

**Untersuchung des Beitrages von
Elektron-Magnon Streuungen zur
ultraschnellen Entmagnetisierung
nach Femtosekunden
Laserbestrahlung
ferromagnetischer Filme**

D I S S E R T A T I O N

Von der Fakultät Mathematik und Physik der
Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines Doktors der
Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.) genehmigte Abhandlung

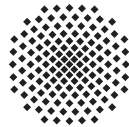
Vorgelegt von

Michael Haag

aus Stuttgart

Hauptberichter:	Prof. Dr. Manfred Fähnle
Mitberichter:	Prof. Dr. Günter Wunner
Mitberichter:	Prof. Dr. Peter Oppeneer

Tag der mündlichen Prüfung: 21. Januar 2016



Max Planck-Institut für Intelligente Systeme Stuttgart

2016



1 Einleitung

Man schrieb das Jahr 1996 als Beaurepaire et. al. [1] eine revolutionäre Entdeckung machten. In Folge einer fs Laserpulsanregung entmagnetisierte ein dünner Nickelfilm auf einer Zeitskala von unter einer ps (in späteren Experimenten konnten sogar Entmagnetisierungszeiten von ca. 100 fs beobachtet werden, z.B. [2]), man hatte zum ersten Mal eine “ultraschnelle“ Entmagnetisierung beobachtet. Nie zuvor konnte man ein makroskopisches magnetisches Moment in so kurzer Zeit deterministisch beeinflussen, aus technischer Sicht bot sich so vielleicht eine Möglichkeit für schnellere Festplatten und RAM, aus physikalischer Sicht ein faszinierendes, ungelöstes Problem. Jener Durchbruch führte zu nunmehr fast 20 Jahren ergiebiger Forschung auf dem Gebiet der ultraschnellen Entmagnetisierung. Auf Basis von Experimenten an zahlreichen unterschiedlichen Materialsystemen und Variation der Anregungsparameter entstanden die verschiedensten Modellen zur Beschreibung des Phänomens, ohne dass die Mechanismen, welche dem Prozess zu Grunde liegen, letztendlich eindeutig geklärt worden wären. Als ein Nebenprodukt der Reaktion ferrimagnetischer Materialien auf ultraschnelle Laserpulse kam es 2007 dabei unter anderem zur Entdeckung des ultraschnellen “All-optical-switching“ [3]. Im Gegensatz zur ultraschnellen Entmagnetisierung wird dabei das magnetische Moment nicht nur reduziert, sondern sogar invertiert und damit geschaltet. Inzwischen hat sich ein eigenes wissenschaftliches Feld zur Untersuchung des AOS entwickelt. Aus technologischer Sicht mag das “All-optical-switching“ aufgrund der Schaltmöglichkeiten interessanter erscheinen, aus physikalischer Sicht sind jedoch beide Probleme interessant und ungelöst, und es ist nicht klar, ob ihnen die selben Mechanismen zu Grunde liegen. Genauso wenig ist klar, ob die ultraschnelle Entmagnetisierung in unterschiedlichen Materialsystemen und unter verschiedenen experimentellen Parametern immer durch die selben Prozesse beschrieben werden kann. Versucht man als Experimentator meist verschiedenste Effekte zu kombinieren, um das gewünschte Ergebnis zu erreichen, so versucht ein Theoretiker die Dinge soweit zu vereinfachen, bis man etwas berechnen kann und somit die Auswirkung eines Prozesses studieren und verstehen lernt. Der Fokus dieser Arbeit liegt darum auf dem Phänomen der ultraschnellen Entmagnetisierung in Übergangsmetall(filmen), genauer, Eisen und Nickel auf isolierendem Substrat. Dazu wer-

den Elektron-Magnonstreuraten und Elektron-Phononstreuraten berechnet, deren Dynamik mit der Boltzmann-Ratengleichung verfolgt wird. Ziel der Arbeit ist es, die Plausibilität eines Modells zur ultraschnellen Entmagnetisierung in Übergangsmetallfilmen durch kombinierte Elektron-Phonon und Elektron-Magnonstreuung zu prüfen ([4],[5]) und deren Rolle im realen Experiment damit abzuschätzen.

2 Gliederung

Die Arbeit beginnt mit einer Einleitung, die in wenigen Worten an die Problemstellung und die historische Entwicklung der Beschreibung und Vermessung des zugrund liegenden physikalischen Phänomens heranführt. Die folgende kurze Übersicht aller Variablen dient zum Nachschlagen, falls irgendwann im Text das Wissen um eine Bedeutung verloren ging. Dieser Liste folgt eine Erläuterung des gewählten Einheitensystems und der damit verbundenen Folgen. Die theoretischen Grundlagen dienen als Kapitel zur Erläuterung der gesamten relevanten grundlegenden Physik. Im Kapitel Methodik wird die Anwendung jener Physik zum Umgang mit den in der Arbeit behandelten Probleme diskutiert. Das folgende Kapitel numerische Ergebnisse schildert, wie der Name schon sagt, die aus den Rechnungen gewonnenen numerischen Ergebnisse auf Basis der vorher diskutierten Methodik. In der Zusammenfassung wird schließlich auf Basis der Ergebnisse ein Rückbezug auf die grundlegende Problemstellung genommen und die Ergebnisse in Zusammenhang mit dem Experiment gestellt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Gliederung	5
3	Variablenliste	9
4	Einheitensystem	12
5	Theoretische Grundlagen	13
5.1	Dichtefunktionaltheorie	13
5.1.1	Theoreme von Hohenberg und Kohn	13
5.1.2	Kohn-Sham Gleichungen	15
5.1.3	DFT in kristallinen Festkörpern	18
5.2	LMTO - linear-muffin-tin-orbital	20
5.2.1	ASA- Atomkugelnäherung (atomical sphere approximation)	23
5.2.2	Spin-ASA	24
5.3	relativistische DFT	25
5.4	Phononen	27
5.5	Magnonen	28
5.5.1	Magnondispersionen	30
5.6	Untersuchte Materialsysteme	31
5.6.1	BCC-Eisen	31
5.6.2	FCC-Nickel	33
5.7	Spinmischung	35
5.8	Ultraschnelle Entmagnetisierung (im Experiment)	36
5.9	Drehimpulserhaltung im Experiment	38
5.10	Kopplungen und Drehimpulsüberträge zwischen den Systemen	41
5.11	Modelle zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung	48
5.11.1	Direkte Licht-Materie-Wechselwirkung	48
5.11.2	Das mikroskopische 3-Temperaturmodell	48
5.11.3	MuTmodell	49
5.11.4	Schellekensmodell	50
5.11.5	Superdiffusion	51
5.11.6	Superdiffusion vs. Streuung	51
5.11.7	Mikromagnetische Simulation	52
5.11.8	Carpene Model	53

5.11.9	Manchon	53
5.11.10	Kombinierte Elektron-Phonon und Elektron-Magnon Streuungen	54
5.11.11	Anmerkung zum perfekten Modell oder das Problem der logischen Schlüsse	55
6	Methodik	57
6.1	Verwendete Magnondispersionen	57
6.2	Der Elektron-Magnon-Streupoperator	59
6.3	Das Elliott-Yafet Szenario oder wie ein Startzustand generiert wird	69
6.4	Gibt es ein Analogon zum Yafeteil der Elektron-Phononwechselwirkung?	73
6.5	Explizite Berechnung der Zeitentwicklung	74
6.5.1	Fermis goldene Regel, die Boltzmannratengleichung und die Energieerhaltung	83
6.5.2	Zeitschritte und DFT Zwangsbedingungen	86
6.6	“Dynamische“ Bandstrukturen	88
7	Numerische Ergebnisse	115
7.1	Abschätzung der Raten	115
7.2	Zeitverlauf	118
7.2.1	Magnonen und Phononen	123
7.2.2	Extrapolierte Entmagnetisierungszeiten und maximale Entmagnetisierung	148
8	Zusammenfassung, deutsche Version	158
9	Conclusion	161
10	Eidesstattliche Erklärung	164
11	Anhang	165
11.1	Berechnung des Elektron-Magnon-Streumatrixelementes in 4 Komponenten	165
11.2	Zusammenfassung der zusätzlichen Terme der 4 Komponenten Lösung	195
12	Danksagung	202
13	Quellenverzeichnis	203

14 Publikationsliste

220

3 Variablenliste

Hier werden alle verwendeten Variablen in der Arbeit aufgelistet und ihre Bedeutung kurz skizziert. Dies soll nicht die Variablenerklärung im Text ersetzen, jedoch werden die Variablen im Text genau einmal bei ihrer jeweiligen Einführung erklärt. Die Auflistung hier dient zum raschen Nachschlagen, falls einmal eine Zuordnung vergessen wurde. Im Allgemeinen gilt, falls nicht anders für eine bestimmte Formel angegeben, sind Matrizen doppelt unterstrichen, **Vektoren** sind fett geschrieben, Operatoren haben einen Zirkumflex, \langle Erwartungswerte \rangle sind durch beidseitige Klammern gekennzeichnet und \langle Zustände \rangle und \langle Matrizelemente \rangle in Bra-Ket Notation.

Variable	Bedeutung
$\hat{a}_{\lambda,\mathbf{q}}^\dagger, \hat{a}_{\lambda,\mathbf{q}}$	Phononen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren
α^{F}	Feinstrukturkonstante
α	Gilbertdämpfungskonstante
B	Magnetfeld
B _{eff}	effektives Magnetfeld der DFT
<i>BZ</i>	Brillouinzone
$\hat{b}_{\mathbf{q}}^\dagger, \hat{b}_{\mathbf{q}}$	Magnonen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren
<i>c</i>	Lichtgeschwindigkeit
$\hat{c}_{j,\mathbf{k}}^\dagger, \hat{c}_{j,\mathbf{k}}$	Elektronen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren
$c_{j\mathbf{k}}^{l m \alpha}$	Entwicklungskoeffizient der Wellenfunktion in die Muffin-Tin Orbitale
$d_{j\mathbf{k}}^{l m \alpha}$	“ in die Energieableitungen der Muffin-Tin Orbitale
<i>D</i>	Spinwellensteifigkeit
<i>E</i>	Energie
E_{H}	Hartreeenergie
E_{xc}	Austausch-Korrelationsenergie
E_{elstat}	elektrostatische Energie
E	elektrisches Feld
<i>e</i>	Elementarladung
<i>EZ</i>	Einheitszelle
e	Einheitsvektor
$\epsilon_{j\mathbf{k}}$	Elektronenenergie

f	elektronische Besetzungszahl
F	Magnonischer Zustand
g_s	g-Faktor des Spins des Elektrons
g_l	g-Faktor des Bahnmoments des Elektrons
\mathbf{G}	reziproker Gittervektor
H	Hamiltonian
\hbar	Plancksches Wirkungsquantum
j	Bandindex
\mathbf{J}	Drehimpuls
$k_{lmm'}$	Koeffizient der Entwicklung von kubischen in sphärische Harmonische
\mathbf{k}	Impulsvektor (meist Elektron)
l	Einzelelektronenbahnmoment (in Richtung der Quantisierungsachse)
\mathbf{L}	Bahndrehimpuls
λ	Phononpolarisation
m	magnetisches Moment einzelner Elektronen (in Richtung der Quantisierungsachse)
m_{el}	Masse des Elektrons
\mathbf{M}	magnetisches Moment
$M^{\text{el-mag/ph}}$	Matrizelement
$M_{\mathbf{R}l\alpha}$	verallgemeinerte relativistische Masse
μ	chemisches Potential
N_k, N_q	Anzahl der k-Punkte, Anzahl der q-Punkte, die betrachtet werden
$n(\mathbf{r})$	Ladungsdichte
$n(\mathbf{q})$	Quasiteilchen Besetzungszahl
n_{Magnon}	Anzahl Magnonen pro Atom

\widehat{O}	beliebiger (hermitescher) Operator
Ω_{BZ}	Volumen der Brillouinzone
$\omega_{\mathbf{q}}$	Quasiteilchenenergie
Φ	Muffin-Tin (lokale) Wellenfunktion
ϕ	radiale Wellenfunktion
Ψ	(Gesamtelektronen)wellenfunktion
Ψ_i	(Einzelelektronen)Wellenfunktion mit Index i
\mathbf{q}	Impulsvektor (meist Quasiteilchen)
q	Ladung
\mathbf{R}	Ortsvektor zum Zentrum einer Elementarzelle (Atomkern)
\mathbf{r}	Ortsvektor
ρ	Spindichte(matrix)
ρ_0	Spindichte(matrix) des Grundzustands
\mathbf{S}	Spindrehimpuls
s	Einzelelektronenspin (in Richtung der Quantisierungsachse)
$\underline{\sigma}_i$	Paulimatrix bezogen auf Komponente i
σ	Verschmierungsparameter
T	Temperatur
T^{kin}	kinetische Energie
\mathbf{T}	Gittertranslationsvektor
t	Zeit
τ_{mag}	Entmagnetisierungszeit
τ_{min}	Zeit des Minimums der Entmagnetisierungskurve
v	Geschwindigkeit
V_{eff}	effektiver spinunabhängiger Teil des Potentials der DFT
W_{eff}	effektive Potential(matrix) der DFT
$W^{\downarrow\uparrow,\dots}$	Raten bzgl. Streuungen von dominant \downarrow nach dominant \uparrow Zuständen
χ	Spinor
Ξ	Renormierungsfaktor des Elektronmagnonmatrixelementes
Y_{lm}	sphärisch Harmonische
Z_{lm}	kubisch Harmonische
ζ	empirischer Faktor Magnondispersion Nickel

4 Einheitensystem

Falls nicht anders gekennzeichnet sind alle Variablen im Rydberg-Einheitensystem formuliert. Dieses Einheitensystem kürzt Formeln ab und führt zu numerischen Ergebnissen im Rahmen der Elektrophysik nahe der Größenordnung 1. Dabei nehmen bestimmte Naturkonstanten "ungewöhnliche Werte" an, hier eine Auflistung aller wichtigen verwendeten Einheiten und Naturkonstanten,

Planksches Wirkungsquantum	$\hbar = 1$
Ruhemasse des Elektrons	$m_{\text{el}} = \frac{1}{2}$
Elementarladung	$e = \sqrt{2}$
Lichtgeschwindigkeit	$c = \frac{2}{\alpha^{\text{F}}}$

wobei es sich bei α^{F} um die Feinstrukturkonstante handelt.

Durch diese Festlegungen liegen alle anderen Naturkonstanten und Umrechnungsfaktoren zu anderen Einheitensystemen fest. Die wichtigsten sind dabei: die Längenheit (Bohrscher Radius) $r_{\text{B}} \approx 52,917725[\text{pm}]$, die Einheit der Energie (ein $[Ry]$ entspricht der Bindungsenergie eines Elektrons im Wasserstoffatom), sie beträgt: $1[Ry] \approx 13,6058[\text{eV}] \approx 2,18 \cdot 10^{-18}[\text{J}]$, sowie die Rydbergmasse $\approx 1,8218779 \cdot 10^{-30}[\text{kg}]$ und die Rydbergzeiteinheit $\approx 4,8377687 \cdot 10^{-17}[\text{s}]$. Sollten Naturkonstanten wie z.B. c in den folgenden Gleichungen auftauchen, so bedeutet dies nicht, dass diese Gleichung nicht im Rydberg-Einheitensystem formuliert ist sondern, dass diese Form konsistenter mit weiteren Arbeiten auf dem Gebiet ist und/oder die Form so intuitiver verständlich.

5 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen, die für das Verständnis des Phänomens der ultraschnellen Entmagnetisierung und der Rechnungen dieser Arbeit nötig sind, erläutert. Dazu wird zuerst die Dichtefunktionaltheorie behandelt, welche die Basis des materialabhängigen Teils der Rechnungen darstellt. Insbesondere wird dabei auf den verwendeten Basissatz eingegangen und auf die Auswirkungen der gemachten Näherungen, womit die Beschreibung der Elektronen in dieser Arbeit erläutert wird. Es folgen kurze Unterkapitel, in denen die Phononen und Magnonen, die Quasiteilchen, die in dieser Arbeit betrachtet werden, beschrieben werden. Die betrachteten Materialsysteme werden genauer beleuchtet, mit einer Übersicht der auftretenden Materialparameter. Darauf folgend, wird die Spinmischung eingeführt und deren potentielle Bedeutung für die ultraschnelle Entmagnetisierung und deren Beschreibung diskutiert. Desweiteren wird das Phänomen der ultraschnellen Entmagnetisierung auf Basis der verschiedenen Experimente genauer untersucht. Aufgrund des Zusammenhangs zwischen Magnetisierung und Drehimpuls werden die Drehimpulsreservoirs im Experiment und deren mögliche Kopplungen beschrieben. Das Kapitel schliesst mit einer Übersicht der gängigsten Modelle zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung, sowie eine Einordnung und genauere Formulierung des dieser Arbeit zu Grunde liegenden Modells.

5.1 Dichtefunktionaltheorie

Im Besonderen verweise ich hier auf den Übersichtsartikel [6], der die unterschiedlichen modernen Methoden der Elektronentheorie vergleicht. Darin wird unter anderem auf die Unterschiede der verschiedenen Methoden in der Beschreibung des elektronischen Systems, sowie damit verbunden auf ihre Möglichkeiten, Näherungen und zugehörigem numerischem Aufwand eingegangen. Im Folgenden wird jedoch nur die Dichtefunktionaltheorie behandelt, welche die Grundlage für die Rechnungen zur Arbeit lieferte.

5.1.1 Theoreme von Hohenberg und Kohn

Die Grundpfeiler der Dichtefunktionaltheorie liefern die Theoreme von Hohenberg und Kohn [7], die im Folgenden diskutiert werden,

für ein System gebundener wechselwirkender Elektronen in einem externen Potential $v(\mathbf{r})$.

1. Theorem von Hohenberg und Kohn "... $v(\mathbf{r})$ is (to within a constant) a unique functional of $n(\mathbf{r})$; since, in turn, $v(\mathbf{r})$ fixes H we see that the full many-particle ground state is a unique functional of $n(\mathbf{r})$ " [7]. Übersetzt: "1. Theorem, das externe Potential $v(\mathbf{r})$ ist bis auf eine Konstante ein eindeutiges Funktional der Elektronendichte und damit ist auch die Gesamtenergie ein eindeutiges Funktional der Elektronendichte."

2. Theorem von Hohenberg und Kohn "If $F[n]$ were a known and sufficiently simple functional of n , the problem of determining the ground-state energy and density in a given external potential would be rather easy since it requires merely the minimization of a functional of the three-dimensional density function. [7]" Übersetzt: "2. Theorem, wenn $F[n]$ " (wobei $F[n]$ ein universelles Funktional ist, das für alle Teilchenzahlen und alle externen Potentiale gilt [7], sodass das Energiefunktional gegeben ist durch $E[n] = \int v(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d\mathbf{r} + F[n]$.) "bekannt wäre und eine ausreichend einfache funktionale Form von n besäße, wäre das Problem der Bestimmung der Grundzustandsenergie und Dichte in einem gegebenen externen Potential recht einfach (zu lösen), da es nur die Minimierung eines Funktionals der dreidimensionalen Spindichtefunktion erfordert."

Aufgrund des Extremalprinzips kann die Grundzustandsenergie durch einen Variationsansatz bestimmt werden, die Dichte, welche zu einem Minimum der Gesamtenergie führt, entspricht dabei exakt der Dichte des Grundzustandes. Alle Eigenschaften des Grundzustandes können als Funktional der Grundzustand Dichtematrix ausgedrückt werden. Die Theoreme von Hohenberg und Kohn werden in ihrer Veröffentlichung bewiesen, die Beweise seien hier nur kurz umrissen. Sie zeigen [7], dass abgesehen von einer additiven Konstante (Eichfreiheit für Energienullpunkt) die Potentialmatrix \underline{W} ein eindeutiges Funktional der Dichte ist durch reductio ad absurdum aus der Tatsache, dass die Dichte aus der Lösung des Hamiltonoperators eindeutig folgt. Auf Basis der Dichte und des Potentials in Abhängigkeit der Dichte lässt sich ein Hamiltonian konstruieren, dessen Minimierung zu einer eindeutigen (abgesehen von der Eichfreiheit der Gesamtphase) elektronischen Wellenfunktion führt. Liegt die Wellenfunktion Ψ eindeutig fest, folgt aus der Quantenmechanik, dass jeder Erwartungswert eines beliebigen Operators \hat{O} , bestimmt durch $\langle \Psi | \hat{O} | \Psi \rangle$, eindeutig festliegt. Warum ging man den

Umweg über die Dichte, statt direkt bzgl. der Wellenfunktion zu optimieren? Die Spindichtematrix besitzt 3 unabhängige Variablen an jedem Punkt \mathbf{r} , der Wellenfunktion hingegen sind 3 N freie Variable zugeordnet. Der Rechenaufwand kann also durch Verwendung der Dichtefunktionaltheorie drastisch verringert werden.

Daraus scheint sich prinzipiell die Möglichkeit zu ergeben, parameterfrei für jedes Material eine Rechnung auf Basis der Dichtefunktionaltheorie durchführen zu können, aus deren man seine Eigenschaften ableiten kann. Die Vorstellung der “einfachen“ Berechnung hat jedoch 2 Haken. 1. Der Austauschkorrelationsanteil des Energiefunktionalis ist nicht genau bekannt und folglich liegt nur eine Näherung des oben erwähnten Funktionalis $F[n]$ vor. Das Ergebnis einer solchen Rechnung ist ergo aus mathematischen Gründen immer nur eine Näherung des realen Systems. 2. Im Alltag oder Experiment liegt ein System nicht im Grundzustand bei $T = 0K$ vor, sondern in einem angeregten Zustand, z.B. einer statistischen Mischung von Zuständen im thermischen Gleichgewicht bei Raumtemperatur. Die Eigenschaften dieses angeregten Zustandes sind im Allgemeinen nicht (eindeutig) aus den Ergebnissen einer Dichtefunktionaltheorierechnung, die für den Grundzustand gelten, ableitbar. Dies führt zu einer Einschränkung der Anwendbarkeit der Dichtefunktionaltheorie, was ein praktisches Problem ist.

5.1.2 Kohn-Sham Gleichungen

Wie wir aus den Theoremen von Hohenberg und Kohn wissen (mit deren Erweiterung auf spinpolarisierte Systeme [8] nach Barth und Hedin) ist der Grundzustand eines Materials eindeutig durch die Ladungs- und Spindichten festgelegt. Die Minimierung des Energiefunktionalis liefert dabei eine eindeutige Lösung der Ladungs- und Spindichten. Aus den so bestimmten Ladungs- und Spindichten lassen sich Materialeigenschaften (z.B. Bandstruktur, atomare magnetische Momente,...) ableiten. Doch wie löst man die Gleichung des 2. Theorems von Hohenberg und Kohn geeignet? Kohn und Sham [9] konstruieren hierzu ein Modellsystem nicht wechselwirkender Teilchen, die durch orthonormierte Wellenfunktionen beschrieben sind. Die nicht wechselwirkenden Teilchen befinden sich in einem effektiven Potential $\underline{W}_{\text{eff}}$. Sie gehorchen der zeitunabhängigen

Schrödingergleichung:

$$\left[-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m_e} + \underline{\underline{W}}_{\text{eff}}[\underline{\underline{\rho}}(\mathbf{r})] \right] \Psi_i = \epsilon_i \Psi_i \quad (1)$$

Die Spindichtematrix des Modellsystems ergibt sich wiederum aus den Wellenfunktionen, die hier 2er Spinoren sind:

$$\underline{\underline{\rho}} = \sum_{i, \text{besetzt}} \Psi_i^\dagger \Psi_i \quad (2)$$

Um das Problem nun selbstkonsistent zu lösen, bedarf es eines expliziten Ansatzes des Energiefunktionales in Termen der Spindichtematrix

$$\begin{aligned} E(\underline{\underline{\rho}}) = & T^{\text{kin}}(\underline{\underline{\rho}}) + E_{\text{H}}(\underline{\underline{\rho}}) + E_{\text{xc}}(\underline{\underline{\rho}}) + E_{\text{Kern}} \\ & + \int \text{tr}(\underline{\underline{\rho}}(\mathbf{r}) \underline{\underline{W}}(\mathbf{r})) d^3r, \end{aligned} \quad (3)$$

wobei $\underline{\underline{W}}$ die von aussen vorgegebene Potentialmatrix ist; sie ist gegeben durch das äußere Potential V^{ext} und das äußere Magnetfeld, \mathbf{B}^{ext} $\underline{\underline{W}} = V^{\text{ext}} \cdot \underline{\underline{1}} + \mu_{\text{B}} \mathbf{B}^{\text{ext}} \cdot \underline{\underline{\sigma}}$ mit $\underline{\underline{\sigma}}$ dem Vektor der Paulimatrizen. E_{Kern} beschreibt die Energie der Wechselwirkung der Elektronen mit den Kernen und der Kerne untereinander, eine analytische Form wird erst in Kapitel 5.1.3 angegeben, die explizit für kristalline Festkörper formuliert wurde. Die Gesamtenergie ist also beschrieben durch T^{kin} , die kinetische Energie des Modellsystems, gegeben durch

$$T^{\text{kin}}[\underline{\underline{\rho}}] = \sum_{i, \text{besetzt}}^N \left\langle \Psi_i \left| -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta \underline{\underline{1}} \right| \Psi_i \right\rangle, \quad (4)$$

E_{H} die Hartree Energie, welche die mittlere Coulombenergie der Ladungsdichteverteilung beschreibt, gegeben durch

$$E_{\text{H}}[n] = \frac{e^2}{2} \int \int \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3r d^3r', \quad (5)$$

wobei n die zur Spindichtematrix $\underline{\underline{\rho}}$ zugehörige Ladungsdichte ist ($n = \rho_{11} + \rho_{22}$), und E_{xc} beschreibt alles, was durch die anderen Terme nicht berücksichtigt wurde. Dazu zählen insbesondere Austausch- und Korrelationsenergie, prinzipiell fehlen ebenso magnetische Multipolenergien, Van-der-Waalsenergie,... . Eine exakte

funktionale Form von E_{xc} ist nicht bekannt. Zusammenfassen lassen sich die Terme zu

$$E(\underline{\rho}) = T^{\text{kin}}(\underline{\rho}) + E_{\text{nuc-nuc}} + \int \text{tr}(\underline{\rho}(\mathbf{r})\underline{W}_{\text{eff}}(\underline{\rho}(\mathbf{r})))d^3r. \quad (6)$$

Macht man einen Variationsansatz, so muss die Energie stationär bzgl. der Variation der Dichte sein. Da die Wechselwirkungsenergie der Kerne untereinander $E_{\text{nuc-nuc}}$ unabhängig von der Elektronenkonfiguration ist, taucht dieser Term separiert rein additiv auf. Die Variation ist in jenem Fall eingeschränkt auf eine Variation bei konstanter Elektronenzahl, mathematisch würde man dies mit einem Lagrangeparameter tun. Zusammengefasst ist das effektive Potential gegeben durch

$$\underline{W}_{\text{eff}}[\underline{\rho}(\mathbf{r})] = \underline{W} + V_{\text{H}}(\mathbf{r})\underline{\mathbb{1}} + \underline{W}_{\text{xc}}(\mathbf{r}) + V_{\text{e-nuc}}\underline{\mathbb{1}} \quad (7)$$

mit den zugehörigen Potentialen

$$\begin{aligned} V_{\text{H}}(\mathbf{r}) &= e^2 \int \frac{n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3r', \\ W_{\text{xc}}(\mathbf{r}) &= \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta \underline{\rho}(\mathbf{r})} = \begin{pmatrix} V_{\text{xc}}^{\uparrow}(\mathbf{r}) & 0 \\ 0 & V_{\text{xc}}^{\downarrow}(\mathbf{r}) \end{pmatrix}; \end{aligned} \quad (8)$$

$V_{\text{e-nuc}}$ stellt dabei das Coulombpotential der Kerne dar. An der spindiatagonalen Form des Austauschanteils erkennt man, dass diese Gleichung in dieser Form nur für kollineare Spinsysteme Gültigkeit hat. Ziel ist die selbstkonsistente Lösung der Kohn-Sham-Gleichungen (1), (2) and (8). Gesucht sind dabei Wellenfunktionen Ψ_i , sodass die Wellenfunktionen Ψ_i die Spindichte $\underline{\rho}$ erzeugen, die das effektive Potential $\underline{W}_{\text{eff}}$ erzeugt bezüglich derer die Wellenfunktionen im Rahmen einer effektiven Schrödingergleichung die Lösungen sind.

Der Umgang mit dem unbekanntem Austausch-Korrelationsanteil $E_{\text{xc}}(\underline{\rho})$ ist damit noch nicht geklärt. Eine weitverbreitete Näherung ist die lokale Spindichte Näherung (“local spin density approximation“, kurz LSDA, im Rahmen der Arbeit wurde die Form von Perdew und Wang gewählt [10], [11] ohne Gradiententerme [siehe unten]). Wie der Name schon sagt, ist das Funktional in diesem Fall nur von der lokalen Spindichte abhängig, dies führt zu folgender Form

$$E_{\text{xc}}[\underline{\rho}] = \int n(\mathbf{r})\epsilon_{\text{xc}}(\underline{\rho}(\mathbf{r}))d^3r. \quad (9)$$

Die Forderung, dass die Energiedichte ϵ_{xc} nur von der lokalen Dichte abhängen soll, legt ihren Wert noch nicht fest. Eine Möglichkeit ist es, die Lösung für ein homogenes wechselwirkendes Elektronengas einzusetzen. Je grösser die Inhomogenitäten im System sind, desto größer ist auch die Abweichung zu jener Lösung zu erwarten. Desweiteren kann die LSDA keine stark korrelierten Systeme beschreiben. Eine ad-hoc Implementierung eines stark korrelierten Systemes kann z.B. über LSDA+U erreicht werden (siehe z.B. basisunabhängige Form [12]). Es wird (werden) dabei ein (oder mehrere) Hubbard-Parameter U_i gewählt, mit deren Hilfe die effektiven Wechselwirkungen zwischen den korrelierten Orbitalen beschrieben werden.

Nichthomogenitäten der Spindichte im System können in nächster Näherung zum homogenen Elektronengas durch Hinzunahme von Gradiententermen berücksichtigt werden. Eine der gängigsten Methoden ist hierbei die GGA, generalized gradient approximation (z.B. [10]). Damit ergibt sich eine Energiedichte vom Typ $\epsilon_{xc}^{GGA}(\underline{\rho}(\mathbf{r}), \nabla \underline{\rho}(\mathbf{r}))$. Es lässt sich zeigen, dass keine allgemeine Parametrisierung zu finden ist, die problemunabhängig ist (z.B. unterscheiden sie sich für Atome, Moleküle und Festkörper [13]). Komplexere lokale Dichte Näherungen nehmen noch höhere Ableitungen der Spindichte zur besseren Beschreibung mit (meta GGA, siehe z.B. [14]), der Fehler kann dabei jeweils in nächsthöherer Ableitung angesehen werden. Ausserdem existieren sogenannte Hybridfunktionale [15], die neben der LSDA Lösung auch noch einen nichtlokalen (Hartree-Fock artigen) Anteil der Austausch-Korrelationsenergie besitzen.

5.1.3 DFT in kristallinen Festkörpern

Anstatt eines Systems von N Elektronen nehmen wir einen unendlichen Festkörper ohne Gravitation an, der in jeder Dimension periodisch ist. N sei nun die Anzahl der Elektronen je Elementarzelle, alle physikalischen Grössen sind auf die Einheitszelle normiert. \mathbf{R} beschreibt den Ortsvektor eines Kerns innerhalb einer Elementarzelle, \mathbf{T} die Translationsvektoren, welche der Gittersymmetrie gehorchen und die verschiedenen Elementarzellen aufeinander abbilden. Zum vorigen Energiefunktional (3) kommen nun noch die Wechselwirkungen mit den Kernen hinzu, sowohl zwischen den Kernen als auch zwischen den Elektronen und Kernen, das Funktional im Festkörper

hat dann folgende Form.

$$E[\rho] = T^{\text{kin}}[\underline{\rho}] + E_{\text{elstat}}[n] + E_{\text{xc}}[\underline{\rho}] + \int \text{tr}(\underline{\rho}(\mathbf{r})\underline{W}_{\text{ext}})d^3r \quad (10)$$

Die elektrostatische Energie E_{elstat} setzt sich dabei aus der Hartree Energie der Elektronen, der Elektron-Kernwechselwirkung $E_{\text{e-nuc}}$ im periodischen Kristall

$$E_{\text{e-nuc}} = -e^2 \sum_{\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}} \int d^3r n(\mathbf{r}) \frac{Z_{\mathbf{R}}}{|\mathbf{r} - \mathbf{R} - \mathbf{T}|} \quad (11)$$

und der Kern-Kernwechselwirkung $E_{\text{nuc-nuc}}$ im periodischen Kristall

$$E_{\text{nuc-nuc}} = \frac{1}{2} e^2 \sum_{\mathbf{T}'} \sum_{\mathbf{T}} \sum_{\mathbf{R}'} \sum_{\mathbf{R}} \frac{Z_{\mathbf{R}+\mathbf{T}} Z_{\mathbf{R}+\mathbf{T}'}}{|\mathbf{R} + \mathbf{T}' - \mathbf{R} - \mathbf{T}|} \quad (12)$$

zusammen, wobei nicht gleichzeitig \mathbf{T} und \mathbf{T}' sowie \mathbf{R} und \mathbf{R}' in der Summe identisch sein dürfen. Die Erwartungswerte $\langle \hat{O} \rangle$ eines Operators \hat{O} bzgl. des periodischen Systems des Kristalls lassen sich am einfachsten in Form eines Brillouinonenintegrals ausdrücken:

$$\langle \hat{O} \rangle = \sum_j \frac{1}{\Omega_{BZ}} \int_{BZ} f(j, \mathbf{k}) \langle \Psi_{j\mathbf{k}} | \hat{O} | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle. \quad (13)$$

$f(j, \mathbf{k})$ ist dabei die Besetzungszahl des Zustandes $|j, \mathbf{k}\rangle$, im Falle der DFT ist jene ideal durch eine Fermiverteilung bei $0K$ gegeben. Numerisch muss man das Brillouinonenintegral üblicherweise auf einer endlichen Anzahl Stützstellen berechnen, da man die genauen funktionalen Zusammenhänge nicht kennt, es ergibt sich dann

$$\langle \hat{O} \rangle = \sum_{\mathbf{k}} \frac{\omega_{\nu}}{\Omega_{BZ}} \sum_j \tilde{f}(j, \mathbf{k}) \langle \Psi_{j\mathbf{k}} | \hat{O} | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle. \quad (14)$$

$\omega_{\mathbf{k}}$ ist dabei das Gewicht, das einem gewissen \mathbf{k} -Punkt der Integration gegeben wurde, \tilde{f} ist dabei eine typischerweise verschmierte Verteilungsfunktion, um der Tatsache Rechnung zu tragen, dass man zum einen nur eine begrenzte Energieauflösung hat und zum anderen die Stützstellen nicht dicht bis zur Fermienergie sind. Ein besonderer Fall stellt das gleiche Gewicht für alle \mathbf{k} -Punkte dar, das

Integrationsgewicht ist damit $\frac{\Omega_{BZ}}{N_k}$, wobei N_k die Zahl der k -Punkte ist. Setzt man dieses Gewicht ein, erhält man

$$\langle \hat{O} \rangle = \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{N_k} \sum_j \tilde{f}(j, \mathbf{k}) \langle \Psi_{j\mathbf{k}} | \hat{O} | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle. \quad (15)$$

Die Form der Gleichung ist dabei unabhängig von der verwendeten Verschmierung (Gaussverschmierung [in den DFT Rechnungen verwendet], Fermi-Dirac-Verschmierung oder andere).

5.2 LMTO - linear-muffin-tin-orbital

In periodischen Festkörper hat die Kohn-Sham Gleichung folgende Form (3)

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_{\underline{\mathbf{1}}} + \underline{W}_{\text{eff}}[\underline{\rho}(\mathbf{r})] - \epsilon_{j\mathbf{k}} \underline{\mathbf{1}} \right] \Psi_{j\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = 0, \quad (16)$$

deren Lösungen natürlich dem Blochschen Theorem gehorchen. Eine allgemeine Lösung kann in einen beliebigen vollständiges Basissatz $\{B^{\mathbf{k}\beta}\}$, mit Koeffizienten $b_{\beta}^{j\mathbf{k}}$ entwickelt werden.

$$|\Psi_{j\mathbf{k}}\rangle = \sum_{\beta} b_{\beta}^{j\mathbf{k}} |B_{\beta}^{\mathbf{k}}\rangle \quad (17)$$

Setzt man die Entwicklung in Gleichung (16) ein und multipliziert mit $\langle B_{\gamma}^{\mathbf{k}} |$ von links, so folgt

$$\sum_{\beta} \left(\langle B_{\gamma}^{\mathbf{k}} | \hat{H} | B_{\beta}^{\mathbf{k}} \rangle - \epsilon_{j\mathbf{k}} \langle B_{\gamma}^{\mathbf{k}} | B_{\beta}^{\mathbf{k}} \rangle \right) b_{\beta}^{j,\mathbf{k}} = 0. \quad (18)$$

Ersteren Term in der Klammer, $\langle B_{\gamma}^{\mathbf{k}} | \hat{H} | B_{\beta}^{\mathbf{k}} \rangle$, nennt man Hamiltonmatrix, $\langle B_{\gamma}^{\mathbf{k}} | B_{\beta}^{\mathbf{k}} \rangle$ den zweiten Term Überlappmatrix. Man kann nun einen Basissatz lokalisierter Orbitale wählen von denen der Exponentialteil abgespalten wird

$$|B_{\beta}^{\mathbf{k}}\rangle = \sum_{\mathbf{T}} \exp(i\mathbf{k}\mathbf{T}) |B_{\beta}(\mathbf{r}_{\mathbf{R}} - \mathbf{T})\rangle, \quad \mathbf{r}_{\mathbf{R}} = \mathbf{r} - \mathbf{R}. \quad (19)$$

Die so verwendeten Basisfunktionen gehorchen automatisch dem Blochschen Theorem. Linear-Muffin-Tin-Orbitale (LMTO) sind dabei eine besondere Wahl des Basissatzes $\{|B_{\beta}(\mathbf{r}_{\mathbf{R}} - \mathbf{T})\rangle\}$. Sie sind

eine lokalisierte, dem System angepasste Basis (Ole Kroog Andersen [16]) zur Beschreibung der elektronischen Wellenfunktionen. Sie stellen die Grundlage für zahlreiche zeiteffiziente Rechnungen der Elektronentheorie dar. Der Vorteil zum Beispiel zur Basis der ebenen Wellen, welche vollständig ist, besteht darin, dass man durch die spezielle, weiter unten im Text beschriebene Wahl der Basis, einen viel kleineren Basissatz zur Beschreibung der gewünschten elektronischen Bänder benötigt. Die Anzahl von zu berechnenden Übergangsmatrixelementen zwischen den Basiszuständen wird dabei minimiert. Grundlage des kleineren Basissatzes ist die Tatsache, dass man eine Entwicklung in Eigenfunktionen der Bahndrehimpulsoperatoren ($\hat{\mathbf{L}}^2, L_z$) um die Atomkerne relativ früh abbrechen kann und dabei gute Übereinstimmung mit der realen Ladungsdichte erhält. Man braucht also nur wenige Basisfunktionen, um eine Lösung der Kohn-Sham Gleichung in guter Näherung zu entwickeln. Im Gegensatz zu einem einfachen Basissatz, wie z.B. ebene Wellen, sind jedoch Matrixelemente auf Basis jener Lösungen komplizierter zu berechnen, eine analytische Form der Lösung ist nicht zu erwarten. In LMTO wird der periodische Festkörper in nichtüberlappende Kugeln um die einzelnen Kerne aufgeteilt (Muffin-Tin-Kugel). Offenkundig entstehen Zwischenbereiche, die getrennt betrachtet werden. Innerhalb dieser Zwischenbereiche wird das Potential als konstant angenommen. Im Zwischenbereich wird die Wellenfunktion in Hankel Funktionen entwickelt, in einer Erweiterung kann der Zwischenbereich auch präziser in ebene Wellen entwickelt werden ([F]LAPW Methode, Erweiterung zur reinen LMTO Lösung). Innerhalb der Muffin-Tin-Kugel wird in "atomare" Funktionen $\Phi_{\mathbf{R}l\alpha}$ entwickelt, die ausserhalb der Kugel verschwinden.

$$\Phi_{\mathbf{R}l\alpha} = \phi_{\mathbf{R}l\alpha}(\mathbf{r}_{\mathbf{R}}) Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{R}}) |\chi_{\mathbf{R}\alpha} \rangle, \quad (20)$$

mit \mathbf{R} dem Zentrum der Kugel und $\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{R}}$ dem Einheitsvektor in Richtung von $\mathbf{r}_{\mathbf{R}}$. Z_{lm} sind die kubischen Harmonischen (einfache Superpositionen von kubischen Harmonischen führen zu sphärischen Harmonischen, welche Eigenfunktionen bzgl. der Bahndrehimpulsoperatoren ($\hat{\mathbf{L}}^2, L_z$) sind). Die $\phi_{\mathbf{R}l\alpha}$ sind die Lösung der radialen Schrödingergleichung bzgl. der Drehimpulsquantenzahl l , der Spinquantenzahl α und einer bestimmten Anzahl Knoten [verknüpft mit einer radialen Quantenzahl, die normalerweise nicht in der Notation extra aufgeführt wird, da sie nur einmal pro Drehimpulsquantenzahl auftritt, am Beispiel von Eisen und Nickel wird in $4s(l=0)$, $4p(l=1)$,

3d($l=2$) Zustände entwickelt], die vom System abhängt.

$$|\chi_{\mathbf{R}\uparrow}\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, |\chi_{\mathbf{R}\downarrow}\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (21)$$

sind die 2 Komponenten Spinoreigenfunktionen. Die Atomfunktionen sind orthonormiert, d.h. $\langle \Phi_{\mathbf{R}l m \alpha} | \Phi_{\mathbf{R}'l' m' \alpha'} \rangle = \delta_{\mathbf{R}\mathbf{R}'} \delta_{ll'} \delta_{mm'} \delta_{\alpha\alpha'}$. Um eine physikalische Lösung zu haben, muss die Lösung am Kugelrand stetig differenzierbar in die Lösung im Zwischenbereich übergehen. Da die Anzahl der Basisfunktionen klein gehalten werden soll, entwickelt man die Atomfunktionen um bestimmte $\epsilon_{\mathbf{R}l\alpha}$. Die Wahl jener Energien, um die entwickelt wird, ist nicht frei, sondern muss dem Problem angepasst sein. Zusätzlich bestimmt man die Energieableitungen $\dot{\Phi}_{\mathbf{R}l m \alpha}$ der Atomfunktionen. Man kann zeigen, dass $\langle \dot{\Phi}_{\mathbf{R}l m \alpha} | \Phi_{\mathbf{R}l m \alpha} \rangle = 0$ in nichtrelativistischer Näherung gilt. Mit der Lösung, die um eine Energie entwickelt ist und deren Energieableitung, hat man also eine Linearisierung um die Lösung bzgl. $\epsilon_{\mathbf{R}l\alpha}$ vorgenommen, was dem linear in LMTO seine Bedeutung gibt. Der Zusammenhang zwischen den so erhaltenen Basissätzen $\{\Phi, \dot{\Phi}\}$ und $\{B\}$ aus Gleichung (19) ist Kapitel 5 [17] (andere Notationen) zu entnehmen.

