trajektorie in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung geht.

3.1.3 Phasenraumstrukturen

Der Sattelpunkt bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = \pi/2$ ist ein Rang-1-Sattel. Demnach ist eine Phasenraumstruktur mit stabilen und instabilen Mannigfaltigkeiten, und der NHIM als Schnittpunkt dieser, zu erwarten.

Im Spinsystem mit Relaxation sind diese Strukturen Untermannigfaltigkeiten des vierdimensionalen Phasenraums. Die Einführung einer zweidimensionalen Schnittebene in der θ - v_θ -Ebene reduziert das Problem in ein effektiv zweidimensionales Problem, das dann von den Badkoordinaten ϕ und v_ϕ abhängt. Die stabile und instabile Mannigfaltigkeit reduzieren sich in diesem Schnitt zu einer eindimensionalen Struktur und die NHIM ist ein Punkt in der Ebene. Damit lassen sich die Strukturen einfach numerisch mithilfe der Lagrange- und Zeitdeskriptoren, die in Kapitel 2.2.4 eingeführt wurden, ermitteln. Abbildung 2.5b zeigt den Wert des Zeitdeskriptors im nicht getriebenen Fall $H_a = 0$ für verschiedene Startpositionen in der θ - v_θ -Ebene. Die stabile und instabile Mannigfaltigkeiten sind als Maximum des Zeitdeskriptors erkennbar, und zeigen die erwartete Kreuzstruktur. Die Position und im geringeren Maße auch die Form ist dabei abhängig von den Badkoordinaten. In der Sattelpunktregion ist die NHIM in guter Näherung eine Ebene, sodass die Position der NHIM in der Schnittebene näherungsweise linear von den Badkoordinaten abhängt. Die Einteilung in die vier Phasenraumgebiete in Abbildung 2.5c ist für alle Startpositionen möglich, sodass die NHIM mit der BCM-Methode aus Kapitel 2.2.5 effizient numerisch bestimmt werden kann.

Ein äußeres periodisch treibendes Feld $H_a > 0$ bewirkt, dass die Phasenraumstrukturen eine mit dem externen Treiben periodische Bewegung ausführt. Die NHIM verbleibt dabei nicht auf an der zeitabhängigen Sattelposition, sondern bewegt sich periodisch zwischen der maximalen Auslenkung der Sattelpunktposition. Dies ist in Abbildung 3.5 dargestellt,

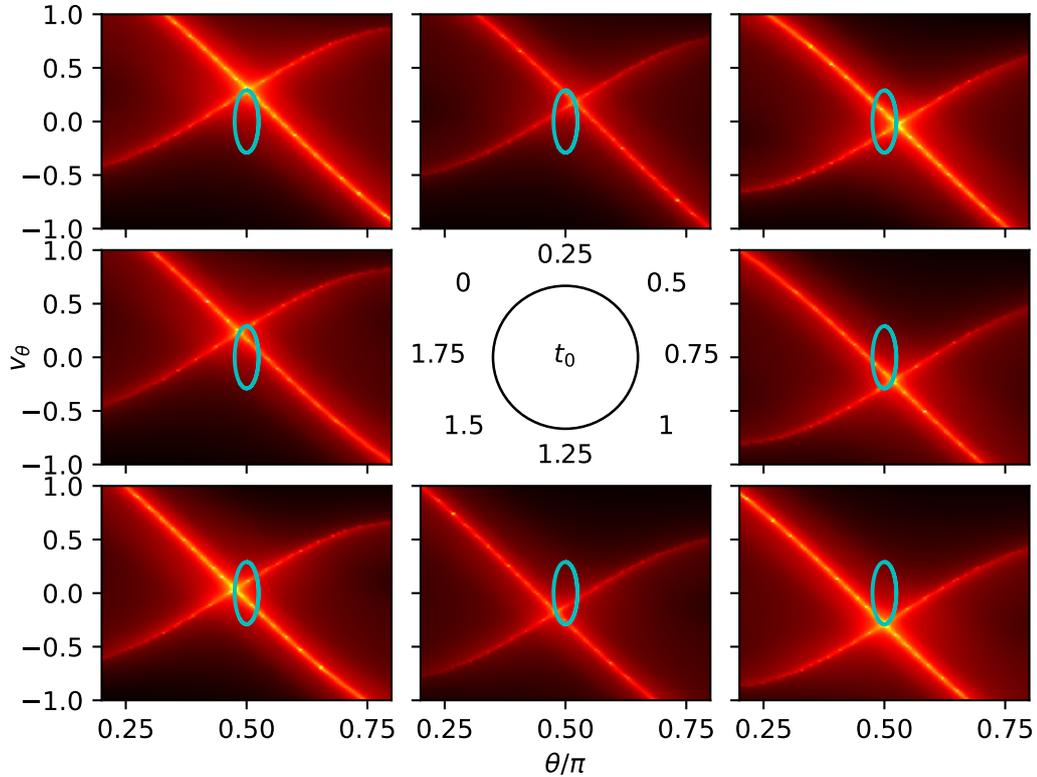


Abbildung 3.5: Zeitdeskriptor in der $\theta - v_\theta$ -Ebene bei $\phi = \pi/2, v_\phi = 0$ zu verschiedenen Anfangszeiten t_0 . In türkis ist die Bahn des Schnittpunkts eingezeichnet. Hier ist die Relaxationszeit $\tau = 2$ gewählt, und das äußere treibende Feld hat die Amplitude $H_a = 1$ und die Frequenz $\omega = 2$.

der den Zeitdeskriptor in der $\theta - v_\theta$ -Schnittebene für verschiedene Zeiten t_0 zeigt. Die Phasenraumstrukturen (hell) bewegen sich hier periodisch und die NHIM bewegt sich auf einer ellipsenförmigen Kurve. Diese Kurve stellt hier nur den zeitabhängigen Schnitt der zweidimensionalen NHIM mit der $\theta - v_\theta$ -Ebene dar. Im Gegensatz dazu ist die periodische TS-Trajektorie, die im nächsten Unterkapitel 3.2 definiert und diskutiert wird, eine periodische Trajektorie auf der zeitabhängigen NHIM, die im Allgemeinen nicht in der $\theta - v_\theta$ -Ebene liegt.

Für die Gilbertgleichung ohne Relaxation ist der Phasenraum zweidimensional. Auch hier können die stabile und instabile Mannigfaltigkeit gefunden werden. Im zeitunabhängigen Fall ist die NHIM nur ein Punkt, während die NHIM im periodisch getriebenen Fall aus einer einzelnen ellipsenförmigen Bahn besteht.

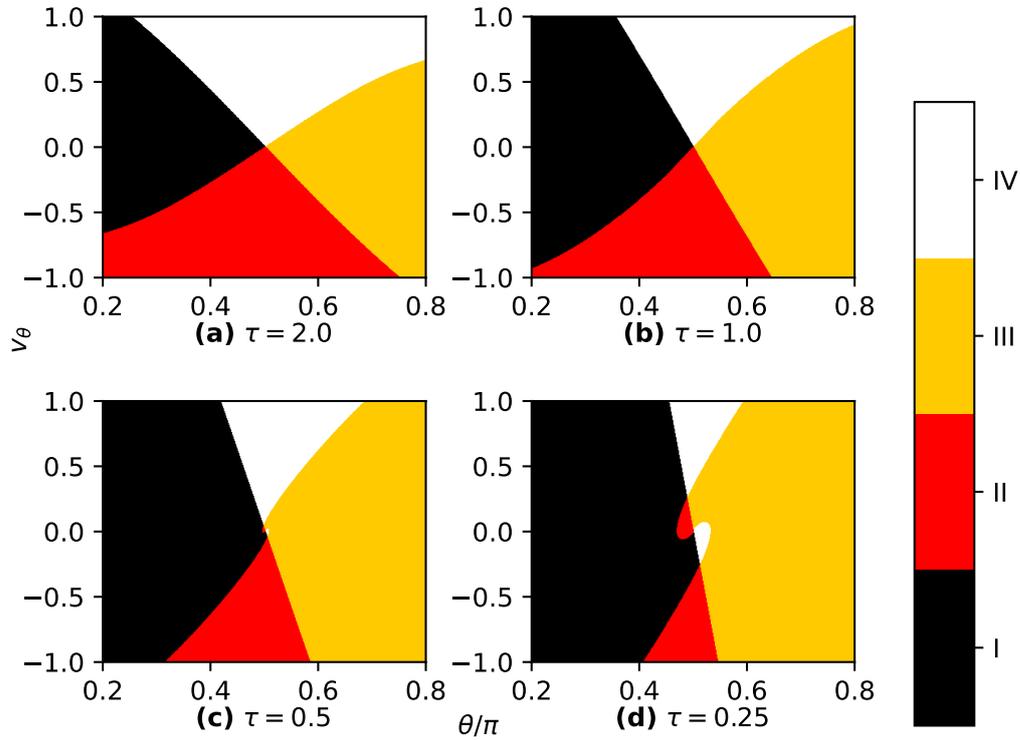


Abbildung 3.6: Zustandseinteilung für verschiedene Werte von τ in der θ - v_θ -Ebene bei $\phi = \pi/2, v_\phi = 0$ ohne äußeres Treiben, $H_a = 0$.

3.1.4 Phasenraumstruktur bei kleinen Relaxationszeiten

Im letzten Abschnitt konnten die stabile und instabile Mannigfaltigkeit für die LLG-Gleichung mit Relaxation gefunden werden, welche ein Kreuz bilden und damit die in der TST erwartete Phasenraumstruktur besitzen. Das ist allerdings nicht für alle Werte der Relaxationszeit τ möglich. In Abbildung 3.6 sind die Phasenraumgebiete für verschiedene Werte der Relaxationszeit dargestellt. Während für $\tau \gtrsim 1$ die gesuchte Kreuzstruktur der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeit gegeben ist, geht dies für kleine $\tau \lesssim 0.5$ verloren. Dabei ist die stabile Mannigfaltigkeit (Grenze weiß-rot und gelb-schwarz), korrespondierend zu den Trajektorien, die in positiver Zeitrichtung immer im Reaktionsgebiet verbleiben, auch für kleine τ in der Nähe der NHIM eine Gerade. Die instabile Mannigfaltigkeit, die in negativer Zeitrichtung für immer im Reaktionsgebiet bleiben, ist für kleine τ nicht mehr annähernd gerade.

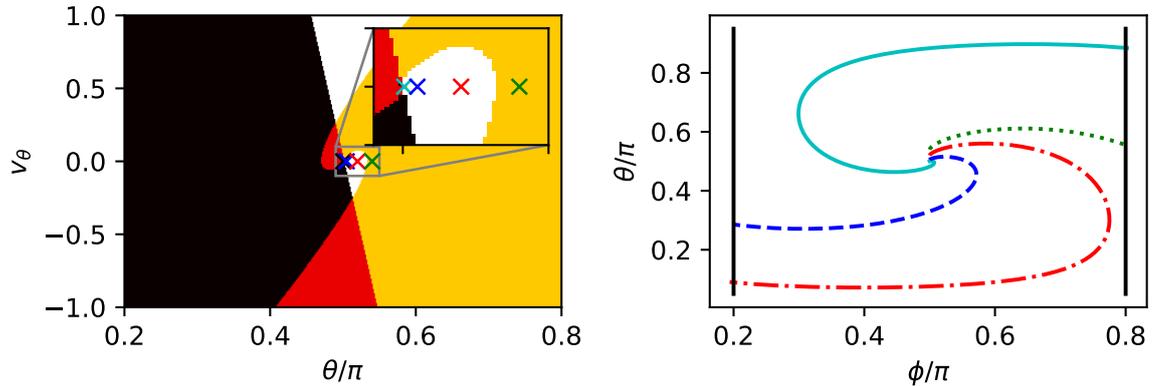


Abbildung 3.7: Trajektorien in der Region der Spirale für das Spinsystem mit Relaxationszeit $\tau = 0.25$. Links die Position der Beispieltrajektorien in der Zustandsabbildung aus Abbildung 3.6 (d). Die Trajektorien rechts sind in Rückwärtsrichtung bis zum Erreichen der Abschneidekriterien bei $\phi = 0.2$ bzw. $\phi = 0.8$ propagiert. Die Trajektorien starten jeweils bei festem $\phi = \pi/2$, $v_\phi = 0$, $v_\theta = 0$ sowie $\theta = 0.5005\pi$ (grün), $\theta = 0.505\pi$ (rot), $\theta = 0.52\pi$ (blau) und $\theta = 0.54\pi$ (türkis).

Im Fall der LLG-Gleichung ohne Relaxation ist die Kreuzstruktur der Mannigfaltigkeiten wieder gegeben. Das ist in Übereinstimmung mit dem Verhalten der Trajektorien für verschwindende Relaxationszeit: In positiver Zeitrichtung streben die Trajektorien gegen diejenige ohne Relaxation und entsprechend ist die stabile Mannigfaltigkeit für kleine τ gerade. In negativer Zeitrichtung gibt es dieses Grenzverhalten jedoch nicht und entsprechend geht die instabile Mannigfaltigkeit nicht in diejenige ohne Relaxation über. Die direkte Konsequenz der verschwindenden Kreuzstruktur ist, dass die Bestimmung der NHIM mit der BCM-Methode aus Abschnitt 2.2.5 nicht mehr möglich ist.

Der Grund dieses Verhaltens wird in Abbildung 3.7 deutlich. Es sind vier Trajektorien in Rückwärtszeitrichtung in der Region um die NHIM dargestellt. Während die grüne Trajektorie das Reaktionsgebiet rechts verlässt und als Edukt klassifiziert wird, ändert die rote Trajektorie kurz vor Erreichen des Abschneidekriteriums die Richtung und verlässt das Reaktionsgebiet schließlich links als Produkt. Je mehr sich die anfängliche θ -Koordinate schließlich $\theta = \pi/2$ nähert, desto stärker ist die Spiralbewegung. Das führt bei der türkisen Trajektorie dazu, dass diese nach rechts startend zweimal die Richtung ändert und wieder als Produkt klassifiziert wird. Die Klassifikation ist damit abhängig von der konkreten Wahl der Abschneidekriterien, das Spiralmuster im Zustandsportrait bleibt dagegen unabhängig von der Wahl der Abschneidekriterien bestehen. Eine alternative, physikalisch sinnvolle Klassifikation dieser Spiralbahnen in Produkte und Edukte konnte in dieser Arbeit nicht gefunden werden.

τ	λ_s	λ_u	λ_1	λ_2
0.25	-0.902	1.144	$-4.121 + 3.747i$	$-4.121 - 3.747i$
0.75	-1.445	0.96	$-1.087 + 1.169i$	$-1.087 - 1.169i$
2.0	-1.143	0.733	$-0.295 + 0.714i$	$-0.295 - 0.714i$

Tabelle 3.1: Tabelle mit Eigenwerten der Jakobimatrix (2.57) am Sattelpunkt bei $\theta = \phi = \pi/2$ für verschiedene Werte der Relaxationszeit τ . Der Eigenwert λ_s gehört zur stabilen Richtung, λ_u zur instabilen Richtung und $\lambda_1 = \bar{\lambda}_2$ zu den beiden Richtungen der NHIM.

Dieses Verhalten kommt insbesondere auch in den Stabilitätseigenschaften am Sattelpunkt zum Ausdruck. Die Eigenwerte der Linearisierung am Sattelpunkt ist für $\tau = 0.25$ in Tabelle 3.1 gegeben. In linearer Näherung sind die Eigenwerte λ_1 und λ_2 für die starke Spiralbewegung in Rückwärtszeitrichtung in Abbildung 3.7 verantwortlich. Da die Realteile der Eigenwerte λ_1 und λ_2 stark negativ sind, bilden die zugehörigen Eigenvektoren zusammen mit der stabilen Richtung lokal die stabile Mannigfaltigkeit. Diese ist wie erwartet dreidimensional und damit in einer Schnittebene, wie beispielsweise in Abbildung 3.7 als Übergang schwarz-weiß bzw. rot-gelb, auch gut zu erkennen. Dagegen ist die instabile Mannigfaltigkeit lokal nur durch den Eigenvektor zum Eigenwert λ_u aufgespannt, und ist deshalb nur noch eindimensional. Der Schnitt mit der stabilen Mannigfaltigkeit ist somit nur noch ein Punkt. Insbesondere bilden die Richtungen zu λ_1 und λ_2 nicht mehr die lokale NHIM, denn die aufgespannte Mannigfaltigkeit ist nicht mehr normal hyperbolisch (vgl. Abschnitt 2.2.2).

Für größer werdende Relaxationszeiten werden die Realteile der Eigenwerte λ_1 und λ_2 (vgl. Tabelle 3.1) immer kleiner. Da die Realteile $\text{Re}(\lambda_1) = \text{Re}(\lambda_2)$ betragsmäßig deutlich kleiner sind als die Eigenwerte λ_s und λ_u wird die Dynamik im Wesentlichen durch den stabilen und den instabilen Eigenwert bestimmt. Das bedeutet, dass die Trajektorien in Rückwärtsrichtung das Reaktionsgebiet verlassen und klassifiziert werden, bevor die Spiralbewegung relevant wird. In diesem Fall erfüllen die Eigenwerte λ_1 und λ_2 und ihre zugehörigen Richtungen die Voraussetzungen für eine NHIM.

Im Bereich um $\tau \approx 0.75$ ist der Realteil betragsmäßig ähnlich groß wie der Eigenwert λ_u , und liegt damit in dem Wertebereich von τ in Abbildung 3.6, in dem die Kreuzstruktur verloren geht.

Das grundsätzliche Problem liegt also darin, dass für kleine Relaxationszeiten die spiralende Dynamik auf der NHIM die für die TST relevante hyperbolische Dynamik in die stabile und instabile Richtung überdeckt.

3.2 Dynamik auf der NHIM

In diesem Abschnitt wollen wir auf die NHIM, und insbesondere auf die Dynamik auf der NHIM eingehen. Die NHIM wird dazu genutzt, die DS zu konstruieren und ist damit für die Ratenberechnung von zentraler Bedeutung. In Fall der Gilbertgleichung mit Relaxation ist die NHIM eine zweidimensionale Mannigfaltigkeit im vierdimensionalen Phasenraum, während für die Gilbertgleichung ohne Relaxation die NHIM nur ein einzelner Punkt ist. Eine zentrale Eigenschaft der NHIM ist die Invarianz unter der Dynamik, d.h. jeder Punkt der NHIM bleibt für immer auf der NHIM.

Für numerische Untersuchungen ergibt sich die Schwierigkeit, dass die Trajektorien der NHIM numerisch nicht stabil sind. Daher verstärken sich numerische Ungenauigkeiten exponentiell und die numerisch berechnete Trajektorie entfernt sich mit der Zeit von der NHIM. Um diesem entgegenzuwirken werden die Trajektorien für kurze Zeiten berechnet und dann mit einer Anwendung der BCM-Methode wieder auf die NHIM zurückprojiziert.

3.2.1 Statischer Fall

Eine exemplarische Trajektorie auf der NHIM für den einfachen Fall ohne externes Feld ist in Abbildung 3.8 dargestellt. Auf der linken Seite ist die Bahn in der θ - ϕ -Ebene dargestellt. Die bei $\theta = 0.50072\pi$, $\phi = 0.45\pi$ startende Trajektorie läuft spiralförmig gegen den Fixpunkt bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = \pi/2$. Auf der rechten Seite sind die Koordinaten über der Zeit aufgetragen. Diese zeigen einen Verlauf beider Koordinaten analog zu einer gedämpften harmonischen Schwingung, die näherungsweise exponentiell abklingen. Diese Bahn steht stellvertretend für alle Trajektorien auf der NHIM, da nach genügend langer Zeit jeder Punkt der NHIM aufgrund der Dämpfung auf den Fixpunkt läuft.

Die NHIM der LLG-Gleichung ohne Relaxation ist im statischen Fall ein einziger Punkt mit Koordinaten $\theta = \phi = \pi/2$. Da für $t \rightarrow \infty$ jeder Punkt der zweidimensionalen NHIM mit Relaxation gegen diesen Punkt strebt, sieht die NHIM mit Relaxation nach genügend langer Betrachtungszeit wie die NHIM ohne Relaxation aus. Im Übergang $\tau \rightarrow 0$ reduziert sich die notwendige Betrachtungszeit, denn die Abklingzeit der Schwingung nimmt mit kleinerer Relaxationszeit τ ab. Das ist insbesondere in linearer Näherung zu sehen. Der Realteil des Eigenwerts λ_1 (vgl. Tabelle 3.1) ist umgekehrt proportional zur Abklingzeit und steigt mit abnehmender Relaxationszeit.