Die Kristallwellenfunktion in LMTO-Darstellung spaltet sich also in einen Exponentialteil, einen Winkelanteil, einen Radialteil und einen Spinanteil auf: Der Radialteil ist dabei, wie oben erwähnt, Lösung der radialen Schrödingergleichung, respektive in relativistischer Rechnung der radialen Diracgleichung, und damit direkt an das System, welches es beschreiben soll, angepasst. Der Winkelanteil besteht aus den reellen kubischen Harmonischen Z_{lm} , in die entwickelt wird. Sie sind ein vollständiges Polynom und können durch eine Superposition der sphärischen Harmonischen Y_{lm} mit selbem l und $|m|$ gebildet werden.

$$Z_{lm} = \sum_{m_0} k_{l m m_0} Y_{l m_0} \quad (22)$$

Der Spinanteil ist im relativistischen Fall durch eine 4 komponentige Spinorfunktion gegeben. Eine Einzelelektronenwellenfunktion wird im Falle dieser Arbeit in skalarrelativistischer Näherung [17] in die

LMTO Basisfunktionen entwickelt:

$$\Psi_{j,\mathbf{k}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{T}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{T}} \cdot \left(\sum_{l,m,\alpha,\mathbf{R}} c_{l m \alpha \mathbf{R}}^{j\mathbf{k}} |\Phi_{\mathbf{R}+\mathbf{T}l m \alpha}\rangle + d_{l m \alpha \mathbf{R}}^{j\mathbf{k}} |\dot{\Phi}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}l m \alpha}\rangle \right). \quad (23)$$

Die Entwicklungskoeffizienten $c_{j\mathbf{k}}^{l m \alpha}$ sind dabei komplexe Zahlen für die Entwicklung in die lokalisierten Muffin-Tin-Orbitale $|\Phi_{\mathbf{R}+\mathbf{T}l m \alpha}\rangle$, und die Koeffizienten $d_{j\mathbf{k}}^{l m \alpha}$ sind bzgl. der Entwicklung in die Energieableitungen der Muffin-Tin-Orbitale $|\dot{\Phi}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}l m \alpha}\rangle$. Da im Laufe der Arbeit nur auf Festkörper mit einatomiger Basis eingegangen wird, ist im folgenden der Index \mathbf{R} unterdrückt.

5.2.1 ASA- Atomkugelnäherung (atomical sphere approximation)

Während die Muffin-Tin-Kugeln sich nur berühren aber nicht überlappen, werden in ASA die Muffin-Tin-Kugeln zu Atomkugeln aufgebläht, sodass das Gesamtvolumen des Kristalles erreicht wird. (Anmerkung: bei einer mehr als einatomigen Basis ist dies kein wohldefinierter Vorgang). Beiträge vom verbleibenden Zwischenbereich werden vernachlässigt. Die Wellenfunktion aus den Atomfunktionen und deren Energieableitungen ist in der Form identisch zur Gleichung (23)

$$|\Psi_{j\mathbf{k}}\rangle^{\text{ASA}} = \frac{1}{\sqrt{\tilde{N}}} \sum_{\mathbf{T}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{T}) \cdot \left[\sum_{\mathbf{R}l m \alpha} c_{\mathbf{R}l m \alpha, \text{ASA}}^{j\mathbf{k}} |\Phi_{\mathbf{R}+\mathbf{T}l m \alpha}^{\text{ASA}}(\mathbf{r})\rangle + d_{\mathbf{R}l m \alpha}^{j\mathbf{k}, \text{ASA}} |\dot{\Phi}_{\mathbf{R}+\mathbf{T}l m \alpha}^{\text{ASA}}(\mathbf{r})\rangle \right]. \quad (24)$$

Die Wellenfunktion, die Basisfunktionen und die Koeffizienten sind jedoch durch die Atomkugelnäherung beeinflusst, auf das zusätzliche Superskript ^{ASA} wird im Folgenden verzichtet, da aus dem jeweiligen Zusammenhang heraus klar ersichtlich ist, was in ASA bestimmt wurde. \tilde{N} ist die Anzahl der Einheitszellen im System, sodass die Wellenfunktion normiert ist. Die Entwicklungskoeffizienten $c_{\mathbf{R}l m \alpha}^{j\mathbf{k}}$ und $d_{\mathbf{R}l m \alpha}^{j\mathbf{k}}$ folgen aus der Kohn-Shamgleichung (1) und der Bedingung der stetigen Differenzierbarkeit der LMTO Orbitale und der

Hankelfunktionen im Zwischenbereich. Die Lokalisierung der Atomfunktionen führt dazu, dass Matrixelemente für die Atomkugeln berechnet werden, es ist nur ein Integral je Kugel zu lösen (unter Vernachlässigung des komplizierten Zwischenbereiches).

$$\langle \Psi_{j'\mathbf{k}'} | \hat{O} | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle = \sum_{\mathbf{R}} \int_{\text{Atomkugel}} \Psi_{j'\mathbf{k}'}^*(\mathbf{r}) \hat{O}(\mathbf{r}) \Psi_{j\mathbf{k}}(\mathbf{r}) d^3r. \quad (25)$$

Zusätzlich werden die Operatoren (\hat{O}) sphärisch symmetrisch genähert, d.h.

$$\hat{O}(\mathbf{r}) = \sum_j \hat{O}_j(\mathbf{R}_j - \mathbf{r}) \approx \sum_j \hat{O}_j^{\text{ASA}}(r_j), \quad (26)$$

wobei $r_j = |\mathbf{r}_j| = |R_j - \mathbf{r}|$. Handelt es sich bei dem Operator z.B. um ein (Streu)Potential, so hat dieses nun in ASA nur einen “ $l = 0$ ” Beitrag, sofern nicht andere Operatoren (vgl. z.B. Dipolmatrixelemente) zusätzlich auftreten. Für die aus ASA ermittelten Streupotentiale werden also Streuungen zwischen Zuständen mit selbem l wahrscheinlicher und Streuungen zwischen Zuständen verschiedener l unwahrscheinlicher, oder sind sogar verboten im Vergleich zu Full-Potential Lösungen.

Diese Näherungen führen zu einer immensen Rechenzeiterparnis, wenn auch auf Kosten der Genauigkeit. Vernünftige Ergebnisse ließen sich, im Vergleich zum Experiment, für dichtest gepackte (closed packed) Kristallstrukturen erzielen.

5.2.2 Spin-ASA

Die Spin-ASA bewirkt, dass das effektive B-Feld innerhalb eines Atoms immer die selbe Richtung aufweist. Es werden nur Beiträge der Spindichte (anti)parallel zur Spinquantisierungsachse gezählt.

$$\mathbf{B}^{XC}(\mathbf{r}) = \sum_j \mathbf{B}_j^{XC}(\mathbf{R}_j - \mathbf{r}) \approx \sum_j \mathbf{e}_{\mathbf{R}_j} \cdot B_j^{XC}(r, \mathbf{m}(r) \cdot \mathbf{e}_{\mathbf{R}_j}) \quad (27)$$

oder präziser [18]

$$\begin{aligned} E_{\text{xc}}^{\text{LSDA}}[\underline{\rho}] &= \int n(\mathbf{r}) \epsilon_{\text{xc}}(n(\mathbf{r}), |m(\mathbf{r})|) d^3r \\ &\approx \sum_R \int n(\mathbf{r}) \epsilon_{\text{xc}}(n(\mathbf{r}), \mathbf{e}_{\mathbf{R}}^{\text{SQA}} \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r})) d^3r = E_{\text{xc}}^{\text{ASA}}[\underline{\rho}], \end{aligned} \quad (28)$$

wobei $\mathbf{e}_{\mathbf{R}}^{\text{SQA}}$ die Richtung der ausgewählten Spinquantisierungsachse bei Atomkugel \mathbf{R} beschreibt. Die Spinquantisierungsachse wird oft als Mittelwert über alle in der Atomkugel vorkommenden Richtungen $\mathbf{e}_{\mathbf{r}} = \frac{\mathbf{m}(\mathbf{r})}{|\mathbf{m}(\mathbf{r})|}$ angesetzt.

5.3 relativistische DFT

Wie in der Quantenmechanik die Schrödingergleichung durch die Diracgleichung ersetzt wurde, wird auch im Rahmen der DFT die Kohn-Shamgleichung erweitert, es ergibt sich folgende Einteilchenform unter Vernachlässigung von Stromtermen:

$$\left(c \sum_i \underline{\underline{\alpha}}_i \hat{p}_i + \left(\underline{\underline{\beta}} - \underline{\underline{\mathbb{1}}} \right) m_e c^2 + V_{\text{eff}}(\mathbf{r}) \underline{\underline{\mathbb{1}}} + \sum_i \mu_B \underline{\underline{\beta}} \begin{pmatrix} \underline{\underline{\sigma}}_i & \underline{\underline{0}} \\ \underline{\underline{0}} & \underline{\underline{\sigma}}_i \end{pmatrix} B_{\text{eff},i}(\mathbf{r}) \right) \Psi(\mathbf{r}) = \epsilon \Psi(\mathbf{r}), \quad (29)$$

wobei die Matrizen $\underline{\underline{\alpha}}$ und $\underline{\underline{\beta}}$ diejenigen des Diracoperators sind. Im Vergleich zur üblichen Diracgleichung wurde der Ruhemasseterm aus beiden Seiten subtrahiert. Nimmt man sphärisch symmetrische Potentiale an und ein kollineares Spinsystem mit Magnetisierungsrichtung z , vereinfacht sich die Gleichung zu:

$$\left(c \sum_i \underline{\underline{\alpha}}_i \hat{p}_i + \left(\underline{\underline{\beta}} - \underline{\underline{\mathbb{1}}} \right) m_e c^2 + V_{\text{eff}}(\mathbf{r}) \underline{\underline{\mathbb{1}}} + \mu_B \underline{\underline{\beta}} \begin{pmatrix} \underline{\underline{\sigma}}_z & \underline{\underline{0}} \\ \underline{\underline{0}} & \underline{\underline{\sigma}}_z \end{pmatrix} B_{\text{eff},z}(\mathbf{r}) \right) \Psi(\mathbf{r}) = \epsilon \Psi(\mathbf{r}), \quad (30)$$

Die Wellenfunktion Ψ ist nun ein 4 komponenter Spinor, mit jeweils 2 komponenten Spinoren der großen Komponente Φ und kleiner Komponente φ , wobei $\Psi = \begin{pmatrix} \Phi \\ \varphi \end{pmatrix}$. Statt einer vollrelativistischen Rechnung wird eine skalarrelativistische Näherung verwendet, Hierbei werden die relativistischen Effekte ausgenommen der Spin-Bahnkopplung korrekt behandelt, die Eigenlösungen der genäherten Diracgleichung werden dann bzgl. der Quantenzahlen zugehörig zu den Operatoren $\hat{L}^2, \hat{L}_z, \hat{S}^2, \hat{S}_z$ gesucht. Offenkundig ist dies leichter als spingemischte Lösungen direkt zu suchen. Die Güte der Näherung hängt von der Stärke der vernachlässigten Spinbahnkopplung ab, es

ist zu erwarten, dass für schwere Elemente der Fehler größer wird. Die skalarrelativistische Näherung wird nur für die Valenzelektronen, nicht jedoch für die Kernelektronen gemacht. Dies führt zur spingemischten Atomfunktionen

$$\begin{aligned} & \left(\hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}}} \left(-\gamma_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}}) + \frac{\phi_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}})}{2M_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}})c r_{\mathbf{R}}} \sum_i \hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}i}} \hat{L}_{\mathbf{R}i} \right) Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{R}}) |\chi_{\mathbf{R}\alpha}\rangle \right) \\ &= |\Phi_{\mathbf{R}l m \alpha}(\mathbf{r})\rangle. \end{aligned} \quad (31)$$

Analog die Energieableitung

$$\begin{aligned} & \left(i \hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}}} \left(-\dot{\gamma}_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}}) + \frac{\dot{\phi}_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}})}{2M_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}})c r_{\mathbf{R}}} \sum_i \hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}i}} \hat{L}_{\mathbf{R}i} \right) Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{R}}) |\chi_{\mathbf{R}\alpha}\rangle \right) \\ &= \left| \dot{\Phi}_{\mathbf{R}l m \alpha}(\mathbf{r}) \right\rangle, \end{aligned} \quad (32)$$

mit den radialen Funktionen ϕ bzgl. der großen Komponente und γ bzgl. der kleinen Komponente [17]. $\hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}}} = \frac{1}{r_{\mathbf{R}}} \sum_i r_{\mathbf{R}i} \underline{\sigma}_i$ ist die radiale Paulimatrix und $M_{\mathbf{R}l\alpha} = m_e + \frac{1}{2c^2} (\epsilon_{\mathbf{R}l\alpha} - V^\alpha(r_{\mathbf{R}}))$ die verallgemeinerte relativistische Masse, das spinabhängige Potential ist dabei gegeben durch $V^\alpha = V_{\text{eff}}(r_R) + \alpha \mu_B B(r_R)$. Die Energieabhängigkeit der verallgemeinerten Masse wird vernachlässigt (sonst müsste gemäß der Produktregel ein weiterer Summand auftreten). In skalarrelativistischer Näherung ist die Atomfunktion und deren Energieableitung nicht mehr orthonormiert! Die Wirkung des Diracoperators auf die Atomfunktion führt nun zu 2 Termen:

$$\hat{H}_{\text{Dirac}} |\Phi_{\mathbf{R}l m \alpha}(\mathbf{r})\rangle = \epsilon_{\mathbf{R}l\alpha} |\Phi_{\mathbf{R}l m \alpha}(\mathbf{r})\rangle + \hat{H}_{\text{Dirac}}^{\text{SOC}} |\Phi_{\mathbf{R}l m \alpha}(\mathbf{r})\rangle. \quad (33)$$

Die skalarrelativistische Näherung liefert also keine exakte Eigenfunktion des Diracoperators, die Spinbahnkopplung muss wieder hinzugefügt werden. Unter Vernachlässigung der Spinbahnkopplung der kleinen Komponente folgt

$$\begin{aligned} & \hat{H}_{\text{Dirac}}^{\text{SOC}} |\Phi_{\mathbf{R}l m \alpha}(\mathbf{r})\rangle = \\ & \left(\frac{\hbar}{4M_{\mathbf{R}l\alpha}^2 c^2 r_{\mathbf{R}}} \frac{dV^\alpha(\mathbf{r}_R)}{dr_R} \phi_{\mathbf{R}l\alpha}(r_R) \sum_i \hat{L}_{\mathbf{R}i} \hat{\underline{\sigma}}_{\mathbf{R}i} Z_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{\mathbf{R}}) |\chi_{\mathbf{R}\alpha}\rangle \right). \end{aligned} \quad (34)$$

Anmerkungen: Für ein global kollineares Spinsystem sind die Indices \mathbf{R} redundant, eine hermitesche Form des Spinbahnoperators

für Matricelemente vom Typ $\langle \Phi_{l'm'\alpha'} | \widehat{H}_{\text{Dirac}}^{\text{SOC}} | \Phi_{lm\alpha} \rangle$ erhält man, wenn man V^α und $M_{\mathbf{R}l\alpha}$ durch ihre jeweiligen arithmetischen Mittel der betrachteten Spinrichtungen α und α' ersetzt. In diesem Ansatz wurde ad hoc eine relativistische Form eingeführt. Formal korrekter ist es, zuerst [17] vollrelativistisch mit allen Termen einer Stromdichtefunktionaltheorie zu starten und dann die Näherungen durchzuführen, die zur skalarrelativistischen Form führen.

5.4 Phononen

Phononen sind kollektive quantisierte Anregungen des Gitters, die Besetzungszahlen der Phononen werden im thermischen Gleichgewicht durch die Bose-Einstein-Statistik beschrieben, die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren der Phononen $a_{\mathbf{q}\lambda}^\dagger$, $a_{\mathbf{q}\lambda}$ gehorchen den bosonischen Vertauschungsrelationen. Phononen sind also bosonische Quasiteilchen, die den Freiheitsgrad des Gitters beschreiben. Mathematisch gesehen sind die Phononenbesetzungszahlen proportional zu den (Beträgen der) Fourierkoeffizienten der Auslenkungen des Gitters aus der Gleichgewichtslage. Für jedes Atom in einer Einheitszelle gibt es 3 Schwingungsfreiheitsgrade und damit verbunden 3 Normalmoden, die durch 3 Phononenzweige beschrieben werden. Da in der Arbeit nur auf einatomige Einheitszellen eingegangen wird, werden hier immer nur 3 Phononenzweige mit Index λ verwendet. Es handelt sich um akustische Zweige, d.h. für $|\mathbf{q}|$ gegen 0 geht die Phononenfrequenz $\hbar\omega_{\mathbf{q},\lambda}$ gegen 0. Die Phononendispersionen und Polarisationsvektoren sind die gleichen wie sie auch von Illg et. al. [4] verwendet wurden, sie wurden von Bernd Mayer [19] aus Superzellrechnungen mit Hilfe des PWSCF [20] unter Verwendung von Vanderbilt Pseudopotentialen [21] und generalized gradient approximation [22] bestimmt. Die Übereinstimmung der Kraftkonstanten mit den Fits aus experimentellen Daten ist ausgezeichnet [19]. Der Phononenzustand ist in der Arbeit nur durch die Besetzungszahlen bestimmt. Die Phononbesetzungszahlen allein beschreiben jedoch den Phononenzustand nicht vollständig, es fehlt die Information über die Phase zwischen den Moden. Veranschaulichen kann man sich dies im Bild der Phononmoden als klassische Oszillatoren; liegt an einem Wellenvektor \mathbf{q} eine Entartung vor, d.h. mehrere Phononzweige haben die selbe Energie, so folgt, dass sowohl die räumliche als auch die zeitliche Periodizität der beiden Moden identisch ist. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit kann in diesem Fall die eine der entarteten Mo-

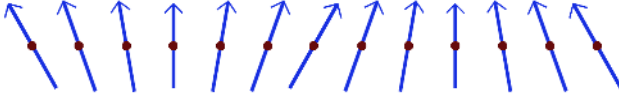


Abbildung 1: Draufsicht auf Spinspirale mit 30 Grad Öffnungswinkel, z-Achse globale Spinquantisierungsachse und $q = \frac{2\pi}{a}(1/6, 0, 0)$, wobei die x-Achse nach rechts, die y-Achse in die Ebene und die z-Achse nach oben zeigt

den als in x-Richtung, die andere hierzu entartete Mode als in y-Richtung angesehen werden, die Lösung an einem Ort ist hierbei $\mathbf{e}_x * konst_1 * (\sin(\omega t)) + \mathbf{e}_y * konst_2 * (\sin(\omega t + \varphi))$. φ beschreibt die Phase zwischen beiden Moden. Sind die Konstanten und die dazu proportionalen Besetzungszahlen identisch, ($konst_2 = konst_1$), dann hat man abhängig von der Phase nun als Extremfälle eine im Uhrzeigersinn rotierende, einen gegen den Uhrzeigersinn rotierende oder nur diagonal in $(\mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y)/2$ sich bewegendende Lösung, die allein durch die Besetzungszahlen ununterscheidbar gewesen wären. Im Sinne der Fourierkoeffizienten Interpretation der Besetzungszahl ist dies vergleichbar mit der Situation, nur die Beträge nicht aber die Phase der Koeffizienten zu kennen. An obigem Beispiel ist ausserdem zu erkennen, dass ein etwaiger Drehimpuls im Phononensystem, wie er bei der im Uhrzeigersinn oder gegen den Uhrzeigersinn rotierenden Lösung vorhanden gewesen wäre (vgl. [23]), sich nicht in den Phononbesetzungszahlen der gewählten Basis linear polarisierter Phononen widerspiegeln kann.

5.5 Magnonen

Magnonen sind kollektive quantisierte Anregungen eines Ferromagneten (Antiferromagneten und Ferrimagneten werden hier nicht behandelt, besitzen jedoch ebenfalls Magnonen als Anregungen). Es sind quantisierte Spinwellen, deren Besetzungszahlen durch die Bose-Einstein-Statistik beschrieben werden. Die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren der Magnonen $b_{\mathbf{q}}^\dagger$, $b_{\mathbf{q}}$ gehorchen den bosonischen Vertauschungsrelationen. Magnonen sind also bosonische Quasiteilchen, die den Freiheitsgrad des Spinsystems senkrecht zur Quantisierungsachse beschreiben. In Analogie zu den Phononen kann man die Magnonbesetzungszahlen als die Fourierkoeffizien-

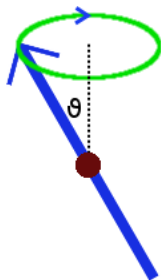


Abbildung 2: Schematische Darstellung des Magnons, mit einem festen Öffnungswinkel ϑ (abhängig von der Besetzungszahl) rotiert die atomare Magnetisierung mit Frequenz $\omega_{\mathbf{q}}$ um die Richtung des globalen Spinerwartungswertes z .

ten der Auslenkungen der atomaren magnetischen Momente aus der Gleichgewichtslage auffassen. Bildlich gesehen (Abbildung 1, 2) kann man sich ein Magnon als in Phasenbeziehung um eine Achse rotierende magnetische Momente vorstellen. Im Gegensatz zu den Phononen hat man es bei einer einatomigen Einheitszelle in einem Volumenkristall nicht mit mehreren Zweigen zu tun. Aufgrund von dipolaren Wechselwirkungen und magnetischer Anisotropieenergien geht für Magnonen für $|\mathbf{q}|$ gegen 0 die Magnonenfrequenz $|\hbar\omega_{\mathbf{q},\lambda}|$ im Allgemeinen nicht gegen 0. Als niederenergetische Anregungen im Vergleich zu den Stoneranregungen bestimmen sie das Verhalten der Magnetisierung bei niedrigen Temperaturen. Das Blochsche Gesetz der temperaturabhängigen Magnetisierung basiert z.B. auf der Berücksichtigung von Magnonen. Auch technologisch werden sie vmtl. bald eine grössere Rolle spielen. Mit dem Aufkommen der Spintronik (für eine Übersicht [24]), die neben dem Ladungsfreiheitsgrad auch den Spinfreiheitsgrad der Elektronen ausnutzt zur effizienten Datenverarbeitung und Speicherung, kam auch das Feld der Magnonik auf, d.h. z.B. logische Gatter, die auf Basis der Magnonen funktionieren [25]. Der Vorteil der Spintronik liegt dabei darin, dass ein Spinstrom im Gegensatz zu einem Ladungsstrom (Supraleiter ausgenommen) nicht zwangsläufig mit einem Aufheizen des Systems verbunden ist, es sind also logische Elemente (oder Speicherelemente) mit niedrigerer Leistungsaufnahme möglich als dies momentan in klassischer Halbleitertechnik möglich wäre. Magnonische Kristalle sind Systeme, deren magnetische Eigenschaften z.B. durch Struktu-

rierung eine bestimmte gewünschte Periodizität aufweisen. Die Periodizität der Potentiale überträgt sich dabei automatisch auf die Magnonmoden, man stellt fest, dass durch die Periodizität nun gewisse Moden verboten sind, es bildet sich eine oder mehrere Bandlücken im Magnonenspektrum. Im Zusammenspiel mit Nichtlinearitäten ist ein magnonischer Kristall somit ein möglicher Ausgangspunkt für logische Magnonengatter [26].

Magnon-Bose-Einstein-Kondensation: Die Forschung an Bose-Einstein-Kondensation ist üblicherweise mit der Realisation extrem tiefer Temperaturen und präziser Kavitäten verbunden. Die experimentelle Realisierung des von Einstein vorhergesagten Effektes [27] führte zum Nobelpreis, siehe z.B. [28]. Bosonische Quasiteilchen in einem Festkörper zur Kondensation zu bringen, scheint eine attraktive Alternative zu sein [29], [30], es ermöglicht bei höheren Temperaturen in einem Festkörper ein Bose-Einstein-Kondensat zu erzeugen. Die experimentellen Bedingungen sind somit um einiges leichter zu schaffen und liefern die Möglichkeit eines Bose-Einstein-Kondensates bei Raumtemperatur. Um ein Bose-Einstein-Kondensat zu erzeugen, muss hierbei die Dichte der Quasiteilchen der zu kondensierenden Mode hoch genug sein. Dabei darf jedoch nicht die Mode selbst kohärent gepumpt werden, sondern eine andere Mode wird gepumpt (z.B. via parametric pumping), diese zerfällt dann durch Magnon-Magnonwechselwirkungen in die Mode der Kondensation. Ist Kondensation erreicht, kann man makroskopische Kohärenz nachweisen und bemerkt eine Verlängerung der Lebensdauer der Mode [31].

5.5.1 Magnondispersionen

Eine Magnonendispersion lässt sich dabei auf mehrere Arten berechnen, zum einen lassen sich auf Basis von Superzellrechnungen [32], [33] “frozen Magnon“ Rechnungen machen, die dem System eine Spinspirale aufprägen. Die Abhängigkeit der Energie des so berechneten Systems vom Öffnungswinkel ϑ der Spinspirale ermöglicht es, die Frequenz der zugehörigen Magnonmode zu bestimmen. Man kann an das System auch ein statisches spiralförmiges Magnetfeld anlegen. Die dadurch induzierten magnetischen Momente ermöglichen es einem, die statische transversale Suszeptibilität zu bestimmen. Daraus gewinnt man die magnetischen Kopplungskonstanten, und durch Lösen der Bewegungsgleichungen für die Momente kann man die Magnonenfrequenzen bestimmen [18]. Präziser wird es, wenn

man statt der statischen transversalen Suszeptibilität die (dynamische) magnetische Suszeptibilität bestimmt (wie z.B. in [34]). Peaks im Imaginärteil der transversalen dynamischen magnetischen Suszeptibilität lassen sich mit Magnonmoden identifizieren. Die Peakposition für einen Wellenvektor \mathbf{q} gibt dabei die Frequenz der Mode an, die Peakbreite gibt Aufschluss über die Lebensdauer der Mode, je breiter der Peak, desto kürzer die Lebensdauer. Anschaulich beschreibt die transversale dynamische magnetische Suszeptibilität, wie ein System auf eine magnetische Anregung senkrecht zur Magnetisierung reagiert. Eine resonante Reaktion des Systems ist mit einem Peak im Imaginärteil verknüpft, der ausdrückt, dass für diese Anregung eine starke Absorption von Energie zu erwarten ist. Hierbei kann man sich vom Analogieschluss zur dielektrischen Suszeptibilität überzeugen lassen, die direkt mit dem komplexen Brechungsindex verknüpft ist, dessen Imaginärteil proportional zur Absorptionswahrscheinlichkeit ist. Eine verständliche Übersicht der verschiedenen Berechnungsmethoden ist in der Doktorarbeit von Manfred Niesert [35] gegeben. In Messungen wird die Magnondispersion z.B. mit Neutronenstreuung [36] oder Brillouinstreuung bestimmt [37].

5.6 Untersuchte Materialsysteme

Im Unterkapitel “untersuchte Materialsysteme“ werden die wichtigsten Eigenschaften der untersuchten Materialsysteme Eisen und Nickel aufgeführt. Die Materialparameter, die hier angegeben sind, gelten für Volumenkristalle. In dünnen Filmen, wie sie in vielen Experimenten vorkommen, sind Abweichungen durch Quantisierungseffekte (durch endliche Grösse), Oberflächen- und Grenzflächeneffekte sowie Defekte zu erwarten.

5.6.1 BCC-Eisen

Body-Centered-Cubic Eisen beschreibt die Symmetrie, in welcher Eisen im Grundzustand vorliegt. In Abbildung 3 ist die konventionelle Einheitszelle des kubischen Systems zu sehen, in Abbildung 4 die zugehörige Brillouinzone mit ausgezeichneten hochsymmetrischen Punkten. Die Gittervektoren sind in Tabelle 1 angegeben.

Folgende Materialparameter sind aus dem Experiment und den Rechnungen zu entnehmen. Die Rechnung 1 beschreibt die Daten für eine 40x40x40 LMTO-ASA Rechnung, Rechnung 2 beschreibt die Daten für eine 30x30x30 LMTO-ASA Rechnung. Man erkennt,

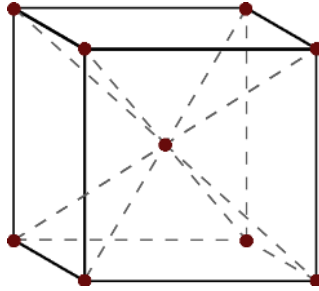


Abbildung 3: bcc-Gitter.

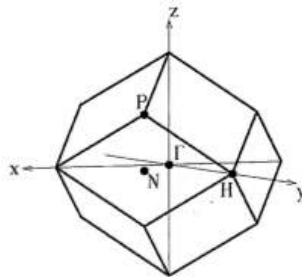


Abbildung 4: bcc-Brillouinzone aus [38].

Tabelle 1: Reale primitive und reziproke Gittervektoren für ein bcc Gitter mit Gitterkonstante a .

real $[a]$	reziprok $[2\pi/a]$
0,5 0,5 -0,5	0,5 0,5 0,0
0,5 -0,5 0,5	0,5 0,0 0,5
-0,5 0,5 0,5	0,0 0,5 0,5

Parameter	experimentell	Rechnung 1/2
Gitterkonstante [pm]	286,65 [39]	287/287
Magnetisches Moment $[\frac{\mu_B}{\text{Atom}}]$	2,07 [40]	2,2679/2,2850
Anteil Spin Moment $[\frac{\mu_B}{\text{Atom}}]$	1,98 [40]	2,2188/2,2259
Anteil Bahnmoment $[\frac{\mu_B}{\text{Atom}}]$	0,086 [40]	0,0491/0,0491
Curie-Temperatur [K]	1043 [41]	-/-
Atom-Gewicht [u]	55,845 [39]	-/-

Tabelle 2: Übersicht der berechneten und gemessenen Materialparameter von Eisen. In den weiteren Rechnungen wurde eine Gitterkonstante von 287pm verwendet.

dass das magnetische Moment der Rechnung zu groß ist und der Bahnanteil stark unterschätzt wird.

5.6.2 FCC-Nickel

Face-Centered-Cubic Nickel beschreibt die Symmetrie, in welcher Nickel im Grundzustand vorliegt, in Abbildung 5 ist die konventionelle Einheitszelle des kubischen Systems zu sehen, in Abbildung 6 die zugehörige Brillouinzone mit ausgezeichneten hochsymmetrischen Punkten. Die Gittervektoren sind Tabelle 3 zu entnehmen.

Tabelle 3: Reale primitive und reziproke Gittervektoren für ein fcc Gitter mit Gitterkonstante a .

real $[a]$	reziprok $[2\pi/a]$
0,5 0,5 0,0	0,5 0,5 -0,5
0,5 0,0 0,5	0,5 -0,5 0,5
0,0 0,5 0,5	-0,5 0,5 0,5

Folgende Materialparameter sind aus dem Experiment und den Rechnungen zu entnehmen, Rechnung 1 beschreibt die Daten für

Parameter	experimentell	Rechnung 1/2
Gitterkonstante [pm]	352,38 [39]	352,4/352,4
Magnetisches Moment [$\frac{\mu_B}{\text{Atom}}$]	0,606 [42]	0,6442/0,6354
Spin Moment [$\frac{\mu_B}{\text{Atom}}$]	0,552 [42]	0,5909/0,5826
Bahnmoment [$\frac{\mu_B}{\text{Atom}}$]	0,051 [42]	0,0534/0,0528
Curie-Temperatur [K]	631 [43]	-/-
Atom-Gewicht [u]	58,6934 [39]	-/-

Tabelle 4: Übersicht der verwendeten und gemessenen Materialparameter von Nickel. In den weiteren Rechnungen wird $a=352,4\text{pm}$ verwendet.

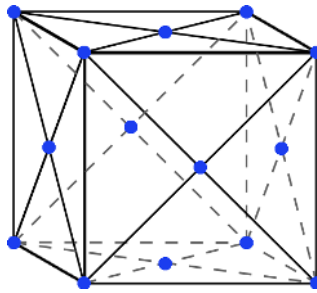


Abbildung 5: fcc-Gitter.

eine $40 \times 40 \times 40$ LMTO-ASA Rechnung, Rechnung 2 beschreibt die Daten für eine $32 \times 32 \times 32$ LMTO-ASA Rechnung.

Man erkennt, dass, wie beim Eisen, das magnetische Moment der Rechnung zu groß ist, im Gegensatz zum Eisen entspricht der Bahnanteil jedoch fast dem Erwarteten. Die Ursachen für die Abweichungen sind unter anderem in der ASA und der spin-only Näherung [orbitale Stromdichte wird in der Einteilchen-Dirac-Gleichung vernachlässigt; dies entspricht einer Vernachlässigung von diamagnetischen Effekten (siehe z.B. Kapitel 2.2.7 in [17])] zu sehen. Eine Full-Potential Rechnung, z.B. mit Elk, führt zu merklich geringerem magnetischen Moment, näher an dem experimentellen Wert.

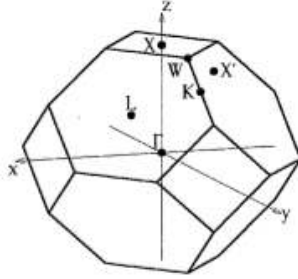


Abbildung 6: fcc-Brillouinzone aus [38].

5.7 Spinmischung

In einem System mit einer bzgl. der Spinquantisierungsachse nichtkollinearen Wechselwirkung sind die Eigenzustände spingemischte Zustände, d.h. sie sind eine Superposition einer Wellenfunktion mit Spinor auf und einer zweiten Wellenfunktion mit Spinor ab. Eine solche nichtkollineare Wechselwirkung stellt z.B. die Spinbahnwechselwirkung dar. In einem realen Festkörper hat man ergo immer spingemischte Eigenzustände.

Die meisten Eigenzustände in einem magnetischen Übergangsmetall haben jedoch einen starken, "dominanten" Spincharakter, d.h., der Betrag des Erwartungswertes des Spinoperators ist nahe dem bei reinen Spinzuständen und damit die Spinmischung klein. Solch ein spingemischter Zustand kann gefolgt beschrieben werden

$$|\Psi_{j,\mathbf{k}}\rangle = a_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) |\chi \uparrow\rangle + b_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) |\chi \downarrow\rangle. \quad (35)$$

Die Spinmischung ist dabei definiert als

$$b_{j,\mathbf{k}}^2 = \min \left(\int d^3r |a_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r})|^2, \int d^3r |b_{j,\mathbf{k}}(\mathbf{r})|^2 \right). \quad (36)$$

Für die Berechnung geeigneter erweist sich folgende Form

$$b_{j,\mathbf{k}}^2 = \frac{1 - \left| \langle \Psi_{j,\mathbf{k}} | \underline{\sigma}_z | \Psi_{j,\mathbf{k}} \rangle \right|}{2}, \quad (37)$$

die sich durch Einsetzen des spingemischten Zustandes und Durchrechnen der beiden Möglichkeiten, die das Minimum annehmen

kann, beweisen lässt. Eine direkte Auswirkung der Spinmischung ist, dass nun eine bzgl. des Spins diagonale Wechselwirkung zu einer Streuung zwischen dominanten Spincharakteren führen kann. In einem solchen Einzelstreuprozess gilt nun im Allgemeinen keine Erhaltung des Erwartungswertes des Drehimpulses! Eine Vielzahl von mikroskopischen Modellen (z.B. jene, welche auf Elektron-Elektronstreuung basieren, siehe Kapitel 5.10) zur Beschreibung der Entmagnetisierungsdynamik basiert, überspitzt formuliert, genau auf jenem Bruch der Drehimpulserhaltung. Es wird dabei implizit immer angenommen, dass der Drehimpuls in andere Freiheitsgrade transferiert wird, ohne diese explizit zu beschreiben. Schneider et. al. zeigen in einer bald erscheinenden Veröffentlichung [44] jedoch, dass für entartete Bänder spindigonale Wechselwirkungen allein in einer quantenmechanisch korrekten Behandlung der Spindynamik nicht zu einer Veränderung des Spindrehimpulses führen können. Wie drastisch diese Einschränkung sich auf einen Ferromagneten auswirkt, ist schwierig zu sagen. Zum einen dephasieren in einem Ferromagneten nicht im Bandindex diagonale Beiträge zum Erwartungswert des Spins aufgrund fehlender Entartung. Zum anderen existieren, wie in [44] gezeigt, "Mischterme" die aus spindigonalen und nichtspindigonalen Wechselwirkungen bestehen und definitiv zur zeitlichen Veränderung des Spindrehimpulses beitragen.

In Modellrechnungen wird häufig nur eine gemittelte Spinmischung berücksichtigt [45, 46, 47], diese hängt sinnvollerweise vom betrachteten Streuprozess und den damit verknüpften Zuständen (insbesondere dem damit verbundenen Energiebereich) ab. Es zeigt sich [48], [49], dass gemittelte Grössen, wie z.B. eine Magnetisierungs- oder Temperaturänderung als Ergebnis einer Ratengleichung, die viele Streuungen berücksichtigt, tatsächlich in vernünftiger Übereinstimmung mit den exakten Rechnungen durch eine gemittelte Spinmischung genähert berechnet werden können.