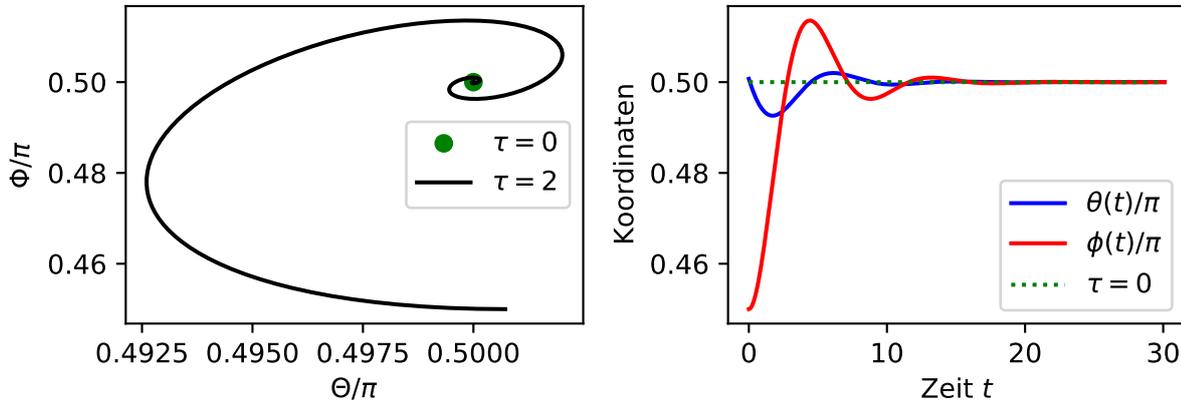


Abbildung 3.8: Verlauf der NHIM-Trajektorie mit Relaxation initialisiert bei $\theta = 0.50072\pi$, $\phi = 0.45\pi$, $v_\theta = -0.03081$, $v_\phi = 0$ im Fall ohne externes Treiben $\mathbf{H}_a = 0$. Links ist die Projektion der Bahn in der $\theta - \phi$ -Ebene dargestellt, rechts der Verlauf der Koordinaten mit der Zeit.

3.2.2 Getriebener Fall

Im Falle eines äußeren Treibens wird die NHIM und damit die Dynamik auf der NHIM zeitabhängig. Für ein periodisches äußeres Treiben kann die Methode der Poincaréschnitte angewandt werden, um die Dynamik um die zusätzliche Zeitdimension zu reduzieren. Für diese sogenannte stroboskopische Abbildung werden die Phasenraumpositionen \mathbf{x}_n^i eines Ensembles aus i Startpunkten nach n Perioden des externen Treibens aufgezeichnet. Für eine periodische Trajektorie ist die Phasenraumposition nach einem Vielfachen m einer Periode wieder dieselbe, d.h. $\mathbf{x}_{n+m}^i = \mathbf{x}_n^i$. Eine periodische Trajektorie mit Periode 1 äußert sich demnach als Fixpunkt der stroboskopischen Abbildung.

Für die Gilbertgleichung mit Relaxation ist eine solche stroboskopische Abbildung in Abbildung 3.9a dargestellt. Es zeigt den Verlauf der Werte der Badkoordinaten nach einer Periode für jeden Startpunkt bei $\phi = 0.5\pi$ und $v_\phi \in \{0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8\}$. Analog zum zeitunabhängigen Fall tritt eine Spiralbewegung gegen einen einzigen Fixpunkt auf. Die Position des Fixpunkts hängt jedoch von der Amplitude und der Frequenz des äußeren Treibens ab. Die Spiralbewegung ist analog zum Einschwingvorgang im statischen Fall (siehe Abbildung 3.8), außer dass die Spiralbewegung nicht auf einen Punkt, sondern auf eine Trajektorie zuläuft. Wie auch im statischen Fall klingt diese Spiralbewegung mit abnehmender Relaxationszeit τ immer schneller ab.

Obwohl die Gilbertgleichung sowohl mit als auch ohne Relaxation stark nichtlinear sind, konnten keine besonderen nichtlineare Effekte gefunden werden. Insbesondere sind keine

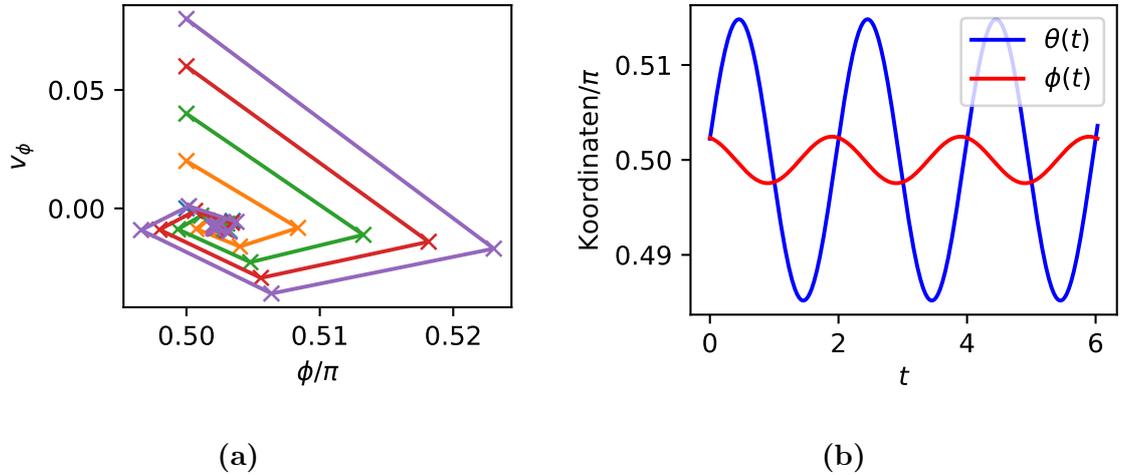


Abbildung 3.9: (a) Stroboskopische Abbildung für das getriebene Spinsystem mit Relaxationszeit $\tau = 2$. Die Amplitude des äußeren Felds beträgt $H_a = 1$ und die Frequenz $\omega = 2\pi$. (b) Die zum Fixpunkt der stroboskopischen Abbildung korrespondierende TS-Trajektorie.

periodische Trajektorien mit Periode größer eins, quasiperiodische Trajektorien oder zusätzliche Fixpunkte der stroboskopischen Abbildung vorgekommen, wie sie bereits in anderen nichtlinearen Systemen [22] gefunden wurden.

Abbildung 3.9b zeigt die Trajektorie korrespondierend zum Fixpunkt des stroboskopischen Abbildung in Abbildung 3.9a. Sie ist für gegebene Frequenzen und Amplituden des äußeren Felds die einzige periodische Trajektorie und wird im Folgenden Transition-State Trajektorie (TS-Trajektorie) genannt. Diese beschreibt eine ellipsenförmige Bahn, deren Größe und Lage jedoch von den Parametern des externen Treibens abhängt. Abbildung 3.10 zeigt mehrere solcher TS-Trajektorien für verschiedene Anregungen. Wie Abbildung 3.10a zeigt, wird die θ -Amplitude größer, je höher die Amplitude des externen Felds wird. Gleichzeitig wird, wie in Abbildung 3.10b dargestellt, die Amplitude der θ -Koordinate mit steigender Frequenz kleiner.

Die Abhängigkeit der Amplitude in θ - und ϕ -Richtung von Amplitude und Frequenz ist detaillierter in Abbildung 3.11 dargestellt. Die Amplitude steigt sowohl in θ als auch in ϕ -Richtung linear mit der Anregungsamplitude (rechte Abbildung) an. Die Abhängigkeit von der Frequenz (linke Abbildung) ist dagegen komplizierter, in θ Richtung entspricht sie in guter Näherung der Resonanzkurve eines getriebenen invertierten harmonischen Oszillators (blau gestrichelt) unter dem Einfluss des externen Treibens. Für die linearisierte Bewegungsgleichung des Spinsystems mit Relaxation (3.4) kann näherungsweise die Form der TS-Trajektorie analytisch berechnet werden, die im Anhang A hergeleitet wird. Die

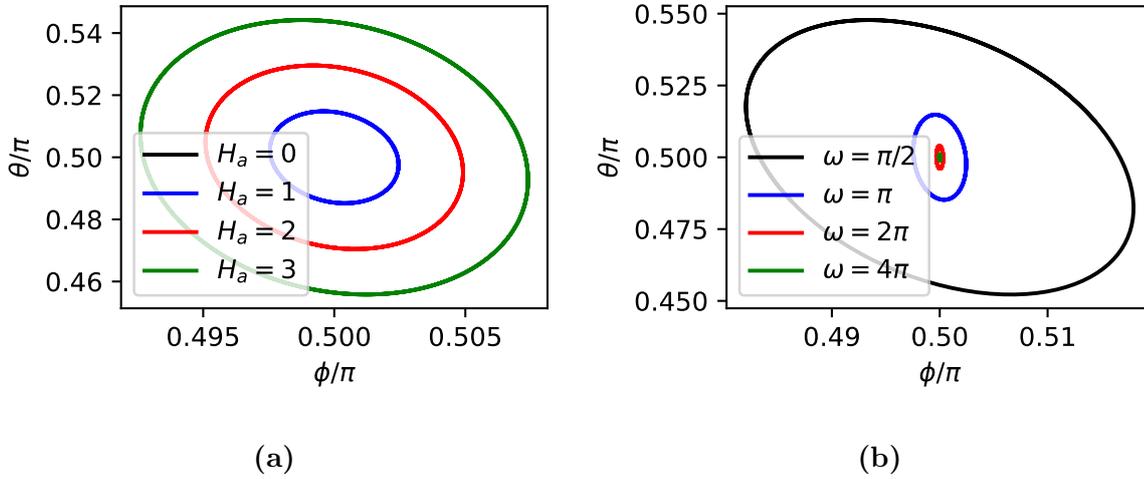


Abbildung 3.10: Abhängigkeit der TS-Trajektorien mit Relaxationszeit $\tau = 2$ vom externen Magnetfeld. TS-Trajektorie (a) bei konstanter Frequenz $\omega = 2\pi$ und variierenden Amplituden H_a und (b) bei konstanter Amplitude $H_a = 1$ und variierenden Frequenzen ω .

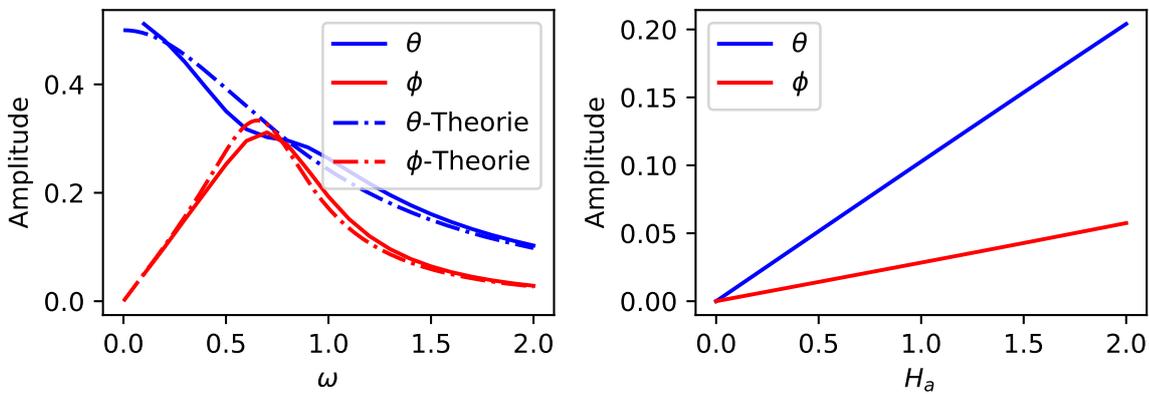


Abbildung 3.11: Amplitudenverlauf der Schwingung in θ und ϕ -Richtung für das Spinsystem mit Relaxationszeit $\tau = 2$ in Abhängigkeit der Frequenz ω bei konstanter Anregungsamplitude $H_a = 1$ (links) und in Abhängigkeit der Amplitude H_a bei konstanter Frequenz $\omega = 2$. Die durchgezogene Linie zeigt den tatsächlichen Verlauf und die gestrichelte Linie die Fitkurven aus Gleichungen (3.8) und (3.9).

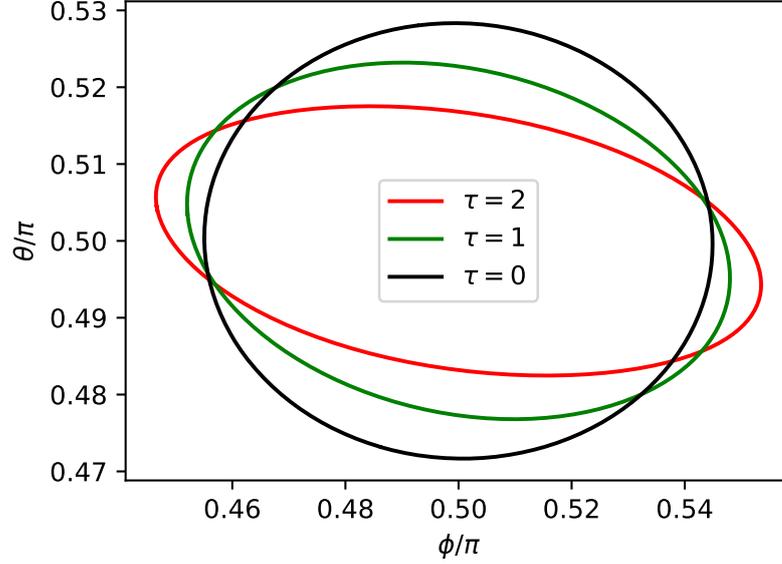


Abbildung 3.12: Trajektorien der NHIM über eine Periode des äußeren Feldes bei verschiedenen Relaxationszeiten τ . Das äußere zeitabhängige Feld hat die Amplitude $H = 0.4$ und Frequenz $\omega = \pi/2$.

Lösung ist eine sinusförmige Schwingung mit der Frequenz des äußeren Treibens und der frequenzabhängigen Amplitude

$$A_\theta(\omega) = \frac{H_a}{\sqrt{(\tau\omega^2 + \frac{\gamma M_s H_k}{\alpha})^2 + \omega^2}} \quad (3.8)$$

in θ -Richtung. Da die äußere Anregung nur in θ -Richtung wirkt, ist in ϕ -Richtung nur eine Resonanz durch die Kopplung mit der θ -Richtung gegeben. Diese zeigt näherungsweise die Resonanzkurve eines getriebenen harmonischen Oszillators, dessen frequenzabhängige Amplitude

$$A_\phi(\omega) = \omega A_\theta(\omega) \frac{1}{\alpha} \frac{1}{\sqrt{(\tau\omega^2 - \frac{\gamma M_s^2}{\alpha})^2 + \omega^2}} \quad (3.9)$$

ist.

Im getriebenen Fall ist die NHIM der LLG-Gleichung ohne Relaxation eine einzelne TS-Trajektorie. Wie auch im statischen Fall zieht sich die NHIM im Übergang $\tau \rightarrow 0$ mit verschwindender Relaxationszeit τ immer schneller auf die TS-Trajektorie zusammen. Für $\tau > 0$ ist die TS-Trajektorie zwar nicht gleich der TS-Trajektorie ohne Relaxation. Allerdings strebt die TS-Trajektorie gegen die TS-Trajektorie ohne Relaxation. Abbildung 3.12 zeigt die TS-Trajektorie bei verschiedenen Werten für τ . Es ist eine klare Tendenz

zu erkennen, dass sich die TS-Trajektorien von $\tau = 2$ (rot) über $\tau = 1$ (grün) der TS-Trajektorie ohne Relaxation (schwarz) nähern. TS-Trajektorien für $\tau \lesssim 0.8$ konnten aufgrund des Versagens der BCM-Methode bei kleinen τ (vgl. Abschnitt 3.1.4) nicht ermittelt werden. Trotzdem ist es plausibel, dass die TS-Trajektorie, wie alle anderen Trajektorien in Vorwärtszeitrichtung in Abschnitt 3.1.1, in diejenige der LLG-Gleichung ohne Relaxation übergeht.

3.3 Raten

In diesem Abschnitt widmen wir uns der Übergangsrate für einen Spinflip. Zunächst wird die numerische Berechnung der Rate dargestellt. Im Anschluss wird der Einfluss eines äußeren Treibens auf die Rate untersucht. Schließlich wird der Ratenverlauf im Grenzfall verschwindender Relaxation untersucht.

3.3.1 Ratenberechnung

Instantane Raten

Die instantanen Raten werden mit der in Abschnitt 2.2.3 hergeleiteten LMA Methode berechnet. Die Formel für die Rate ist

$$k(\phi, v_\phi, t) = J_{\theta v_\theta} \left(\frac{\theta^s}{v_\theta^s} - \frac{\theta^u}{v_\theta^u} \right) - \frac{\theta^{\text{DS}}(t + \delta t) - \theta^{\text{DS}}(t)}{v_\theta^u \delta t}, \quad (3.10)$$

wobei hier die Benennung der Koordinaten für die LLG-Gleichung mit Relaxation angepasst wurde. Zur numerischen Berechnung werden für gegebene Badkoordinaten (ϕ, v_ϕ) die Koordinaten der NHIM $(\theta^{\text{DS}}, v_\theta^{\text{DS}})(t)$ in der entsprechenden θ - v_θ -Schnittebene ermittelt. In dieser Schnittebene sind die stabile und instabile Mannigfaltigkeit jeweils eine Gerade, deren Steigungen $\frac{\theta^s}{v_\theta^s}$ sowie $\frac{\theta^u}{v_\theta^u}$ numerisch ermittelt werden können. Im letzten Schritt wird eine Trajektorie, die in der Schnittebene auf einer der Mannigfaltigkeiten startet, für kurze Zeit δt propagiert. Diese besitzt danach im Allgemeinen andere Werte der Badkoordinaten. Damit hat die NHIM in der neuen Schnittebene eine neue Position $(\theta^{\text{DS}}, v_\theta^{\text{DS}})(t + \delta t)$. Schließlich ist $J_{\theta v_\theta} = 1$ für die LLG-Gleichung mit Relaxation, wie Gleichung (2.57) zu entnehmen ist.

Die so berechneten instantanen Raten in einem Gebiet um den Sattelpunkt im statischen Fall $\mathbf{H}_a = 0$ ist in Abbildung 3.13 für die Relaxationszeit $\tau = 2$ dargestellt. Zunächst fällt auf, dass die Raten sich in einem sehr engen Wertebereich bewegen und diese deshalb nur geringfügig davon abhängen, an welcher Stelle eine reagierende Trajektorie die DS überquert. Ferner ist eine gewisse spiralenförmige Struktur sowie vergleichsweise niedrige Raten bei $\phi = 0.55$ und $v_\phi = 0.1$ zu erkennen. Der Grund für diese spezielle Struktur konnte nicht gefunden werden, möglicherweise ist dies ein numerisches Artefakt. Bei einem äußeren Treiben werden auch die instantanen Raten zeitabhängig.

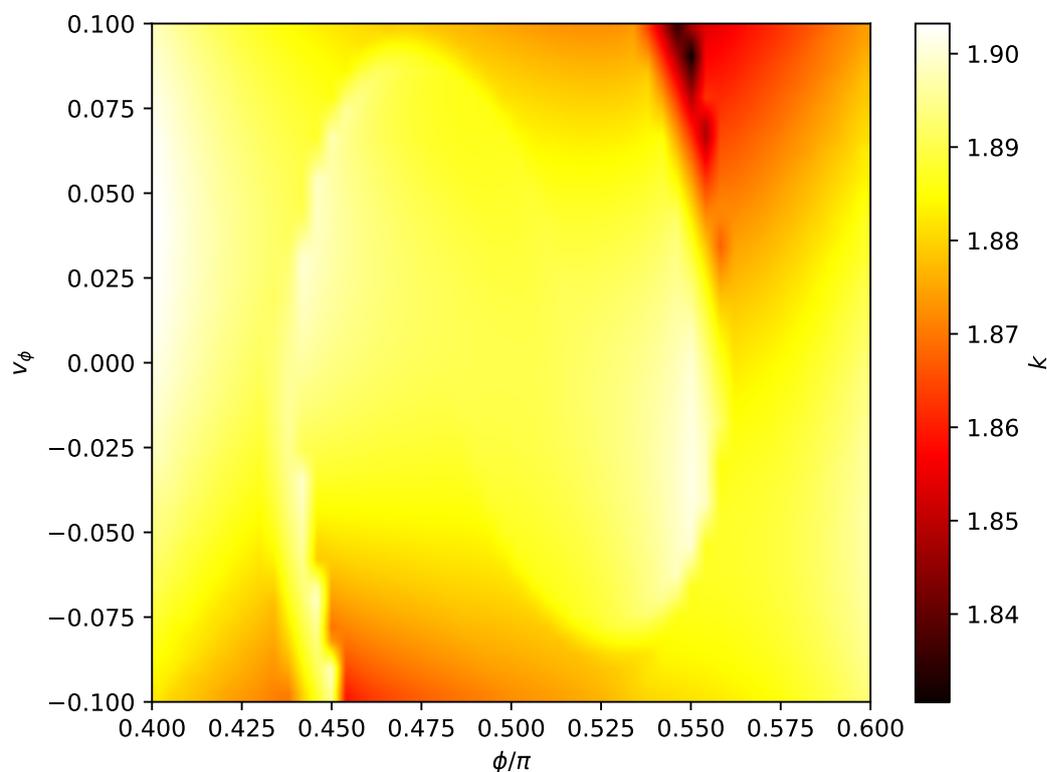


Abbildung 3.13: Abhängigkeit der instantenen Rate $k(\phi, v_\phi)$ für das Spinsystem mit Relaxation $\tau = 2$ ohne äußeres Treiben von den Badkoordinaten ϕ und v_ϕ .