5.8 Ultraschnelle Entmagnetisierung (im Experiment)

Das typische Experiment besteht aus einem fs Laser, der eine magnetischen Probe anregt. Diese magnetische Probe besteht aus einem dünnen magnetischen Film (im Folgenden ferromagnetisches Eisen oder Nickel angenommen), der mit einer Deckschicht, welche die Degradierung des magnetischen Filmes an der Luft ver-

hindern soll, bedeckt ist. Unter dem magnetischen Film befindet sich dann ein Substrat (das im Folgenden als isolierend angenommen werden soll, wie z.B. MgO). Die Folge jener Anregung ist eine beobachtbare Entmagnetisierung, die in der Größenordnung von 100 fs geschieht und eine Remagnetisierung, die in der Größenordnung von einigen 10 bis 100 Pikosekunden passiert. Das typische Experiment ist dabei ein “pump-probe“ Experiment, das heißt, es wird mit einem Laserpuls angeregt (pump) und dann der Zustand mit einem gewissen Zeitversatz zum Laserpuls (delay) vermessen (probe). Zur Beobachtung der ultraschnellen Entmagnetisierungsdynamik werden insbesondere MOKE [50] (magneto-optischer Kerr-Effekt), XMCD (röntgenmagnetischer zirkularer Dichroismus)[51] und Photoelektronenspektroskopie [52] betrieben. Zusätzlich können via “second harmonic generation“ [53] oder Photoemission der Elektronen aus Oberflächenzuständen Informationen über Grenzflächen- und Oberflächendynamik gewonnen werden. Seit der Entdeckung der ultraschnellen Entmagnetisierung 1996 wurden zahlreiche denkbare Einflüsse auf das Magnetisierungsverhalten experimentell und theoretisch untersucht. Dazu wurde eine Vielzahl von Materialsystemen untersucht, darunter Mehrschichtsysteme[54], Nanostrukturen [55], [56], Heusler alloys[57], Ferrimagneten ([58] Theorie, Referenzen darin auch Experimente) und Anti-Ferromagneten [59]). Neben dem Material selbst wurde auch der Einfluss der Filmdicke untersucht (z.B. Auflistung in [60]) und die Abhängigkeit von Pulsparametern bestimmt (Dauer [61], Stärke [62], [Wellenlänge, es ist schwierig die absorbierte Fluenz und Pulsdauer unabhängig zu wählen, das Absorptionsprofil ändert sich zwangsläufig], Polarisation [63]). Zur Untersuchung von Transportprozessen hat man den Einfluss verschiedener Substrate (isolierend, leitend [64]) untersucht. Der Einfluss der Umgebungsparameter (Umgebungstemperatur [62], Magnetfeld ([65] [ebenfalls ultraschnell und optisch aber “ultrafast enhancement of ferromagnetism“]), Druck [66] [Theoriearbeit]) wurde ebenfalls analysiert und vermessen. Selbst die Gültigkeit der verwendeten Messmethoden in der fs-Zeitskala für starke Anregungen wurde untersucht [67], um die richtige Interpretation der gemessenen Ergebnisse zu gewährleisten.

Eine vollständige Übersicht über alle Arbeiten zur ultraschnellen Entmagnetisierung zu geben, übersteigt dabei den Rahmen dieser Doktorarbeit. Ein Bild der Fülle an experimentellen und theoretischen Arbeiten auf dem Gebiet der ultraschnellen Entmagnetisie-

rung kann man sich z.B. anhand von [68] machen. Für das in der Arbeit betrachtete System werden, abhängig von der Umgebungstemperatur, in Nickel 2 Typen von Entmagnetisierungsdynamik beobachtet [62]. Im Fall Typ I kann der Abfall der Entmagnetisierung durch eine charakteristische Zeit beschrieben werden, für Typ II hingegen benötigt man 2 charakteristische Zeiten, um die Entmagnetisierung zu beschreiben. Da das Entmagnetisieren immer mit einem Transport von Drehimpuls einhergeht, ist die Beschreibung der Entmagnetisierung immer die Frage, in welche Kanäle der Drehimpuls im gemessenen System transferiert wird.

5.9 Drehimpulserhaltung im Experiment

Sobald ein geladenes Teilchen einen Drehimpuls besitzt, erzeugt es ein magnetisches Moment gegeben durch

$$\begin{aligned} \mu_{\text{Teilchen}} = & \frac{q_{\text{Teilchen}}}{2m_{\text{Teilchen}}c} (g_{\text{Teilchen}}^s \cdot \langle \mathbf{s}_{\text{Teilchen}} \rangle \\ & + g_{\text{Teilchen}}^l \cdot \langle \mathbf{l}_{\text{Teilchen}} \rangle). \end{aligned} \quad (38)$$

Um die Entmagnetisierungsdynamik zu verstehen, muss man darum die Drehimpulsdynamik zwischen den Subsystemen kennen. Die Drehimpulserhaltung ist einer der wichtigsten Erhaltungssätze in der Physik überhaupt. Sein Symmetrieäquivalent im Sinne des Noether Theorem [69], [70] ist die Invarianz physikalischer Gesetze gegenüber Rotation. Dies ist der Fall für ein isotropes System, bzw. in der Theorie ein isotroper Hamiltonian. Im Entmagnetisierungsexperiment ist die Frage der Drehimpulserhaltung komplizierter (eine Diskussion der Drehimpulserhaltung ist z.B. in [71] zu finden), es geht darum, wie präzise der Drehimpuls im **vermessenen** System erhalten ist! Eine exakte Erhaltung des Drehimpulses kann nicht gefordert werden, da das System, das man vermisst, an die Umgebung gekoppelt ist. Eine typische Probe ist ein dünner Film auf einem dickeren Substrat, das selbst auf einem Probenhalter befestigt ist. Auf dieser Probe wird ein bestimmter Bereich über den Laserpuls angeregt und ein bestimmter Bereich innerhalb des angeregten Bereiches vermessen. Ausgenommen “exotischer“ Freiheitsgrade, wie z.B. dem Graviton (hypotetisches Spin 2 Teilchen [siehe [72] Kapitel bzgl. Gravitationswellen, deren potentielle Detektion und Anregung]), ist der

Gesamtdrehimpuls des Systems dabei gegeben durch :

$$J^{\text{gesamt}} = J^{\text{Elektron}} + J^{\text{Phonon}} + J^{\text{Photon}} + J^{\text{Kern}} + J^{\text{Koppl}} \\ + J^{\text{Defekt}} + J^{\text{Starr}} \quad (39)$$

J^{Elektron} ist dabei der Gesamtdrehimpuls des Elektronensystems, dieser setzt sich zusammen aus den Spin- S^{el} und Bahndrehimpulsen L^{el} der Elektronen. Im Rahmen der Arbeit wird eine näherungsweise Aufspaltung des Elektronendrehimpulses $J^{\text{Elektron}} \approx J^{\text{Elektron}}_{\text{Einzel}} + J^{\text{Elektron}}_{\text{Kollektiv}}$ in Einzelelektronensystem und kollektive Anregungen gemacht. Die kollektiven Anregungen können dabei Quasiteilchenanregungen wie Magnonen, Excitonen und Plasmonen sein, generell wären jedoch auch nichtlineare Anregungen, Solitonen, im System der Elektronen denkbar, die einen von null verschiedenen Drehimpuls tragen.

J^{Phonon} ist der Gesamtdrehimpuls des Phononensystems. Obwohl der Erwartungswert des Drehimpulses für jede linear polarisierte Phononmode null ist, kann das Phononensystem im Gesamten einen Drehimpuls tragen. Mc Lellan konstruierte [23] eine Basis zirkular polarisierter Phononen durch eine Superposition entarteter linear polarisierter Phononmoden und erhielt eine Basis von Phononmoden mit definiertem nicht verschwindendem Drehimpuls. Eine Drehimpulsinformation, die in den linear polarisierten Moden in den "Korrelationstermen" versteckt war, war damit durch die Besetzungszahlen beschreibbar. Für ein reales Phononsystem jedoch kann nicht prinzipiell von entarteten Moden ausgegangen werden. In Anwesenheit eines Magnetfeldes sind die Eigenmoden des Systems jedoch "magnetoelastische Moden". Im Rahmen einer Beschreibung mit Hilfe der Spin-Phonon-Wechselwirkung [73] existieren nun Eigenmoden des Systems, die den Freiheitsgrad der Phononen beschreiben und gleichzeitig einen von Null verschiedenen Erwartungswert des Drehimpulses haben. Mathematisch gesehen entsteht dieser durch Symmetriebrechung im Phonon-Hamiltonian, in dem nun ein Term existiert, der explizit vom Phonondrehimpuls abhängt, dies ist analog zur Spin-Bahnkopplung, die den Elektronen im Festkörper einen endlichen Erwartungswert des Orbitalmomentes ermöglicht. Obwohl in vielen Theorien implizit davon ausgegangen wird, dass das Gitter eine perfekte Senke für den Drehimpuls darstellt, liefern erst die Rechnungen von T. Tsatsoulis [74] eine mögliche Grundlage des direkten Nachweises des Drehimpulsübertrages aufs Gitter,

bisher wurde dies immer nur angenommen. Chudnovski [75] konnte zeigen, dass man im Rahmen eines isotropen Systems Phononmoden als wohldefinierte Eigenmoden des Drehimpulsoperators wählen kann, die so definierten Moden erhalten den Drehimpuls in der Spin-Phononwechselwirkung. Die darin enthaltene Annahme einer isotropen Dispersion erweist sich für kristallines Nickel und Eisen jedoch als falsch (vergleiche z.B. Dispersionrelationen in [19]).

J^{Photon} ist der Gesamtdrehimpuls des Photonensystems, er spaltet sich wieder auf in einen Photonenspin, dessen Projektion auf die Quantisierungsachse durch die Polarisation des Lichtes bestimmt ist, und einen Bahndrehimpuls, der aus dem elektromagnetischen Feld bestimmt werden kann. Die Drehimpulsdichte ist dabei $\mathbf{l}_{\text{elektromagn}} \propto \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B})$ [76] und kann somit berechnet werden. Für die ultraschnelle Entmagnetisierung war nur ein vernachlässigbarer Einfluss der Polarisation des anregenden Lichts [63] auf die Entmagnetisierungsdynamik zu beobachten. Die Anzahl der Photonen, die vom System absorbiert werden, ist stark vom Experiment abhängig, typisch sind zwischen ca. 0,01 und 0,2 pro Atom (in der obersten Schicht) [77]. Selten kommt es auch bis zu ca. einem absorbierten Photon pro Atom (in der obersten Schicht) [77]. Der dabei mögliche Drehimpulsübertrag der Photonen ist im typischen Experiment vmtl. zu klein, um die beobachtete Entmagnetisierung allein auf Drehimpulsübertrag der Photonen zurück zu führen. Das von der Probe emittierte Licht (THz-Strahlung) ist linear polarisiert [78] und trug, soweit bekannt, keinen merklichen Bahndrehimpuls. Die Änderung des Photonendrehimpulses im System ist also klein im Falle des ultraschnellen Entmagnetisierungsexperimentes.

J^{Kern} beschreibt den Gesamtdrehimpuls des Kernsystems ausgenommen der kollektiven Anregungen, der Phononen. Dazu zählt das System der Kernspins, dieses koppelt via Hyperfeinkopplung an die Elektronen. Die Wechselwirkung wird im allgemeinen als zu "schwach" angesehen, um in 100 fs merklich zur Entmagnetisierung beizutragen. Dem Autor ist kein Entmagnetisierungsexperiment bekannt, das isopenreine Proben unterschiedlicher stabiler Isotope auf ihren Unterschied im Entmagnetisierungsverhalten untersucht hätte. Dabei wäre neben der Hyperfeinkopplung auch die Elektron-Phononkopplung verändert worden, durch die unterschiedliche Masse der Isotopen. Die mögliche Änderung des Kernspins wird darum im Folgenden immer vernachlässigt. Zusätzlich denkbar wäre ein Kopplung an den Rotationsfreiheitsgrad der Ker-

ne (wie z.B. durch elektrische Quadrupolanregung nicht rotations-symmetrischer Kerne [79]) . Dieser potentielle Beitrag wird ebenfalls vernachlässigt und in keiner dem Autor bekannten Entmagnetisierungstheorie berücksichtigt.

J^{Kopplung} beschreibt Drehimpulsterme von Zuständen und Anregungen, die nicht eindeutig einem der vorherigen Systeme zugeordnet werden können, ein Polariton würde z.B. in diese Gruppe fallen.

J^{Defekt} : Im Falle eines strukturellen Defektes, mag eine Anregung des Defektes Drehimpuls tragen, der nicht durch die restlichen hier erwähnten Terme beschrieben würde. Ein chemischer Defekt (Verunreinigung) würde im Rahmen dieser Bilanz einen elektronischen oder phononischen Beitrag liefern. Hier ist dieser Beitrag nur der Vollständigkeit halber erwähnt und wird ansonsten vernachlässigt.

J^{Starr} beschreibt den Drehimpuls des starren Körpers, vorstellbar als kollektive Rotation aller Bestandteile der Probe um eine Achse. Diese Vorstellung hat 2 Haken, zum einen ist die Probe befestigt und der starre Körper, den man letzten Endes zu betrachten hätte, wäre in guter Näherung die Erde, samt Labor, Probenhalter und Probe. Der zweite Haken ist, dass es keinen relativistischen starren Körper gibt. Auf einer Zeitskala von wenigen 100 fs ist der Bereich, in dem es zur "starren" Rotation kommen kann, stark begrenzt. Es wäre potentiell denkbar, dass ein Teil der Probe zum Rest der Probe eine Scherung ausbildet, in der ein Drehimpuls steckt. Hinge die Probe frei, könnte sich die ausbildende Scherung in eine Rotation vergleichbar derer im Einstein-De-Haas Experiment [80] der Probe übertragen. Für die Drehimpulserhaltung darf der in [75] als $\mathbf{L}^{(1)}$ Beitrag, auch wenn er nur lokal von 0 verschieden ist, nicht vernachlässigt werden (siehe [75]).

5.10 Kopplungen und Drehimpulsüberträge zwischen den Systemen

Um die Dynamik der Entmagnetisierung korrekt zu berechnen, müsste die Zeitentwicklung eines Hamiltonians, der alle Wechselwirkungen berücksichtigt, berechnet werden. Dazu müssen zwangsläufig Näherungen gemacht werden, da in der Zeitentwicklung des Erwartungswertes eines Operatorproduktes der Ordnung n immer mindestens Terme der Ordnung $n+1$ gefunden werden. Zur Lösung muss jedoch eine genäherte, geschlossene Form gefunden werden um ei-

ne endliche Rechenzeit zu ermöglichen. Unter Vernachlässigung der Kopplungen zum System J^{Kern} und J^{Koppl} ergeben sich folgende Streuungen, die entweder direkt die Magnetisierung des Systems ändern können oder zumindest die Dynamik der Besetzungszahlen und damit indirekt die Magnetisierung.

Elektron-Elektronstreuung: Sie ist die stärkste Wechselwirkung im betrachteten System, die zur Entmagnetisierung beitragen kann, leider ist sie auch die am schwierigsten zu berechnende. Mit Rechnungen mit dynamischer Bandstruktur und Elektron-Elektronstreuung sowie einer endlichen Spinflipwahrscheinlichkeit [81], [48] gelingt es, die Entmagnetisierungsdynamik zu beschreiben. Bisherige Modellrechnungen werden momentan von Herrn Müller mit ab-initio Rechnungen verglichen und bisher scheint es, dass die ab-initio Rechnungen die Ergebnisse der Modellrechnungen bestätigen [82]. Hauptproblem der "reinen" Elektron-Elektronstreuung ist, dass der Drehimpuls durch die Streuung streng genommen im Elektronensystem verbleiben müsste. Da hierbei Spindrehimpuls in Bahndrehimpuls umgewandelt werden kann, scheint maximal eine Entmagnetisierung auf die Hälfte möglich, unter vollständiger Umwandlung des Spindrehimpulses in Bahndrehimpuls. Numerisch jedoch kann die Boltzmannratengleichung zur vollständigen Entmagnetisierung durch Elektron-Elektronstreuung führen, der Grund ist im Kapitel zur Spinmischung 5.7 angeführt.

Elektron-Phononstreuung: In einem Punkt sind sich fast alle einig, der Drehimpuls muss, wenn er nicht über Transportprozesse wie superdiffusive Spin-Transport [83] aus dem vermessenen Bereich "fließt", ans Gitter übertragen werden. Rechnungen jedoch zeigen, dass die Elektron-Phononstreuaten (zu) klein [84, 4] sind, um die beobachtete Entmagnetisierung zu erklären. Selbst mit dynamischer Bandstruktur wird zu wenig [49] elektronischer Drehimpuls abgeführt, um den Prozess zu erklären (Hinweise sind unter anderem auch in den Nichtgleichgewichtsstreuaten in [85] und Rechnungen mit reduzierter Austauschkopplung [4] zu sehen).

Elektron-Magnonstreuung: Nach Carpene [86] kann Elektron-Magnonstreuung allein die ultraschnelle Magnetisierung erklären, dazu wird mit Hilfe der Spin-Bahnkopplung elektronisches Spinmoment in elektronisches Bahnmoment überführt, welches dann unverzüglich vom Gitter "gequencht" wird. Akzeptiert man zunächst einmal, dass das unverzügliche Quenching aus irgendwelchen Gründen schnell genug stattfindet, dass es zu keinem messbaren Anstieg des

Orbitalmomentes kommt (gemessen wurde eine Abnahme auf der gleichen Zeitskala [87], wobei das Orbitalmoment sogar noch etwas schneller abnahm), so schien das Modell doch Anlass genug für das Thema dieser Doktorarbeit zu sein, in der die Rolle der Magnonen in der ultraschnellen Entmagnetisierung untersucht werden soll.

Magnon-Phononstreuung: Kopplungen zwischen Magnonen und Phononen existieren in niedrigster Ordnung (und sind damit am stärksten), wenn sich die Dispersionsrelationen schneiden. In diesem Fall kann ein Magnon absorbiert und ein Phonon emittiert werden, oder ein Phonon absorbiert und ein Magnon emittiert werden. Dies beeinflusst potentiell die Dynamik der Magnetisierung, wird jedoch üblicherweise für unbedeutend im Rahmen der ultraschnellen Entmagnetisierung gehalten, obwohl es eine der wichtigsten Relaxationsmechanismen für Anregungen in Ferromagneten ist [88]. In Gd z.B. konnten gekoppelte Magnon-Phononmoden gemessen werden [89]. Die Kopplung der Moden erwies sich dabei als bedeutend stärker als durch Spin-Bahnkopplungseffekte erwartet. Die Ursache der starken Kopplung ist in diesem Fall die Abstandsabhängigkeit der Austauschwechselwirkung. Mit Hilfe von Messungen und Rechnungen sollte die Rechtfertigung der Vernachlässigung der Magnon-Phononkopplung (abhängig vom Materialsystem) überprüft werden, da wie im erwähnten Fall von Gd auch unerwartete Ergebnisse und damit ein merklicher Einfluss denkbar sind. So konnte z.B. in erst kürzlich publizierten Experimenten [90] mit Hilfe von akustischen Pikosekunden Pulsen in Nickel die Magnetisierung gezielt manipuliert werden. Die darin beschriebene erzielte Präzession der Magnetisierung ist unter anderem auf Magnon-Phononkopplung zurück zu führen.

Elektron-Photonstreuung: Die Absorption des Laserpulses erzeugt die Anregung, die letzten Endes für die Entmagnetisierung verantwortlich ist. Typischerweise wird diese in Dipolnäherung berechnet [91]. Das angeregte System emittiert dann auch wieder Photonen, diese sind jedoch typischerweise in einem anderen Frequenzbereich (Terahertzstrahlung [78],[92]) . Die Elektron-Photonstreuung ermöglicht die Entmagnetisierung, sie beeinflusst die Dynamik und die Magnetisierung.

Optomagnetische Effekte: Zusätzlich zur schlichten Absorption der Photonen bieten Photonen als quantisierte elektromagnetische Wellen durch ihr Feld die Möglichkeit, das System zu beeinflussen. Ein berühmtes Beispiel hierfür ist der inverse Faraday-Effekt

[93], [94]. Polarisiertes Licht induziert im Material Ströme, die ihrerseits wieder ein B-Feld erzeugen. Dies entspricht der Umkehrung des Faraday-Effektes, der die Rotation der Polarisationssebene von polarisiertem Licht im Magnetfeld beschreibt. Zusätzlich zum Faraday-Effekt gibt es noch den MCD (magnetic circular dichroism) Effekt, die Absorption von Licht in einem magnetischen Medium ist abhängig von der Polarisierung des Lichtes.

Photon-Phononstreuung: Prinzipiell können durch den anregenden Laserpuls auch direkt Phononen angeregt werden. Da die betrachteten Materialien Eisen und Nickel keine optischen Phononen besitzen (ein-atomige Basis) ist nicht von einem Schnittpunkt der Dispersionsrelationen von Photonen und Phononen auszugehen. Der dominante Prozess wäre also nichtlinear, vorstellbar z.B. ein Ramanprozess, der Phononen emittiert oder absorbiert in Zusammenhang mit der Wechselwirkung mit Licht. Im Folgenden wird dieser Prozess vernachlässigt. Bedenkt man die potentiell erzeugten starken elektromagnetischen Felder kann man darüber spekulieren, dass die Spin-Phononwechselwirkung durch die Wirkung des Laserpulses verstärkt wird.

Photon-Magnonstreuung: Wie z.B. im parametric Pumping [95] ist es möglich, durch Absorption von elektromagnetischen Wellen Magnonen im System zu erzeugen. Den höchsten Wirkungsquerschnitt hat man, wenn man resonant anregt, wobei die Frequenz des Lichtes dem Doppelten der anzuregenden Magnonmode entspricht. Dies ist bei der typischen Photonenergie eines ultraschnellen Entmagnetisierungsexperimentes im eV Bereich nicht der Fall. Auch diese Wechselwirkung wird im Folgenden vernachlässigt, beeinflusst jedoch potentiell Dynamik und Magnetisierung.

Anharmonizitäten:

Magnon-Magnonstreuungen sorgen für eine Relaxation der Magnonenverteilung in die thermische Gleichgewichtsverteilung, desweiteren werden durch die Magnon-Magnonwechselwirkung die Magnonenenergien renormiert. Aufgrund von Drehimpulserhaltung muss hierbei die Magnonenzahl erhalten werden, in niedrigster Ordnung ergibt sich also eine 4 Teilchenstreuung. Wichtig sind Magnon-Magnonstreuungen z.B. in Magnonics Experimenten [96]. Im Rahmen der ultraschnellen Entmagnetisierung beeinflussen sie potentiell die Dynamik.

Phonon-Phononstreuungen sorgen für eine Relaxation der Phononenverteilung in die thermische Gleichgewichtsverteilung. Dabei kann

es, unter anderem, zu einer Umverteilung des Drehimpulses von Phononmoden mit endlichem q -Vektor zur kollektiven Rotation führen, wie im Einstein-De-Haas Experiment [80]. Somit wird potentiell die Entmagnetisierungsdynamik von Phonon-Phononstreuungen beeinflusst.

Prozesse höherer Ordnung: Sie beschreiben die “gleichzeitige“ Wechselwirkung einer größeren Anzahl an Teilchen. Sie werden vernachlässigt.

Elektron-Defektstreuung: Defekt ist ein weitgefasster Begriff, hier beschreibt er eine strukturelle oder chemische Inhomogenität, welche die Gitterperiodizität stört. Streuung an den Defekten ist prinzipiell in der Lage, Drehimpuls aus dem Elektronensystem auf die Defekte zu übertragen. Die Rolle von chemischen Inhomogenitäten in all optical switching Experimenten kann den Transport von Drehimpuls in der Ebene stark vergrößern [97]. Für ultraschnelle Entmagnetisierungsexperimente an ferromagnetischen Materialien zeigte sich kein starker Einfluss chemischer und struktureller Defekte im Experiment [98], [99]. Ausserdem - sieht man die Oberfläche und Grenzfläche des Filmes als Defekt an. so zeigt sich, dass an ihnen eine erhöhte Spinflipwahrscheinlichkeit [54], [100] vorliegt. Dies liegt daran, dass die Spinbahnkopplung bei Bruch der Inversionssymmetrie merklich verstärkt wird, z.B. Rashbaeffekt in 2D Systemen [101].

Transport: Ein Transport von beliebigen Teilchen und Quasiteilchen ist prinzipiell möglich, dabei kann Drehimpuls aus dem vermessenen System entfernt werden. Ein prominentes Beispiel dazu ist die (Super)diffusion [83]. Heiße angeregte Elektronen verlassen das System ins Substrat. Größere elektrische Ströme fließen hierbei nicht, denn die Coulombkraft wirkt einer zu großen Ladungsseparation entgegen, die Ströme sind jedoch spinpolarisiert aufgrund der unterschiedlichen Zustandsdichten und freien Weglängen für Ladungsträger verschiedener Spins. Aufgrund des Paulischen Ausschlussprinzipes verursachen Streuungen zwischen Elektronen mit unterschiedlichem Spin (da sie sich “näher“ kommen können) einen höheren Impulsübertrag als Streuung zwischen Elektronen mit gleichem Spin. Ein hoher Impulsübertrag führt dabei wahrscheinlicher zum Wechsel der “Richtung“ (u.A. Umklappprozesse). Dies führt zu unterschiedlichen Streuzeiten für Majoritätsladungsträger und Minoritätsladungsträger, inwiefern dieser Effekt die mittlere freie Weglänge beeinflusst, hängt maßgeblich von der Bandstruktur ab. Wichtig ist dabei dann der effektive Spinstrom, der sowohl von

der spinabhängigen mittleren freien Weglänge als auch von der Zustandsdichte am chemischen Potential abhängt. Für Eisen hat man mehr Majoritätsladungsträger an der Fermikante [102], in Nickel hingegen mehr Minoritätsladungsträger an der Fermikante [102]. Die Lebensdauern der Zustände [103],[104] sind für Eisen erstaunlich spin-unabhängig, für Nickel weichen sie maximal um einen Faktor 2 ab. Eine direkte quantitative Aussage erweist sich als schwieriger, am Beispiel einer Nickelschicht auf einer Eisenschicht im Rahmen eines ultraschnellen Entmagnetisierungsexperimentes zeigt sich, dass der quantitative Beitrag des Spintransportes zwischen Eisen und Nickel in verschiedenen Experimenten [105], [106] doch “sehr unterschiedlich“ durch Messung bestimmt werden kann.

Zur Einschätzung des Transportes von Drehimpuls in der Ebene des Films und senkrecht dazu müssen die Geschwindigkeiten der Teilchen und die Längenskalen der Probe berücksichtigt werden. Abschätzungen sind der Tabelle 5 zu entnehmen. Die Filmdicke var-

Teilchen	Geschwindigkeit	max. Distanz in 100 fs
Elektron	$v_{\text{Fermi}}^{\text{Eisen}} \approx 1,98 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ [107]	198nm
Phonon	$v_{\text{Schall}}^{\text{Eisen long.}} \approx 5920 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ [39]	0,59nm
Magnon	$v_{\text{Magnon}}^{\text{Eisen}} \approx 26 \cdot 10^3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ [108]	2,6nm

Tabelle 5: Übersicht der maximalen (Gruppen-) Geschwindigkeiten der auftretenden Teilchen und damit verbunden ihre maximal zurückgelegte Distanz in 100 fs.

riert in Experimenten ca. zwischen wenigen Monolagen und 40nm (eine gute Übersicht findet man in [60]). Eine typische Domäne hat eine Ausdehnung von der Größenordnung 140nm [109], ein typischer Anregungspot hat die Größenordnung von μm (wobei das untere Limit durch den maximalen Fokus bedingt ist, der von der Wellenlänge der Anregung abhängt), vermessen wird dann ein Bereich, der, abhängig von der Messmethode, ebenfalls wenige μm an Durchmesser oder nur einige nm an Durchmesser groß ist. Während Transport zwischen Übergangsmetallfilm und Substrat für Elektronen, Phononen und Magnonen (eingeschränkt, da sie ein magnetisches Medium brauchen) möglich ist, ist in der Filmebene, wenn überhaupt, nur der Transport schneller Elektronen von Belang, ein Aufweichen der Domänenwände wurde jedoch beobachtet [109].

Im Rahmen der Arbeit wird mit Messungen einer Probe auf iso-

lierendem Substrat (z.B. MgO) verglichen, in diesem Fall ist der Transport spin-polarisierter Elektronenströme in das Substrat hochgradig unterdrückt. Es soll jedoch zur Spinakkumulierung an der Grenzfläche kommen [110], was die Streuraten an den Grenzflächen stark verändern kann.

Der Bereich um eine Domänenwand, in dem es zur Spinakkumulierung kommt, konnte aus der experimentellen Änderung des Strukturfaktors auf ca. 20nm um die Domänenwand abgeschätzt werden. Der Grund für die Akkumulierung liegt darin, dass Elektronen, die in der einen Domäne dominanten Spincharakter besitzen und damit aus den selben Gründen wie der Betrachtung der Superdiffusion eine höhere freie Weglänge haben und die Domänenwand passieren, nun einen Minoritätsspincharakter haben und mit der damit verbundenen kürzeren freien Weglänge quasi festsitzen. Die typischen Domänengrößen hängen natürlich stark von der betrachteten Probe ab, für eine Kobaltpladiumprobe und für eine Kobaltplatinmehrschichtenprobe mit typischer Domänengröße von 140nm [109] konnte im Rahmen der Messgenauigkeit kein merklicher Einfluss durch Superdiffusion in der Probe ermittelt werden, es ist unklar inwiefern diese Aussage sich verallgemeinern lässt, ein Einfluss wird sicherlich auftauchen, sobald die Domänengrößen in der Größenordnung des Akkumulierungsbereiches liegen, für sehr kleine Domänen (80nm) wurde z.B. eine schnellere Entmagnetisierung beobachtet [111], die vmtl. auf Superdiffusion in der Ebene zurückgeführt werden kann.

Inhomogenität im System: Mit der optischen Anregung werden Symmetrien im System gebrochen, dies geschieht zum einen z.B. durch das optomagnetische Feld, welches im Allgemeinen nicht gerade so anliegt, dass die durch die Magnetisierungsrichtung und Filmorientierung schon definierten Symmetrien erhalten bleiben. Zum anderen sorgt der Abfall der Laserintensität mit der zunehmenden Eindringtiefe dafür, dass das elektronische System schichtweise (unter Vernachlässigung der inplane Anisotropie der Anregung) verschieden angeregt ist. Als Resultat hat man hiermit unter anderem die Inversionssymmetrie geschwächt und die Bandstruktur geändert, ersteres kann die Spinbahnkopplung stärken [101], was die Spinflipwahrscheinlichkeit erhöht, zweiteres den Phasenraum für etwaige Streuungen verändern und u.U. vergrößern.

5.11 Modelle zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung

5.11.1 Direkte Licht-Materie-Wechselwirkung

Da der Laserpuls die Entmagnetisierung verursacht, scheint es naheliegend, die Entmagnetisierung auf die direkte Wechselwirkung des Laserlichts und der Elektronen des dünnen magnetischen Filmes zurückzuführen [112]. Zusätzlich zu einem direkten Drehimpulsübertrag wurden dabei auch Beiträge weiterer ultra-relativistischer Effekte [113] in der Licht-Materie-Wechselwirkung diskutiert. Gegen die Wechselwirkung des Laserlichts mit den Elektronen als alleinige Ursache der Entmagnetisierung spricht zum einen, dass ein großer Teil der Entmagnetisierung nach dem Laserpuls stattfinden (siehe z.B. [45], Abbildung 3) kann. Der Betrag des direkt übertragenen Drehimpulsen von den Photonen auf die Elektronen ist wie in 5.9 im Unterpunkt Photonen erläutert, vmtl. zu klein um alleine die Entmagnetisierung zu verursachen. Insbesondere ist die ultraschnelle Entmagnetisierung nahezu unabhängig von der Polarisation des eingestrahnten Lichtes [63], was ebenso gegen das Modell eines direkten Drehimpulsübertrages spricht, welcher stark von der Polarisation des eingestrahnten Lichts abhängen sollte. Die Beiträge der ultra-relativistischen Effekte konnten außerdem als zu klein (ca. 0,1%) abgeschätzt werden [114]. Unabhängig davon ist der Laserpuls, als Anregung, natürlich Bedingung dafür, dass es überhaupt zur ultraschnellen Entmagnetisierung kommt. Inwiefern die Dipolauswahlregeln in Kombination mit der Anregung von Elektronen aus den 3d Zuständen zu einer temporären Reduktion der Austauschkopplung [115, 116, 117] führen können, ist unsicher. Es sei anzumerken, dass die Autoren der Arbeit [77] jedoch im Rahmen einer störungstheoretischen Rechnung an einem Modellsystem zeigten, dass im Falle einer resonanten Anregung, was, laut ihnen, für Nickel sehr wahrscheinlich der Fall sei, selbst kleine Laserfeldintensitäten dazu ausreichen, große Spinänderungen hervorzurufen. Das letzte Wort scheint also noch nicht gesprochen zu sein.

5.11.2 Das mikroskopische 3-Temperaturmodell

Koopmans et. al. [45] entwickelten im Jahre 2011 ein “mikroskopisches” 3-Temperaturmodell zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung. Die Probe wurde dabei künstlich in 3 Subsysteme auf-

geteilt, das Ladungssystem der Elektronen, das Spinsystem und das Phononensystem, die als thermodynamische gekoppelte Systeme behandelt werden. Die direkte Kopplung zwischen Spin- und Phononensystem wurde dabei als zu langsam/schwach vernachlässigt. Die Kopplungsparameter zwischen den Phononen und den Elektronen waren dabei gemittelte Parameter, die Spinflipwahrscheinlichkeit wurde durch einen ab-initio bestimmten Spinmischungsfaktor gemittelt mitgenommen (wobei der Proportionalitätsfaktor gefittet wurde) und die spezifischen Wärmen dem Experiment entnommen. Das Modell beschrieb korrekt die Entmagnetisierung in Ni und Eisen, sowie in Gadolinium die Typ 2 Dynamik. Der direkte Zusammenhang mit der Gilbertdämpfung α erweist sich im Allgemeinen als komplex(er) [118].

5.11.3 MuTmodell

Da die ultraschnelle Entmagnetisierung von einer kurzen Laseranregung verursacht wird, liegt es nahe, anzunehmen, dass es zur korrekten Beschreibung des Verhaltens des Systemes nötig ist, die Zeitentwicklung von Nichtgleichgewichtsverteilungen zu berechnen. Tatsächlich zeigt sich, dass die Zeitdauer der (Quasi)thermalisierung stark vom Material, der Anregung und weiteren (experimentellen) Parametern abhängig ist [119].

Mueller et al. [120] konnten jedoch zeigen, dass selbst unter der Annahme von zu allen Zeiten thermalisierten (lokalen) Subsystemen, die durch chemische Potentiale und Temperaturen (daher μT Modell) vollständig beschrieben sind, das Entmagnetisierungsverhalten qualitativ (und auch recht gut quantitativ) beschrieben wird, indem man die thermalisierten lokalen Subsysteme (Spin-auf Elektronen, Spin-ab Elektronen und Phononen) thermodynamisch aneinander koppelt und so die zeitliche Entwicklung der Subsysteme in einem dynamischen Bandmodell (magnetisierungsabhängige Bandaufspaltung) berechnet. Insbesondere sind dadurch Effekte, wie das experimentell beobachtete critical slowing down [121] (theoretisches Analogon [122]), reproduzierbar. Die dadurch bestimmten Entmagnetisierungsraten sowie Zeiten sind vergleichbar mit dem Experiment, obgleich zur Beschreibung des Systems etliche Näherungen gemacht wurden.

Im Rahmen des μT Modells zeigt sich, dass zu einem bestimmten Zeitpunkt die zeitliche Änderung der Magnetisierung nur vom Un-

terschied der chemischen Potentiale der elektronischen Subsysteme zu jenem Zeitpunkt abhängen. Der Unterschied der chemischen Potentiale der spin auf und spin ab Elektronen kann also im Rahmen des Modelles als “treibende Kraft“ gesehen werden. Im Falle der Mitnahme der Superdiffusion kommen zusätzlich Terme, abhängig von ΔT und $\Delta\mu$, hinzu, wobei Δ in diesem Fall der Laplaceoperator ist. Der Vorteil des Modelles liegt darin, dass mit Hilfe weniger physikalischer Parameter (Kopplungskonstante(n), Wärmekapazitäten, Spinmischung), die sich aus dem Experiment oder anderen Rechnungen bestimmen lassen, flexibel (es können weitere Streukanäle oder Superdiffusion hinzugefügt werden) der Einfluss verschiedener Beiträge auf die Zeitentwicklung der Magnetisierung untersucht werden kann. Außerdem gelingt es dem Modell, die Entmagnetisierung vernünftig zu beschreiben.

5.11.4 Schellekensmodell

Schellekens et. al. [123] verglichen die Elektron-Phonon-Spinflips eines starren Bandschemas (ermittelt bei $T=0K$ für Ni) zwischen dominant auf und dominant ab Zustandsdichten mit den Spinflipstreuungen im Rahmen eines effektiven Weissmodells der atomaren magnetischen Momente. Im zweiten Fall soll gedanklich eine Verkipfung der magnetischen Momente geschehen (abgebildet durch geflippte Weissmomente) und wird die Energieaufspaltung der dominant auf und dominant ab Zustandsdichten an die vorliegende Magnetisierung angepasst. Sie vergleichen also sowohl ein starres mit einem adaptiven Bandschema als auch gleichzeitig Stonerspinflips mit “Verkipfungen“, welche dabei durch Weissmomente dargestellt werden. Dies sei durch folgende Gleichungen illustriert:

$$\text{starr: } \uparrow \rightarrow \downarrow \pm \text{phonon} \quad (40)$$

$$\begin{aligned} \text{adaptiv mit Weissmomenten: } & \uparrow + \pm \text{phonon} \rightarrow \downarrow \\ & \downarrow + \text{weiss}_{\uparrow} \rightarrow \uparrow + \text{weiss}_{\downarrow} \end{aligned} \quad (41)$$

Eine Schwäche der zeitaufgelösten Modellrechnung ist, dass der zweite Prozess $\downarrow + \text{weiss}_{\uparrow} \rightarrow \uparrow + \text{weiss}_{\downarrow}$ als instantan mit Wahrscheinlichkeit 1 angenommen wird. Geäß Rücksprache mit Herrn Schellekens, kann der Flip des Weissmomentes als Emission eines Magnons interpretiert werden. Im Rahmen ihres Modelles zeigten sie die Notwendigkeit einer adaptiven Bandstruktur zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung. Die Ursache liegt darin, dass unabhängig von

der Stärke des Streumechanismus, die Streuung stets zum Ausgleich der Ungleichgewichte in den Subsystemen führt und somit die maximal mögliche Entmagnetisierung automatisch durch die feste Bandstruktur und die eingebrachte Anregung vorgegeben ist. Die feste Bandstruktur führt jedoch selbst bei Temperaturen größer als die eigentliche kritische Temperatur immer noch zu Gleichgewichtsmagnetisierungen, die fast der Grundzustandsmagnetisierung entsprechen. Diese Erkenntnis ist in Übereinstimmung mit weiteren Arbeiten [124],[48], die alle die Notwendigkeit einer adaptiven Bandstruktur zur korrekten Beschreibung des Problems aufzeigten.

5.11.5 Superdiffusion

Um den elektronischen Drehimpuls innerhalb des Messsystems zu ändern, muss es nicht zu Streuungen und damit zum Übertrag an nicht elektronische Freiheitsgrade kommen. Vernachlässigt man Streuungen, hat man es mit einer Kontinuitätsgleichung zu tun, die aussagt, dass die lokale Änderung der Drehimpulsdichte und damit der Magnetisierung durch den Fluss der Drehimpulsdichte aus dem System bedingt wird. Dies führt zu der Möglichkeit, dass effektiv ein Transport heißer Majoritätsladungsträger aus dem vermessenen System stattfindet und man im Messbereich eine Entmagnetisierung feststellt. Die Bedingungen hierfür wurden schon im Kapitel 5.10 unter dem Bereich Transport abgehandelt. Die Zeitskalen und Raten des Prozesses der Superdiffusion (theoretisch beschrieben in [125], [83]) stimmen dabei gut mit dem Experiment überein. Auch explizite Messungen [126, 53, 127, 105, 128] weisen auf Beiträge durch Superdiffusion hin.

5.11.6 Superdiffusion vs. Streuung

Im Allgemeinen wird man es in einem ultraschnellen Entmagnetisierungsexperiment sowohl mit Superdiffusion als auch mit Spinflipstreuungen zu tun haben. Es ist jedoch interessant zu sehen, wie, abhängig von der Probe, die beiden Mechanismen jeweils beitragen. Turgut et. al [129] konnten mit verschiedenen Dünnschichtproben mit Schichtfolge Eisen, Zwischenschicht, Nickel, Substrat, wobei das Material der Zwischenschicht variiert wurde, zeigen, dass, abhängig von der freien Spinweglänge in der Zwischenschicht ein unterschiedliches Entmagnetisierungsverhalten sowohl in der oberen Schicht (in

diesem Fall Nickel) als auch in der unteren Schicht (in diesem Fall Eisen) zu beobachten war. Die Magnetisierungen waren in oberer und unterer Schicht gleich ausgerichtet. Bei einer leitenden Zwischenschicht, die nicht als starker Spinstreuer fungiert, magnetisierte die Eisenschicht sogar durch den superdiffusiven Strom auf. Bei einer isolierenden Zwischenschicht war die größte Entmagnetisierung in Eisen zu beobachten. Die Entmagnetisierung von Nickel war stärker und etwas schneller für leitende statt isolierende Zwischenschicht. Die Zwischenschichten, welche aus mehr oder weniger starken Spinstreuern bestanden, weisen für Eisen, wie erwartet, eine Demagnetisierung auf, welche zwischen den Ergebnissen für leitende und isolierende Schicht liegt. Tantal als Zwischenschicht liefert auch für Nickel die erwarteten Ergebnisse zwischen leitender und nichtleitender Zwischenschicht, Wolfram jedoch führt für Nickel zur schwächsten Entmagnetisierung von allen Fällen. Der Grund ist nicht offensichtlich. Leider werden nicht nur die superdiffusiven Ströme, sondern auch die Absorption des Lichtes in der unteren Schicht, sowie an den Grenzflächen die elektronischen Zustände durch die Zwischenschicht, verändert, man kann also nicht die exakten Beiträge durch Streuung und Superdiffusion bestimmen. Unter einigen gemachten Annahmen, die aus PRL [129] zu entnehmen sind, lassen sich Streuanteile zwischen einem Drittel (Nickel) bis zur Hälfte (Eisen) für das beschriebene Experiment abschätzen.

Schellekens et. al. [105] kamen für eine vergleichbare Probe zu einem etwas anderen Ergebnis, die Streuanteile waren in ihrer Messung deutlich höher als jene bei Turgut, insbesondere magnetisierte der Eisenfilm nicht in Folge der Superdiffusion auf. Die Diskrepanzen zwischen beiden Messungen wurden von Schellekens et. al. auf eine (Teil)Mischung der Messsignale von Eisen und Nickel bei Turgut et. al zurückgeführt. Dem Autor fehlt die Kenntnis, um ein abschließendes Urteil bzgl. der Diskrepanzen bilden zu können.

5.11.7 Mikromagnetische Simulation

Atxitia et. al. [130] gelang es im Rahmen einer Landau-Lifshitz-Bloch Gleichung in einer mikromagnetischen Simulation, die zeitliche Entwicklung der ultraschnellen Magnetisierung zu beschreiben. Für einen Spezialfall zeigt sich, dass das M3TM mit der LLB identisch ist [130]. In jenem Fall wurde der Dämpfungstensor $\underline{\alpha}(\mathbf{r})$ [131] durch einen skalaren Fitparameter α ersetzt. Die Extraktion einer

mikroskopischen Ursache ist im Allgemeinen zwar nicht möglich, jedoch kann ein Anhaltspunkt dadurch gewonnen werden, dass die Parameter der LLB aus Rechnungen bzgl. spezifischer mikroskopischer Mechanismen bestimmt wurden.

Eine weitere interessante Erkenntnis aus mikromagnetischen Simulationen war [132], dass im Rahmen der Beschreibung der fs Dynamik die Notwendigkeit der Berücksichtigung von Korrelationen auftritt (die Natur jener Korrelationen ist aber eine andere als jene in [49]). Abhängig von Korrelationszeiten ergibt sich dabei eine jeweils stark unterschiedliche Magnetisierungsdynamik, im Rahmen jener Modellrechnung handelt es sich jedoch bei der Korrelationszeit nur um einen Parameter, der nicht experimentell oder theoretisch für ein bestimmtes System zum Einschätzen des Einflusses gegeben wurde.

5.11.8 Carpene Model

Nach [86] ist die Ursache der ultraschnellen Entmagnetisierung in der Emission von Magnonen gegeben. Aufgrund der Spinbahnkopplung sind hierbei Prozesse denkbar, die das Bahnmoment der Elektronen erhöhen und das Spinnmoment des elektronischen Systems durch die Emission der Magnonen senken. Das so aufgebaute Bahnmoment soll dann “ultraschnell“ vom Kristallfeld gequenchet werden. Die Übereinstimmung der gemessenen Entmagnetisierungszeit mit der abgeschätzten Entmagnetisierungszeit durch Magnonen war dabei gut [86]. Zusätzlich konnte [133] noch die ultraschnelle Emission von Magnonen experimentell nachgewiesen werden (Ultraschnelle Entmagnetisierung ist sogar als Magnonenquelle denkbar [134]). Die Tatsache, dass bei einer separaten Messung der Spin- und Bahnmomente [87] das Bahnmoment mindestens gleich schnell wie das Spinnmoment abfiel, würde dabei bedeuten, dass das quenching im Kristallfeld quasi instantan geschehen müsste. Das Carpene Model kann als Grundlage für diese Doktorarbeit betrachtet werden.

5.11.9 Manchon

Ein Modell, welches sowohl Elektron-Phonon und Elektron-Magnon-Streuungen berücksichtigt, wurde von Manchon 2012 [135] entwickelt. Es behandelt ein Spinsubsystem, welches den Magnonen zugeordnet wird, ein Gittersubsystem, den Phononen zugeordnet und

ein Subsystem der Elektronen, die Systeme sind miteinander gekoppelt (keine Spin-Phononkopplung). Es wird hierbei jedoch nicht der Transfer von Drehimpuls sondern nur der Transfer von Energie zwischen den Subsystemen betrachtet. Die Zeitabhängigkeit der Temperatur im Magnonensystem, die sich daraus ergibt, wird mit einer Magnetisierungskurve, abhängig von der Temperatur, in eine zeitabhängige Magnetisierungskurve überführt. Es handelt sich hierbei zwar um Modellrechnungen, diese konnten jedoch für geeignete Parameter eine Dynamik vergleichbar mit gemessenen Entmagnetisierungsdynamik ergeben.

5.11.10 Kombinierte Elektron-Phonon und Elektron-Magnon Streuungen

Infolge der Tatsache, dass sowohl der Streubeitrag der Phononen als auch der Beitrag der Magnonen sich als zu klein erwies, wurde die Möglichkeit einer Phasenraumvergrößerung durch kombinierte Elektron-Phonon und Elektron-Magnon-Streuungen diskutiert [4],[5]. Die Grundidee ist dabei folgende: Da vor allem zu Beginn der Rechnung [5] die Anzahl der Magnonemissionen überwiegt, gibt es ein Übergewicht von Streuungen vom Typ:

$$|\downarrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\uparrow^{\text{dom}}\rangle + \text{magnon} \quad (42)$$

für die Elektron-Magnonstreuung. Bei Elektron-Phononstreuungen ist die Anzahl der Spinflipstreuungen in beide Richtungen fast identisch,

$$|\downarrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\uparrow^{\text{dom}}\rangle \pm \text{phonon}, \quad (43)$$

sowie

$$|\uparrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\downarrow^{\text{dom}}\rangle \pm \text{phonon}. \quad (44)$$

Die Absorption von Magnonen durch

$$|\uparrow^{\text{dom}}\rangle + \text{magnon} \rightarrow |\downarrow^{\text{dom}}\rangle \quad (45)$$

erhält ebenfalls nahezu den Drehimpuls, ist jedoch am Anfang der Zeitentwicklung bedeutend schwächer. Die anderen noch möglichen Spinflipstreuungen der Magnonen

$$|\uparrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\downarrow^{\text{dom}}\rangle + \text{magnon}, \quad (46)$$

$$|\downarrow^{\text{dom}}\rangle + \text{magnon} \rightarrow |\uparrow^{\text{dom}}\rangle \quad (47)$$

sind stark unterdrückt (Streuungen ohne Änderung des dominanten Spincharakters sind ebenfalls denkbar, durch Emission oder Absorption von Magnonen kann es hierbei zu einer Änderung des magnetischen Momentes kommen; auch können die Spin- und Bahnmomente der Anfangs- und Endzustände verschieden sein, obwohl sie denselben dominanten Spincharakter aufweisen). Durch die Magnonemission und die damit verbundene erhöhte Bevölkerung der Einzel-elektronen dominant spin auf Zustände und niedrigere Bevölkerung der dominant spin ab Zustände, wird nun diese Quasibalance der Elektron-Phononstreuungen durchbrochen. Es stellt sich ein dominanter Prozess ein, der sich gefolgt skizzieren lässt.

$$|\downarrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\uparrow^{\text{dom}}\rangle + \text{magnon} \quad (48)$$

$$|\uparrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\downarrow^{\text{dom}}\rangle \pm \text{phonon} \quad (49)$$

oder zusammengefasst:

$$|\downarrow^{\text{dom}}\rangle \rightarrow |\downarrow^{\text{dom}}\rangle + \text{magnon} \pm \text{phonon} \quad (50)$$

Der Phasenraum ist damit “quasi kurzgeschlossen“ und wird in dieser simplen Skizzierung nicht verbraucht. Durch die Emission von Magnonen und die mehrheitliche Emission von Phononen wird natürlich Energie in das Magnonen und Phononensystem transferiert und man hat keine endlose Entmagnetisierung. Dennoch kann so der effektive Phasenraum der Streuungen, der zur Entmagnetisierung beiträgt, vergrößert werden und der Elektron-Phononstreuung eine höhere Wahrscheinlichkeit für entmagnetisierende Spinflipstreuungen gegenüber remagnetisierenden Spinflipstreuungen aufgezwungen werden. Die dynamischen Rechnungen im Rahmen dieser Arbeit sollen dabei eine Abschätzung für die möglichen Beiträge der Elektron-Phonon und Elektron-Magnonstreuungen liefern.

5.11.11 Anmerkung zum perfekten Modell oder das Problem der logischen Schlüsse

Das perfekte Modell zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung müsste im Prinzip alle Kopplungen des Systems orts- und zeitabhängig berücksichtigen. Das perfekte Modell erfordert es, sowohl Transport als auch Streuungen zu betrachten und alle Prozesse selbstkonsistent zu berechnen. Ein solches Modell ist jedoch

unmöglich zu berechnen und unhandlich zu bedienen, benötigte es für jede Probe, Umgebung und Anregung eine exakte Charakterisierung, die eine neue Rechnung erforderte. Dennoch wäre es nur anhand des perfekten Modells und der Stabilität der Lösungen dieses Modells gegenüber Variation der Proben, Umgebungs- und Anregungsparameter möglich, die einzelnen Beiträge zur Demagnetisierung exakt zu bestimmen und ihre Rolle und Bedeutung, die ihnen zukommt, einzuschätzen. Der Ansatz ist jedoch ein anderer, es wird ein berechenbares Modell entwickelt, in welchem viele der Beiträge vernachlässigt werden und der Rest in "guter Näherung" berücksichtigt wird. Unter den gemachten Näherungen hat man dann eine Beschreibung des Experimentes. Es ist naheliegend, aus einer besseren Beschreibung des Experimentes auf ein besseres Verständnis der zu Grunde liegenden physikalischen Prinzipien zu schließen (es sei denn die gute Beschreibung basierte auf fit-Parametern, die in einem "unphysikalischen" Bereich liegen), es ist jedoch nicht strikt schlüssig. Das reale System besteht selbstverständlich aus allen Mechanismen (ohne Näherungen), eine gute Beschreibung des Verhaltens einiger (zugänglicher) Messgrößen des Systems durch die genäherte Berücksichtigung mancher Mechanismen kann letzten Endes auch ein Artefakt der gemachten Näherungen sein, statt das Aufzeigen der zu Grunde liegenden Physik. In der Zusammenfassung wird noch unter Berücksichtigung der erarbeiteten Daten diskutiert, welche Eigenschaften ein zukünftiges gutes, wenn auch nicht perfektes Modellsystem, berücksichtigen sollte.

6 Methodik

Während in dem Kapitel bzgl. der theoretischen Grundlagen ein generelles Herangehen an die ultraschnelle Entmagnetisierung bedeutete, ist das Kapitel Methodik rein dem Umgang dieser Arbeit mit der ultraschnellen Entmagnetisierung gewidmet, quasi das Rezeptbuch zum Erhalt der Ergebnisse. Hier wird erläutert, wie was berechnet wurde, beginnend mit den Magnondispersionen und der Herleitung des im Zuge der Arbeit genäherten Elektron-Magnonstreupoperators. Es wird insbesondere beschrieben, wie die Zeitentwicklung aus einem modellierten Startzustand bestimmt wird und welche Probleme aus den gemachten Näherungen erwachsen können. Abschließend werden die Bandstrukturen, die im Rahmen dieser Arbeit auftreten können untersucht und die damit verbundene Variation der verschiedenen Eigenschaften der Einzelelektronenzustände (um das jeweilige chemische Potential), die im Rahmen der zeitaufgelösten Rechnung (siehe Kapitel 7.2) auftreten können.

6.1 Verwendete Magnondispersionen

Die ersten Rechnungen im Rahmen der Arbeit [5] zur Abschätzung der Elektron-Magnonstreuraten wurden auf Basis der Dispersionen, die sich aus den Kopplungskonstanten der adiabatischen transversalen Suszeptibilitätsrechnungen von Grotheer et.al. [18] gefitteten Heisenbergmodelles bestimmen lassen, sowohl für Eisen als auch für Nickel durchgeführt. Angesichts der Tatsache, dass die Magnonmoden bei hohen Temperaturen “aufweichen“, d.h. die Energie der Magnonen mit steigender Temperatur abfällt, wurde für die dynamische Rechnung ein komplexeres Modell gewählt. Für Eisen basiert die verwendete Magnondispersion erneut auf den Kopplungskonstanten bzgl. der adiabatischen transversalen Suszeptibilitätsrechnungen von Grotheer et.al. [18], die für $T=0\text{K}$ bestimmt wurden. Zusätzlich wurde eine Temperaturabhängigkeit der Magnondispersion simuliert, auf Basis der Temperaturabhängigkeit der Spinwellensteifigkeit in Eisen aus [136]. Effektiv wurden die Magnonenfrequenzen dabei um den Faktor $\frac{D(T)}{D(T=0)}$ reskaliert, um die Temperaturabhängigkeit abzubilden. Es zeigt sich, dass sich für Raumtemperatur eine Magnonenzahl pro Atom von $\frac{1}{N_q} \sum_{\mathbf{q}} n_{\mathbf{q}} = 0,031786$ ergibt. Bei einer berechneten Startmagnetisierung von $2,27495201\mu_{\text{B}}$ pro Atom entspricht dies einer Reduktion der Magnetisierung um ca. 2,8%. Vergleicht

man dies auf Basis der Annahme, dass die experimentelle Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung [137], gemäß derer man eine ca. 3 prozentige Reduktion der Magnetisierung bei Raumtemperatur im Vergleich zum Grundzustand hat, mehrheitlich durch Magnonen zu erklären ist, scheint die Dispersion zumindest im Mittel Eisen gut zu beschreiben. Für Nickel ist die Sache komplizierter, es zeigte sich, dass ein analoger Ansatz wie bei Eisen zu einer viel zu geringen Anzahl an Magnonen pro Atom im berechneten Temperaturbereich führt. Darum dienen als Grundlage der zeitabhängigen Rechnungen die Superzellrechnungen von Grotheer et.al. [18], die durch einen Matlab-Fit auf das verwendete Grid erweitert wurden. Ebenso wie bei Eisen wird eine Temperaturabhängigkeit der Dispersion angenommen. Dazu wurde in diesem Fall ein Ansatz vergleichbar [138] gewählt. In [138] wird die Spinwellensteifigkeit D als $D(T) = D_0 - D_1 \cdot T^2$ genähert, mit den Werten $D_0 = 555 \text{meV}\text{\AA}^2$ und $D_1 = 1,15 \cdot 10^{-3} T^2 \text{meV}\text{\AA}^2 K^{-2}$. Für die verwendete Magnondispersion wurde ein D_1 von $D_1 = 1,1 \cdot 10^{-3} T^2 \text{meV}\text{\AA}^2 K^{-2}$, welches sehr nah (in Fehlermargen von [138] liegt) am Wert aus [138] liegt, aber einen besseren Temperaturverlauf der Magnetisierung im betrachteten Temperaturbereich liefert. Erneut wird die Magnondispersion von Nickel nun mit $\frac{D(T)}{D(T=0)}$ reskaliert. Zusätzlich wurde noch ein empirischer Faktor $\zeta \approx 0,73852$ eingeführt. Mit Hilfe dieses Faktors ergibt sich eine Temperaturabhängigkeit der Magnonenzahl pro Atom, die mit der experimentellen Temperaturabhängigkeit von $M(T)$ im Temperaturbereich 293,15K bis 450K in Einklang zu bringen ist. Zusammengefasst ergibt sich die Dispersion zu

$$\hbar\omega_{\mathbf{q}}^{\text{Nickel}}(T) = \hbar\omega_{\mathbf{q}}^{\text{Grotheer, Superzelle}} \cdot \zeta \cdot \frac{D_0 - D_1 \cdot T^2}{D_0}. \quad (51)$$

Durch diese Wahl der Dispersionsrelation kommen die so ermittelte Magnonenenergien für große Wellenvektoren der experimentell gemessenen Dispersion bei Raumtemperatur (Quelle "Sas" in [35]) nahe.

Für Raumtemperatur ergibt sich z.B eine Magnonenzahl von 0,00885 pro Atom, was für die berechnete Startmagnetisierung von $0,6354\mu_{\text{B}}$ pro Atom einer Reduktion der Magnetisierung von ca. 2,8% entspricht. Vergleicht man diese mit den Messwerten aus [137], stellt man fest, dass für Nickel bei Raumtemperatur eine Reduktion der Magnetisierung von ca. 5% zu erwarten ist. Die

höhere Diskrepanz kann unter anderem an einem höheren Beitrag von Längenverkürzung der atomaren magnetischen Momente zurückgeführt werden, wie sie z.B. in [138] vermutet wird.

Ursache des Problems bei Nickel und damit Grund für die von Hand eingeführten Korrekturen scheint eine Überschätzung der Austauschkopplung zu sein, Rechnungen mit reduzierter Austauschkopplung, wie in [139], führten zu einer bedeutend besseren Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment für die Magnondispersion von Nickel.

6.2 Der Elektron-Magnon-Streuoperator

Das Ziel der Doktorarbeit war es, die Auswirkung der Elektron-Magnonstreuung auf die ultraschnelle Entmagnetisierung zu berechnen. Analog zur Doktorarbeit [38] von Herrn Illg sollte ein Streuoperator auf Basis der Dichtefunktionaltheorie konstruiert werden. Die Herleitung des Streuoperators ist in [140] zu finden. Da es sich hierbei um einen fundamentalen Teil der Arbeit handelt, wird im Folgenden die Herleitung noch einmal skizziert und an manchen Punkten mögliche und verwendete Anpassungen zur Version aus [140], die in [5] verwendet wurde, diskutiert. Die Rechnung hier führt zur 2-Komponenten Lösung, die 4-Komponenten Lösung ist im Anhang hergeleitet und wird für die numerischen Ergebnisse verwendet. Ausgangspunkt für den hier verwendeten Streuoperator ist das formale noch unbekannte Übergangsmatrixelement

$$\langle \Psi_f | \Delta V_{\text{Magnon}} | \Psi_i \rangle, \quad (52)$$

wobei ΔV_{Magnon} der noch unbekannte Streuoperator sei. Wir schreiben das Matrixelement (52) nun um, indem wir einen Term dazu addieren und wieder subtrahieren, dieser Term entspricht dem ungestörten Hamiltonian.

$$\begin{aligned} \langle \Psi_f | \Delta V_{\text{Magnon}} | \Psi_i \rangle &= \left\langle \Psi_f \left| \Delta V_{\text{Magnon}} + V_0 - \frac{\hbar^2}{2m} \Delta \right| \Psi_i \right\rangle \\ &\quad - \left\langle \Psi_f \left| - \frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V_0 \right| \Psi_i \right\rangle. \end{aligned} \quad (53)$$

Es lässt sich nun die Orthonormalität der Zustände bzgl. des ungestörten Hamiltonoperators ausnützen ($\Psi_i \neq \Psi_f$), Gleichung (53)

ist also identisch mit

$$\begin{aligned} \langle \Psi_f | \Delta V_{\text{Magnon}} | \Psi_i \rangle &= \langle \Psi_f | \Delta V_{\text{Magnon}} + V_0 | \Psi_i \rangle \\ &\quad - \left\langle \Psi_f \left| \frac{\hbar^2}{2m} \Delta \right| \Psi_i \right\rangle \end{aligned} \quad (54)$$

Die Summe $\Delta V_{\text{Magnon}} + V_0$ ist aber nichts anderes als das Potential in Gegenwart des Magnons, an dem man streuen will, und damit im Prinzip berechenbar. Das eigentlich zu berechnende Matrixelement ist also nichts anderes als die Summe des Matrixelementes am Gesamtpotential in Gegenwart des Magnons und des kinetischen Energietermes. Im Rahmen der Spindichtefunktionaltheorie ist das Potential gegeben durch:

$$V(\mathbf{r}) = V_{\text{eff}}(\mathbf{r}) \underline{\mathbb{1}} + \mu_B \mathbf{B}_{\text{eff}}(\mathbf{r}) \cdot \underline{\boldsymbol{\sigma}}, \quad (55)$$

wobei $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ den Vektor der Paulimatrizen darstellt. Der spindigonale Anteil mit dem effektiven Potentialen setzt sich aus folgenden Termen zusammen:

$$\begin{aligned} V_{\text{eff}}(\mathbf{r}) &= V_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + V_{\text{Hartree}}[n(\mathbf{r})] \\ &\quad + V_{\text{xc}}[n(\mathbf{r}), m(\mathbf{r}) = |\mathbf{m}(\mathbf{r})|], \end{aligned} \quad (56)$$

$V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ ist das "externe" Potential, das die Elektronen spüren, hierzu zählt z.B. das Potential der Kerne, V_{Hartree} ist das von allen Elektronen in mean-field Näherung erzeugte Hartreepotential. Es ist ein Funktional der Elektronenladungsdichte $n(\mathbf{r})$, und V_{xc} ist das skalare Austauschkorrelationspotential welches ein Funktional der Ladungsdichte $n(\mathbf{r})$ und der Spindichte $\mathbf{m}(\mathbf{r})$, ist, $V_{\text{xc}} = \frac{\delta E_{\text{xc}}[n(\mathbf{r}), m(\mathbf{r})]}{\delta n(\mathbf{r})}$ ausgedrückt mit Hilfe der Austauschkorrelationsenergie E_{xc} . Das effektive B-Feld, $\mathbf{B}_{\text{eff}}(\mathbf{r})$ des nicht spin diagonalen Anteiles ist

$$\mathbf{B}_{\text{eff}}(\mathbf{r}) = \mathbf{B}_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + \mathbf{B}_{\text{xc}}[n(\mathbf{r}), \mathbf{m}(\mathbf{r})], \quad (57)$$

darin stellt $\mathbf{B}_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ ein angelegtes externes Feld dar, das in unserem Fall 0 gesetzt ist, sowie $\mathbf{B}_{\text{xc}}(\mathbf{r})$ das vektorielle effektive Feld, in LSDA in der Form

$$\mu_B \mathbf{B}_{\text{xc}}(\mathbf{r}) = \mu_B \frac{\delta E_{\text{xc}}[n(\mathbf{r}), m(\mathbf{r})]}{\delta m(\mathbf{r})} \mathbf{e}_m = V_s(\mathbf{r}) \mathbf{e}_m(\mathbf{r}), \quad (58)$$

wobei

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}) = m(\mathbf{r}) \mathbf{e}_m(\mathbf{r}). \quad (59)$$

Wir wenden nun die Atomkugelnäherung an (ASA). Zunächst teilen wir dazu den Kristall in überlappende Atomkugeln um die Kerne j auf, wobei die Summe der Volumina Ω_j der Atomkugeln identisch zum Volumen des Kristalles sein sollte. Dies führt zu Matrixelementen $\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle$ in der Form

$$\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle = \sum_j \int_{\Omega_j} \Psi_f^*(\mathbf{r}) [V_{\text{eff},j}(\mathbf{r}) \underline{\mathbb{1}} + V_{s,j}(\mathbf{r}) \underline{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \mathbf{e}_m(\mathbf{r})] \Psi_i(\mathbf{r}) d^3r. \quad (60)$$

Die entsprechenden Integrale werden in den einzelnen Atomkugeln berechnet, dazu bietet es sich an, lokale Koordinatensysteme einzuführen, deren Ursprung im Zentrum \mathbf{R}_j der lokalen Atomkugel liegt. Damit wird $V_{\text{eff},j}(\mathbf{r})$ durch $V_{\text{eff},j}(r_j)$ und $V_{s,j}(\mathbf{r})$ durch $V_{s,j}(r_j)$ ausgedrückt, wobei $\mathbf{r}_j = \mathbf{r} - \mathbf{R}_j$ gilt. Ausserdem sind die Potentiale $V_{\text{eff},j}$ und $V_{s,j}$ winkelgemittelt in jeder Atomkugel, d.h. sphärisch symmetrisch in jeder Atomkugel genähert, damit ergibt sich $V_{\text{eff},j}(\mathbf{r}_j) = V_{\text{eff},j}(r_j)$ sowie $V_{s,j}(\mathbf{r}_j) = V_{s,j}(r_j)$, im Rahmen der "structural ASA". Schliesslich wird die Spin-ASA eingeführt, indem wir in $E_{\text{xc}}[n(\mathbf{r}_j), m(\mathbf{r}_j)]$ die Funktion $m(\mathbf{r}_j) = \mathbf{e}_m(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r}_j)$ durch $m'(r_j) = \mathbf{e}_j \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r}_j)$ nähern, wobei $\mathbf{e}_j = \mathbf{M}_j/|\mathbf{M}_j|$ in die Richtung des lokalen atomaren magnetischen Momentes ausgerichtet ist.

$$\mathbf{M}_j = \int_{\Omega_j} \mathbf{m}(\mathbf{r}) d^3r. \quad (61)$$

Es ergibt sich für das Matrixelement in ASA und Spin-ASA Näherung

$$\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle = \sum_j \int_{\Omega_j} \Psi_f^*(\mathbf{r}_j) \left[V_{\text{eff},j}(r_j) \underline{\mathbb{1}} + \tilde{V}_{s,j}(r_j) \underline{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \mathbf{e}_j \right] \cdot \Psi_i(\mathbf{r}_j) d^3r_j, \quad (62)$$

wobei

$$\tilde{V}_{s,j}(r_j) = \mu_B \frac{\delta E_{\text{xc}}[n(r_j), m'(r_j)]}{\delta m'(r_j)}. \quad (63)$$

Im folgenden legen wir den Fokus auf einen speziellen Typ von Streuprozessen, und zwar solche Streuprozesse, in denen es zu einem Spinflip kommt von (dominant) \uparrow nach (dominant) \downarrow oder umgekehrt. Der Spin diagonale Anteil $V_{\text{eff},j}(r_j) \underline{\mathbb{1}}$ kann nur in Systemen mit spingemischten Zuständen zu Spinflipstreuungen führen.

(Spingemischte Eigenzustände sind wiederum die Folge von nicht spindagonalen Anteilen des zugehörigen Hamiltonians, prominentestes Beispiel ist die Spin-Bahn-Kopplung). Im Gegensatz hierzu ist ein Spinflipübergang durch einen nicht spindagonalen Term auch in Systemen ohne spingemischte Zustände möglich. Wir nehmen deswegen ohne expliziten Beweis an, dass in Systemen mit schwacher Spin-Bahn-Kopplung (wie fcc Ni) die Spinflipstreuung vom nicht spindionalen Anteil des Potentials stammt. Der Gedanke dahinter ist, dass das Magnon vor allem das effektive Magnetfeld B_{eff} , weniger jedoch V_{eff} ändern soll. Ein kritischer Kommentar zu dieser Näherung wird nochmals im Kapitel 7.2.1, Resultate, gemacht. Unter Vernachlässigung des spindionalen Anteils, also durch Festlegen auf Spinflipstreuungsprozesse, schreiben wir

$$\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle = \sum_j \int_{\Omega_j} \Psi_f^*(\mathbf{r}_j) \tilde{V}_{s,j}(r_j) \underline{\sigma} \cdot \mathbf{e}_j \Psi_i(\mathbf{r}_j) d^3 r_j. \quad (64)$$

Betrachtet man den ferromagnetischen Grundzustand eines einatomigen Kristalles mit primitiver Einheitszelle, wie Nickel und Eisen, so zeigt sich, dass $\tilde{V}_{s,j}(r_j)$ eine Funktion ist, welche für alle Atomkugeln identisch ist, $\tilde{V}_{s,j}^0(r_j)$. Analog zum Magnon kann man das System einer klassischen Spinspirale betrachten, mit Wellenvektor \mathbf{q} und Öffnungswinkel θ , diese Spinspirale entspräche einer kohärenten Superposition von Magnonen selben Wellenvektors. Die Funktion $\tilde{V}_{s,j}(r_j)$ ist in diesem Fall erneut identisch bzgl. jeder Atomkugel, aber sie ist sicherlich unterschiedlich zur Funktion $\tilde{V}_{s,j}^0(r_j)$ des ferromagnetischen Grundzustandes, da in einem System mit Spinspirale die atomaren magnetischen Momente zueinander verkippt sind. Es ist davon auszugehen, dass die Funktion $\tilde{V}_{s,j}(r_j)$ von den Parametern \mathbf{q} und θ abhängt, $\tilde{V}_{s,j}(r_j; \mathbf{q}, \theta)$ ist. In [140] wird gezeigt, dass für kleine Öffnungswinkel θ (vergleichbar mit kleinen Besetzungszahlen kohärent superponierter Magnonen) die Größe $\tilde{V}_{s,j}(r_j; \mathbf{q}, \theta)$ nur wenig von der Funktion $\tilde{V}_{s,j}^0(r_j)$ im ferromagnetischen Grundzustand abweicht, näherungsweise also $\tilde{V}_{s,j}(r_j; \mathbf{q}, \theta) \approx \tilde{V}_{s,j}^0(r_j)$ gilt. Das Matrixelement $\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle$ bzgl. des Systems einer Spinspirale (\mathbf{e}_j verkantet) kann also in guter Näherung beschrieben werden als,

$$\langle \Psi_f | V | \Psi_i \rangle = \sum_j \int_{\Omega_j} \Psi_f^*(\mathbf{r}_j) \tilde{V}_{s,j}^0(r_j) \underline{\sigma} \cdot \mathbf{e}_j \Psi_i(\mathbf{r}_j) d^3 r_j. \quad (65)$$

Das Matrixelement enthält prinzipiell (Gleichung (64)), 2 von Magnonen abhängige Terme, die Orientierungen \mathbf{e}_j der atomaren magnetischen Momente und die Funktion $\tilde{V}_{s,j}(r_j)$. Wie angemerkt, sollten prinzipiell beide Einflüsse berücksichtigt werden, es ist jedoch eine vernünftige Näherung, da die Funktion schwach mit den unterschiedlichen Orientierungen variiert, für die Rechnung nur den direkten Einfluss der Orientierungen \mathbf{e}_j der atomaren magnetischen Momente zu berücksichtigen, die durch die gegebene Magnonenverteilung bedingt sind. Geometrisch gesehen kann man dies als "starre" Rotationen der spinabhängigen Potentiale in Richtung der Magnonen auffassen, analog zu der "starren" Verschiebung der Potentiale in der Elektron-Phononstreuung in Nordheimnäherung.

Der Richtungsvektor \mathbf{e}_j kann durch einen klassischen Spinvektor ersetzt werden $\mathbf{S}_j = \hbar \mathbf{e}_j |\mathbf{M}_j| / g\mu_B$. Der Übergang von der klassischen Spinspirale zum quantenmechanischen Äquivalent bedeutet dann in Gleichung (65) im Term $\sum_j \tilde{V}_{s,j}^0(r_j) \underline{\sigma} \cdot \mathbf{S}_j \frac{g\mu_B}{\hbar |\mathbf{M}_j|}$, den klassischen Spinvektor \mathbf{S}_j durch den zugehörigen Spinoperator $\hat{\mathbf{S}}_j$ zu ersetzen, dies führt zur quantenmechanischen Form des Elektron-Magnonstreuoperators:

$$\hat{H}_{e-m} = \sum_j \frac{g\mu_B}{\hbar |\mathbf{M}_j|} \tilde{V}_{s,j}^0 \underline{\sigma} \cdot \hat{\mathbf{S}}_j. \quad (66)$$

In zweiter Quantisierung für \hat{H}_{e-m} erhält man

$$\hat{H}_{e-m} = \frac{g\mu_B}{\hbar} \sum_j \frac{1}{|\mathbf{M}_j|} \int \hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}) \tilde{V}_{s,j}^0 \underline{\sigma} \cdot \hat{\mathbf{S}}_j \hat{\Psi}(\mathbf{r}) d^3r. \quad (67)$$

Dabei wurde der Felderzeugungsoperator $\hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r})$ eingeführt, und der damit verknüpfte Vernichtungsoperator $\hat{\Psi}(\mathbf{r})$, diese können in folgender Form formuliert werden

$$\hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}) = \sum_i \Psi_i^*(\mathbf{r}) \hat{h}_i^\dagger, \quad (68)$$

$$\hat{\Psi}(\mathbf{r}) = \sum_i \Psi_i(\mathbf{r}) \hat{h}_i, \quad (69)$$

dabei stellt $\{\Psi_i(\mathbf{r})\}$ einen kompletten Basissatz orthonormierter Funktionen dar, wobei die Operatoren \hat{h}_i^\dagger und \hat{h}_i Electron in den

Zuständen $\Psi_i(\mathbf{r})$ erzeugen. In Ref. [141] wurden stattdessen ebene Wellenspinorfunktionen $\propto e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \left| \frac{1}{2} \right\rangle$ sowie $\propto e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle$ als orthonormale Basisfunktionen verwendet. Der von ihnen erhaltene Elektron-Magnonstreuoperator besitzt eine Form, die ihn für die Streuung spinpolarisierter Elektronen mit Energien weit über der Fermienergie optimiert. Solche Elektronen werden z.B. in Rahmen eines SPEELS Experimentes in eine Probe injiziert. Da wir an den Streuungen von besetzten Kristallelektronenzuständen interessiert sind, verwenden wir den Basissatz der Kristallelektronenspinorzustände.

Wir führen Operatoren ein, gemäß

$$\widehat{S}_j^\pm = \widehat{S}_j^x \pm i\widehat{S}_j^y \quad (70)$$

somit kann der Spinoperator $\widehat{\mathbf{S}}_j$ in die Form

$$\widehat{\mathbf{S}}_j = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(\widehat{S}_j^+ + \widehat{S}_j^-) \\ \frac{1}{2i}(\widehat{S}_j^+ - \widehat{S}_j^-) \\ \widehat{S}_j^z \end{pmatrix}. \quad (71)$$

gebracht werden. In Systemen mit ganz oder halbzahligen Werten von $|\mathbf{S}_j|$, haben die eingeführten Operatoren die direkte physikalische Bedeutung eines Spinaufsteige-, bzw. Spinabsteigeoperators. In itineranten Ferromagneten wie z.B. Nickel ist die "effektive Spinquantenzahl" $|\mathbf{S}_j|$, die man mit einem atomaren magnetischen Moment \mathbf{M}_j verknüpfen kann, jedoch weder halbzahlig noch ganzzahlig. Im Fall von fcc Nickel ist es z.B. rund 0,6. Die formale Einführung von Operatoren \widehat{S}_j^\pm als Hilfsoperatoren ist jedoch trotzdem erlaubt. Es konnte unter anderem in Ref. [142] gezeigt werden, dass die Komponenten des atomaren magnetischen Operators $\widehat{\mathbf{M}}_j$, welcher mit dem atomaren magnetischen Moment \mathbf{M}_j verknüpft ist, den gleichen Kommutatorrelationen gehorcht, wie die magnetischen Spinoperatoren eines halb- oder ganzzahligen Spinsystems. Ergo erfüllen auch die Hilfsoperatoren \widehat{S}_j^\pm die typischen Kommutatorrelationen für die realen Spinauf- und Spinabsteigeoperatoren,

$$\begin{aligned} [\widehat{S}_j^z, \widehat{S}_j^\pm] &= \pm \hbar \widehat{S}_j^\pm, \\ [\widehat{S}_j^+, \widehat{S}_j^-] &= 2\hbar \widehat{S}_j^z. \end{aligned} \quad (72)$$

Man kann formal die Operatoren \widehat{S}_j^\pm mit Hilfe von bosonischen

Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren \hat{a}_j^\dagger und \hat{a}_j , für die

$$[\hat{a}_j, \hat{a}_{j'}^\dagger] = \delta_{jj'} \quad (73)$$

gilt ausdrücken. Dies entspricht der Holstein-Primakoff Transformation [143]

$$\hat{S}_j^+ = \sqrt{2S_j} \sqrt{1 - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{2S_j}} \hat{a}_j, \quad (74)$$

$$\hat{S}_j^- = \sqrt{2S_j} \hat{a}_j^\dagger \sqrt{1 - \frac{\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j}{2S_j}}. \quad (75)$$

Schlussendlich wird die Transformation von atomaren Erzeugern und Vernichtern \hat{a}_j^\dagger , \hat{a}_j zu den Magnonen Erzeugern und Vernichtern $\hat{d}_{\mathbf{q}}^\dagger$ und $\hat{d}_{\mathbf{q}}$ die durch

$$\hat{d}_{\mathbf{q}}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_j} \hat{a}_j^\dagger, \quad (76)$$

$$\hat{d}_{\mathbf{q}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_j} \hat{a}_j. \quad (77)$$

definiert sind, durchgeführt. N ist dabei die Anzahl der Atome im System. Schliesslich werden die Wurzeln in den Gleichungen (74), (75) in Taylor Reihen bzgl. $\hat{a}_j^\dagger \hat{a}_j / (2S_j)$ entwickelt. Nur der niedrigste nicht verschwindende Term in Operatoren wird mitgenommen, (was für tiefe Temperaturen eine vernünftige Näherung scheint). Am Ende dieses Unterkapitels wird noch eine weitere Möglichkeit diskutiert, die in der zeitabhängigen Rechnung berücksichtigt wurde. Zusammenfassend erhält man

$$\hat{S}_j^+ = \sqrt{\frac{2S_j}{N}} \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_j} \hat{d}_{\mathbf{q}}, \quad (78)$$

$$\hat{S}_j^- = \sqrt{\frac{2S_j}{N}} \sum_{\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_j} \hat{d}_{\mathbf{q}}^\dagger, \quad (79)$$

$$\hat{S}_j^z = S_j - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \sum_{\mathbf{q}'} e^{i(\mathbf{q}' - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_j} \hat{d}_{\mathbf{q}}^\dagger \hat{d}_{\mathbf{q}'}. \quad (80)$$

Der Ansatz für itinerante Elektronen entspricht jenem in [144] und [145].