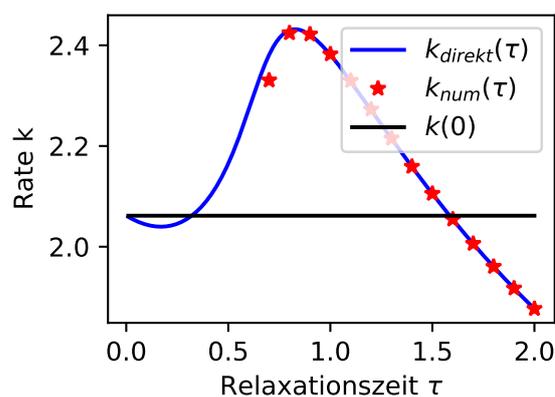


Abbildung 3.14: Ratenkonstanten k am Ort der NHIM bei $\theta = \pi/2$ und $\phi = \pi/2$ in Abhängigkeit von der Relaxationszeit τ im zeitunabhängigen Fall $H_a = 0$. Die direkt über Diagonalisierung der Jakobimatrix berechnete Rate ist blau, die numerisch über Gleichung (3.10) bestimmte Rate rot und die Rate bei $\tau = 0$ schwarz dargestellt.

Direkte Berechnung der Rate am Sattelpunkt

Im statischen Fall kann die Rate auch direkt über die Eigenvektoren der linearisierten Gleichung (3.4) berechnet werden. Damit kann die Richtigkeit des numerischen Verfahrens geprüft werden. Die Jakobi-Matrix (2.57) mit den gewählten Werten (3.3) bei $\tau = 2$ hat den Eigenvektor

$$\mathbf{v}^u = \begin{pmatrix} -2.471 \\ -1.1433 \\ 2.1613 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

mit dem Eigenwert $\lambda_u = -1.14331$ und den Eigenvektor

$$\mathbf{v}^s = \begin{pmatrix} -2.8086 \\ 0.7333 \\ -3.8303 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

mit dem Eigenwert $\lambda_s = 0.733251$. Daraus kann die instantane Rate

$$k_{\text{direkt}} = \frac{v_1^s}{v_3^s} - \frac{v_1^u}{v_3^u} = 0.7333 + 1.1433 = 1.8766 \quad (3.13)$$

direkt berechnet werden. Die numerisch für $\tau = 2$ bestimmte Rate

$$k_{\text{num}} = 1.8767. \quad (3.14)$$

liegt damit sehr genau an der direkt berechneten Rate.

Für die Gilbertgleichung ohne Relaxation lässt sich die Jakobimatrix sogar einfach analytisch diagonalisieren, sodass die Rate

$$k_1 = \sqrt{\gamma_0^2(1 + H_k)^2 + 4\lambda_0^2 H_k} \quad (3.15)$$

ist und $\gamma_0 = \frac{\gamma}{1+\alpha^2}$ und $\lambda_0 = \frac{\gamma\alpha}{1+\alpha^2}$. Für die hier gewählten Parameter bedeutet dies eine Rate von

$$k_1 = \sqrt{4.25} \approx 2.0615. \quad (3.16)$$

Abbildung 3.14 zeigt die direkt berechnete Rate sowie die numerisch berechnete Rate für verschiedene Relaxationszeiten. Die direkt berechnete Rate (blau) geht im Falle sehr kleiner Relaxationszeit in die Rate der Gilbertgleichung ohne Relaxation (schwarz) über. Die numerisch berechnete Rate (rot) stimmt dabei mit den direkt berechneten Raten im Bereich $\tau \gtrsim 0.9$ überein, wird aber für geringere Relaxationszeiten $0.7 \lesssim \tau \lesssim 0.9$ ungenau. Für noch kleinere Relaxationszeiten $\tau \lesssim 0.7$ kann diese nicht mehr bestimmt werden, da, wie in Abschnitt 3.1.4 beschrieben, die Bestimmung der NHIM mit der BCM-Methode nicht mehr möglich ist.

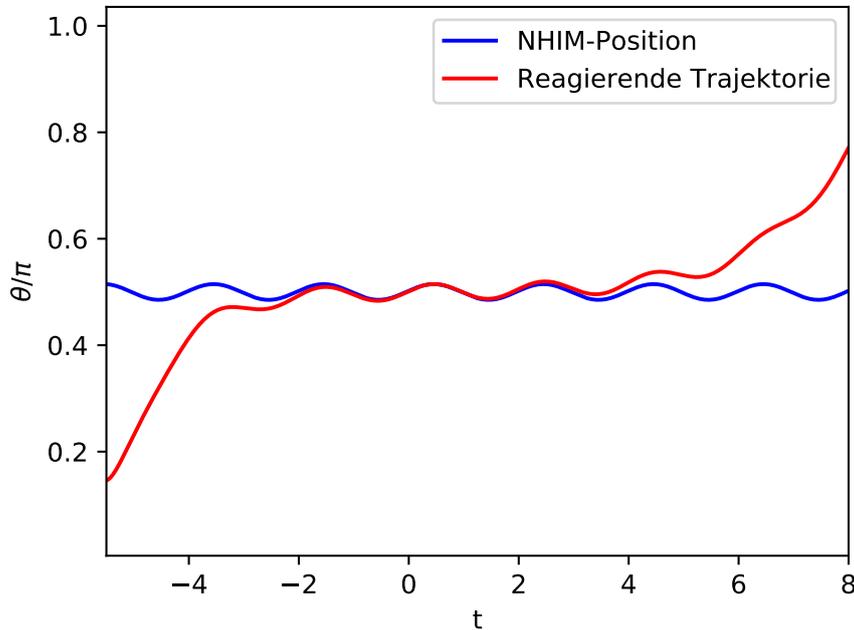


Abbildung 3.15: Reagierende Trajektorie (rot) überquert die zeitabhängige NHIM-Position (blau) für $H_a = 1$ und $\omega = \pi$.

Rate an der TS-Trajektorie

Zur Bestimmung der Rate muss die Dynamik der NHIM berücksichtigt werden. Eine zeitabhängige Rate ist nur entlang Trajektorien der NHIM sinnvoll. Der Grund dafür wird in [Abbildung 3.15](#) ersichtlich. Es zeigt die θ -Komponente der TS-Trajektorie (blau) und einer reagierenden Trajektorie (rot). Die reagierende Trajektorie nähert sich der zeitabhängigen TS-Trajektorie immer weiter an, bis sie diese überquert und sich wieder davon entfernt. Die DS, die die Trennfläche zwischen Produkt- und Eduktzustand darstellt, muss sich daher mit den Trajektorien der NHIM mitbewegen, um rückläuferfrei zu sein. Wäre die DS statisch an einem Punkt angeheftet, würden reagierende Trajektorien die DS mehrmals überqueren, was zur Überschätzung der Rate führen würde.

In [Abschnitt 3.2](#) haben wir gesehen, dass jeder Punkt der NHIM mit der Zeit gegen eine einzige TS-Trajektorie strebt. Die Rate entlang der TS-Trajektorie ist damit ausgezeichnet, da der Ratenverlauf nach einigen Perioden des äußeren Treibens auf genau diese strebt. Wir beschränken uns daher auf die Rate entlang der TS-Trajektorie. Dazu werden die instantanen Raten $k(\phi, v_\phi, t)$ entlang der im vorigen Abschnitt diskutierten TS-Trajektorien $(\phi_{\text{TS}}(t), \theta_{\text{TS}}(t))$ berechnet.

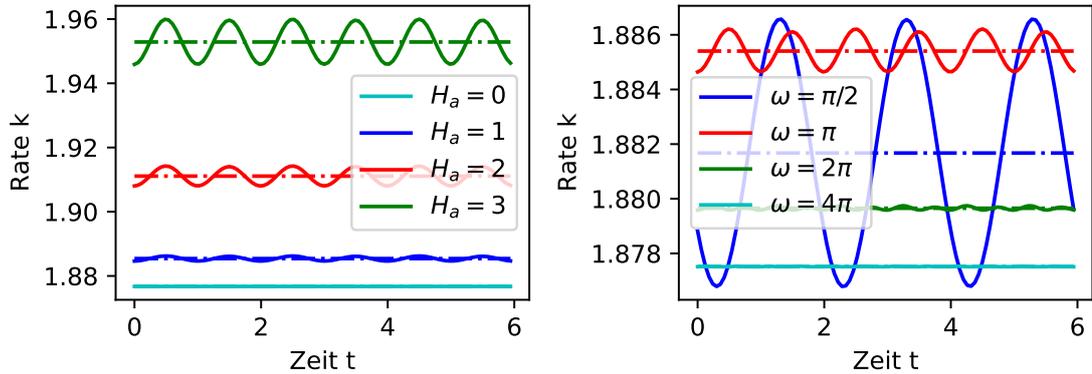
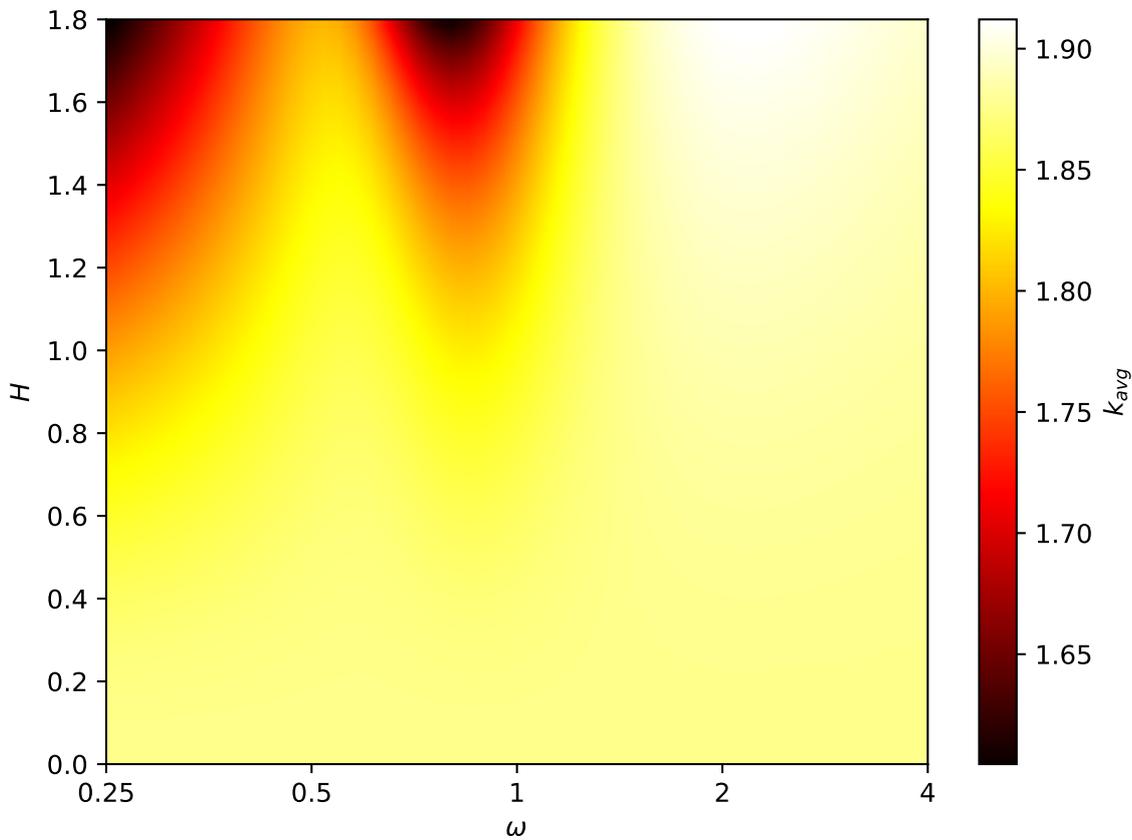