Setzt man die Gleichungen (71), (78)-(80) in Gleichung (67) ein, erhält man

$$\hat{H}_{e-m} = \int d^3r \hat{\Psi}^\dagger \underline{\hat{H}}_{e-m} \hat{\Psi} \quad (81)$$

wobei

$$\underline{\hat{H}}_{e-m} = \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix}, \quad (82)$$

$$\hat{H}_{\uparrow\uparrow} = -\hat{H}_{\downarrow\downarrow} = \frac{g\mu_B}{\hbar} \sum_j \frac{1}{|\mathbf{M}_j|} \tilde{V}_{s,j}^0(r_j). \quad (83)$$

$$\left(S_j - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \sum_{\mathbf{q}'} e^{i(\mathbf{q}' - \mathbf{q}) \mathbf{R}_j} \hat{d}_{\mathbf{q}}^\dagger \hat{d}_{\mathbf{q}'} \right),$$

$$\hat{H}_{\uparrow\downarrow} = \frac{g\mu_B}{\hbar} \sum_j \frac{1}{|\mathbf{M}_j|} \tilde{V}_{s,j}^0(r_j) \sqrt{\frac{2S_j}{N}} \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_j} \hat{d}_{\mathbf{q}}, \quad (84)$$

$$\hat{H}_{\downarrow\uparrow} = \frac{g\mu_B}{\hbar} \sum_j \frac{1}{|\mathbf{M}_j|} \tilde{V}_{s,j}^0(r_j) \sqrt{\frac{2S_j}{N}} \sum_{\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{R}_j} \hat{d}_{\mathbf{q}}^\dagger. \quad (85)$$

Mit Hilfe des Streuoperators soll nun das Matrixelement zwischen 2 Kristallwellenfunktionen bestimmt werden Ψ_α . In Systemen mit Spin-Bahn-Kopplung ist die Kristallelektronenspinorfunktion $\Psi_\alpha(\mathbf{r})$ eine spingemischte Funktion, die sich in Spin-auf $|+\frac{1}{2}\rangle$ und Spin-ab Spinoren $|-\frac{1}{2}\rangle$ entwickeln lässt. Bzgl. jeden Wellenvektors \mathbf{k} und Bandindex n der Kristallwellenfunktion kann man 2 Fälle unterscheiden: Erstens, ist der Spin-auf Teil grösser als der Spin-ab Teil ('dominant spin-auf'), weisen wir den zusätzlichen Index $\tilde{m}_s = +\frac{1}{2}$ zu. Zweitens, ist dieser kleiner ('dominant Spin-ab'), weisen wir den

zusätzlichen Index $\tilde{m}_s = -\frac{1}{2}$ zu. Der Index i der Kristallwellenfunktion steht für (n, \mathbf{k}) , um diesen Zustand zusätzlich den dominanten Spincharakter erkennbar zu machen, verwenden wir den zusätzlichen Index \tilde{m}_s (der nicht unabhängig von (n, \mathbf{k}) ist). Der Operator $\hat{H}_{\underline{e-m}}$ wirkt nun ebenfalls auf den Magnonenzustand $|F\rangle$, dieser wird durch die Magnonbesetzungszahlen $n_{\mathbf{q}}$ charakterisiert. Eine Streuung des Electron von $(n, \mathbf{k}, \tilde{m}_s)$ nach $(n', \mathbf{k}', \tilde{m}'_s)$ ändert simultan auch den Magnonenzustand von $|F\rangle$ nach $|F'\rangle$. Das Matrixelement dieses Streuprozesses ergibt sich aus den Eigenschaften der Operatoren $\hat{h}_i^\dagger = \hat{h}_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s}^\dagger$, $\hat{h}_i = \hat{h}_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s}$ die in den Gleichungen (68), (69) spezifiziert sind, damit gilt

$$\begin{aligned} & \left\langle F' \Psi_{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s} \left| \hat{H}_{\underline{e-m}} \right| \Psi_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s} F \right\rangle = \\ & \int d^3r \Psi_{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s}^* \left\langle F' \left| \hat{H}_{\underline{e-m}} \right| F \right\rangle \Psi_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s}. \end{aligned} \quad (86)$$

Das formale Matrixelement wird nun in linear-muffin-tin-orbital (LMTO) Basis Funktionen [146] entwickelt.

$$\begin{aligned} \Psi_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s} = & \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_{\mathbf{T}} \sum_{l,m_s} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{T}} \cdot \\ & \left(c_{l,m_s}^{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s} \Phi_{\mathbf{T},l,m_s} + d_{l,m_s}^{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s} \dot{\Phi}_{\mathbf{T},l,m_s} \right). \end{aligned} \quad (87)$$

Dabei sind $\Phi_{\mathbf{T},l,m_s}$ die LMTO atomaren Spinfunktionen in der Atomkugel, die durch die Position \mathbf{T} festgelegt ist, bzgl. des sphärisch gemittelten (ASA) effektiven Kohn-Sham Potentials der Spindichtefunktionalelektronentheorie und $\dot{\Phi}_{\mathbf{T},l,m_s}$ die zugehörigen Energieableitungen. Die $\Phi_{\mathbf{T},l,m_s}$ sind ausserhalb der Atomkugel bei \mathbf{T} identisch 0. Somit kann das Matrixelement in $\phi_{\mathbf{T}=0,l,m_s}$ und $\dot{\phi}_{\mathbf{T}=0,l,m_s}$, die Radialteile der LMTO Spinorfunktionen, ausgedrückt werden. Verwendet man Impulserhaltung und nimmt an, dass die magnetischen Momente $|\mathbf{M}_j|$ und somit S_j für alle Atome identisch sind, $|\mathbf{M}|$ und S (was eine gute Näherung ist

solange \mathbf{M}_j nur kleine Verkipnungen aufweisen [147]), erhält man

$$\begin{aligned}
 & \left\langle F' \Psi_{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=-\frac{1}{2}} \left| \widehat{H}_{\uparrow\downarrow} \right| \Psi_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=+\frac{1}{2}} F \right\rangle = \\
 & \frac{g\mu_B}{\hbar|\mathbf{M}|} \sqrt{2S} \int dr r^2 \sum_{l,m} \\
 & \left(\left(c_{l,m,-\frac{1}{2}}^{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=-\frac{1}{2}} \right)^* c_{l,m,+\frac{1}{2}}^{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=+\frac{1}{2}} \phi_{l,-\frac{1}{2}}^* \widetilde{V}_s^0(r) \sqrt{n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}} \phi_{l,+\frac{1}{2}} \right. \\
 & + \left(c_{l,m,-\frac{1}{2}}^{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=-\frac{1}{2}} \right)^* d_{l,m,+\frac{1}{2}}^{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=+\frac{1}{2}} \phi_{l,-\frac{1}{2}}^* \widetilde{V}_s^0(r) \sqrt{n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}} \dot{\phi}_{l,+\frac{1}{2}} \\
 & + \left(d_{l,m,-\frac{1}{2}}^{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=-\frac{1}{2}} \right)^* c_{l,m,+\frac{1}{2}}^{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=+\frac{1}{2}} \dot{\phi}_{l,-\frac{1}{2}}^* \widetilde{V}_s^0(r) \sqrt{n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}} \phi_{l,+\frac{1}{2}} \\
 & \left. + \left(d_{l,m,-\frac{1}{2}}^{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=-\frac{1}{2}} \right)^* d_{l,m,+\frac{1}{2}}^{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=+\frac{1}{2}} \dot{\phi}_{l,-\frac{1}{2}}^* \widetilde{V}_s^0(r) \sqrt{n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}} \dot{\phi}_{l,+\frac{1}{2}} \right). \quad (88)
 \end{aligned}$$

Implizit werden dabei $(\mathbf{k}' - \mathbf{k})$ ausserhalb der ersten Brillouinzone zurückgefaltet berücksichtigt. Analog ergibt sich

$\left\langle F' \Psi_{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=+\frac{1}{2}} \left| \widehat{H}_{\downarrow\uparrow} \right| \Psi_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=-\frac{1}{2}} F \right\rangle$, indem man $\tilde{m}'_s = -\frac{1}{2}$ durch $\tilde{m}'_s = +\frac{1}{2}$, und $\tilde{m}_s = +\frac{1}{2}$ durch $\tilde{m}_s = -\frac{1}{2}$ sowie $\sqrt{n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}}$ durch $\sqrt{n_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}+1}$ ersetzt.

Im Anhang 11.1 ist die Herleitung der 4-komponentigen Lösung zu sehen, die Eingang fand in die Rechnungen, die zur Veröffentlichung [5] führten.

Wie oben erwähnt ist der Abbruch der Entwicklung der Wurzel in der Holstein-Primakoffentwicklung kritisch für höhere Temperaturen und damit verbunden höheren Magnondichten zu sehen. Die Wurzel zu entwickeln führt zu Operatorprodukten im Rahmen einer Reihe, die enormen Rechenaufwand benötigt. Um eine Teilberücksichtigung der höheren Magnonenbesetzungen zu ermöglichen, wurde im Rahmen der dynamischen Rechnung das Operatorprodukt in der Wurzel durch seinen Erwartungswert ersetzt, statt $\sqrt{1 - \frac{\widehat{a}^\dagger \widehat{a}}{2S}} \approx 1$ wurde die Näherung

$$\begin{aligned}
 \Xi &= \sqrt{1 - \frac{\widehat{a}^\dagger \widehat{a}}{2S}} \approx \sqrt{1 - \frac{\langle \widehat{a}^\dagger \widehat{a} \rangle}{2S}} = \sqrt{1 - g_s \frac{\langle \widehat{a}^\dagger \widehat{a} \rangle}{2M}} \\
 &= \sqrt{\frac{2M - g_s \langle \widehat{a}^\dagger \widehat{a} \rangle}{2M}} \quad (89)
 \end{aligned}$$

verwendet, dies führt zu einer Reduktion der Magnonstreuraten bei hohen Besetzungszahlen. Es sollte erwähnt werden, dass $\langle \widehat{a}^\dagger \widehat{a} \rangle =$

$\frac{1}{N_{\mathbf{q}}} \sum_{\mathbf{q}} \langle \hat{d}_{\mathbf{q}}^{\dagger} \hat{d}_{\mathbf{q}} \rangle$, wobei $N_{\mathbf{q}}$ die Anzahl der \mathbf{q} -Punkte in dieser Summe ist. Mathematisch gesehen hat man mit dieser Näherung keinen weiteren Term der Entwicklung der Wurzel exakt beschrieben, jedoch bestimmte Terme beliebiger Ordnung mitgenommen.

6.3 Das Elliott-Yafet Szenario oder wie ein Startzustand generiert wird

Startzeitpunkt der Rechnungen ist kurz nach dem Laserpuls. Es wird also im Rahmen der Rechnungen nicht der Laserpuls explizit durch die Licht-Materiewechselwirkung berücksichtigt. Die Stärke des Laserpulses geht dabei im Rahmen einer angenommenen Temperatur der Startverteilung als ein Parameter ein. Ebenso wird die Elektron-Elektronwechselwirkung nicht explizit berücksichtigt, es wird jedoch angenommen, dass diese die Elektronen nach der Laserpulsanregung (instantan) thermalisiert und dabei die Magnetisierung nicht verändert hat. Thermodynamisch gesehen wurde somit folgendes angenommen: 1. Der Laserpuls gibt nur dem Elektronensystem Energie. 2. Die Subsysteme der dominant-auf Elektronen und der dominant-ab Elektronen können Energie, aber keine Teilchen durch die Elektron-Elektronwechselwirkung austauschen. Sie sind thermalisiert nach dem Laserpuls. 3. Das Phononensystem und das Magnonensystem werden durch den Laserpuls nicht angeregt, während des Laserpulses sind sie von den anderen Subsystemen abgekoppelt. 4. Nach dem Laserpuls beschreiben folgende Parameter das System eindeutig: $T_{\text{el}}^{\text{nach Puls}}$, die Temperatur der beiden elektronischen Subsysteme, sie ist ein Parameter für die Stärke der Anregung. Die Wahl ist letzten Endes in ihrem Zahlenwert willkürlich. Um ein Demagnetisierungsexperiment zu beschreiben, muss die Temperatur nach dem Puls natürlich höher sein als vor dem Puls, was eine untere Grenze der sinnvollen Werte liefert. Im Rahmen des Modelles verteilt man Energie auf 3 Subsysteme, Elektronen, Magnonen und Phononen, als eine ultimative Obergrenze ist dann eine Temperatur der Elektronen nach dem Laserpuls zu sehen, mit welcher nach langer Zeit in einem thermalisierten System das Material geschmolzen wäre. Als sinnvolle Richtgröße wurde die jeweilige Curietemperatur von Nickel und Eisen zur Hand genommen. Wären alle Subsysteme in einem thermischen Gleichgewicht bei Curietemperatur, dann hätte man eine vollständige Entmagnetisierung zu erwarten. Da aus dem elektronischen System noch Energie in das Magnonen-

und das Phononensystem übertragen wird (die am Anfang kühler sind), wurde als elektronische Temperatur nach dem Puls im Rahmen dieser Arbeit für die Rechnungen mit adaptiver Bandstruktur für Nickel $T_{\text{el}}^{\text{nach Puls}} = 800K$ und für Eisen $T_{\text{el}}^{\text{nach Puls}} = 1200K$ gewählt, sodass mit einer merklichen Entmagnetisierung zu rechnen ist. Die Werte sind am oberen Ende der typisch angenommenen Werte, z.B. werden in [62] bis $1000K$ Elektronentemperatur angenommen. $T_{\text{Magnon}} = T_{\text{Phonon}} = T_{\text{el}}^{\text{vor Puls}} = 293,15K$, die Temperaturen der Magnonen und Phononen entsprechen der Elektronentemperatur vor dem Laserpuls, hier Raumtemperatur. μ_{auf} , das chemische Potential der dominant-auf Elektronen, μ_{ab} , das chemische Potential der dominant-ab Elektronen, sie sind unterschiedlich, um das Nichtgleichgewicht zu modellieren. Sie werden so bestimmt, dass Teilchenzahl und Magnetisierung jener bei Startbedingung entsprechen. In Formeln wird dies gefolgt bestimmt: Ausgangspunkt sind das chemische Potential $\mu^{\text{ab-initio}}$ und die Einzelelektronenenergien $\epsilon_{j,\mathbf{k}}$ aus der ab-initio Rechnung. Da diese für $T = 0K$ gilt ist die Zahl der Elektronen pro Atom \tilde{N} durch folgende Gleichung bestimmt.

$$\tilde{N} = \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu^{\text{ab-initio}}}{k_B T_{\text{el}}}} \Big|_{T_{\text{el}}=0} + 1}, \quad (90)$$

wobei N_k die Anzahl der k-Punkte, die in der Summation auftreten, ist. Anschaulich gesehen ist die Gleichung gefolgt zu verstehen: Ein volles Band bei einer primitiven Einheitszelle zeichnet sich durch ein Elektron pro Atom aus. Die Besetzungszahl eines jeden Einzelelektronenzustandes kann maximal 1 sein, der Vorfaktor $\frac{1}{N_k}$ garantiert also, dass richtig gezählt wird. Da die Summe in der Rechnung nur über die aus 4s, 4p und 3d Zustände erzeugten Bänder läuft, ergeben sich für Nickel $\tilde{N} = 10$ und für Eisen $\tilde{N} = 8$. Vor dem Laserpuls hatte das System Raumtemperatur, das chemische Potential vor dem Laserpuls $\mu^{\text{vor Puls}}$ wird nun so bestimmt, dass die Teilchenzahl erhalten ist, ergo

$$\begin{aligned} \tilde{N} &= \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu^{\text{ab-initio}}}{k_B T_{\text{el}}}} \Big|_{T_{\text{el}}=0} + 1} = \\ &= \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu^{\text{vor Puls}}}{k_B T_{\text{el}}}} \Big|_{T_{\text{el}}=293,15} + 1}. \end{aligned} \quad (91)$$

Daraus ergibt sich ein magnetisches Moment pro Atom von

$$\widetilde{M} = \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{m_{j,\mathbf{k}}}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu^{\text{vor Puls}}}{k_B T_{\text{el}}}} \big|_{T_{\text{el}}=293,15} + 1}, \quad (92)$$

wobei $m_{j,\mathbf{k}} = g_s \cdot s_{j,\mathbf{k}} + g_l \cdot l_{j,\mathbf{k}}$ das magnetische Moment eines Zustandes, bestehend aus Spin- $s_{j,\mathbf{k}}$ und Bahnmoment $l_{j,\mathbf{k}}$ mit den jeweiligen gyromagnetischen Verhältnissen g_s und g_l , ist. Es wird nun gefordert, dass sowohl die Teilchenzahl (sinnvolle Annahme) als auch die Magnetisierung (eingeschränkt richtige Annahme, vergleicht man mit dem Experiment z.B. [148], so erkennt man, dass schon ein paar Prozent der Entmagnetisierung während des Laserpulses stattfindet, wieviel hängt zwangsläufig vom Anregungspuls ab) erhalten sind. Daraus ergeben sich Bestimmungsgleichungen für $\mu(s_{j,\mathbf{k}})^{\text{nach Puls}}$

$$\begin{aligned} \widetilde{N} &= \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu^{\text{ab-initio}}}{k_B T_{\text{el}}}} \big|_{T_{\text{el}}=0} + 1} = \\ &= \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu(s_{j,\mathbf{k}})^{\text{nach Puls}}}{k_B T_{\text{el}}}} \big|_{T_{\text{el}}=T_{\text{el}}^{\text{nach Puls}} + 1}} \end{aligned} \quad (93)$$

und

$$\begin{aligned} \widetilde{M} &= \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{m_{j,\mathbf{k}}}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu^{\text{vor Puls}}}{k_B T_{\text{el}}}} \big|_{T_{\text{el}}=293,15} + 1} = \\ &= \frac{1}{N_k} \sum_{j,\mathbf{k}} \frac{m_{j,\mathbf{k}}}{e^{\frac{\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \mu(s_{j,\mathbf{k}})}{k_B T_{\text{el}}}} \big|_{T_{\text{el}}=T_{\text{el}}^{\text{nach Puls}} + 1}}. \end{aligned} \quad (94)$$

Es existieren prinzipiell mehrere Möglichkeiten der Abhängigkeit des chemischen Potentials $\mu(s_{j,\mathbf{k}})$ vom Spin $s_{j,\mathbf{k}}$. Die verwendete ist, dass $\mu(s_{j,\mathbf{k}}) = \mu^{\text{auf}}$ für $s_{j,\mathbf{k}} > 0$ und $\mu(s_{j,\mathbf{k}}) = \mu^{\text{ab}}$ für $s_{j,\mathbf{k}} < 0$. Das Elektronensystem wird also in 2 Subsysteme aufgespalten, die sich in ihrem chemischen Potential unterscheiden. Die unterschiedliche Spinnmischung der verschiedenen Zustände wird dabei ignoriert, d.h. ein Zustand mit großer Spinnmischung wird genauso behandelt wie ein Zustand mit kleiner Spinnmischung. Da die meisten Zustände eine kleine Spinnmischung aufweisen, ist zu hoffen, dass der Fehler nicht zu groß ist. Als weitere Möglichkeit kann

$$\mu(s_{j,\mathbf{k}}) = \mu_{\text{mix}} + \Delta\mu \cdot s_{j,\mathbf{k}} \quad (95)$$

oder

$$\mu(s_{j,\mathbf{k}}) = \mu_{\text{mix}} + \Delta\mu \cdot m_{j,\mathbf{k}} \quad (96)$$

gewählt werden. Man hat erneut 2 Gleichungen (93), (94) und 2 Unbekannte, der Unterschied der elektrochemischen Potentiale wird dabei wie ein Magnetfeld (magnetisches Zwangsfeld) behandelt. Man erhält ein kontinuierliches chemisches Potential abhängig vom magnetischen Moment $m_{j,\mathbf{k}}$ oder dem Spinmoment $s_{j,\mathbf{k}}$. Das Problem hierbei, man generiert sich unendlich viele elektronische Subsysteme, was thermodynamisch gesehen Unfug ist. Sinnvoll wäre unter Umständen ein dritter Weg, bei dem jedem Band ein unterschiedliches chemisches Potential zugesprochen wird, welches abhängig vom Erwartungswert des magnetischen Momentes oder Spinmomentes des Bandes ist. Analog zu den Gleichungen (95), (96) wäre dann, statt für jeden Zustand für jedes Band ein chemisches Potential eindeutig durch eine lineare Abhängigkeit (entsprechend der Kopplung der Zustände an ein Magnetfeld) festgelegt.

5. Elektron-Elektronstreuung (Grund für Thermalisierung) wird nach dem Laserpuls vernachlässigt, Elektron-Phonon und Elektron-Magnonstreuung eingeschaltet.

Zur Gültigkeit der Annahmen im Experiment: Die Teilchenzahlerhaltung ist sicher in sehr guter Näherung erfüllt, durch die Coulombwechselwirkung bedingt wird eine grössere Ladungsseparation im System aus Elektronen und Kernen über den Laserspot gemittelt verhindert. Die Magnetisierung nach dem Laserpuls ist schon leicht reduziert, wie groß diese Reduktion ist, hängt vom Experiment ab, je kürzer der Laserpuls umso besser ist die Annahme erfüllt. Die Thermalisierung der Elektronen ist nach Ende des Laserpulses noch nicht zur Gänze abgeschlossen (gemäß [48] gute Näherung der Beschreibung der ultraschnellen Dynamik durch thermalisierte Verteilung möglich). Die Thermalisierungszeit der Elektronen hängt dabei stark von Anregung und System ab [119]. Je länger der Laserpuls dauert (bei selbem Energieeintrag), desto eher ist die Verteilung nach dem Laserpuls thermalisiert. Das Phononen- und Magnonensystem mag in guter Näherung nicht durch den Laserpuls angeregt werden. Die Streuungen der Quasiteilchen mit den Elektronen, bedingt durch die zunehmende Anregung des Elektronensystems während des Laserpulses, werden jedoch schon zu einer mittelbaren Anregung des Phononensystems und Magnonensystems während des Laserpulses führen. Diese ist evident umso stärker, je länger der Laserpuls

dauerte. Es ist zu erwarten (vgl. Ergebnisse 7.2.1), dass dabei das Magnonensystem bis Ende des Laserpulses stärker angeregt wird als das Phononensystem. Elektron-Elektronstreuung zu vernachlässigen ist im Rahmen der Modellrechnung aus numerischen Gründen notwendig, aus physikalischen Gründen jedoch unsinnig, insbesondere inkonsistent, da zuvor angenommen wurde, dass diese stark und schnell genug war, um das System zu thermalisieren.

Ein grundsätzliches Problem zeigt sich bei der numerischen Bestimmung von $\Delta\mu$. Experimentell hat man eine mit der Temperatur monoton fallende Funktion der Magnetisierung. Nimmt man die ab-initio Grundzustandsbandstruktur, so zeigt sich, dass abhängig von der k-Punktzahl die Magnetisierung keine monoton fallende Funktion der Temperatur ist. Es existieren also k-Punktzahlen, sodass eine Fermiverteilung der Zustände bei höherer Temperatur zu einer höheren Magnetisierung führt. Konsequenterweise ergäbe sich hierfür ein Vorzeichenwechsel in $\Delta\mu$ und folglich unter Umständen auch in der Änderung der Magnetisierung mit der Zeit, was zu unphysikalischen Ergebnissen führt. Aus 2 Gründen ist dieses Problem für die vorliegenden Rechnungen kein grundlegendes; zum einen wurden nur k-Punktzahlen verwendet, für die die Magnetisierung im betrachteten Temperaturbereich das gewünschte Temperaturverhalten aufwies, zum anderen ist die Elektron-Magnonstreuung, welche in den ersten Zeitschritten dominiert, nur schwach von den berechneten Unterschieden der chemischen Potentiale abhängig. Bildlich gesprochen ist die gespannte Feder des kombinierten Elektron-Magnon, Elektron-Phononstreuungsprozesses eine andere als die der reinen Elliott-Yafet Elektron-Phononstreuung. Das durch die Elektron-Magnonstreuung erzeugte Ungleichgewicht der Verteilungen von dominant-auf und dominant-ab Elektronen tritt, wenn auch in anderer Stärke, relativ unabhängig von kleinen $\Delta\mu$ auf. Es kommt ergo zu einer Entmagnetisierung durch die Anregung, selbst wenn das Elliott-Yafet Zwangsfeld eine kleine Remagnetisierung bevorzugen würde.

6.4 Gibt es ein Analogon zum Yafeteil der Elektron-Phononwechselwirkung?

In einer exakteren Beschreibung der Potentialveränderung durch das Magnon, wobei nicht nur die Änderung des effektiven Magnetfeldes mitgenommen wird (die Näherung, die zu Gleichung (64) führte,

wird nicht gemacht), wird es ebenso eine Veränderung des Potentials durch das Magnon und damit eine Veränderung des Spinbahnteiles geben. Weitere Beiträge sind aus Spin-Same und Spin-other-orbit interaction, wie sie in einem Breit-Hamiltonian [149] vorkommen, gegeben. Analog zum Vorgehen in der Berechnung des Elektron-Magnon-Streuprotokolls kann hier die Verkipfung der restlichen Spinnomente durch die Magnonen zu einer Veränderung des Streupotentials führen. Damit diese Terme korrekt behandelt werden können, sollten sie jedoch in die DFT Rechnung der Startzustände einfließen; da dies nicht der Fall ist, wurden sie in der Rechnung nicht berücksichtigt.

6.5 Explizite Berechnung der Zeitentwicklung

Der Hamiltonoperator des berechneten Systems ist gegeben durch:

$$\widehat{H}^{\text{Modell}} = \widetilde{H}^{\text{el}} + \widetilde{H}^{\text{el-ph}} + \widetilde{H}^{\text{el-mag}} + \widetilde{H}^{\text{ph}} + \widetilde{H}^{\text{mag}} \quad (97)$$

Die einzelnen Terme sind dabei gegeben durch:

$$\widetilde{H}^{\text{el}} = \sum_{j,\mathbf{k}} \epsilon_{j,\mathbf{k}} \widehat{c}_{j,\mathbf{k}}^\dagger \widehat{c}_{j,\mathbf{k}}, \quad (98)$$

welcher die Energie im Einzelelektronensystem beschreibt, die Einzelelektronenenergien $\epsilon_{j,\mathbf{k}}$ variieren in jedem Zeitschritt und folgen aus den ab-initio Rechnungen ($\epsilon_{j,\mathbf{k}}^{\text{DFT}}$). Dabei werden zwei Korrekturen gemacht:

Fall a)

$$\epsilon_{j,\mathbf{k}}^{\text{a}} = \epsilon_{j,\mathbf{k}}^{\text{DFT}} + \frac{g_s}{2} \cdot \langle \Psi_{j\mathbf{k}} | B_z^{\text{Zwang}} \sigma_z | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle; \quad (99)$$

wobei aus den Energien $\epsilon_{j,\mathbf{k}}^{\text{DFT}}$ der Erwartungswert des zum unphysikalischen Zwangsfeld gehörigen Zeemantermes herausgerechnet wurde (in der DFT-Rechnung koppelt das Zwang(magnet)feld nur an das magnetische Spinnmoment).

Fall b)

$$\epsilon_{j,\mathbf{k}}^{\text{b}} = \epsilon_{j,\mathbf{k}}^{\text{a}} - g_s \cdot \widetilde{n}_{\text{magn}}(t) / M^{\text{Einzel}}(t) \cdot \langle \Psi_{j\mathbf{k}} | B_z^{\text{eff}} \underline{\underline{\sigma}}_z | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle. \quad (100)$$

In einem System mit Magnonen müsste man zur Berechnung der Einzelelektronenenergien eigentlich eine Rechnung mit der Magnonenkonfiguration entsprechenden statisch verkippten atomaren magnetischen Momenten machen, was mit einem extremen numerischen

Aufwand verbunden wäre. Deshalb berücksichtigt man im Fall b) in einer “mean-field artigen“ Näherung eine Korrektur des magnetischen Anteiles des effektiven Potentials, indem nur der Teil der spin-abhängigen Wechselwirkung mitgenommen wird, der im Mittel parallel zur globalen Spinquantisierungsachse ist (z-Richtung, Richtung der Magnetisierung). $\tilde{n}_{\text{magn}}(t) = n_{\text{magn}}(t) - n_{\text{magn}}(t = 0)$, d.h. von der Magnonenbesetzung pro Atom zum Zeitpunkt t , $n_{\text{magn}}(t)$, wird $n_{\text{magn}}(t = 0)$ abgezogen. Wenn dies nicht gemacht würde, dann würde auch zum Startzeitpunkt $t=0$ eine bzgl. der Verkippung der magnetischen Momente näherungsweise korrigierte Bandstruktur auftreten, die aber aufgrund der Näherung nicht die echte Bandstruktur bei $t = 0$ wäre. Es könnten deshalb bei dieser genäherten Bandstruktur Prozesse auftreten, die das System gegen kleinste Anregungen instabil machen würden, obwohl man die Elektronentemperatur nur marginal über der Raumtemperatur angesetzt hätte. Daneben gibt es noch die rein formalen Vorteile, in Fall a) und Fall b) den selben Startzustand zu haben und insbesondere in Fall b) keine ungewiss reduzierte Magnetisierung des Startzustandes im Vergleich zum 0K Grundzustand zu haben, die sich aufgrund einer “(ver)korrigierten“ Bandstruktur ergeben hätte. $n_{\text{magn}}(t = 0)$ ist dabei die Zahl der Magnonen bei der Zeit $t = 0$, bei der im Elliott-Yafet Formalismus angenommen wird, dass die Magnetisierung immer noch der Magnetisierung bei der Temperatur ist, bei der das Experiment durchgeführt wird. Zur Zeit $t \neq 0$ ist n_{magn} durch die Streuungen der vom Laserpuls angeregten Elektronen an Magnonen verändert. $M^{\text{Einzel}}(t)$ ist die Länge des atomaren magnetischen Momentes zur Zeit t die sich aufgrund der Veränderung der elektronischen Zustände und Besetzungszahlen ändert. Beschreibt $g_s \cdot \tilde{n}_{\text{magn}}$ die absolute Reduktion des magnetischen Momentes pro Atom durch die (von $t' = 0$ bis t) emittierten Magnonen, so beschreibt $\frac{g_s \cdot \tilde{n}_{\text{magn}}(t)}{M^{\text{Einzel}}(t)}$ genau den Anteil, um den die Länge des zur Zeit t vorliegenden atomaren magnetischen Momentes im Mittel durch die (von $t' = 0$ bis t) emittierten Magnonen reduziert wird. Mit diesem Anteil wird der volle “magnetische Anteil“ der Energie $\langle \Psi_{j\mathbf{k}} | B_z^{\text{eff}} \underline{\sigma}_z | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle$ gewichtet und dann abgezogen, sodass effektiv tatsächlich nur der Anteil der $\frac{M^{\text{Einzel}}(t) - g_s \cdot \tilde{n}_{\text{magn}}(t)}{M^{\text{Einzel}}(t)} \cdot \langle \Psi_{j\mathbf{k}} | B_z^{\text{eff}} \underline{\sigma}_z | \Psi_{j\mathbf{k}} \rangle$ der spin-abhängigen Wechselwirkung mitgenommen wird, der, wie oben beschrieben, im Mittel parallel zur globalen Spinquantisierungsachse ist. Fall a) (kein Einfluss) und Fall b) (maximaler Einfluss) sind somit die Extremfälle

der möglichen Beeinflussung der Einzelelektronenenergien durch die Magnonbesetzung, die beiden Rechnungen sollen also als Grenzfälle dienen, zwischen denen sich das “reale System“ entwickelt.

$$\tilde{H}^{\text{ph}} = \sum_{\lambda, \mathbf{q}} \hbar \omega_{\mathbf{q}, \lambda}^{\text{ph}} \hat{b}_{\mathbf{q}, \lambda}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{q}, \lambda}, \quad (101)$$

beschreibt die Energie im Phononensystem, die Einzelphononenenergien $\hbar \omega_{\mathbf{q}, \lambda}^{\text{ph}}$ sind gemäß den Kraftkonstanten aus [19], genauso wie in [38], bestimmt. Die Kraftkonstanten und damit die Polarisationsvektoren und Dispersionsrelationen für die Phononen wurden über die gesamte Rechnung konstant gehalten, die Besetzungszahlen ändern sich in jedem Zeitschritt.

$$\tilde{H}^{\text{magn}} = \sum_{\mathbf{q}} \hbar \omega_{\mathbf{q}}^{\text{mag}} \hat{d}_{\mathbf{q}}^{\dagger} \hat{d}_{\mathbf{q}}, \quad (102)$$

beschreibt die Energie im Magnonensystem, die Energien $\hbar \omega_{\mathbf{q}}^{\text{mag}}$ sind dabei abhängig von der momentanen Magnonenbesetzung um das “Aufweichen“ der Magnonendispersion mit der Temperatur, wie es im thermodynamischen Gleichgewicht vorkommt, zu simulieren. Da es sich um eine Nichtgleichgewichtsverteilung handelt und keine Daten für die gesamte Magnonendispersion bzgl. der Temperatur vorliegen, wurden hierzu einige Näherungen gemacht. Zum einen wird eine “Pseudotemperatur“ ($T_{\text{magn}}^{\text{Pseudo}}$) der Magnonen eingeführt, sie entspricht der Temperatur, für welche die Boseverteilungsfunktion der Magnonen die selbe Magnonenanzahl pro Atom liefern würde, wie sie gerade im vorliegenden Zeitschritt vorhanden ist; dazu wird die Magnondispersion in der Boseverteilungsfunktion gleichzeitig an die Pseudotemperatur angepasst. Zum anderen wird die Magnonendispersion in Abhängigkeit der Temperatur genähert, wie in Kapitel 6.1 beschrieben, wobei $T_{\text{magn}}^{\text{Pseudo}}$ als Temperatur eingesetzt wird.

Die Renormierung der Magnonenspektren in dieser Form ist aus 2 Gründen kritisch zu betrachten.

1. ist das Aufweichen der Magnonendispersion auf 2 Effekten begründet, zum einen, aufgrund einer effektiven Wechselwirkung zwischen den Magnonen, zum anderen, aufgrund der anderen elektronischen Struktur und Streuungen, bedingt durch die erhöhte Elektronentemperatur. Die beiden Beiträge sind aber nur für ein System von Elektronen und Magnonen (und Phononen), die sich im thermischen Gleichgewicht befinden, bestimmt worden, mit den magnetischen

Momenten, die sich im Gleichgewicht einstellen. In der Modellrechnung hingegen befinden sich die Subsysteme untereinander nicht im thermischen Gleichgewicht, und sowohl die Magnonenverteilung als auch die Elektronenverteilung sind Nichtgleichgewichtsverteilungen, die magnetischen Momente sind dabei jene, die sich aus dem berechneten Zeitverlauf ergeben. Eine genäherte Temperatur der Elektronen wäre darüber hinaus stets höher als die Pseudotemperatur der Magnonen. Dementsprechend kann eine Beschreibung der Magnonenaufweichung mit der magnonischen Pseudotemperatur ($T_{\text{magn}}^{\text{Pseudo}}$) nur eine (grobe) Abschätzung der Magnonenaufweichung darstellen, die sich unter den Bedingungen der Modellrechnung (real) einstellen würde.

2. Wie unter anderem in [136] gezeigt wird ist der Einfluss durch die Temperatur auf die Magnonenspektren keineswegs für alle \mathbf{q} -Vektoren identisch. Für große $|\mathbf{q}|$ -Vektoren wird durch den Ansatz der Renormierung mit dem Faktor $\frac{D(T)}{D(T=0K)}$ durch eine temperaturabhängige Spinwellensteifigkeit die Energiereduzierung (deutlich) überschätzt. Trotz dieser Inkonsistenzen sah ich es als notwendig an, eine Temperaturabhängigkeit der Dispersionsrelationen einzuführen, da bei hinreichend hohen Temperaturen zumindest für kleinere $|\mathbf{q}|$ -Vektoren die Energie drastisch reduziert wird. Es ist ergo ein kleinerer Fehler durch die näherungsweise Mitnahme der Temperaturabhängigkeit zu erwarten, als wenn man sie einfach wegließe. Zukünftige Rechnungen sollten eine exaktere Temperaturabhängigkeit der Dispersion der Magnonen berücksichtigen.

$$\tilde{H}^{\text{el-ph}} = \sum_{j,j',\lambda\mathbf{k}\mathbf{k}'} M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ph}\lambda} \hat{c}_{j'\mathbf{k}'}^\dagger \hat{c}_{j\mathbf{k}} \left(\hat{b}_{\lambda,-\mathbf{q}}^\dagger + \hat{b}_{\lambda,\mathbf{q}} \right), \quad (103)$$

wobei $\mathbf{q} = \mathbf{k}' - \mathbf{k} + \mathbf{G}$ und somit (Quasi-)Impulserhaltung gilt. Dieser Term beschreibt die Elektron-Phononwechselwirkung, das Matrixelement $M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ph}\lambda}$ ist dabei jenes, welches man mit Hilfe der Nordheimnäherung durch Mitnahme von Elliott- [150] und Yafetteil[151] aus einer ab-initio Rechnung erhält, wie in z.B [4]

$$M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ph}\lambda} = \sqrt{\frac{\hbar}{2NM\omega_{\mathbf{q},\lambda}}} (\langle j'\mathbf{k}' | \Omega_\lambda | j\mathbf{k} \rangle), \quad (104)$$

wobei der Operator Ω_λ , hier zur besseren Lesbarkeit nur in 2 Komponenten [4] (ohne verallgemeinerte relativistische Masse), [38] gegeben

ist durch:

$$\Omega_\lambda = - \sum_n e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_{\mathbf{o},n}} (\mathbf{n}_{\mathbf{q},\lambda} \nabla_{\mathbf{r}_n}) \cdot \left[\begin{pmatrix} \frac{\partial v_{0,n}^\uparrow}{\partial r_n}(r_n) & 0 \\ 0 & \frac{\partial v_{0,n}^\downarrow}{\partial r_n}(r_n) \end{pmatrix} + \sum_i \frac{\hbar}{4M_{\mathbf{R}\alpha,\mathbf{R}'\alpha'}^2 c^2 r_n} \frac{\partial v_{0,n}^{\alpha,\alpha'}}{\partial r_n} \left(\widehat{L}_n \right)_i \widehat{\sigma}_i \right], \quad (105)$$

wobei $\widehat{\mathbf{L}}_n$ der Drehimpulsoperator bezogen auf den Koordinatenursprung $\mathbf{R}_{\mathbf{o},n}$ ist. Die Doppelindices $\{\mathbf{R}\alpha, \mathbf{R}'\alpha'\}$, $\{\alpha, \alpha'\}$, kürzen ab, dass aus Gründen der Hermitizität, falls die Indexpaare ungleich sind, ein arithmetisches Mittel der zugehörigen Größen gebildet wird. Der erste Summand ist in diesem Fall der Elliottterm, der zweite der Yafetterm. In Rechnungen von Ilg et al [4], [38] wurde gezeigt, dass beide Terme beitragen und insbesondere konstruktiv interferieren. (Inwiefern der spindagonale Elliottterm zur Änderung des Spindrehimpulses beitragen kann wird in Kapitel 5.7 Spinnmischung genauer erläutert.) Für die Rechnungen wurde die 4 Komponentenform gewählt [38].

Die Polarisationsvektoren und Frequenzen der Phononen bleiben unverändert, die Matrixelemente (durch die geänderten Potentiale) und Besetzungszahlen ändern sich jedoch mit den Zeitschritten.

$$\widetilde{H}^{\text{el-mag}} = \sum_{j,j',\mathbf{k},\mathbf{k}'} M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{em,mag}} \widehat{c}_{j'\mathbf{k}'}^\dagger \widehat{c}_{j\mathbf{k}} \widehat{d}_{-\mathbf{q}}^\dagger + M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ab,mag}} \widehat{c}_{j'\mathbf{k}'}^\dagger \widehat{c}_{j\mathbf{k}} \widehat{d}_{\mathbf{q}} \quad (106)$$

Dieser Term beschreibt die Elektron-Magnonwechselwirkung. Im Gegensatz zu $\widehat{H}_{\text{e-m}}$ in Gleichung (82) handelt es sich hierbei um die Formulierung für die vierkomponentige Spinorfunktion mit korrigierendem Faktor, siehe Gleichung (89). Auch wenn es nicht direkt ersichtlich ist, so ist dieser Operator doch hermitesch, da für die Matrixelemente $M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{em,mag}*} = M_{j'j\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\text{ab,mag}}$ gilt. Die Matrixelemente sind in 2 Komponenten (noch unkorrigiert) gegeben durch Gleichung (88), basierend auf [140] (wobei die Besetzungszahlterme der Magnonen in obiger Form herausgezogen wurden), d.h.

$$\left\langle F' \Psi_{n',\mathbf{k}',\tilde{m}'_s=-\frac{1}{2}} \left| \widehat{H}_{\uparrow\downarrow} \right| \Psi_{n,\mathbf{k},\tilde{m}_s=+\frac{1}{2}} F \right\rangle = \sqrt{n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}} \cdot M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ab,mag,roh}}, \quad (107)$$

was als Defintionsgleichung für das unkorrigierte Matrixelement $M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ab,mag,roh}}$ zu betrachten ist. Zusätzlich mit einer angepassten Korrektur, um näherungsweise höhere Magnonenbesetzungszahlen zu

berücksichtigen, siehe Gleichung (89), ergibt sich das Elektronmagnonmatrixelement der Absorption zu

$$M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ab,mag}} = M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ab,mag,roh}} \cdot \Xi. \quad (108)$$

Das Matrixelement zur Emission ist analog definiert. Die Korrekturen bzgl. der verwendeten 4 Komponentenform sind dem Anhang 11.1 zu entnehmen (auch hier müssen für den Vergleich die Besetzungsterme bzw. die Operatoren der Magnonen herausgezogen und der Renormierungsfaktor Ξ hinzugefügt werden). Die Werte der Matrixelemente ändern sich in jedem Zeitschritt.

In jedem Zeitschritt werden nun die Änderungen der Elektronen-, Magnonen- und Phononenbesetzungszahlen durch die Elektron-Magnon- und Elektron-Phonon-Streuung berechnet. Die Änderung der elektronischen Besetzungszahl wird durch Elektron-Magnonstreuung (Superskript e-m) und Elektron-Phononstreuung (Superskript e-p) verursacht.

$$\frac{df(j\mathbf{k})}{dt}(t) = \frac{df(j\mathbf{k})^{\text{e-m}}}{dt}(t) + \frac{df(j\mathbf{k})^{\text{e-p}}}{dt}(t). \quad (109)$$

Die Beiträge der Quasiteilchenstreuungen können durch Emission (Subskript em) oder Absorption (Subskript ab) der Quasiteilchen geschehen, hier am Beispiel der Magnonen

$$\frac{df(j\mathbf{k})^{\text{e-m}}}{dt}(t) = \frac{df(j\mathbf{k})_{\text{ab}}^{\text{e-m}}}{dt}(t) + \frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em}}^{\text{e-m}}}{dt}(t). \quad (110)$$

Betrachtet man den Emissionanteil genauer, so besitzt dieser Terme aus der Hinstreuung (Subskript h), d.h. Streuung in den Zustand j, \mathbf{k} und Anteile aus der Rückstreuung, (Subskript b) d.h. Streuungen aus dem Zustand j, \mathbf{k} .

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em}}^{\text{e-m}}}{dt}(t) = \sum_{j',\mathbf{k}'} \left(\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em,h}}^{\text{e-m},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) + \frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em,b}}^{\text{e-m},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) \right). \quad (111)$$

Die Rückstreuung besteht aus allen möglichen Termen ihres Types. Die Einzelterme sind dabei im Rahmen von Fermi's goldener Regel gegeben durch

$$\begin{aligned} \frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em,h}}^{\text{e-m},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) &= \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j\mathbf{k})) \cdot f(j'\mathbf{k}') \cdot \left| M_{j'j\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\text{em,mag}} \right|^2 \cdot \\ &\delta(\epsilon_{j'\mathbf{k}'} - \epsilon_{j\mathbf{k}} - \hbar\omega_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}) \cdot (n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}} + 1), \end{aligned} \quad (112)$$

analog ergibt sich der Rückstreuungsterm zu, mit den Einzeltermen von

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em,b}}^{\text{e-m},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j'\mathbf{k}')) \cdot f(j\mathbf{k}) \cdot \left| M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{em,mag}} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j\mathbf{k}} - \epsilon_{j'\mathbf{k}'} - \hbar\omega_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \cdot (n_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} + 1)). \quad (113)$$

Die Absorptionsanteile lassen sich analog bezeichnen,

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{ab,h}}^{\text{e-m},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j\mathbf{k})) \cdot f(j'\mathbf{k}') \cdot \left| M_{j'j\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\text{ab,mag}} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j'\mathbf{k}'} - \epsilon_{j\mathbf{k}} + \hbar\omega_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \cdot (n_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'})) \quad (114)$$

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{ab,b}}^{\text{e-m},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j\mathbf{k})) \cdot f(j'\mathbf{k}') \cdot \left| M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{ab,mag}} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j\mathbf{k}} - \epsilon_{j'\mathbf{k}'} + \hbar\omega_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}} \cdot (n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}})) \quad (115)$$

Bei den Phononen tritt eine zusätzliche Summation bzgl. des Polarisationsindex auf:

$$\frac{df(j\mathbf{k})^{\text{e-p}}}{dt}(t) = \sum_{\lambda} \left(\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{ab},\lambda}^{\text{e-p}}}{dt}(t) + \frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em},\lambda}^{\text{e-p}}}{dt}(t) \right). \quad (116)$$

Mit analoger Hierarchie zu den Elektron-Magnonstreutermen folgen als Einzelstreuerelemente daraus

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em,h},\lambda}^{\text{e-p},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j\mathbf{k})) \cdot f(j'\mathbf{k}') \cdot \left| M_{j'j\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\text{phon},\lambda} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j'\mathbf{k}'} - \epsilon_{j\mathbf{k}} - \hbar\omega_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}} \cdot (n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k},\lambda} + 1)), \quad (117)$$

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{em,b},\lambda}^{\text{e-p},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j'\mathbf{k}')) \cdot f(j\mathbf{k}) \cdot \left| M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{phon},\lambda} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j\mathbf{k}} - \epsilon_{j'\mathbf{k}'} - \hbar\omega_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \cdot (n_{\mathbf{k}-\mathbf{k}',\lambda} + 1)), \quad (118)$$

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{\text{ab,h},\lambda}^{\text{e-p},j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j\mathbf{k})) \cdot f(j'\mathbf{k}') \cdot \left| M_{j'j\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\text{phon},\lambda} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j'\mathbf{k}'} - \epsilon_{j\mathbf{k}} + \hbar\omega_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \cdot (n_{\mathbf{k}-\mathbf{k}',\lambda})) \quad (119)$$

und

$$\frac{df(j\mathbf{k})_{ab,b,\lambda}^{e-p,j'\mathbf{k}'}}{dt}(t) = \frac{2\pi}{\hbar} (1 - f(j\mathbf{k})) \cdot f(j'\mathbf{k}') \cdot \left| M_{jj'\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{Phon},\lambda} \right|^2 \cdot \delta(\epsilon_{j\mathbf{k}} - \epsilon_{j'\mathbf{k}'} + \hbar\omega_{\mathbf{k}'-\mathbf{k}}) \cdot (n_{\mathbf{k}'-\mathbf{k},\lambda}). \quad (120)$$

Die ‘‘unpraktische‘‘ Art der Beschreibung der Einzelstreuerelemente hatte ihren Grund, es fällt uns nun leicht, die Änderungen der Quasiteilchenbesetzungszahlen zu formulieren:

$$\frac{dn(\mathbf{q})}{dt}(t) = \sum_{jj'\mathbf{k}} \left(\frac{df(j\mathbf{k})_{em,h}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) - \frac{df(j\mathbf{k})_{ab,b}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) \right), \quad (121)$$

die scheinbar vergessenen Terme sind bzgl. $-\mathbf{q}$

$$\frac{dn(-\mathbf{q})}{dt}(t) = \sum_{jj'\mathbf{k}} \left(\frac{df(j\mathbf{k})_{em,b}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) - \frac{df(j\mathbf{k})_{ab,h}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) \right). \quad (122)$$

Da man bzgl. aller Start- und Endzustände zum selben \mathbf{q} summiert, sind die beiden letzten Gleichungen äquivalent, insbesondere gilt, da das System inversionssymmetrisch ist und somit die Änderungen bzgl. \mathbf{q} und $-\mathbf{q}$ identisch sind,

$$\frac{dn(\mathbf{q})}{dt}(t) = \frac{1}{2} \sum_{jj'\mathbf{k}} \left(\frac{df(j\mathbf{k})_{em,b}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) - \frac{df(j\mathbf{k})_{ab,h}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) - \frac{df(j\mathbf{k})_{ab,b}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) + \frac{df(j\mathbf{k})_{em,h}^{e-m,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) \right). \quad (123)$$

Das Phononsystem ist in seiner Formulierung, bis auf einen zusätzlichen Polarisationsvektor, vollkommen analog zur Beschreibung des Magnonsystems:

$$\frac{dn(\mathbf{q}, \lambda)}{dt}(t) = \sum_{jj'\mathbf{k}} \left(\frac{df(j\mathbf{k})_{em,h,\lambda}^{e-p,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) - \frac{df(j\mathbf{k})_{ab,b,\lambda}^{e-p,j'\mathbf{k}+\mathbf{q}}}{dt}(t) \right). \quad (124)$$

Die veränderte Magnetisierung im Einzelelektronensystem bestimmt die Zwangsbedingung an den nächsten Zustand der ab-initio Rechnung. Die Änderungsrate ist dabei gegeben durch

$$\frac{dM^{\text{Einzel}}}{dt}(t) = \frac{1}{N_k} \sum_{j\mathbf{k}} m_{j\mathbf{k}}(t) \frac{df(j\mathbf{k})}{dt}(t), \quad (125)$$

wobei $m_{j\mathbf{k}} = g_s s_{j\mathbf{k}} + g_l l_{j\mathbf{k}}$ ist. Somit ergibt sich die Magnetisierungs-
zwangsbedingung für einen Zeitschritt t_i :

$$M^{\text{Zwang}}(t_i) = M^{\text{Zwang}}(t_{i-1}) + (t_i - t_{i-1}) \cdot \frac{dM^{\text{Einzel}}}{dt}(t_{i-1}) \quad (126)$$

Auf diese Art wird sichergestellt, dass jede Änderung des magnetischen Momentes auf einer Streuung beruht und nicht auf einer Zustandsänderung durch die neue DFT-Rechnung.

Eine schematische Skizze ist Abbildung 7 zu entnehmen. Die Länge der Zeitschritte wurde dynamisch angepasst, die kürzesten Zeitschritte dabei am Anfang der Rechnung, wo das größte Ungleichgewicht vorliegt (vereinfacht: Ungleichgewicht der elektronischen Verteilungen bestimmt Zeitschrittlänge). Die Länge der Zeitschritte konnte dann im Verlauf der Rechnung erhöht werden, bis die steigende Bosonenzahl erneut kürzere Zeitschritte notwendig macht (vereinfacht: größter Einzelstreubeitrag proportional zur Quasiteilchenbesetzung bestimmt die Zeitschrittlänge). Die Zeitschritte wurden dabei so gewählt, dass alle bestimmten Mittelwerte sich glatt in der Zeit verhalten, genauer, dass die Quasiteilchenemissionsraten und die Änderungsraten des magnetischen Spin- und Bahnmomentes, sowohl für Phononen, als auch für Magnonen keine mit den Zeitschritten oszillierende zweite Ableitung besitzen (was bis auf eine kleine Stelle, siehe Abbildung 35 Phononenemission bei Eisen Fall b) knapp unter 30 fs auch gelingt). Dies ist keine hinreichende Bedingung für eine numerisch geeignet gelöste Differentialgleichung, aber eine notwendige um eine physikalisch sinnvolle Lösung zu erhalten. Für Eisen sind die Zeitschritte aufgrund der höheren Anregung und der damit verbundenen höheren Streuraten kleiner. Die Länge der Zeitschritte variierte von 0,05 bis 0,275 fs bei Nickel und von 0,01 bis 0,15 fs für Eisen. Ursprüngliches Ziel der Rechnung war es, die Dynamik bis zum Minimum der Entmagnetisierungskurve zu berechnen; die für die Konvergenz des Eulerverfahrens nötigen kürzeren Zeitschritte für steigende Bosonenzahlen im Zeitverlauf sorgten jedoch

dafür, dass dieses Ziel verfehlt wurde. Stattdessen wurden für Eisen und Nickel und die zugehörigen Bedingungen für jeweils mindestens 50 fs der Dynamik berechnet und analysiert.

Eine kritische Anmerkung ist hier jedoch noch zu machen; obwohl die skizzierte Art und Weise die Zeitschritte zu behandeln zu einer vernünftigen Kurve der Magnetisierung in Abhängigkeit der Zeit führt und die Zeitentwicklung sich hin zu einem endlichen Minimum der Magnetisierung zu entwickeln scheint, existiert keine Gewissheit, dass die so beschriebene Zeitentwicklung physikalisch ist.

6.5.1 Fermis goldene Regel, die Boltzmannratengleichung und die Energieerhaltung

Mit der Verwendung von Fermis goldener Regel wird die Energieerhaltung in jedem Streuprozess implizit mitgenommen, vernachlässigt werden zudem Korrelationsterme, d.h. der Einfluss der Nichtdiagonalelemente der Dichtematrizen auf die Dynamik. Die Zeitentwicklung ist als markovsch angenommen, d.h., das System hat “keine Erinnerung“. Unter anderem wird somit die Energie-Zeitunschärfe vernachlässigt, diese führt zu einem durch Lebensdauern bedingten Linienbreiten, d.h., die Energie eines Zustandes ist nicht scharf, zum anderen kann man in der Herleitung von Fermis goldener Regel (siehe z.B. [152]) sehen, dass hier ein Limes großer Zeiten gewählt wurde, für welchen die *sinc*-Funktion in die Delta-Distribution übergeht. Im Rahmen der betrachteten fs-Dynamik handelt es sich dabei um Näherungen, die nur a posteriori eine Rechtfertigung erfahren können. Zumindest für Halbleiter [153] konnte gezeigt werden, dass schon nach recht kurzer Zeit Mittelwerte, welche quantenkinetisch unter Hinzunahme von Korrelationstermen berechnet wurden, denen entsprachen, die mit Hilfe von Fermis goldener Regel und Boltzmannratengleichungen bestimmt wurden, obwohl die spektralaufgelösten Verteilungen noch deutliche Unterschiede aufwiesen. Es ist zu hoffen, dass dies auch für magnetische Systeme und insbesondere den Magnetisierungsverlauf, der ja wiederum einen Mittelwert darstellt, gilt. Im Rahmen einer Modellrechnung wird das Problem von Korrelationen und Energieerhaltung in der Femtosekundendynamik der Magnetisierung gerade von Johan Briones[49] in unserer Abteilung untersucht, auf der Basis der Arbeit von Nicolai Teeny [154]. Die Lebensdauern der Magnonen können bisweilen im fs Bereich [155] liegen, was zu einer erheblichen Energieverbreiterung im Sinne der

Zeitschrittberechnungsschema

DFT-Rechnung

Dateninput	Datenoutput
Zwangsbedingung an Einzelelektronenmagnetisierung	Energien, Entwicklungskoeffizienten, Zwangsfeld, Potentiale & elektronische Zustände

Zwischenrechnungen

Bestimmung der Einzelelektronen
Spin- und Bahnmomente,
Zwangsfeld aus Energien korrigieren,
Anpassung der Magnonenenergien durch Magnonbesetzung (siehe Kapitel 6.1)
& Berechnung der Matrixelemente bzgl. LMTO-Basis

(nur Fall b) siehe Gleichung 100:
(Anpassung der Einzelelektronenenergien an Verkipfung durch Magnonbesetzung)

Berechnung der Ratengleichung für einen Zeitschritt

Dateninput	Datenoutput
Korrigierte Energien, Besetzungszahlen, Matrixelemente bzgl. LMTO-Basis & Zustände	Änderung der Besetzungszahlen

Bilanzierungsrechnungen

Änderung der Einzelelektronenmagnetisierung,
Änderung der gesamten Magnetisierung,
Änderung des gesamten Spin- und Bahnmomentes
& neue Besetzungszahlen.

neue DFT-Rechnung

...

Abbildung 7: Schematische Darstellung der Rechenschritte eines Zeitschrittes

Zeitunschärfe führt. Im Laufe der Arbeit wurde erfolglos versucht die Lebensdauereffekte einzubinden, indem man ein Analogon zur periodischen Störung, die zu Fermi's goldener Regel führt, eine zeitlich gedämpfte Störung ansetzt. Dies führt dazu, dass statt einer Deltafunktion eine Breit-Wigner-Funktion auftaucht. Die geringen Magnonlebensdauern und damit verbundenen hohen Linienbreiten führten zu einem starken Bruch der Energieerhaltung, der zu einer Umbesetzung elektronischer Zustände durch Streuungen mit Magnonen in höhere Energien führte, was die Streuraten in der Zeitentwicklung immens anwachsen ließ. Das daraus entstehende numerische und physikalische Problem konnte nicht gelöst werden, darum wurde doch auf Fermi's goldene Regel zurückgegriffen. Die letztendliche Wahl der Energieverschmierung ist dabei kritisch, hat man für den ersten Zeitschritt Streuraten, die relativ unabhängig vom Verschmierungsparameter sind (über Größenordnungen), ändert sich die Situation drastisch für die dynamische Rechnung. Die minimale Quasiteilchenenergie (hier ca. $0,14mRy$ sowohl im Fall von Eisen als auch von Nickel) bestimmt dabei eine obere Grenze des Verschmierungsparameters, da sie direkt den schlimmsten denkbaren Fall für die Energieerhaltung festlegt. Die untere Grenze des Verschmierungsparameters ist durch die Erforderung eines glatten Zeitverlaufes gegeben, glatt heisst in diesem Fall, dass die erste Ableitung der Raten und damit die zweite Ableitung der Magnetisierung nach der Zeit in den ersten 50 Zeitschritten keine Oszillationen aufgrund von zu kleiner Verschmierung aufweisen. Zu jenen Oszillationen kommt es, da bei zu kleiner Verschmierung die Beiträge einen mehr oder weniger zufälligen Fehler aufweisen, der einmal zur realen Entwicklung addiert und einmal subtrahiert wird. Die gewählten Verschmierungsparameter von Eisen ($\sigma = 0,11mRy$) und Nickel ($\sigma = 0,1325mRy$) wurden durch einen numerischen Test bestimmt. Der kleinste Verschmierungsparameter, welcher in der numerischen Rechnung einen glatten Zeitverlauf ermöglichte, wurde ausgewählt. Da in der dynamischen Rechnung im Laufe der Rechnung die beteiligten Zustände variieren, kann der Verschmierungsparameter trotzdem zu klein gewählt sein (vmtl. bei Eisen der Fall). Ein Kommentar zur damit erzielten Energieerhaltung ist einer Anmerkung am Ende des Kapitels zu numerischen Resultaten 7.2.2 zu entnehmen,

6.5.2 Zeitschritte und DFT Zwangsbedingungen

In einem einfachen Modellsystem, wie z.B. dem 2-Band-Hubbardmodell, ändern sich zwischen 2 Zeitschritten einer Zeitentwicklung nur die Besetzungszahlen. Die Änderung der Besetzungszahlen führt zu einer Veränderung der Magnetisierung, und schliesslich werden die Bänder aufgrund der veränderten Magnetisierung starr zueinander energetisch verschoben, gemäß der Austauschspaltung, die proportional zur Magnetisierung ist. Die Zustände ändern sich dabei nicht, ebenso ändern sich die Energiedifferenzen innerhalb eines Bandes nicht. In einem realen System ändern sich im Zeitverlauf Besetzungen, Zustände und Bandstruktur. Versucht man dies mit einem dynamischen Bandmodell mit Hilfe von DFT-Rechnung umzusetzen, so entstehen Probleme. Die Ursache der Probleme liegt in der Unmöglichkeit, thermische Effekte und Nichtgleichgewichtszustände vollständig mit Hilfe der DFT Rechnung abzubilden. In folgender Art und Weise wurde versucht, den Fehler beim Versuch des Unmöglichen so klein wie möglich zu halten: Mit einer geänderten Besetzungszahl durch eine Streuung wird eine Änderung der Magnetisierung bestimmt. Im Rahmen der DFT mit Zwangsbedingungen [147] hat man nun einen Parameter, um das magnetische Moment festzulegen und damit eine Bedingung zur Veränderung der elektronischen Zustände und Bandstruktur zu geben. Dazu wird nun ein (magnetisches) Zwangsfeld angelegt, sodass sich eine angepasste eindeutige Lösung des Dichtefunktional mit Zwangsfeld ergibt. Dies ist zwangsläufig wieder eine Lösung für $T = 0K$, nun aber unter angelegtem Zwangsfeld. Die Zwangsbedingung an das neue magnetische Moment wird also an den neuen Grundzustand des Systems gegeben. Daraus folgt nicht, dass das magnetische Moment des angeregten Zustandes, in den man im vorigen Zeitschritt gestreut hatte, konsistent mit dem magnetischen Moment ist, das sich mit den selben Besetzungszahlen und neuen Zuständen ergibt. In dieser Arbeit wird angenommen, dass dieser Fehler klein ist. Um ein mögliches Aufschaukeln des Effektes zu vermeiden, wird die Änderung des magnetischen Momentes nur durch die Streuungen erlaubt, nicht aber explizit durch die Änderung der Zustände. Implizit ändern die veränderten Zustände dabei natürlich den Beitrag der Streuungen, indem sie sowohl die Matrixelemente als auch die Einzelelektronenspin- und Einzelelektronenorbitalbeiträge ändern. Die Änderung des magnetischen Momentes der Einzelelektronen durch die Streuungen lie-

fert dabei, zusammen mit dem magnetischen Moment der Zwangsbedingung des vorherigen Zeitschrittes, die Zwangsbedingung für den nächsten Zeitschritt (siehe Gleichung (126)). Zusätzlich werden die Energien der Zustände und Matrixelemente zwischen den Zuständen im neuen Potential der DFT-Rechnung angepasst. Diese Energien berücksichtigen nun das angelegte Zwangsfeld, welches physikalisch gesehen nicht vorhanden ist. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Zwangsfeldeffekte auf die Energien korrigiert, siehe Gleichung (99). Das hat einen Einfluss auf die Stabilität der Zustände, die durch Zwangsbedingungen erzeugt wurden. Physikalisch gesehen steckt hierin die Annahme, dass mit der gemachten Quasiseparation von Einzelelektronensystem und Magnonensystem im Gleichgewicht die Entmagnetisierung vor allem durch Magnonen gegeben sein sollte. Selbst mit der erwähnten Korrektur der Zwangsfelder aus den Energien ist die Energieerhaltung durch die DFT-Rechnung zwischen den Zeitschritten nicht exakt erfüllt. Der Preis für veränderte Bandstruktur, Zustände und Matrixelemente im Vergleich zur Modellrechnung ist also eine Aufweichung der strikten Energieerhaltung und eine kleine Inkonsistenz bei der Magnetisierung beim Übergang zwischen den Zeitschritten.

Eine bessere Theorie sollte diese Probleme nicht haben und konsistent alle wichtigen Effekte mitnehmen. Als erste Verbesserung kann man versuchen, sowohl die Besetzungszahlen als auch die Magnetisierung einer Bandstruktur und Zustandsrechnung aufzuzwingen. Das so erzeugte System ist konsistent in der Magnetisierung zwischen den Zeitschritten. Ebenfalls vorstellbar wäre z.B. die durch Streuungen in einem Zeitschritt geänderten Besetzungszahlen der vorherigen Zustände in gestörte Zustände zu entwickeln. Idealerweise würde man die zeitliche Veränderung der Besetzungen, Potentiale, Zustände und Bandstruktur selbstkonsistent berechnen. Insbesondere gilt dies für den Einfluss der Magnonen auf die Bandstruktur, der im Rahmen dieser Arbeit nur phänomenologisch berücksichtigt wird, siehe Gleichung (100) zu Fall b). Eine formal korrekte Beschreibung des Einflusses der Magnonen im Rahmen des verwendeten k-Netzes und der DFT Rechnung würde eine $32 \times 32 \times 32$ Superzelle erfordern, dies steht jedoch ausserhalb der technischen Möglichkeiten bzgl. der Rechenleistung und Rechenzeit.

6.6 “Dynamische“ Bandstrukturen

In diesem Unterkapitel wird die “dynamische“ Bandstruktur, die sich für Eisen und Nickel im Rahmen der Rechnung ergibt, beleuchtet. Unter dynamisch ist in diesem Fall nicht zu verstehen, dass die reale Zeitentwicklung der Bandstruktur, wie sie in machen Fällen mit Hilfe einer zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie bestimmt werden könnte, betrachtet wird, sondern, dass die zeitabhängige Bandstruktur, die sich aus den Gleichungen (99) für Fall a) und (100) für Fall b) ergibt, wenn in jedem Zeitschritt neu mit einer Zwangsbedingung an das magnetische Moment eine DFT-Rechnung gemacht wird, analysiert wird. Eine besondere Rolle spielen hierbei die Extremfälle der Zwangsbedingungen, zwischen ihnen bewegt sich die Bandstruktur im Laufe der Zeitschritte. Neben dem Startzustand, dem die Grundzustandsbandstruktur ohne Zwangsbedingungen zu Grunde liegt, werden deshalb noch 2 weitere Extremfälle betrachtet. Ersterer Extremfall, im Folgenden als E-I bezeichnet, beschreibt das auftretende Maximum der Zwangsbedingungen an das magnetische Moment der Einzelelektronen pro Atom. Die Gründe des Maximums sind dem Ergebniskapitel 7.2 zum Zeitverlauf zu entnehmen und sollen hier nicht vorgegriffen werden. Das Maximum des Einzelmomentes ist direkt der Zeitentwicklung entnommen und wird für Fall a) angenommen. Die Magnonenanzahl zur Bestimmung des zugehörigen Falles b) wird zur selben Zeit t genommen, wie für Fall a) das Maximum des Einzelmomentes auftrat. Der zweite Extremfall, im Folgenden als E-II bezeichnet, entspricht einem abgeschätzten minimalen magnetische Moment der Einzelelektronen pro Atom. Es handelt sich hierbei um eine Abschätzung, die auf einer Extrapolation der bestimmten Ergebnisse basiert, da die Berechnung der Zeitentwicklung nicht bis zum Minimum der Magnetisierungskurve bestimmt werden konnte. Das extrapolierte Minimum des Einzelmomentes basiert auf einer Extrapolation von Fall b), die Magnonenanzahl wurde im Fall b) mit einer, die sich für 500K für Eisen ergäbe, und einer, die sich für 450K für Nickel ergäbe, genähert, in Anbetracht der Zeitentwicklung der Quasitemperaturen in Kapitel 7.2. Es wurde somit eine obere Abschätzung für den Bereich, in dem sich im Laufe der zeitaufgelösten Rechnung die Bandstrukturen bewegen, gewählt.

Ziel der Betrachtung ist es, innerhalb des Modelles (nicht im Vergleich zur experimentellen Bandstruktur) eine Aussage zur Dis-

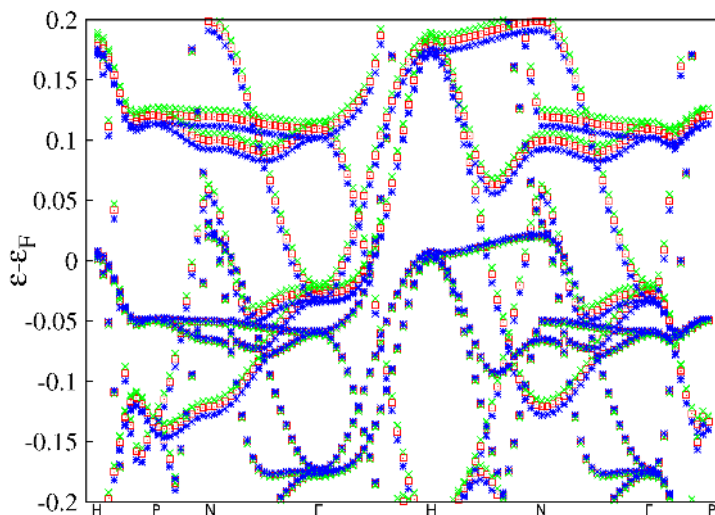


Abbildung 8: Bandstruktur Eisen nahe der Fermienergie entlang hochsymmetrischer Linien, der Pfad ist dabei H-P-N- Γ -H-N- Γ -P, rot ist der Grundzustand bzgl. 40 k-Punkten in jeder Richtung bestimmt (atomares magnetisches Moment $2,2679\mu_B$), grün maximales atomares magnetisches Moment ($2,3067\mu_B$), blau minimales atomares magnetisches Moment ($2,2229\mu_B$).

kussion über den Einfluss einer geänderten Bandstruktur auf die Entmagnetisierung und die “Stärke“ der Änderung der Bandstruktur [116] zu machen.

In Abbildung 8 ist die Bandstruktur für Eisen entlang hochsymmetrischen Linien um die Fermienergie abgebildet. Die hier skizzierte Bandstruktur ist bzgl. 40 k-Punkten in jede Richtung bestimmt (Das zugehörige magnetische Moment des Grundzustand beträgt $2,2679\frac{\mu_B}{\text{Atom}}$). In den Rechnungen im Kapitel 7.2 wurde die “dynamische“ Rechnung für Eisen mit 30 k-Punkte je Richtung durchgeführt. Da für 30 k-Punkte nicht alle hochsymmetrischen Punkte durch die Rechnung berücksichtigt worden wären, wurde hier für die Illustrationen der Bandstrukturen in Eisen Rechnungen mit 40 k-Punkten pro Richtung verwendet. Die so beschriebenen Bandstrukturen sind vergleichbar mit den extrapolierten Extremfälle E-I und E-II in der Rechnung, (zur Vergleichbarkeit wur-

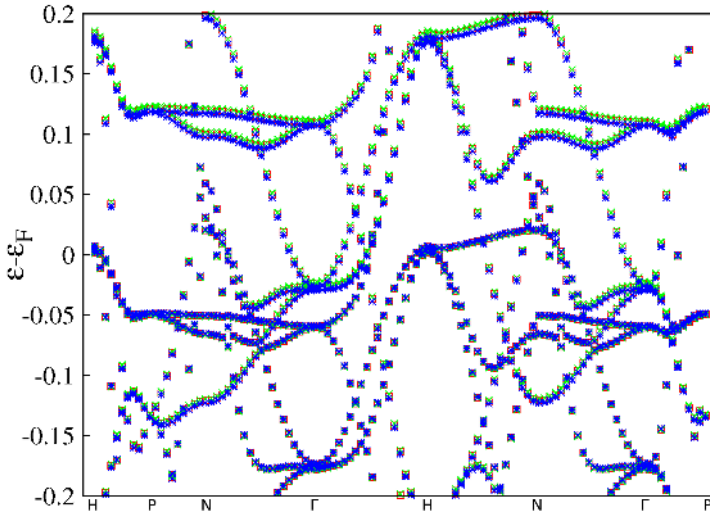


Abbildung 9: Bandstruktur Eisen nahe der Fermieenergie entlang hochsymmetrischer Linien, bzgl. Fall a) (siehe Beschreibung um Gleichung (99)), der Pfad ist dabei H-P-N- Γ -H-N- Γ -P, rot ist der Grundzustand bzgl. 40 k-Punkten in jeder Richtung bestimmt (atomares magnetisches Moment $2,2679\mu_B$), grün Extremfall E-I (siehe Text) mit $2,3067\mu_B$ atomarem magnetisches Moment, blau Extremfall E-II (siehe Text) mit $2,2229\mu_B$ atomarem magnetisches Moment.

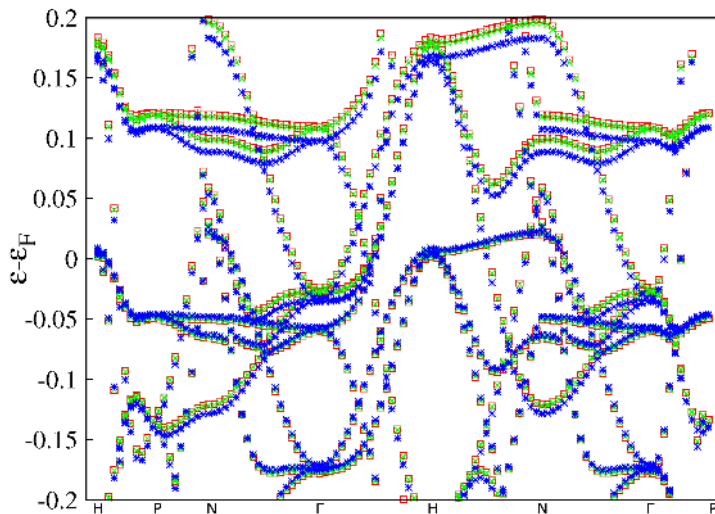


Abbildung 10: Bandstruktur Eisen nahe der Fermienergie entlang hochsymmetrischer Linien, bzgl. Fall b) (siehe Beschreibung um Gleichung (100)), der Pfad ist dabei H-P-N- Γ -H-N- Γ -P, rot ist der Grundzustand bzgl. 40 k-Punkten in jeder Richtung bestimmt (atomares magnetisches Moment $2,2679\mu_B$), grün Extremfall E-I (siehe Text) mit einem atomaren magnetisches Moment von $2,3067\mu_B$ bei $0,0578$ Magnonen pro Atom, blau Extremfall E-II (siehe Text) mit $2,2229\mu_B$ atomarem magnetisches Moment bei $0,095$ Magnonen pro Atom.

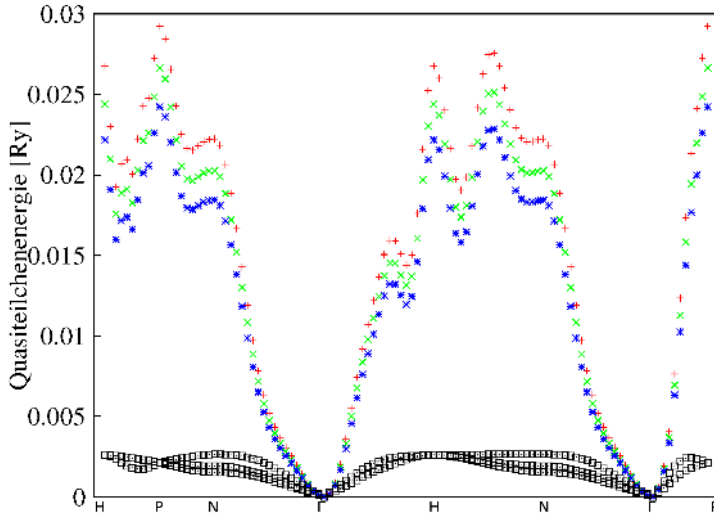


Abbildung 11: Magnonen- und Phononen Bandstruktur Eisen entlang hochsymmetrischer Linien, der Pfad ist dabei H-P-N- Γ -H-N- Γ -P, rot beschreibt die Magnonen ohne Korrekturen bei 0K, grün die Magnonen bei Raumtemperatur (wobei die Dispersionsrelation temperaturabhängig ist, siehe Kapitel 6.1) und blau die Magnonen bei 500K (entspricht extrapolierte Magnonenmaximaltemperatur, siehe Text), schwarz zum Vergleich die drei Zweige der Phonondispersion, sie werden als temperaturunabhängig angenommen, und sie wurden streng genommen für $T = 0K$ bestimmt.

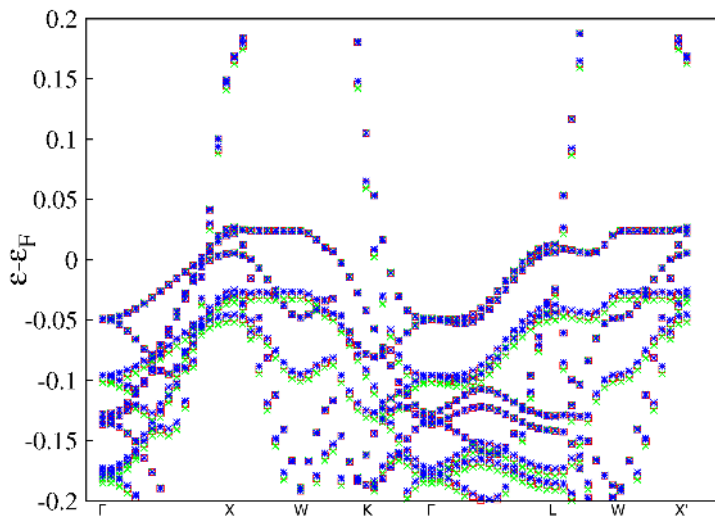


Abbildung 12: Bandstruktur Nickel nahe der Fermieenergie entlang hochsymmetrischer Linien, der Pfad ist dabei Γ -X-W-K- Γ -L-W-X', rot ist der Grundzustand (atomares magnetisches Moment $0,6354\mu_B$), grün Extremfall E-I (siehe Text) mit einem atomaren magnetischen Moment von $0,6533\mu_B$, blau Extremfall E-II (siehe Text) mit einem atomaren magnetischen Moment von $(0,626\mu_B)$.

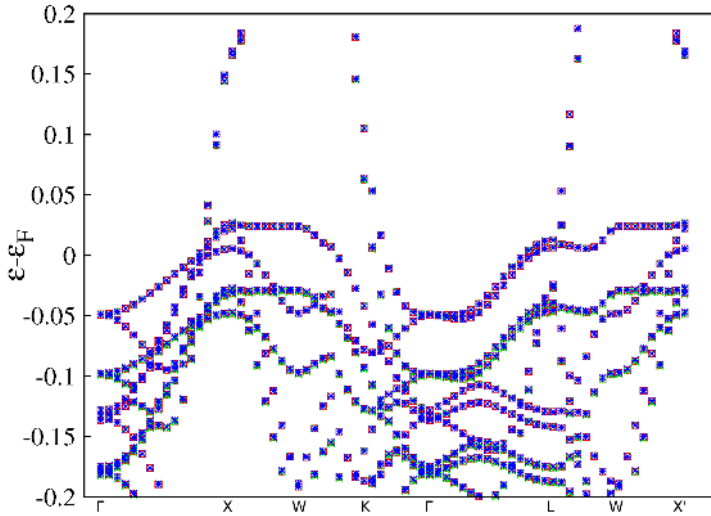


Abbildung 13: Bandstruktur Nickel nahe der Fermieenergie entlang hochsymmetrischer Linien, bzgl. Fall a) (siehe Beschreibung um Gleichung (99)), der Pfad ist dabei Γ -X-W-K- Γ -L-W-X', rot ist der Grundzustand (atomares magnetisches Moment $0,6354\mu_B$), grün Extremfall E-I (siehe Text) mit einem atomaren magnetischen Moment von $0,6533\mu_B$, blau Extremfall E-II (siehe Text) mit einem atomaren magnetischen Moment von $0,626\mu_B$.

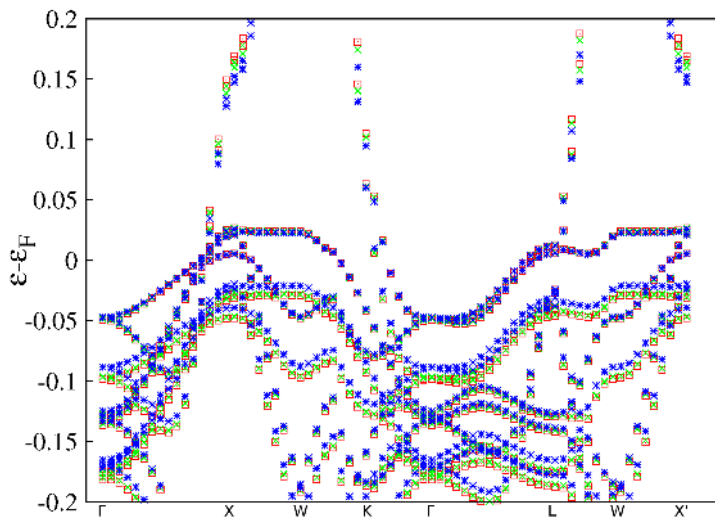


Abbildung 14: Bandstruktur Nickel nahe der Fermieenergie entlang hochsymmetrischer Linien, bzgl. Fall b) (siehe Beschreibung um Gleichung (100)), der Pfad ist dabei Γ -X-W-K- Γ -L-W-X', rot ist der Grundzustand (atomares magnetisches Moment $0,6354\mu_B$), grün Extremfall E-I (siehe Text) mit einem atomaren magnetischen Moment von $0,6533\mu_B$ bei $0,02305$ Magnonen pro Atom, blau Extremfall E-II (siehe Text) mit einem atomaren magnetischen Moment von $0,626\mu_B$ bei $0,053$ Magnonen pro Atom.

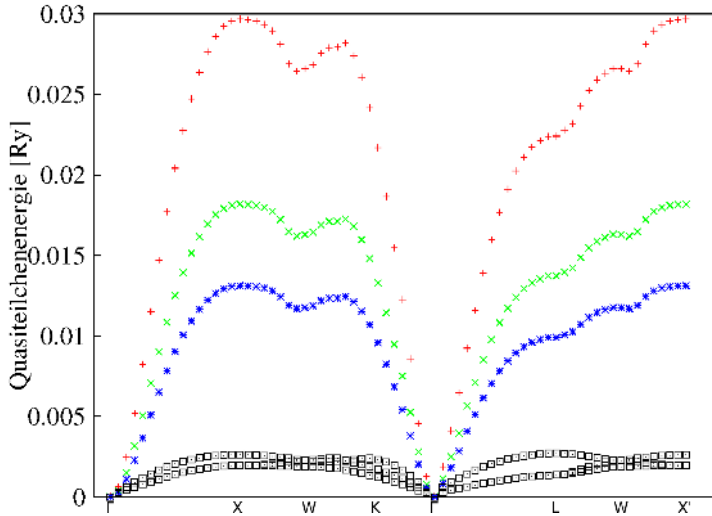


Abbildung 15: Magnonen- und Phononen Bandstruktur Nickel entlang hochsymmetrischer Linien, der Pfad ist dabei Γ -X-W-K- Γ -L-W-X', rot beschreibt die Magnonen ohne Korrekturen bei 0K, grün die Magnonen bei Raumtemperatur (wobei die Dispersionsrelation temperaturabhängig ist, siehe Kapitel 6.1) und blau die Magnonen bei 450K (entspricht extrapolierte Magnonenmaximaltemperatur, siehe Text), schwarz zum Vergleich die drei Zweige der Phononen dispersion, sie werden als temperaturunabhängig angenommen, und sie wurden streng genommen für $T = 0K$ bestimmt.

de dabei ein gleicher Abstand der atomaren magnetischen Momente von E-I und E-II zur Grundzustandsmagnetisierung für die 40 k-Punkte pro Richtung Rechnung angenommen, wie bei der 30 k-Punkte Rechnung). Somit soll skizziert werden, in welchem Rahmen sich die Bandstruktur änderte bzgl. der höchsten und niedrigsten Magnetisierung im Einzelelektronensystem, die in der dynamischen Rechnung auftraten, um den Einfluss der dynamischen Bandstruktur zu visualisieren. In den unkorrigierten Energien Abbildung 8 erkennt man die energetische Anordnung (von oben nach unten nach Farben) der (spinpolarisierten) Bänder in Reihenfolge ihres atomaren magnetischen (Zwangs)Momentes der DFT deutlich. Für Fall a) (siehe Gleichung (99)), Abbildung 9, ist die Änderung der Bandstruktur bedeutend geringer, man kann folgern, dass der Großteil der Änderungen der ab-initio Rechnungen mit Zwangsfeldern dem Zwangsfeld zuzordnen ist und nicht aus der Anpassung der physikalischen Potentiale stammt. Nicht vergessen darf man jedoch, dass trotzdem die elektronischen Wellenfunktionen und mit ihnen verbundene Größen (Einzelelektronenspinmoment, Einzelelektronenbahnmoment, Einzelelektronenenergie..., Entwicklungskoeffizienten) sich mit dem atomaren magnetischen Moment ändern. Fall b) (siehe Gleichung (100)), Abbildung 10, hingegen weist nun eine andere energetische Anordnung auf als Fall a), oder die unkorrigierten DFT Energien. Die angenommene Änderung der Energien durch die Magnonen (siehe Gleichung (100)) überwiegt die Effekte der Änderung der Potentiale. Die Veränderung der Bandstruktur im Gesamten ist dabei größer als in Fall a).