Abbildung 3.16: Raten k über mehrere Perioden der äußeren Anregung sowie gemittelte Rate k_{avg} bei konstanter Frequenz $\omega = 2\pi$ und verschiedenen Amplituden H_a (links) sowie bei konstanter Amplitude $H_a = 1$ und verschiedenen Frequenzen ω (rechts).

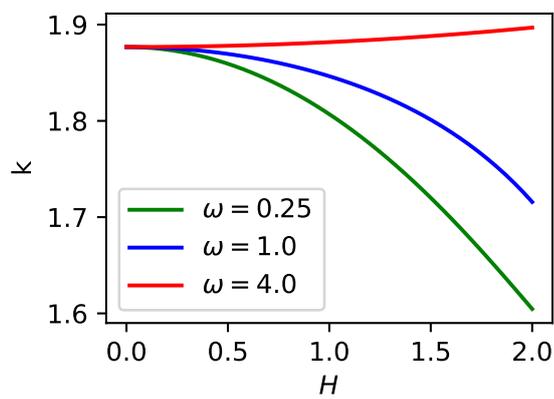
3.3.2 Einfluss eines zeitabhängigen Treibens

Mit einem äußeren treibenden Feld werden sowohl die instantanen Raten, als auch die TS-Trajektorie zeitabhängig. Abbildung 3.16 zeigt den Verlauf der Rate an der TS-Trajektorie über der Zeit für verschiedene Anregungsfrequenzen und -amplituden. Die Rate ist in allen Fällen periodisch mit der Anregung und in guter Näherung sinusförmig. Auffällig ist, dass die Frequenz der Rate gegenüber der Frequenz der TS-Trajektorie und der äußeren Anregung verdoppelt ist. Diese Frequenzverdopplung konnte bereits in anderen Systemen beobachtet werden [17].

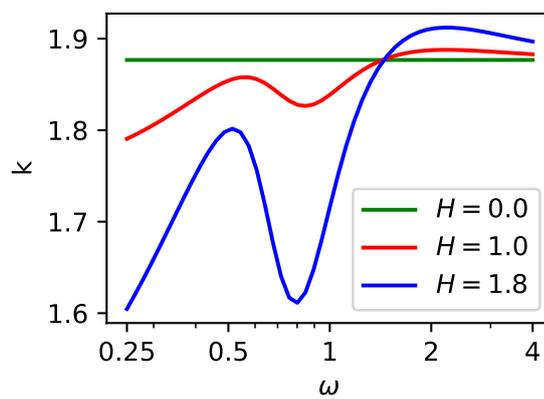
Bei konstanter Frequenz (links) nimmt die mittlere Rate mit der Amplitude des äußeren Treibens zu. Bei konstanter Anregungsamplitude (rechts) steigt die mittlere Rate zunächst mit der Frequenz, sinkt jedoch danach wieder. Eine detailliertere Darstellung der Abhängigkeit der mittleren Rate vom äußeren treibenden Feld ist in Abbildung 3.17a dargestellt. Die über eine Periode des äußeren Treibens gemittelte Rate ist farbkodiert über der Amplitude H und der Frequenz ω der äußeren Felds abgebildet. Die mittlere Rate ist bei gleichzeitig hoher Anregungsamplitude und niedriger Frequenz deutlich gegenüber der statischen Rate abgesenkt, während sie bei gleichzeitig hoher Frequenz und hoher Amplitude gegenüber der statischen Rate erhöht ist. Schnitte bei konstanter Frequenz (Abbildung 3.17b) deuten eine näherungsweise parabelförmige Abhängigkeit der mittleren Rate von der Anregungsamplitude an. Die Schnitte bei konstanter Amplitude (Abbildung 3.17c) zeigen einer bei niedrigen Frequenzen niedrige Rate, die bis $\omega \approx 0.5$ ansteigt, dort ein Maximum besitzt und wieder bis zum Minimum bei $\omega \approx 0.8$ abfällt. Bei weiter steigender Frequenz steigt die mittlere Rate an, bis sie bei $\omega \approx 2$ maximal ist. Für höhere Frequenzen fällt die Rate dann wieder auf die statische Rate ab.



(a)



(b)



(c)

Abbildung 3.17: Abhängigkeit der gemittelten Rate k_{avg} vom äußeren Magnetfeld für das Spinsystem mit Relaxationszeit $\tau = 2$. (a) Gemittelte Rate über Anregungsfrequenz ω und Anregungsamplitude H . (b) Schnitt bei konstanten Anregungsamplituden H und (c) konstanten Anregungsfrequenzen ω . Die ω -Achse ist dabei logarithmisch skaliert.

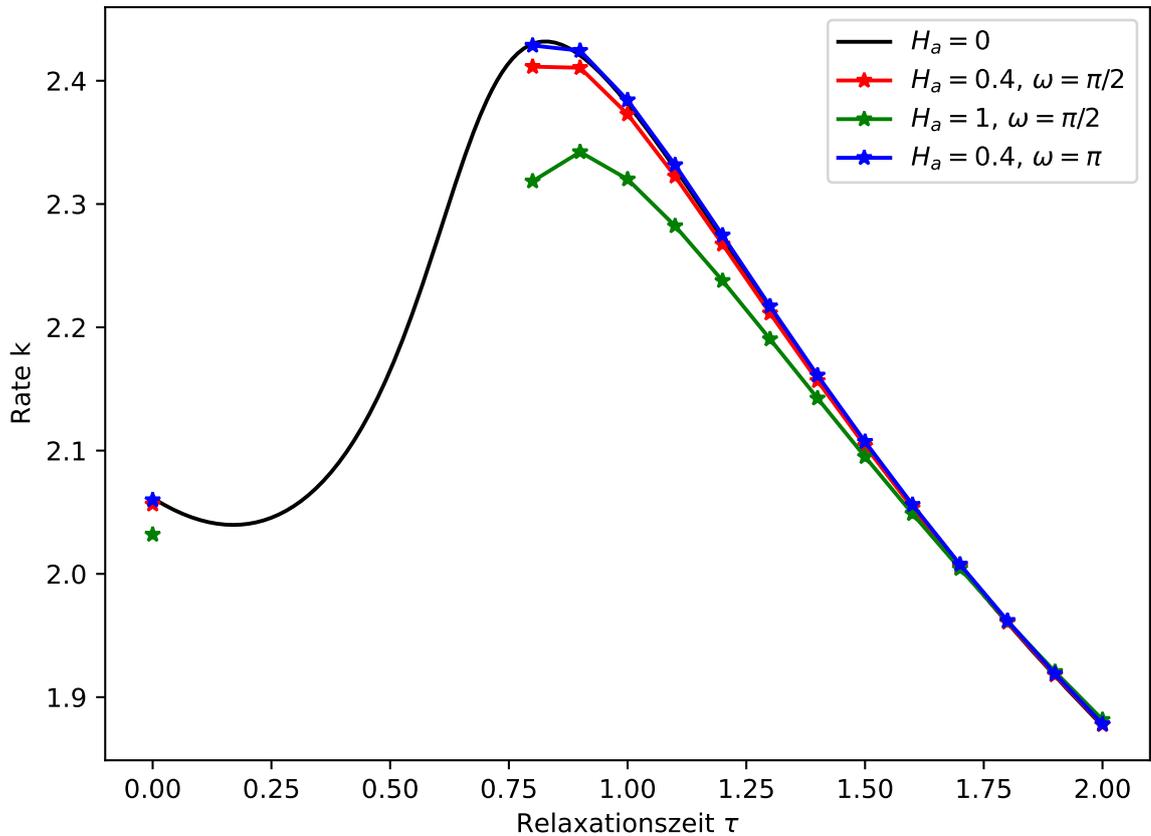


Abbildung 3.18: Die über eine Periode des externen Treibers gemittelte Rate $k(\tau)$ an der TS-Trajektorie über der Relaxationszeit τ für vier ausgewählte Amplituden H_a und Frequenzen ω des äußeren Treibers.