Generell ist zu sagen, dass eine starre Bandstruktur immer einen geringeren Phasenraum aufweist als eine "dynamische" Bandstruktur, die in der Zeitentwicklung neue Zustände in den für die Streuungen relevanten energetischen Bereich bringen kann. Prinzipiell ist zwar mit Hilfe eines nicht an das elektronische Band gekoppelte Magnonensystems eine Entmagnetisierung möglich, im Bilde eines "quasi geschlossenen" Phasenraums (siehe Kapitel 5.11.10), ohne die Bandstruktur deutlich zu ändern (die Einzelelektronenmagnetisierung bleibt quasi konstant, die Magnonenzahl nimmt aber zu, was in Summe zur Entmagnetisierung führt), die Gültigkeit der Annahme ist jedoch mit zunehmender Magnonenzahl umso fraglicher (da eine zunehmende Anzahl von Magnonen im System, physikalisch gesehen, die Elektronen immer schlechter durch ein Band, das ohne Einfluss von Magnonen bestimmt wurde, beschrieben werden).

Blickt man auf die Quasiteilchenbandstruktur von Eisen, so bemerkt man, dass die Magnonenbandstruktur in Abbildung 11 dabei in der Rechnung um maximal 10% variiert, im Vergleich zur unkorrigierten roten Kurve (entspricht 0K) sind jedoch Abweichungen von bis zu 20 % vorhanden. Die 0K Quasiteilchenbandstruktur wurde unter anderem in den Rechnungen zu Kapitel 7.1 verwendet.

In Abbildung 12 ist vergleichbar zu Abbildung 8 für Eisen die Bandstruktur für Nickel entlang hochsymmetrischen Linien um die Fermienergie geplottet. Dabei wurde erneut nicht nur die Grundzustandsbandstruktur, sondern ebenfalls wieder die “Extremfälle“ E-I und E-II der Bandstruktur, in der Rechnung geplottet, um den Einfluss der dynamischen Bandstruktur zu visualisieren.

Im Fall a) (siehe Abbildung 13) bewegt sich die Bandstruktur in einem im Vergleich zu Eisen kleineren Bereich. Dies liegt vmtl. daran, dass sich die Extremfälle um einen kleineren Betrag der Magnetisierung der Einzelelektronen unterscheiden. Wie schon bei Eisen entspricht auch bei Nickel der Fall a) der Minimalabschätzung des Einflusses der Magnonen auf die Bandstruktur. Im Fall b) (siehe Abbildung 10) ist der Einfluss der Magnonen auf die Bandstruktur maximal erwartet mitgenommen, die Variation der Bandstruktur zwischen den Extremfällen E-I und E-II ist wie erwartet höher als im Fall a). Im Vergleich zu Eisen scheint die Variation der elektronischen Bandstruktur auch im Fall b) geringer, aus oben genannten Gründen.

Die magnonische Bandstruktur von Nickel (siehe auch Kapitel 6.1), siehe Abbildung 11, weist jedoch deutliche Anpassungen auf. Der unkorrigierte 0K Fall (rote Kurve), der unter anderem in den Rechnungen zu Kapitel 7.1 verwendet wurde, liegt weit über der grünen Raumtemperatur-Kurve. Vergleicht man die grüne Raumtemperatur-Kurve mit der blauen Kurve, die dem Extremfall E-II entspricht, so erkennt man noch eine starke Änderung der Dispersion um ca. 20% zwischen den beiden Kurven, die sich im Verlauf der zeitaufgelösten Rechnungen (siehe Kapitel 7.2) entwickelt.

Die mittleren Spinnmischungen für die oben betrachteten Bandstrukturen ist für Eisen und Nickel in Tabelle 6 mit den jeweiligen Anzahlen an Elektronenzuständen im Energieintervall $\pm 100mRy$ um das jeweilige Fermienergie-Niveau angegeben. Diese Begrenzung des Energieintervalles soll eine obere Abschätzung aller an der Streuung beteiligten Zustände zu einem gegebenen “Zeitpunkt“ darstellen. Während für Fall a) die Spinnmischung sowie die Anzahl der streu-

enden Zustände bei Nickel fast identisch bleibt, sind bei Fall b) für Nickel bis zu 2,6% Variation der Spinmischung und bis zu 7% Variation der Anzahl der streuenden Zustände möglich. Bei Eisen ergibt sich ein anderes Bild, die Variation der Spinmischung ist hier groß, sowohl für Fall a) (fast 9%) als auch für Fall b) bis zu 10,5%. Die Anzahl der streuenden Zustände variiert hier deutlich schwächer mit bis zu 4,2% für Eisen. Da es sich um eine obere Abschätzung des streuwirksamen Energieintervalles handelt, können die im Rahmen der zeitaufgelösten Rechnungen (siehe Kapitel 7.2) auftretenden Schwankungen merklich größer sein.

Zustand	Spinmischung [10^{-2}]	Zustandanzahl
Nickel Grundzustand	4,8986	134694
Nickel E-I	5,0214	132702
Nickel E-I Fall a)	5,0249	134062
Nickel E-I Fall b)	5,0130	136236
Nickel E-II	4,9358	135716
Nickel E-II Fall a)	4,9225	134768
Nickel E-II Fall b)	4,9931	143996
Eisen Grundzustand	5,0346	122596
Eisen E-I	5,4262	119866
Eisen E-I Fall a)	5,3680	121346
Eisen E-I Fall b)	5,2795	123972
Eisen E-II	4,8567	124748
Eisen E-II Fall a)	4,9323	123862
Eisen E-II Fall b)	4,7770	127804

Tabelle 6: Spinmischung und Anzahl der Elektronenzustände in der Rechnung im Energieintervall $\pm 100mRy$ um die jeweilige Fermienergie.

Die ermittelten Zahlenwerte sind dabei nur im relativen Vergleich zueinander zu sehen, ob im Verlauf der zeitabhängigen Rechnung große Abweichungen in der Verteilung entstehen. Für einen Vergleich zum Experiment wäre eine höhere k-Punktdichte von Nöten, Verweise zu diesbzgl. Rechnungen sind dem Kapitel 5.7 Spinmischung zu entnehmen.

Ebenfalls sind einem jeweiligen Histogramm die Verteilungen der Spin- und Bahnerwartungswerte der Einzelelektronen in einem Bereich von $\pm 100mRy$ um die jeweilige Fermienergie angegeben. So-

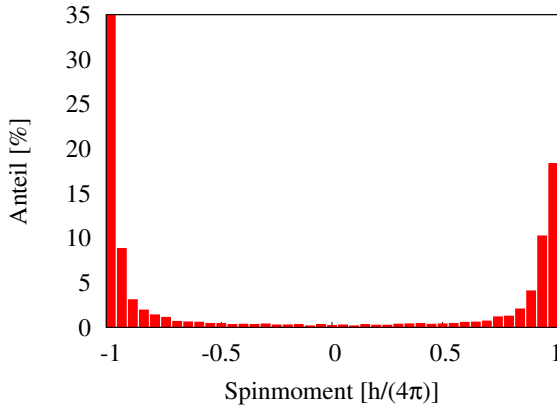


Abbildung 16: Nickel Grundzustand Verteilung des Erwartungswertes des Spinmomentes der einzelnen Elektronen im Energieintervall $\pm 100mRy$.

wohl für Nickel als auch für Eisen besitzen die meisten Zustände einen deutlichen dominanten Spincharakter, siehe Abbildungen 16 und 24, sowie nur ein geringes Bahnmoment, siehe Abbildungen 17 und 25. Unabhängig vom Material (Eisen und Nickel) und den untersuchten Fällen (a), b) und der direkten unkorrigierten Bandstruktur der DFT-Rechnung), wie in den Abbildungen 18, 19, 20, 26, 27, 28, 21, 22, 23, 29, 30, 31 zu sehen ist, ändert sich im Rahmen aller untersuchten Bandstrukturen (Extremfall E-I, E-II, Grundzustand) nichts daran, dass die meisten Zustände nur ein geringes Bahnmoment und eine hohe Spinpolarisierung aufweisen. .

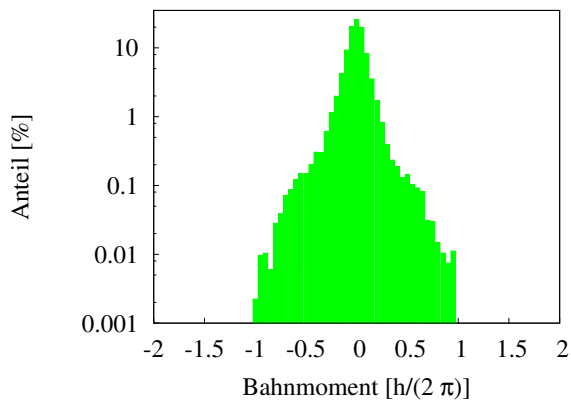


Abbildung 17: Nickel Grundzustand Verteilung des Erwartungswertes des Bahnmomentes der einzelnen Elektronen im Energieintervall $\pm 100mRy$.

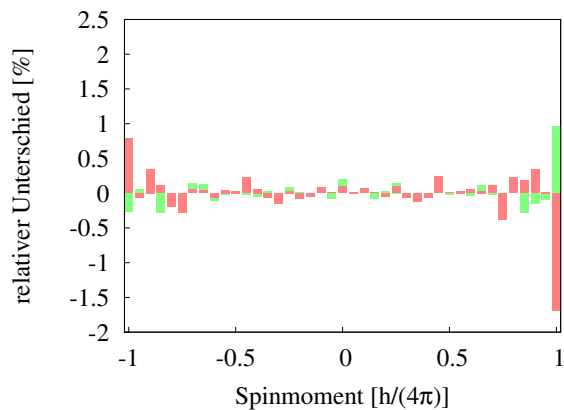


Abbildung 18: Nickel, (DFT unkorrigiert, siehe Text) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Spinmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

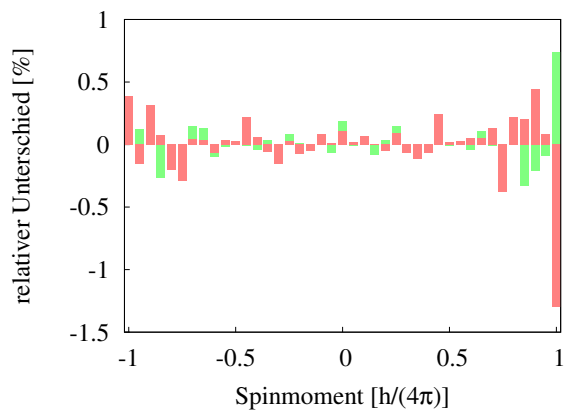


Abbildung 19: Nickel, Fall a) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Spinmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

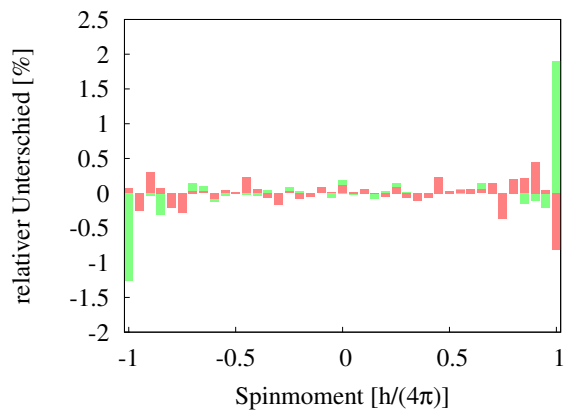


Abbildung 20: Nickel, Fall b) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Spinmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

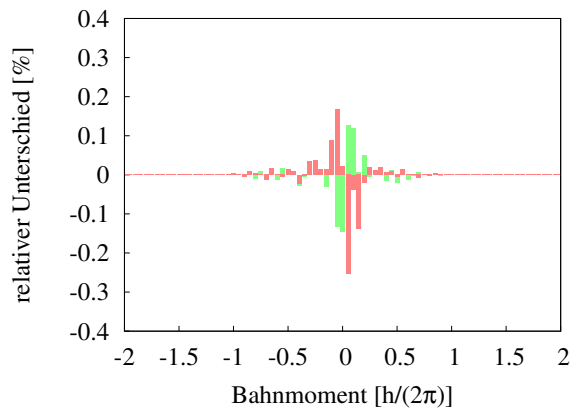


Abbildung 21: Nickel (DFT unkorrigiert, siehe Text) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Bahnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

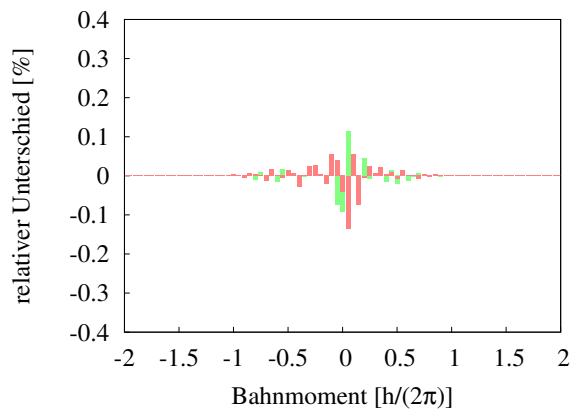


Abbildung 22: Nickel, Fall a) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Bahnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

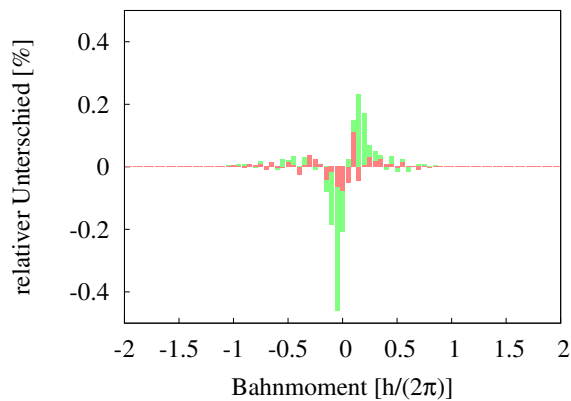


Abbildung 23: Nickel, Fall b) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Bahnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

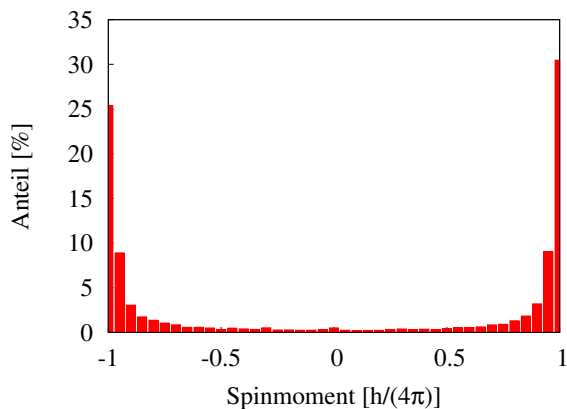


Abbildung 24: Eisen Grundzustand Verteilung des Erwartungswertes des Spinmomentes im Energieintervall $\pm 100mRy$.

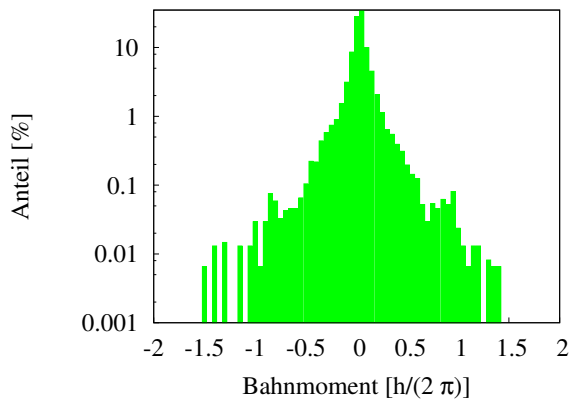


Abbildung 25: Eisen Grundzustand Verteilung des Erwartungswertes des Bahnmomentes im Energieintervall $\pm 100mRy$.

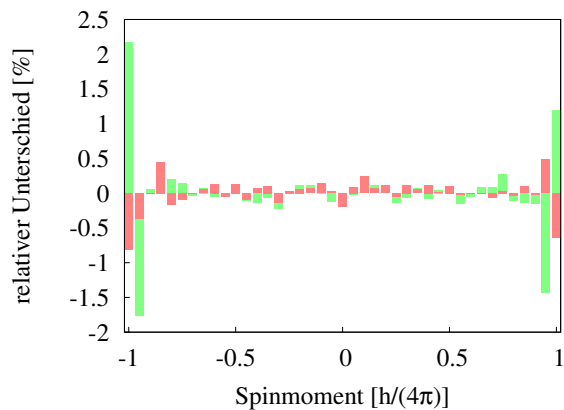


Abbildung 26: Eisen, (DFT unkorrigiert, siehe Text) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Spinnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

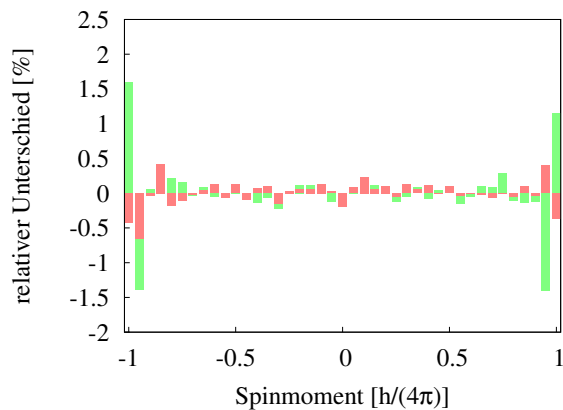


Abbildung 27: Eisen, Fall a) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Spinmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

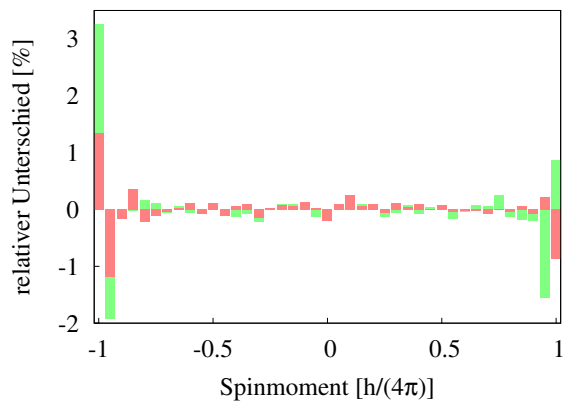


Abbildung 28: Eisen, Fall b) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Spinmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100 mRy$.

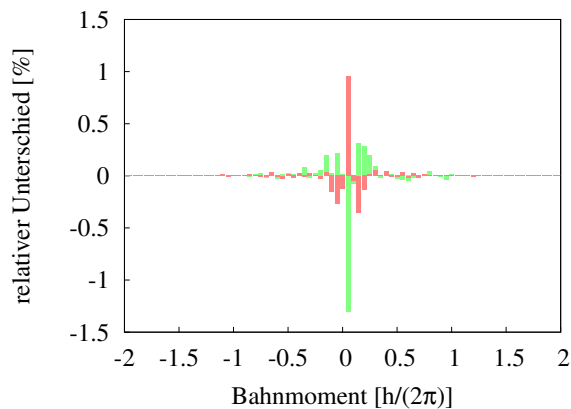


Abbildung 29: Eisen, (DFT unkorrigiert, siehe Text) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Bahnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100 mRy$.

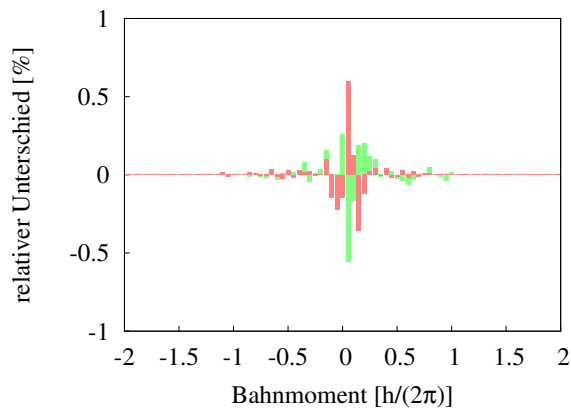


Abbildung 30: Eisen, Fall a) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Bahnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100mRy$.

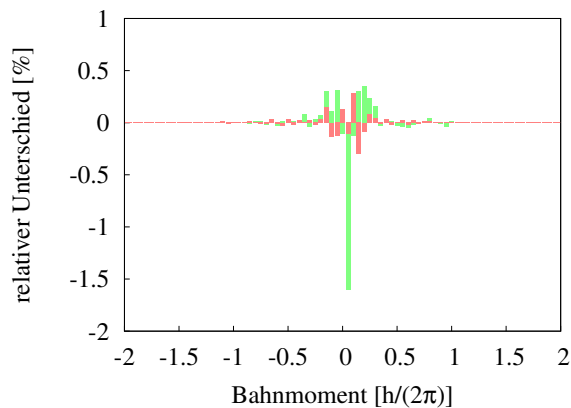


Abbildung 31: Eisen, Fall b) Differenz der Anteile des Erwartungswertes des Bahnmomentes zwischen Extremfall E-I und Grundzustand rot, sowie die Differenz bzgl. Extremfall E-II und Grundzustand grün im Energieintervall $\pm 100 mRy$.

7 Numerische Ergebnisse

Dieses Kapitel behandelt die Ergebnisse, die sich aus statischen Rechnungen, d.h. nur bei $t=0$, und dynamischen Rechnungen, d.h. der expliziten Berechnung des Zeitverlaufs zur Elektron-Magnon und zur kombinierten Elektron-Magnon und Elektron-Phonon Streuung im Rahmen der Doktorarbeit ergaben. Dabei werden sowohl die Entwicklung der elektronischen als auch der phononischen und magnonischen Freiheitsgrade betrachtet.

7.1 Abschätzung der Raten

In einer ersten in [5] publizierten Rechnung wurden, basierend auf dem Elektron-Magnon-Streupoperator (siehe Gleichung 81 und die Erweiterung auf 4 Komponenten im Anhang 11.1), Streuraten in einem modellierten Nichtgleichgewicht bei verschiedenen Temperaturen berechnet. Eine Übersicht über die Streuraten ist Tabellen 8, 7, 9, 10 zu entnehmen. Es ging bei den Rechnungen darum, zu testen, ob generell ein Einfluss der Elektron-Magnonstreuung auf die ultraschnelle Entmagnetisierung zu erwarten ist und insbesondere darum, die Vorstellung von Carpene et. al. [86] zu überprüfen, dass Elektron-Magnonstreuung allein in Anwesenheit von Spin-Bahnkopplung in der Lage sei, die ultraschnelle Entmagnetisierung zu erklären. In den hier beschriebenen statischen Rechnungen wurden dabei nur Streuungen zwischen Elektronen mit dominantem Spincharakter auf, nach dominantem Spincharakter ab betrachtet. Die Magnonendispersionen folgen direkt aus den von Grotheer [18] berechneten Heisenbergkoeffizienten und sind temperaturunabhängig. Als erstes Ergebnis konnte aus den Rechnungen gefolgert werden, dass die allein durch die Magnonen bedingte Entmagnetisierung zu klein ist, um die im Experiment beobachteten Raten von bis zu ca. $0,15 \frac{\mu_B}{Atom \cdot 100 \text{ fs}}$ für Nickel (abgeschätzt aus Daten in [62]) und bis zu ca. $0,5 \frac{\mu_B}{Atom \cdot 100 \text{ fs}}$ für Eisen (abgeschätzt aus Daten in [86]) erklären zu können, der Übertrag an den Bahndrehimpuls war ausserdem sehr klein, Carpenes Modell [86] konnte damit widerlegt werden. Prinzipiell ist anzumerken, dass die ASA, Spin-ASA Näherungen, wie angemerkt, dazu führen, dass das Streupotential der Magnonen in 2 Komponenten nur einen $l = 0$ Beitrag hat. Ein Streupotential mit Beiträgen verschiedener l könnte zu einem erhöhten Transfer von Drehimpuls in das Bahnmoment führen. Hinzu kommt, dass der

Erwartungswert des Bahnmomentes in einer Full-Potentialrechnung höher ist und näher am Experiment, es könnte deshalb ein größerer Transfer von Drehimpuls in Bahndrehimpuls möglich sein. Ebenso können weitere gemachte Näherungen in der Bestimmung des Streuoperators prinzipiell für die Diskrepanz verantwortlich sein. Wie sich in der expliziten Berechnung der Zeitentwicklung 7.2 zeigt, sind die Entmagnetisierungsraten durch die Magnonen(emission) auch merklich höher, wenn man alle Streuungen mitnimmt, anstatt nur derer von dominant auf nach dominant ab und umgekehrt. Ebenso muss man in Betracht ziehen, dass die Elektronenzustände und Magnonzustände natürlich nicht den realen Zuständen nach dem Einwirken eines Laserpulses entsprechen. Desweiteren ist anzumerken, dass gerade für Nickel die Magnonenergien tendenziell (vor allem für hohe $|\mathbf{q}|$ -Vektoren) deutlich überschätzt wurden, womit sich eine Magnonzahl pro Atom deutlich kleiner als im Experiment ergab. Trotzdem ist es unwahrscheinlich, dass die Näherungen ausschlaggebend für die um Größenordnungen vom Experiment abweichende Entmagnetisierungsrate ist.

Mit Hinblick auf die explizite Berechnung der Zeitentwicklung sei auch noch erwähnt, dass die Magnonenemission natürlich im Zeitverlauf (stark) abnimmt. Eine Erklärung der ultraschnellen Entmagnetisierung auf Basis der Raten von Elektron-Magnonstreuungen allein ist folglich nicht möglich. Es ist jedoch eine nicht vernachlässigbare Emission von Magnonen zu erkennen. Im Zusammenhang mit den Ergebnissen von Carva [85] und auch Illg [4], in denen gezeigt wurde, dass die Entmagnetisierungsraten durch reine Elektron-Phononstreuungen zu klein sind, um die ultraschnelle Entmagnetisierung zu erklären, wurde im Rahmen der Arbeiten [4] und [5] eine Kombination der Elektron-Phonon und Elektron-Magnonstreuung als eine mögliche Erklärung der ultraschnellen Entmagnetisierung vorgeschlagen. Damit die Elektron-Magnonstreuung die Elektron-Phononstreuung in geeigentem Maße beeinflussen kann, um eine Verstärkung der Entmagnetisierung zu bewirken (siehe auch Kapitel 5.11.10), muss $W_{\text{Magnon}}^{\uparrow\downarrow}$ mindestens von der gleichen Größenordnung wie $W_{\text{Phonon}}^{\uparrow\downarrow}$ sein. Dies ist für Eisen deutlich und für Nickel (zumindest für höhere Temperaturen), wie man den Tabellen 8, 7 entnehmen kann, der Fall. Es sei angemerkt, dass durch die Einführung des Aufweichens der Magnonendispersion, siehe Kapitel 6.1, die Magnonenemission, vor allem im Fall von Nickel, im Rahmen der zeitabhängigen Rechnungen noch einmal verstärkt wird und damit die Grundvor-

aussetzung für das Funktionieren des Modelles 5.11.10 noch besser erfüllt ist.

Eine weitere Motivation stellte die Arbeit von Schellekens et. al. [123] dar. Auch wenn explizit keine Elektron-Magnonstreuung erwähnt wurde, kann man den effektiven Spinflip eines atomaren "Weissmomentes" durchaus auch im Rahmen eines Magnons verstehen. Eine kritische Behandlung des Schellekensmodells ist im Unterkapitel 5.11 zu finden. Im Rahmen der zeitabhängigen Rechnung zeigten sich ausserdem noch einige interessante Effekte, welche die Schlussfolgerungen der ersten Abschätzung teilweise weniger zwingend erscheinen lassen, dazu mehr im Unterkapitel 7.2.1.

T_{el} [K]	500	700	900
$\frac{dM}{dt}$	$-2,10 \cdot 10^{-4}$	$-5,09 \cdot 10^{-4}$	$-9,92 \cdot 10^{-4}$
$\frac{dM_{\text{Elektron}}^{\text{orbital}}}{dt}$	$2,65 \cdot 10^{-3}$	$8,48 \cdot 10^{-3}$	$2,14 \cdot 10^{-2}$
$\frac{dM_{\text{Magnon}}^{\text{Absorption}}}{dt}$	$2,21 \cdot 10^{-2}$	$2,62 \cdot 10^{-2}$	$3,04 \cdot 10^{-2}$
$\frac{dM_{\text{Magnon}}^{\text{Emission}}}{dt}$	$-5,66 \cdot 10^{-2}$	$-1,36 \cdot 10^{-1}$	$-3,08 \cdot 10^{-1}$
$\frac{dM_{\text{Carpene}}}{dt}$	$-2,86 \cdot 10^{-3}$	$-8,99 \cdot 10^{-3}$	$-2,24 \cdot 10^{-2}$
$\frac{dM_{\text{Elektron}}^{\text{spin}}}{dt}$	$3,43 \cdot 10^{-2}$	$1,09 \cdot 10^{-1}$	$2,77 \cdot 10^{-1}$

Tabelle 7: Beiträge zur Änderung von $\frac{dM}{dt}$ des magnetischen Momentes pro Atom (in Einheiten von μ_{B}) pro 100 fs in Ni. T_{el} ist in der Einheit Kelvin angegeben [5].

T_{el} [K]	500	700	900
$\frac{dM}{dt}$	$-3,22 \cdot 10^{-2}$	$-7,86 \cdot 10^{-2}$	$-1,40 \cdot 10^{-1}$
$\frac{dM_{\text{Elektron}}^{\text{orbital}}}{dt}$	$-1,06 \cdot 10^{-3}$	$-2,10 \cdot 10^{-3}$	$-8,64 \cdot 10^{-4}$
$\frac{dM_{\text{Magnon}}^{\text{Absorption}}}{dt}$	$1,50 \cdot 10^{-1}$	$1,65 \cdot 10^{-1}$	$1,81 \cdot 10^{-1}$
$\frac{dM_{\text{Magnon}}^{\text{Emission}}}{dt}$	$-6,55 \cdot 10^{-1}$	$-1,49$	$-2,69$
$\frac{dM_{\text{Carpene}}}{dt}$	$-3,11 \cdot 10^{-2}$	$-7,65 \cdot 10^{-2}$	$-1,39 \cdot 10^{-1}$
$\frac{dM_{\text{Elektron}}^{\text{spin}}}{dt}$	$4,73 \cdot 10^{-1}$	$1,25$	$2,37$

Tabelle 8: Beiträge zur Änderung von $\frac{dM}{dt}$ des magnetischen Momentes pro Atom (in Einheiten von μ_{B}) pro 100 fs in Eisen. T_{el} ist in der Einheit Kelvin angegeben [5].

T_{el}	500	700	900
$W_{\text{Magnon}}^{\downarrow\uparrow}$	$2,83 \cdot 10^{-2}$	$6,79 \cdot 10^{-2}$	$1,54 \cdot 10^{-1}$
$W_{\text{Phonon}}^{\uparrow\downarrow}$	$4 \cdot 10^{-2}$	$6 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 9: Streuraten der Elektron-Magnon und Elektron-Phononstreuung zwischen Zuständen der dominanten Spinzustände, normiert auf 100 fs und pro Atom, in Ni [5].

T_{el}	500	700	900
$W_{\text{Magnon}}^{\downarrow\uparrow}$	$3,27 \cdot 10^{-1}$	$7,44 \cdot 10^{-1}$	1,34
$W_{\text{Phonon}}^{\uparrow\downarrow}$	$3,5 \cdot 10^{-2}$	$5 \cdot 10^{-2}$	$6,5 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 10: Streuraten der Elektron-Magnon und Elektron-Phononstreuung zwischen Zuständen der dominanten Spinzustände, normiert auf 100 fs und pro Atom, in Fe [5].

7.2 Zeitverlauf

Vom Modellstartzustand bei $t = 0$ dominieren zunächst die Elektron-Magnonstreuungen (siehe Abbildungen 32, 33) die Entmagnetisierung. Aufgrund der Dominanz der Magnonemission [5], (siehe auch Abbildung 35) führt dies dazu, dass das Einzelelektronensystem einen Überschuss an dominant Spin-Auf Elektronen aufweist. Dieser Überschuss führt zu einer Erhöhung der Selektivität der Elektron-Phononstreuraten (siehe Abbildungen 32, 33, 35). Dies ist daran zu erkennen ist, dass trotz leicht abfallender Phononemission der Beitrag der Elektron-Phononstreuraten zur Entmagnetisierung deutlich ansteigt. Im Falle der durch die Magnonen beeinflussten Austauschkorrelationsanteiles der Energie (Fall b) kommt es, wie man es durch die Energieverschiebung erwarten könnte, in den ersten fs zu einer rascheren Abschwächung der Magnonenemission (siehe Abbildung 35) und einer stärkeren Erhöhung der Spineselektivität (siehe Abbildungen 32 und 33 im Vergleich zu Abbildung 35) der Elektron-Phononstreuraten im Vergleich zum Fall ohne Einfluss der Magnonen auf die Bandstruktur. Die hohen Magnonenemissionsraten und deren rascher Abfall in wenigen fs ist dabei vermutlich unter anderem der fehlenden Abschirmung geschuldet, Abschirmung würde die Streuprozesse (Magnonemission) verlangsamen, die Anfangsemissionsraten abschwächen, jedoch würde für längere Zeit mehr Phasenraum zur Streuung zur Verfügung stehen, die Streuraten also, relativ

gesehen, weniger stark abfallen. Kurzgefasst würde Abschirmung die Magnonenprozesse verlangsamen aber nicht unterbinden. Die relativ kleinen Anteile der Änderung des Bahnmomentes verhalten sich anders als im Experiment (siehe Abbildungen 38, 39); im Experiment fallen Spin- und Bahnanteile quasi simultan ab [87], im Rahmen des Modelles steigt der Bahnanteil mit dem magnetischen Moment der Einzelspins (siehe 34) in den ersten fs zunächst an. Erst nach einigen fs, abhängig vom Material und diskutierten Fall, fällt der Bahnanteil ab. Carpene [86] hätte hier mit einem instantanen Quenchen des Bahnmomentes argumentiert. Meiner Meinung nach handelt es sich dabei aber um ein (etwaiges) Artefakt des Modelles. Weitere Streumechanismen, wie z.B. Elektron-Elektronstreuung können in einem realen System zu einem Abfall des Bahnmomentes führen. Ebenfalls denkbar wäre, dass eine reale Eigenmode des Systems, statt des Modellmagnons hier, welches eine reine Spinwelle ist, ebenfalls einen Bahnanteil aufweist, womit durch die Emission dieser Eigenmode auch gleichzeitig das Bahnmoment verändert würde, was mit dem experimentellen Verlauf in Einklang wäre.

Anmerkung: Elektron-Elektronstreuung würde vmtl. den Aufbau eines Überschusses an Elektronen mit dominantem Spincharakter auf durch Magnonenemission abschwächen oder verhindern. Unabhängig davon sollte eine physikalisch motivierte Korrektur des Austauschkorrelationsanteiles der Energie durch die Magnonen (z.B. in einem lokalen Bandschema) bestehen bleiben und würde eine Erhöhung der Selektivität der Elektron-Phononstreuraten bedingen, ebenso würden die Elektron-Elektronstreuungen die Magnetisierung erniedrigen [48] und damit die Phononspinflipstreuraten erhöhen können, vgl. [4] (Rechnungen mit reduzierter Austauschkopplung).

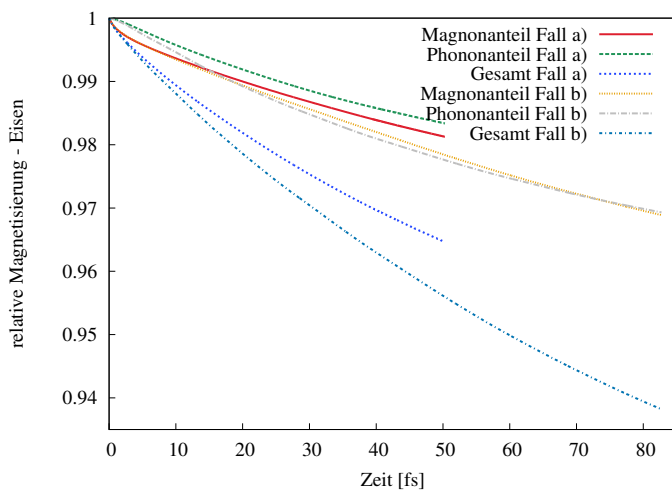


Abbildung 32: Zeitverlauf der Magnetisierung für Eisen. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

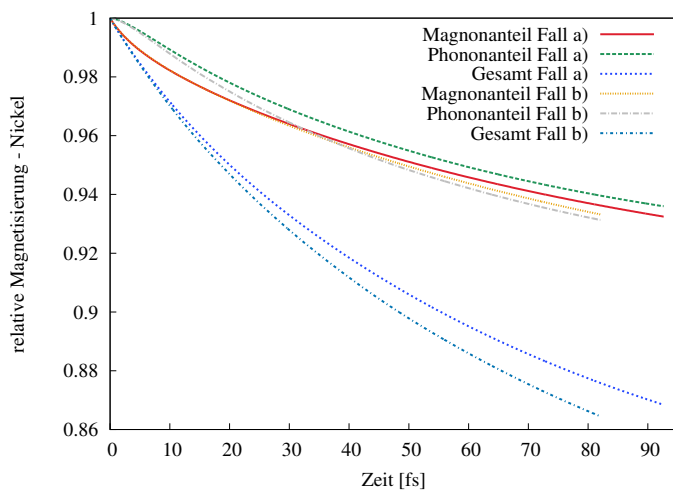


Abbildung 33: Zeitverlauf der Magnetisierung für Nickel. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

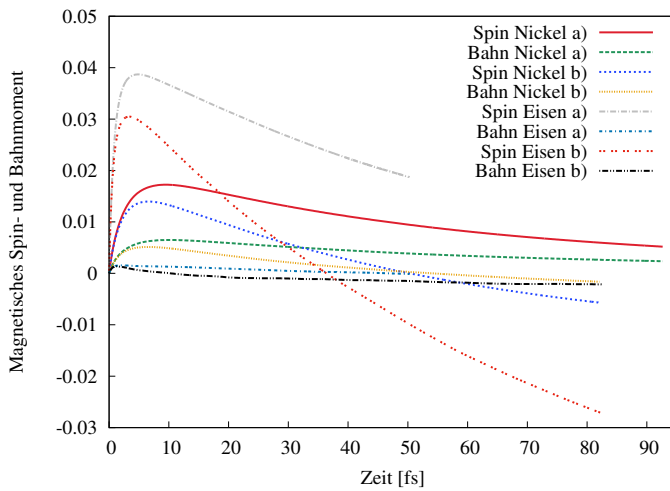


Abbildung 34: Zeitverlauf der Einzelelektronenmagnetisierung, aufgespalten in magnetischen Spin- und Bahnanteil. Der Bahnanteil wurde mit Faktor 10 multipliziert, um besser erkennbar zu sein. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

7.2.1 Magnonen und Phononen

Beschäftigte sich die bisherige Betrachtung nur mit dem Zeitverlauf der Magnetisierung, soll hier das Augenmerk auf die Magnonen und Phononen und der mit ihnen verknüpften Streuprozesse liegen. In Abbildung 35 sind die absoluten Emissionsraten und die Pseudotemperaturen $T_{\text{Pseudo}}^{\text{mag,ph}}$ im Zeitverlauf aufgetragen. Die Magnon- und Phononemission ist bei $t = 0$ am stärksten und nimmt dann ab. Während dies im Falle der Phononemission “kontinuierlich“ von statten geht, scheint es bei der Magnonemission 2 Zeitskalen zu geben, eine schnelle und eine langsame. Die Ursache könnte in den unterschiedlichen beteiligten Streuprozessen liegen, in Abbildung 40 ist das Verhältnis von Einzelspinänderung zu Magnonemissionsrate aufgetragen. Man erkennt einen deutlichen Abfall der Kurve, der darauf hin deutet, dass immer weniger Anteil der Magnonemission durch die erwarteten Streuungen von dominant spin-ab zu dominant spin-auf Zuständen passieren, sondern durch andere Streukanäle. Vergleicht man die Erwartungen mit dem Verhältnis der Einzelelektronenspinmomentänderung und Einzelelektronenbahnmomentänderung der Elektron-Magnonstreuung in den Abbildungen 39, 38, so erkennt man weder für Nickel noch für Eisen eine merkliche Veränderung des jeweiligen Bahnanteils. Dennoch ist davon auszugehen, dass im Rahmen des Modelles qualitativ andere Streuungen in unterschiedlichen Zeitskalen den Elektron-Magnonstreuungsanteil dominieren.