3.3.3 Einfluss der Relaxation

Abbildung 3.18 zeigt die über eine Periode des äußeren Treibers gemittelte Rate im Verlauf über der Relaxationszeit τ . Ohne äußeres Treiben hat die Rate (schwarz) den bereits in Abbildung 3.14 gezeigten Verlauf. Bei den in dieser Arbeit gewählten Parametern steigt die Rate mit zunehmender Relaxationszeit zunächst an, besitzt in bei der Relaxationszeit $\tau \approx 0.8$ ein Maximum und fällt mit zunehmender Relaxationszeit wieder ab. Dabei stimmt die für die LLG-Gleichung ohne Relaxation berechnete Rate mit dem Grenzfall $\tau \rightarrow 0$ überein. Ein qualitativ ähnlicher Verlauf zeigt sich auch für die gemittelte Rate im getriebenen Fall: Die blaue Kurve ist bereits für $\tau = 2$ sehr nahe an der Rate im statischen Fall und bleibt bei kleineren Relaxationszeiten und auch im Grenzfall $\tau = 0$ dicht an der statischen Kurve. Auch die rote und grüne Kurve zeigen einen ähnlichen

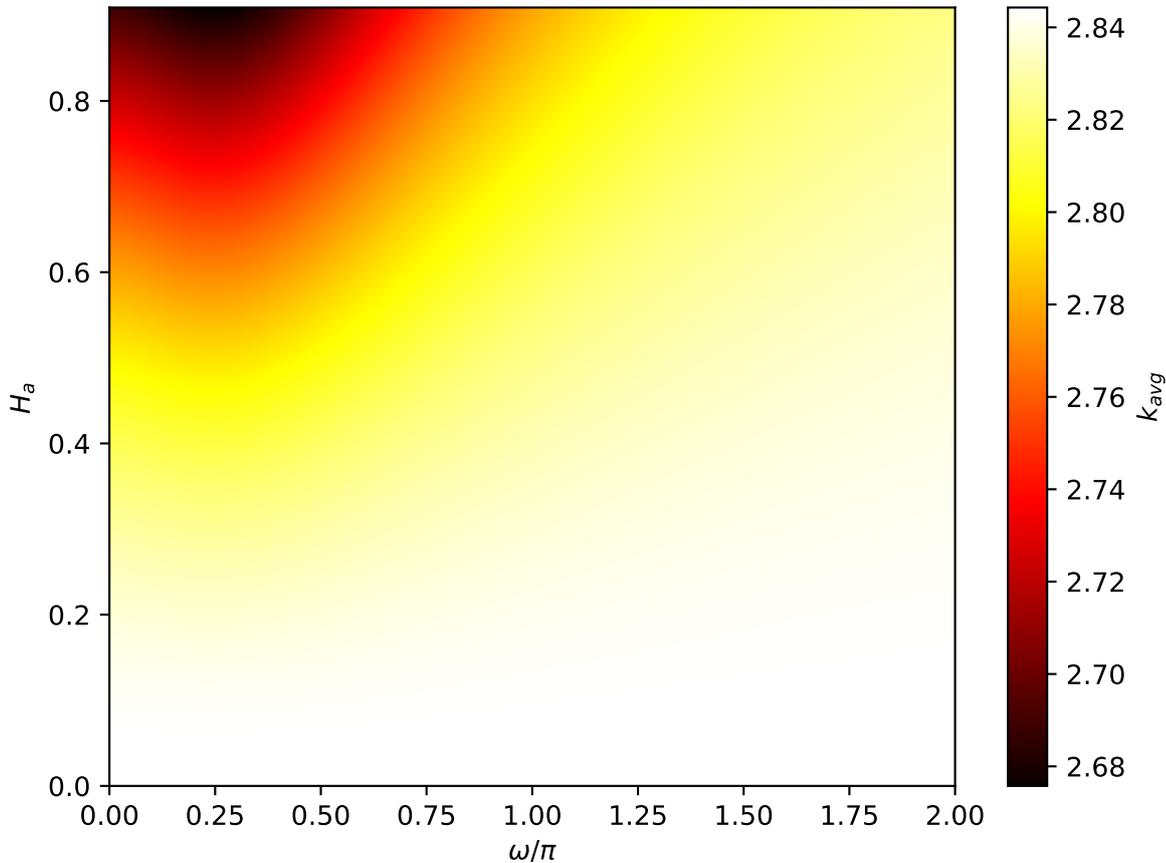


Abbildung 3.19: Abhängigkeit der gemittelten Rate k_{avg} von der Frequenz ω und Amplitude H_a des äußeren Magnetfelds für die LLG-Gleichung ohne Relaxation (hier ist die Dämpfung $\alpha = 0.1$). Abbildung entnommen aus [2].

Verlauf. Wie bereits vorher in Abschnitt 3.3.1 diskutiert wird die numerisch berechnete Rate bei $\tau \lesssim 0.8$ ungenau. Für Amplituden und Frequenzen des äußeren Felds, bei denen die Rate bei $\tau = 2$ stärker von der statischen Rate abweichen (rote und grüne Kurve), wird diese Abweichung mit kleiner werdenden Relaxationszeit immer größer.

Für den Grenzfall verschwindender Relaxation zeigt Abbildung 3.19 die Abhängigkeit der gemittelten Rate von der Amplitude und Frequenz des äußeren Treibens. Obwohl die Abbildung für eine Dämpfung von $\alpha = 0.1$ erstellt wurde, ist die qualitative Abhängigkeit der Rate von Amplitude und Frequenz des äußeren Felds ähnlich zum Fall $\tau = 2$, der in Abbildung 3.17a abgebildet ist. Die gemittelte Rate ist besonders niedrig bei kleinen Frequenzen und großen Amplituden des Treibens, während die gemittelte Rate für kleine Amplituden oder großen Frequenzen nahezu der statischen Rate entspricht.

4 Zusammenfassung und Ausblick

Diese Arbeit beschäftigte sich mit der Bestimmung der Rate, mit der ein Spinflip in einem Zweischichtenmodell in Anwesenheit eines äußeren treibenden Magnetfelds stattfindet. Insbesondere wurden Relaxationseffekte in der Bewegungsgleichung berücksichtigt und die Ergebnisse mit denen ohne Relaxation verglichen.

Zunächst wurde die Dynamik des Spinsystems untersucht. Wir haben festgestellt, dass sich die Magnetisierung mit der Zeit in Richtung der Potentialminima ausrichtet. In Rückwärtszeitrichtung streben die Trajektorien im Fall ohne Relaxation gegen die Potentialmaxima, während mit Relaxation eine immer stärker werdende Drehbewegung stattfindet. Zur Anwendung der Methoden der TST wurde das Reaktionsgebiet definiert und es konnte damit eine Einteilung aller Phasenraumpunkte in eine der vier Phasenraumgebiete erreicht werden. Für große Relaxationszeiten konnte die für die Anwendung der TST nötige Kreuzstruktur der stabilen und instabilen Mannigfaltigkeit gefunden werden. Für kleine Relaxationszeiten geht die Kreuzstruktur jedoch verloren. Das liegt daran, dass die mit kleiner Relaxationszeit stärker werdende Spiralbewegung in Rückwärtszeitrichtung nicht mehr sinnvoll klassifiziert werden konnte.

Im nächsten Schritt wurde die für die Ratenbestimmung zentrale NHIM untersucht. Dabei stellt sich heraus, dass jeder Punkt auf der NHIM mit der Zeit gegen eine einzige TS-Trajektorie strebt. Diese TS-Trajektorie ist im Falle eines äußeren Treibens eine ellipsenförmige Bahn, deren Größe und Lage von der Amplitude und Frequenz der äußeren Anregung abhängt. Die TS-Trajektorie für die LLG-Gleichung mit Relaxation geht mit verschwindender Relaxationszeit in diejenige der LLG-Gleichung ohne Relaxation über.

Mithilfe der LMA-Methode konnten die instantanen Raten entlang der TS-Trajektorien bestimmt werden. Die Raten variieren für eine sinusförmige Anregung sinusförmig, weisen dabei aber die doppelte Frequenz auf. Die Übergangsraten können durch die Frequenz und Amplitude des äußeren Felds beeinflusst werden. Es fällt auf, dass die über eine Periode gemittelte Rate bei hohen Amplituden und geringen Frequenzen besonders niedrig ist. Die für das Spinsystem mit Relaxation ermittelten Raten sind konsistent mit den Raten ohne Relaxation.

Die vorliegende Arbeit ist ein erster Schritt, um die Rate von Spinflips zu untersuchen. Darauf aufbauend können in der Zukunft weiterführende Fragestellungen untersucht werden:

In dieser Arbeit wurde die Frage nach der Temperaturabhängigkeit der Rate ausgeblendet. Diese kann in einer zukünftigen Arbeit direkt durch Hinzufügen einer stochastischen Kraft analog zur Langevingleichung berücksichtigt werden. Außerdem wurde hier nur ein einzelnes Spinsystem betrachtet. Viele interessante Phänomene von ferromagnetischen Materialien, wie z.B. Spinwellen, können jedoch erst durch Ketten oder Gitter von gekoppelten Spins beschrieben werden.

Für technische Anwendungen besonders interessant sind magnetische Konfigurationen mit Spin-transfer-torque. Es kann die Magnetisierungsrichtung einer freien magnetisierten Schicht durch den Fluss von spin-polarisierten Strömen beeinflusst werden. Zur Beschreibung wird ein Term zur LLG-Gleichung hinzugefügt, der die Wechselwirkung der Magnetisierung der freien Schicht mit dem spin-polarisierten Strom angibt. In einer weiterführenden Arbeit kann die Übergangsrate eines solchen Systems betrachtet werden.

Schließlich haben wir uns in dieser Arbeit auf ein sinusförmiges äußeres Treiben senkrecht auf der magnetischen Schicht beschränkt. Das kann in zukünftigen Betrachtungen auf nicht senkrecht stehende Felder sowie auf andere Formen des äußeren Treibens ausgeweitet werden.

A Berechnung der NHIM-Trajektorie in der Linearisierung

In diesem Abschnitt wollen wir die analytischen Ausdrücke in Gleichungen (3.8) und (3.9) für die NHIM-Trajektorie in der linearen Näherung der Bewegungsgleichung am Sattelpunkt herleiten. Die linearisierte Bewegungsgleichung (mit dem Sattelpunkt bei $\theta = \phi = 0$) hat die Form

$$\tau\ddot{\theta} = -\dot{\theta} + \frac{1}{\alpha}\dot{\phi} + \frac{\gamma}{\alpha}M_s H_k \theta + H_a \sin \omega t, \quad (\text{A.1})$$

$$\tau\ddot{\phi} = -\dot{\phi} - \frac{1}{\alpha}\dot{\theta} - \frac{\gamma}{\alpha}M_s^2 \phi. \quad (\text{A.2})$$

Dabei betrachten wir hier den Term $\frac{1}{\alpha}\dot{\phi}$ in Gleichung (A.1) sowie $\frac{1}{\alpha}\dot{\theta}$ in Gleichung (A.2) als Störung. Dann ist in nullter Ordnung eine partikuläre Lösung

$$\theta(t) = \text{Im}\{A_\theta e^{i\omega t}\}. \quad (\text{A.3})$$

Einsetzen in die Gleichung (A.1) ergibt

$$A_\theta = \frac{H_a}{-\tau\omega^2 + i\omega - \frac{\gamma M_s H_k}{\alpha}}, \quad (\text{A.4})$$

sodass die partikuläre Lösung in nullter Ordnung

$$\theta(t) = \frac{H_a}{\sqrt{(\frac{\gamma M_s H_k}{\alpha} + \tau\omega^2)^2 + \omega^2}} \sin \omega t \quad (\text{A.5})$$

ist. Einsetzen von $\theta(t)$ in Gleichung (A.2) ergibt

$$\tau\ddot{\phi} + \dot{\phi} + \frac{\gamma}{\alpha}M_s^2 \phi = -\frac{1}{\alpha}\omega |A_\theta| \sin \omega t. \quad (\text{A.6})$$

Auch hier ist eine partikuläre Lösung

$$\phi(t) = \text{Im}\{A_\phi e^{i\omega t}\}. \quad (\text{A.7})$$

Eingesetzt in Gleichung (A.6) ergibt der Ansatz

$$A_\phi = \frac{|A_\theta|\omega}{\alpha} \frac{1}{-\tau\omega + i\omega + \frac{\gamma M_s^2}{\alpha}}. \quad (\text{A.8})$$

Damit ist in erster Ordnung die Lösung

$$\phi(t) = \frac{|A_\theta|\omega}{\alpha} \frac{1}{\sqrt{(\frac{\gamma M_s^2}{\alpha} - \tau\omega^2)^2 + \omega^2}} \sin \omega t. \quad (\text{A.9})$$

Literatur

- [1] Y. Li, A.-L. Barra, S. Auffret, U. Ebels und W. E. Bailey. „Inertial terms to magnetization dynamics in ferromagnetic thin films“. In: *Physical Review B* 92 (2015), S. 140413. DOI: [10.1103/PhysRevB.92.140413](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.140413).
- [2] Johannes Mögerle. „Ratenkonstanten für den Spinflip in einem getriebenen Zweischichtenmodell“. Bachelorarbeit. DOI: [10.18419/opus-10601](https://doi.org/10.18419/opus-10601).
- [3] Manfred Fähnle und Daniel Steiauf. „Breathing Fermi surface model for noncollinear magnetization: A generalization of the Gilbert equation“. In: *Physical Review B* 73 (2006), S. 184427. DOI: [10.1103/PhysRevB.73.184427](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.73.184427).
- [4] Daniel Steiauf und Manfred Fähnle. „Damping of spin dynamics in nanostructures: An ab initio study“. In: *Physical Review B* 72 (2005), S. 064450. DOI: [10.1103/PhysRevB.72.064450](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.72.064450).
- [5] Manfred Fähnle, Daniel Steiauf und Christian Illg. „Generalized Gilbert equation including inertial damping: Derivation from an extended breathing Fermi surface model“. In: *Physical Review B* 84 (2011), S. 172403. DOI: [10.1103/PhysRevB.84.172403](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.172403).
- [6] Burkard Hillebrands und Kamel Ounadjela. *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I*. Springer, 2002. ISBN: 3-540-41191-7.
- [7] Thomas L. Gilbert. „A Phenomenological Theory of Damping in Ferromagnetic Materials“. In: *IEEE transactions on magnetics* 40.6 (2004), S. 3443–3449.
- [8] M. Bauer, J. Fassbender, B. Hillebrands und R.L. Stamps. „Switching behavior of a Stoner particle beyond the relaxation time limit“. In: *Physical Review B* 61.5 (2000). DOI: [10.1103/10.1103/PhysRevB.61.3410](https://doi.org/10.1103/10.1103/PhysRevB.61.3410).
- [9] Z. Li und S. Zhang. „Magnetization dynamics with a spin-transfer torque“. In: *Physical Review B* 68 (2003), S. 024404. DOI: [10.1103/PhysRevB.68.024404](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.68.024404).
- [10] J.-E. Wegrowe und M.-C. Ciornei. „Magnetization Dynamics, Gyromagnetic Relation, and Inertial Effects“. In: *American Journal of Physics* 80.7 (2012). DOI: [10.1119/1.4709188](https://doi.org/10.1119/1.4709188).
- [11] Toru Kikuchi und Gen Tatara. „Spin dynamics with inertia in metallic ferromagnets“. In: *Physical Review B* 92 (2015), S. 184410. DOI: [10.1103/PhysRevB.92.184410](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.184410).

- [12] Henry Eyring. „The Activated Complex in Chemical Reactions“. In: *Journal of chemical Physics* 3 (1935), S. 107–115. DOI: [10.1063/1.1749604](https://doi.org/10.1063/1.1749604).
- [13] E. Wigner. „The transition state method“. In: *Transaction of the Faraday Society* 34 (1938), S. 29–41. DOI: [10.1039/TF9383400029](https://doi.org/10.1039/TF9383400029).
- [14] Charles Jaffé, David Farrelly und T. Uzer. „Transition state in atomic physics“. In: *Physical Review A* 60.5 (1999), S. 3833–3850. DOI: [10.1103/PhysRevA.60.3833](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.60.3833).
- [15] Holger Walkens, Roman Schubert und Stephen Wiggins. „Wigner’s dynamical transition state theory in phase space: classical and quantum“. In: *Nonlinearity* 21.R1 (2008). DOI: [10.1088/0951-7715/21/1/R01](https://doi.org/10.1088/0951-7715/21/1/R01).
- [16] Matthias Feldmaier, Philippe Schraft, Robin Bardakcioglu, Johannes Reiff, Melissa Lober, Martin Tschöpe, Andrej Junginger, Jörg Main, Thomas Bartsch und Rigoberto Hernandez. „Invariant Manifolds and Rate Constants in Driven Chemical Reactions“. In: *Journal of Physical Chemistry B* 123 (2019), S. 2070–2086. DOI: [10.1021/acs.jpccb.8b10541](https://doi.org/10.1021/acs.jpccb.8b10541).
- [17] Matthias Feldmaier, Robin Bardakcioglu, Johannes Reiff, Jörg Main und Rigoberto Hernandez. „Phase-space resolved rates in driven multidimensional chemical reactions“. In: *Journal of Chemical Physics* 151 (2019), S. 244108. DOI: [10.1063/1.5127539](https://doi.org/10.1063/1.5127539).
- [18] Stephen Wiggins. „The role of normally hyperbolic invariant manifolds (NHIMS) in the context of the phase space setting for chemical reaction dynamics.“ In: *Regul. Chaot. Dyn.* 21 (2016), S. 621–638. DOI: [10.1134/S1560354716060034](https://doi.org/10.1134/S1560354716060034).
- [19] Matthias Feldmaier, Johannes Reiff, Rosa M. Benito, Florentino Borondo, Jörg Main und Rigoberto Hernandez. „Influence of external driving on decays in the geometry of the LiCN isomerization“. In: *Journal of Chemical Physics* 153 (2020), S. 084115. DOI: [10.1063/5.0015509](https://doi.org/10.1063/5.0015509).
- [20] Ana M. Mancho, Stephen Wiggins, Jezabel Curbelo und Carolina Mendoza. „Lagrangian descriptors: A method for revealing phase space structures of general time dependent dynamical systems“. In: *Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation* 18.12 (2013), S. 3530–3557. DOI: [10.1016/j.cnsns.2013.05.002](https://doi.org/10.1016/j.cnsns.2013.05.002).
- [21] Robin Bardakcioglu, Andrej Junginger, Matthias Feldmaier, Jörg Main und Rigoberto Hernandez. „Binary contraction method for the construction of time-dependent dividing surfaces in driven chemical reactions“. In: *Physical Review E* 98 (2018), S. 032204. DOI: [10.1103/PhysRevE.98.032204](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.98.032204).
- [22] Manuel Kuchelmeister, Johannes Reiff, Jörg Main und Rigoberto Hernandez. „Dynamics and Bifurcations on the Normally Hyperbolic Invariant Manifold of a Periodically Driven System with Rank-1 Saddle“. In: *Regul. Chaot. Dyn.* 25 (2020), S. 496–507. DOI: [10.1134/S1560354720050068](https://doi.org/10.1134/S1560354720050068).

- [23] Donald G. Truhlar, Bruce C. Garrett und Stephen J. Klippenstein. „Current Status of Transition-State Theory“. In: *Journal of chemical physics* 100 (1996), S. 12771–12800. DOI: [10.1021/jp953748q](https://doi.org/10.1021/jp953748q).
- [24] J. Z. Sun. „Spin-current interaction with a monodomain magnetic body: A model study“. In: *Physical Review B* 62.1 (2000), S. 570–578. DOI: [10.1103/PhysRevB.62.570](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.62.570).

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle bei allen bedanken, die die Anfertigung dieser Masterarbeit möglich gemacht haben. Ich danke Herrn Prof. Dr. Jörg Main für die Möglichkeit diese Masterarbeit am 1. Institut für theoretische Physik anfertigen zu können, für die exzellente Betreuung und die hilfreichen Anregungen, sowohl bei der Bearbeitung des Themas als auch beim Korrekturlesen dieser Arbeit. Herrn Prof. Dr. Udo Seifert danke ich für das Übernehmen des Mitberichts dieser Masterarbeit. Mein Dank geht auch an Robin Bardakcioglu für die Betreuung in den ersten drei Monaten, in denen die Einarbeitung in das Thema reibungslos verlief und erste Erfolge und Ergebnisse zügig erreicht werden konnten. Johannes Reiff und Matthias Feldmaier danke ich für die hilfreichen Tipps und Vorschläge im Bezug auf die TST. Ich möchte allen Mitarbeitern des 1. Instituts für theoretische Physik für die freundliche Arbeitsatmosphäre danken. Schließlich danke ich meiner Familie, ohne deren Unterstützung mein Studium der Physik und insbesondere diese Masterarbeit nicht möglich gewesen wäre.

Erklärung

Ich versichere,

- dass ich diese Masterarbeit selbstständig verfasst habe,
- dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutzt und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe,
- dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist,
- und dass das elektronische Exemplar mit den anderen Exemplaren übereinstimmt.

Stuttgart, den 11. Januar 2021

Michael Maihöfer