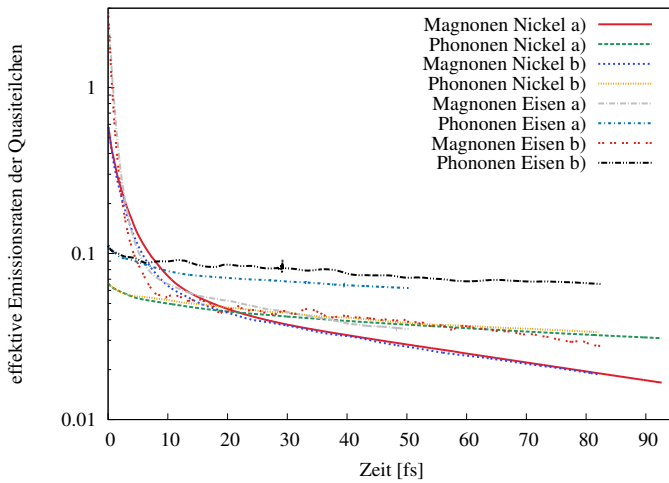


Abbildung 35: Effektive Phonon- und Magnonemissionsraten für Eisen und Nickel in Einheiten von Anzahl je 100 fs und Atom. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

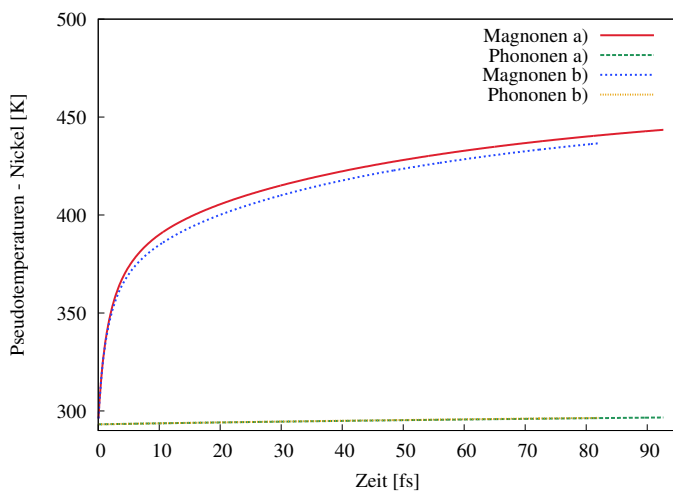


Abbildung 36: Pseudotemperaturen der Quasiteilchen für Nickel in Kelvin. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

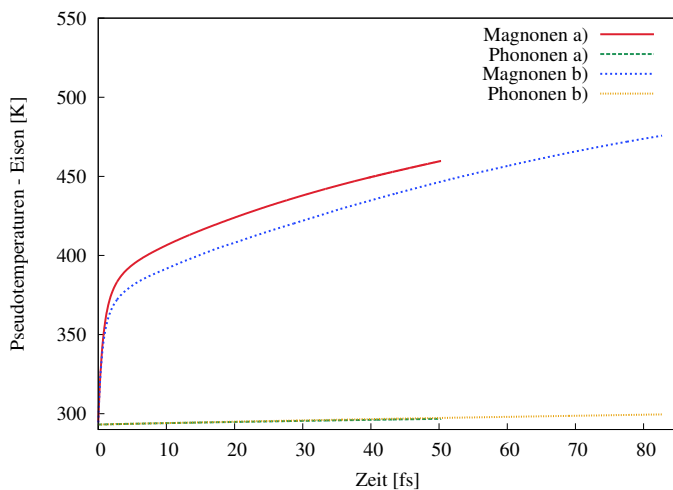


Abbildung 37: Pseudotemperaturen der Quasiteilchen für Eisen in Kelvin. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

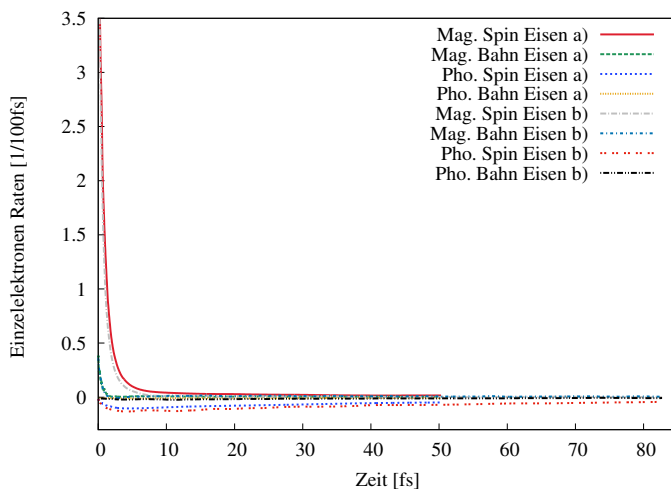


Abbildung 38: Änderungsraten des magnetischen Spin- und Bahnmomentes der Einzelelektronen durch Phononen und Magnonen für Eisen in Einheiten von μ_B je 100 fs und Atom. Die Änderung des Bahnmomentes wurde mit Faktor 10 multipliziert, um erkennbar zu sein. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

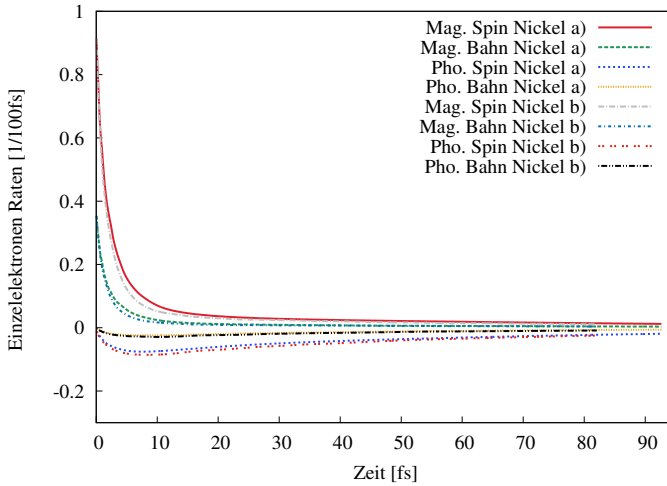


Abbildung 39: Änderungsraten des magnetischen Spin- und Bahnmomentes der Einzelelektronen durch Phononen und Magnonen für Nickel in Einheiten von μ_B je 100 fs und Atom. Die Änderung des Bahnmomentes wurde mit Faktor 10 multipliziert, um erkennbar zu sein. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

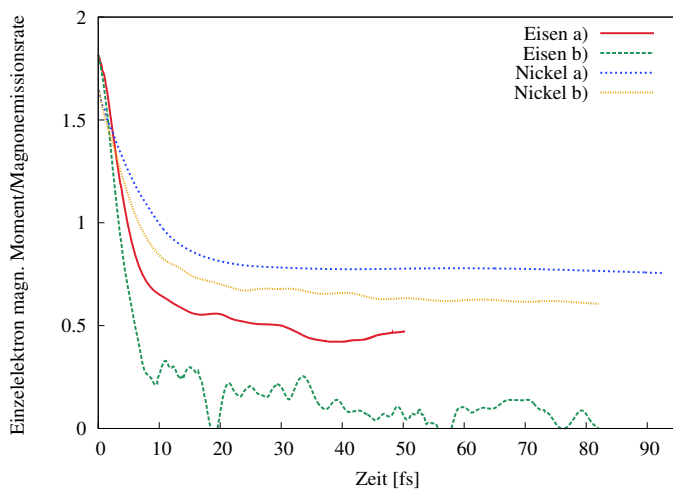


Abbildung 40: Änderung des magnetischen Momentes der Einzel-
elektronen durch Elektron-Magnonstreuung je emittiertem Magnon
- Güte der Drehimpulserhaltung der Elektron-Magnonstreuung für
Eisen und Nickel. Drehimpulserhaltung für reine Spinmomente er-
fordert ein Verhältnis von ca. 2. Die Fälle a) und b) sind die auf
Seite 74 beschriebenen Fälle.

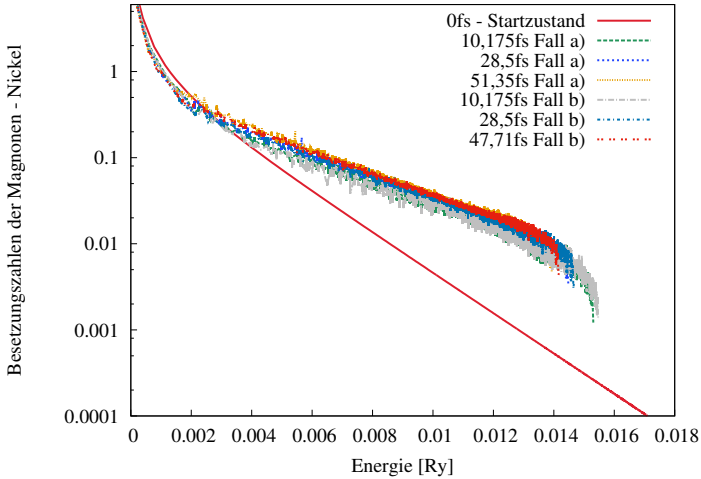


Abbildung 41: Magnonenverteilung zu verschiedenen Zeiten für Nickel. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

Werfen wir einen Blick auf die Magnonen- und Phononenbesetzungszahlen in Abhängigkeit der Temperatur zu mehreren Zeiten am Anfang der zeitaufgelösten Rechnung (Abbildung 41, 42 am Beispiel von Nickel, sowie Abbildung 43, 44), stellen wir mehrere Dinge fest, 1. Magnonen kleiner Energien werden tendenziell absorbiert, Magnonen grosser Energien werden eher emittiert, die Magnonenverteilung ist also stark athermisch (Dies ist im Einklang mit einer verwandten erst kürzlich publizierten Arbeit, die sich ebenfalls um Magnonenmission auf extrem kurzen Zeitskalen in Nichtgleichgewichtssystemen beschäftigt [156]). Dieser Effekt ist in Eisen noch stärker als in Nickel erkennbar, was auf die stärkere Anregung und Magnonenmission in Eisen zurückzuführen ist. 2. bei den Phononen überwiegt im Energiebild die Emission von Phononen mit kleiner Energie (wäre in Abbildung 42, sowie 44 beim Zoomen in den Bereich kleiner Energien zu sehen), Phononen hoher Energie werden ebenfalls emittiert aber, auf die einzelne Mode bezogen, in kleinerer Zahl. 3. die Pho-

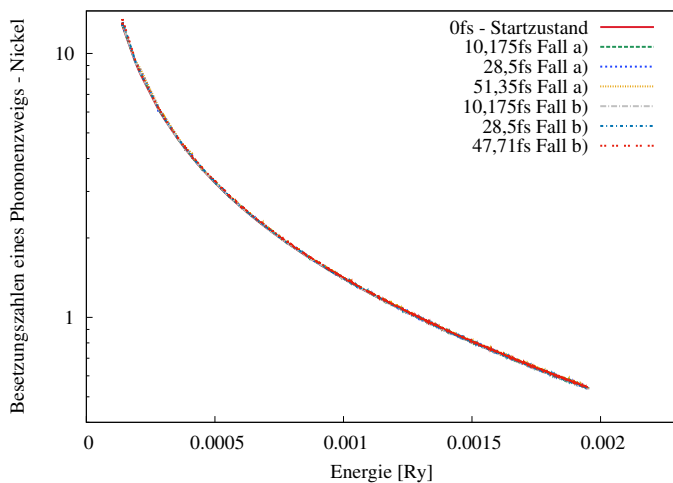


Abbildung 42: Phononenverteilung eines Zweiges zu verschiedenen Zeiten für Nickel. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

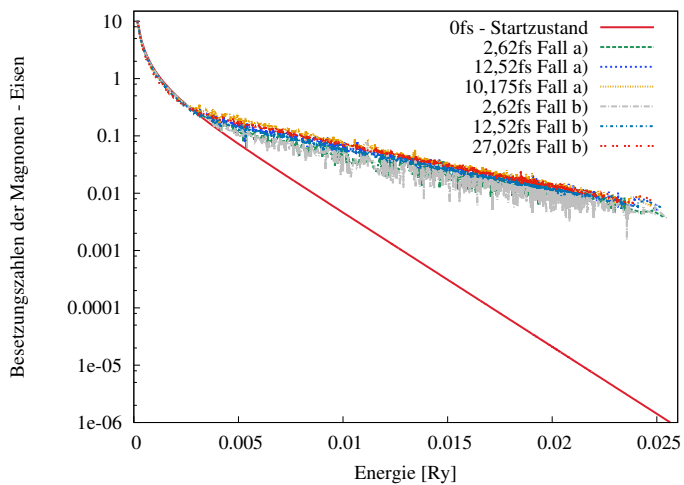


Abbildung 43: Magnonenverteilung zu verschiedenen Zeiten für Eisen. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

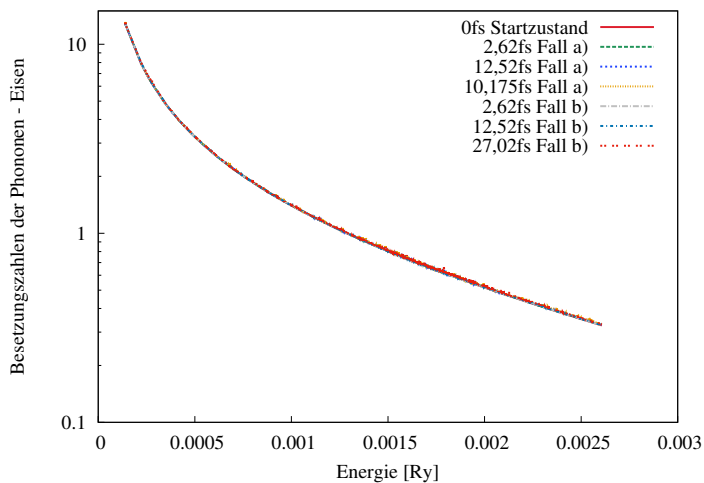


Abbildung 44: Phononenverteilung eines Zweiges zu verschiedenen Zeiten für Eisen. Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle.

nonenverteilung ist glatter als die Magnonenverteilung und darum näher an einer thermalisierten Verteilung. Die möglichen Ursachen sind spekulativ, die Absorption der Magnonen kleiner Energien kann etwas mit Details der Bandstruktur zu tun haben, oder einen indirekten Weg des Energietransfers zwischen Magnonen und Phononen darstellen, da kleine Phononenergien und kleine Magnonenenergien zu ähnlichen \mathbf{q} -Vektoren gehören. Man kann also davon ausgehen, dass die selben elektronischen Zustände, deren Energien der dynamischen Bandstruktur folgen, mit jenen Magnonen und Phononen zu verschiedenen Zeiten verknüpft werden (da die Dispersionen sich nicht schneiden, ist eine gleichzeitige Verknüpfung ausgeschlossen). Die wenig glatte magnonische Verteilung kann an der dynamischen Magnonenbandstruktur liegen, jedoch ist ebenso denkbar, dass aufgrund des größeren Energiebereiches, den die Magnonen im Vergleich zu den Phononen abdecken, die Dichte der \mathbf{q} -Punkte nicht ausreicht, um alle Energiebereiche geeignet abzudecken.

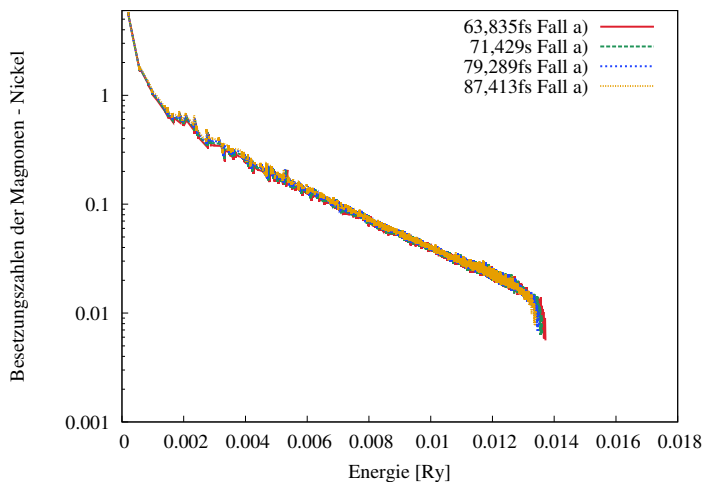


Abbildung 45: Magnonenverteilung zu späteren Zeiten für Nickel Fall a), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

Zu späteren Zeiten der zeitaufgelösten Rechnung glätten sich die Magnonenbesetzungszahlen etwas (siehe Abbildungen 45, 46 für Nickel und 47, 48 für Eisen), die niederenergetischen Moden sind jedoch immer noch stark unterbesetzt im Vergleich zu den hochenergetischen Moden. Inwiefern sich dies ändern würde, hätte man die Magnon-Magnonkopplung explizit mitgenommen, ist spekulativ.

Die Phononbesetzungszahlen sind zu späteren Zeiten der zeitaufgelösten Rechnung immer noch relativ glatt (siehe Abbildungen 50, 49 für Nickel und 51, 52 für Eisen). Die Verteilungsfunktion sieht immer noch in guter Näherung thermisch aus und hat nur leicht zugenommen.

Man könnte vermuten, da bis dato nur ein Phononenzweig diskutiert wurde, dass es eine stark abweichende Zeitentwicklung für die anderen Zweige gäbe. In den Abbildungen 55, 56 für Eisen und 53, 54 für Nickel erkennt man jedoch, dass die Phononenzweige einen relativ ähnlichen Zeitverlauf genommen haben. Die Sortierung der

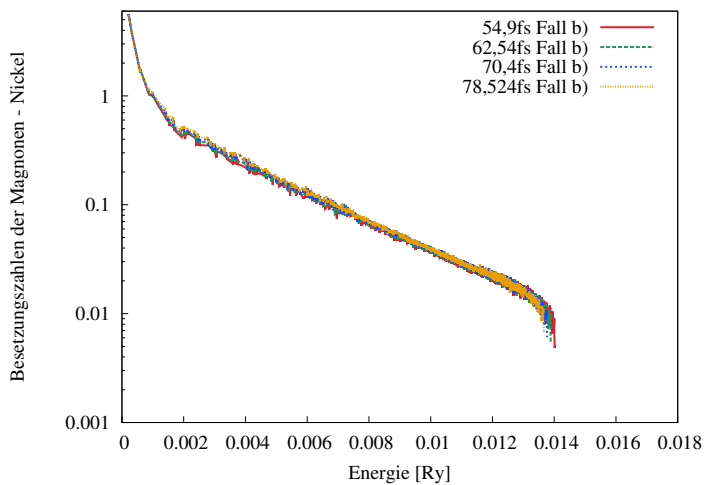


Abbildung 46: Magnonenverteilung zu späteren Zeiten für Nickel Fall b), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

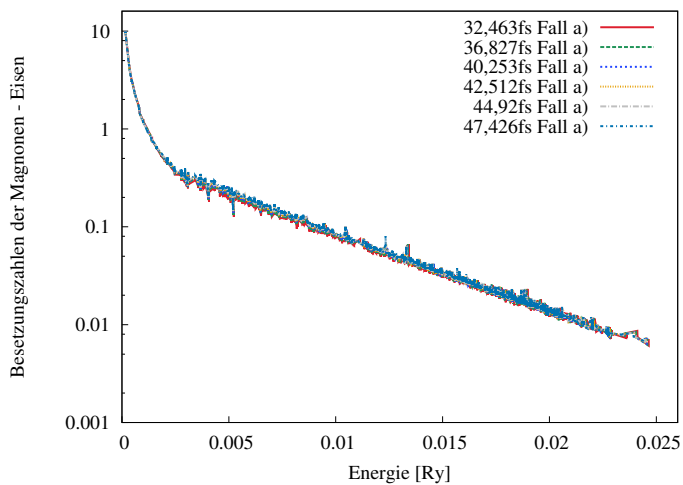


Abbildung 47: Magnonenverteilung zu späteren Zeiten für Eisen Fall a), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

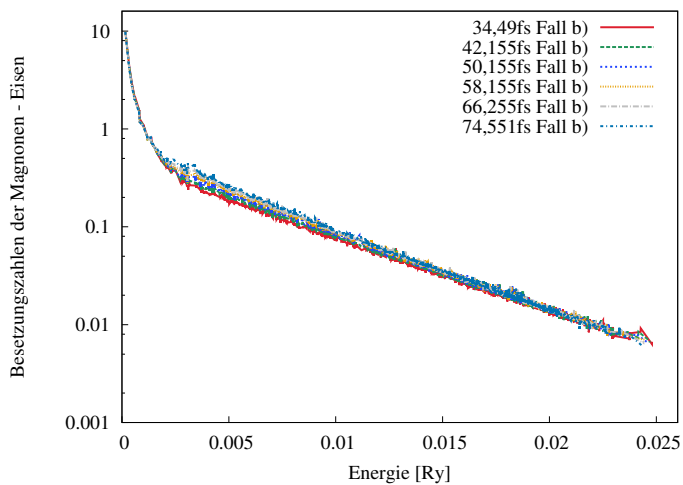


Abbildung 48: Magnonenverteilung zu späteren Zeiten für Eisen Fall b), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

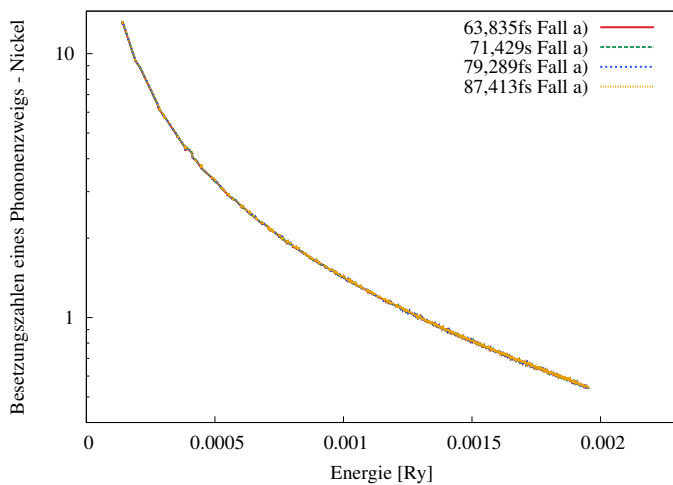


Abbildung 49: Phononenverteilung eines Zweiges zu späteren Zeiten für Nickel Fall a), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

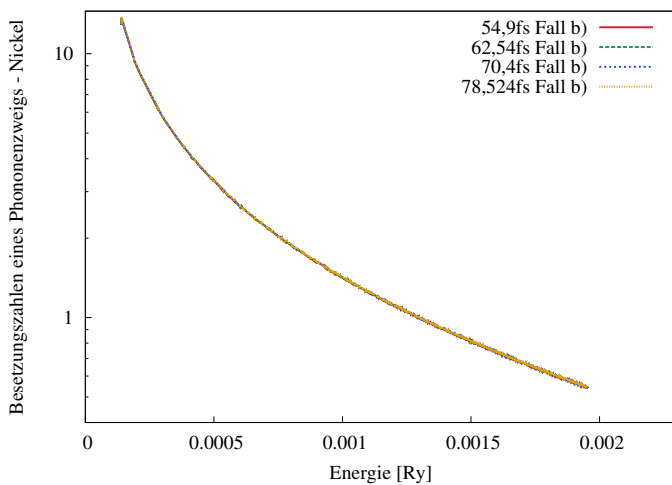


Abbildung 50: Phononenverteilung eines Zweiges zu späteren Zeiten für Nickel Fall b), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

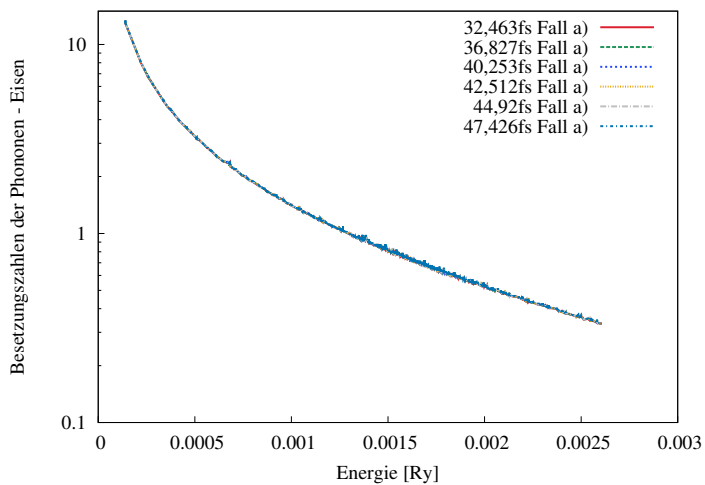


Abbildung 51: Phononenverteilung eines Zweiges zu zu späteren Zeiten für Eisen Fall a), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

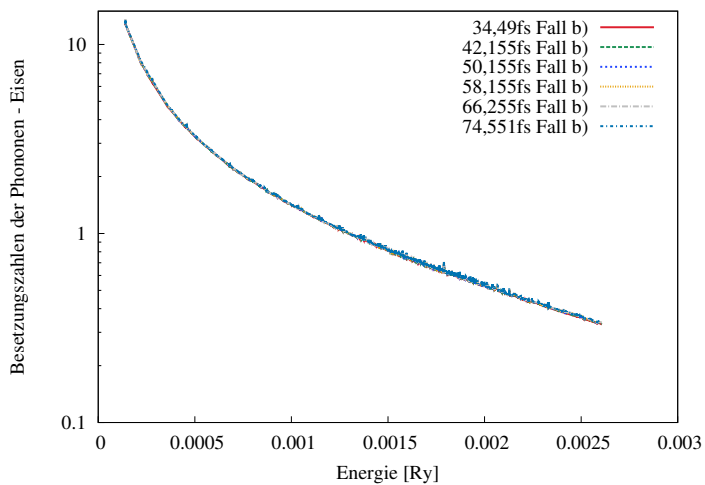


Abbildung 52: Phononenverteilung eines Zweiges zu zu späteren Zeiten für Eisen Fall b), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

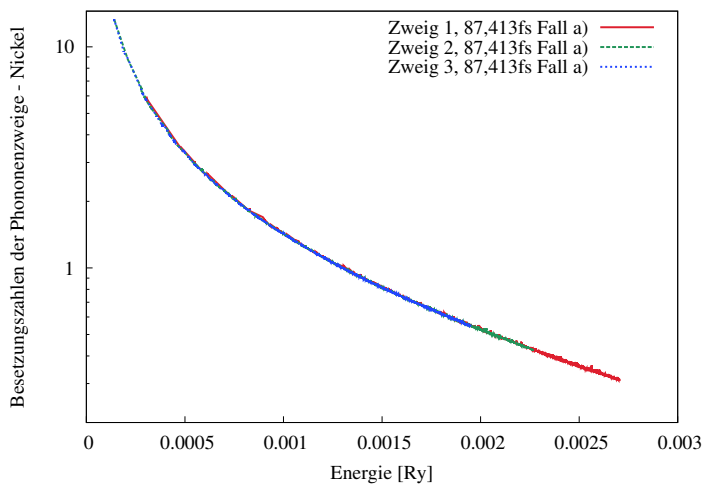


Abbildung 53: Phononenverteilung der Zweige zu einem späteren Zeitpunkt für Nickel Fall a), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

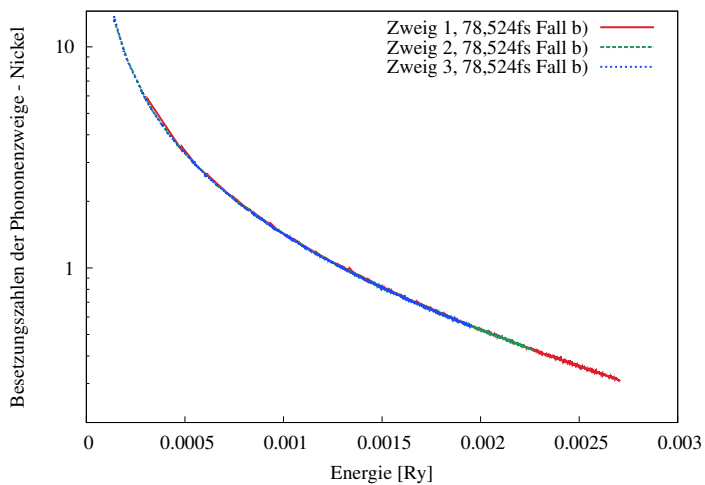


Abbildung 54: Phononenverteilung der Zweige zu einem späteren Zeitpunkt für Nickel Fall b), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

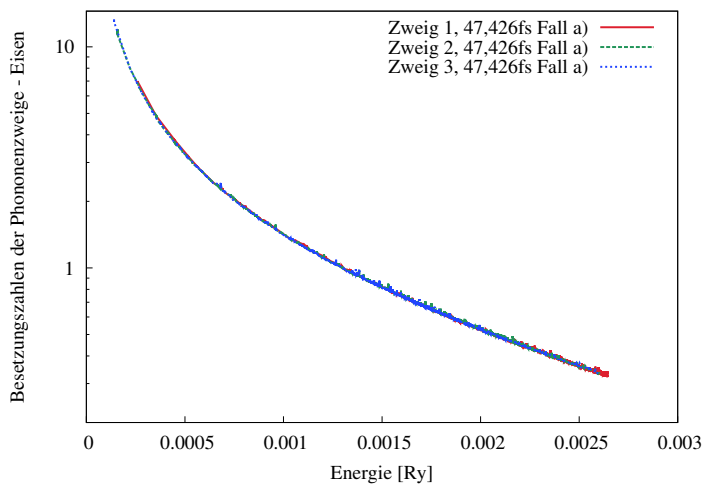


Abbildung 55: Phononenverteilung der Zweige zu einem späteren Zeitpunkt für Eisen Fall a), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

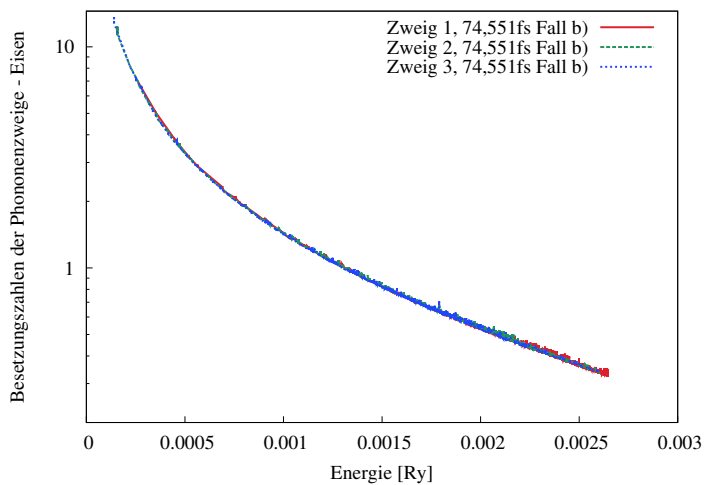


Abbildung 56: Phononenverteilung der Zweige zu einem späteren Zeitpunkt für Eisen Fall b), dieser wird auf Seite 74 beschrieben.

Zweige erfolgte in diesem Fall nach der Energie der Moden für einen \mathbf{q} -Vektor, wobei Zweig 1 die höchsten Energien, Zweig 2 die mittleren Energien und Zweig 3 die niedrigsten Energien zugewiesen bekam. Man kann unter Umständen eine leichte Präferenz der Emission des Zweiges der höchsten Energie ausmachen, es handelt sich dabei um mehrheitlich longitudinale Moden, in den Schaubildern die rote Kurve.

Anmerkung: Vor allem bei Eisen Fall b) kommt es in der Zeitentwicklung zu deutlichen Schwankungen der Raten. Dies hat vermutlich numerische Gründe; ein größerer Verschmierungsparameter und ein dichteres k -Netz würden die Schwankungen vmtl. deutlich verringern. Eine Verkürzung der Zeitschrittlänge allein genügte nicht, die Oszillationen aus den Emissionsraten zu entfernen.

7.2.2 Extrapolierte Entmagnetisierungszeiten und maximale Entmagnetisierung

Aufgrund begrenzter Zeit und numerischer Probleme wurden die Ergebnisse jeweils nur bis 50 – 100 fs berechnet. Auf Basis der Ergebnisse lässt sich eine Minimalabschätzung für Entmagnetisierungszeit τ_{mag} (diese ist definiert als Zeit nach der $1 - e^{-1}$ Teil der maximalen Entmagnetisierung erreicht ist, d.h sie folgt implizit aus der Bestimmungsgleichung $M(\tau_{\text{mag}}) = M(t_0 = 0) - (1 - e^{-1}) \cdot \Delta M_{\text{max}}$, wobei t_0 als Startzeitpunkt 0 gesetzt wurde) und maximale Entmagnetisierung ΔM_{max} sofort abgeben. Die untere Grenze der Entmagnetisierungszeit und maximalen Entmagnetisierung ist dabei durch das Ende der Rechnung gegeben, es ist die pessimistischste Abschätzung, da sie davon ausgeht, dass keine weitere Entmagnetisierung stattfindet, obwohl dies nicht im Einklang mit dem Kurvenverlauf ist. Die Entmagnetisierungszeit und die maximale Entmagnetisierung werden dabei beide unterschätzt. Für Nickel ergibt sich eine minimale Ent-

Größe	Nickel a)	Nickel b)	Eisen a)	Eisen b)
ΔM_{max} (Minimal)	13,16	13,55	3,537	6,180
$\Delta M_{\text{max}}^{\text{approx}}$ (Parabel)	15,72	16,70	6,684	8,025
τ_{mag} (Minimal)	41,35	38,35	26,40	43,04
τ_{mag} (Parabel)	54,85	52,72	65,83	61,12
τ_{min} (Parabel)	170,95	157,35	185,69	164,89
$\frac{d^3 M }{dt^3} \left[10^6 \frac{\mu_B}{\text{Atom} \cdot \text{fs}^3} \right]$	-834	+301	-75,4	-3,77
$\left\langle \frac{d M }{dt} \right\rangle_{50 \text{ fs}}$	-5,813	-6,311	-7,793	-9,710

Tabelle 11: Übersicht der extrapolierten Resultate zur maximalen Entmagnetisierung ΔM_{max} [%], Entmagnetisierungszeit τ_M [fs], extrapolierten Zeit des Minimums der Entmagnetisierungskurve τ_{min} [fs], der über die ersten 50 fs gemittelten Rate $\left\langle \frac{d|M|}{dt} \right\rangle_{50 \text{ fs}} \left[\frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}} \right]$ und zur dritten Ableitung der Magnetisierung nach der Zeit $\frac{d^3|M|}{dt^3} \left[10^6 \frac{\mu_B}{\text{Atom} \cdot \text{fs}^3} \right]$ für alle berechneten Fälle.

magnetisierungszeit von 41,35 fs und von 38,35 fs für Fall b) für Fall a) (zur Erinnerung, die Fälle a) und b) sind auf Seite 74 beschrieben), mit einer maximalen Entmagnetisierung von 13,16% für Fall a) und 13,55% für Fall b). Für Eisen ergibt sich eine minimale Entmagnetisierungszeit von 26,40 fs für Fall a) und 43,04 fs für Fall

b), mit maximaler Entmagnetisierung von 3,537% für Fall a) und 6,180% für Fall b). Da das Minimum der Kurven noch nicht erreicht scheint, ist davon auszugehen, dass die wahren Werte höher liegen. Fittet man lokal an die letzten Rechenschritte eine Parabel auf Basis der numerischen 2ten Ableitung der Magnetisierungskurve nach der Zeit, so erhält man eine Abschätzung für die Zeit, in der das Minimum der Entmagnetisierung erreicht worden wäre. Die Parabel bietet sich dabei an, da sie zum einen das niedrigste Polynom ist, welches ein Minimum aufweisen kann, und zum anderen, da die dritte Ableitung der Magnetisierung nach der Zeit, die zur Beschreibung des Polynoms nächst höherer Ordnung nötig wäre, sich durch numerisch bedingte Schwankungen als deutlich unpräziser erweist. Die Güte jener "Parabelnäherung" ist jedoch leider nicht sehr gut, da die Extrapolation über einen zu langen Zeitraum geht. Im Rahmen der "Parabelnäherung" können genäherte maximale Entmagnetisierungen $\Delta M_{\max}^{\text{approx}}$ bestimmt werden, diese sind im Einzelnen 15,72% und 16,70% für Nickel, sowie 6,684% und 8,025% für Eisen, ersterer Wert jeweils für Fall a), zweiterer für Fall b). Wie erwartet, ist die Entmagnetisierung durch die Anpassung der elektronischen Bandstrukturen durch die Magnonen (siehe Gleichung (100)) begünstigt. Mit Hilfe dieser genäherten maximalen Entmagnetisierungen lassen sich nun genäherte Entmagnetisierungszeiten τ_{mag} bestimmen. Im Einzelnen führt dies zu Zeiten von 54,85 fs und 52,72 fs für Nickel, sowie 61,12 fs und 65,83 fs für Eisen, ersterer Wert jeweils für Fall a), zweiterer für Fall b). Die dritten Ableitungen erweisen sich leider als numerisch weniger stabil, in der Tabelle 11 sind sie trotzdem angegeben, das Vorzeichen der dritten Ableitung dient dabei als grober Hinweis darauf, ob die realen Ergebnisse kleiner oder größer als die extrapolierten Ergebnisse zu erwarten sind. Die Zeit τ_{min} beschreibt die Zeit, zu der in der Parabelnäherung das Minimum der Magnetisierung erreicht wird. Im Einzelnen sind die Werte 170,95 fs für Nickel Fall a), 157,35 fs Nickel Fall b), 185,69 fs für Eisen Fall a) und 164,89 fs für Eisen Fall b). Diese Werte mit dem Experiment zu vergleichen, ist nicht leicht - so erkennt man, dass z.B. für Nickel [62] das Minimum der Entmagnetisierungskurve abhängig von der Umgebungstemperatur und der Pumpfluenz (für eine Probe) zwischen rund 400 fs und mehr als einer ps schwanken kann. Tendentiell sind die Werte von τ_{min} für Nickel also zu klein. Für Eisen hingegen scheint in [86] das Minimum der Entmagnetisierung schon nach ca. 150 – 200 fs erreicht, was im Einklang mit den Ergebnissen stünde,

jedoch sind auch hier viel höhere Werte möglich, siehe z.B. [52]. In vielen Publikationen werden die Entmagnetisierungsraten nicht relativ zur Magnetisierung, sondern absolut angegeben, da alle Fälle bis mindestens 50 fs berechnet wurden, empfiehlt es sich hierbei, die über die ersten 50 fs gemittelte Rate $\left\langle \frac{d|M|}{dt} \right\rangle_{50 \text{ fs}}$ einzuführen. In der Einheit $\left[\frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}} \right]$ ergeben sich für Nickel Fall a) -5,813, für Nickel Fall b) -6,311, für Eisen Fall a) -7,793 und für Eisen Fall b) -9,710. Die absoluten Entmagnetisierungsraten sind also für Eisen (zumindest in den ersten 50 fs) höher als für Nickel.

Anmerkung: Die Güte der verwendeten Näherungen wird umso schlechter, je weiter das jeweilige System von seinem Grundzustand entfernt ist. Insbesondere wird das Aufheizen des Magnonsystems und den damit prinzipiell verbundenen immer grösser werdenden Verkippungen der magnetischen Momente dazu führen, dass sowohl das elektronische System, als auch die Kopplungen der Elektronen und der Magnonen im Zeitverlauf immer schlechter beschrieben werden. Beim phononischen System ist das Aufheizen weniger drastisch und die Vernachlässigung damit verbundener Effekte scheint immer noch gerechtfertigt. Zur Energieerhaltung ist anzumerken, dass aufgrund der Energieverschmierung, der Aufweichung der Magnonspektren mit steigender Temperatur und der dynamischen Bandstruktur keine strikte Energieerhaltung gilt. Da die Energieverschmierung meist dazu führt, dass Energie ins System durch die Numerik zugeführt wird, ist davon auszugehen, dass die hier bestimmten Quasiteilchenemissionraten und Entmagnetisierungsraten höher sind, als sie sich bei einer Rechnung mit strikter Energieerhaltung ergäben. Für Nickel ergibt sich eine Abweichung von bis zu 0,6% zur Energieerhaltung je Zeitschritt in der Elektron-Phononstreuung, in Eisen hingegen ergibt sich nur eine Abweichung von bis zu 0,35% zur Energieerhaltung. Bzgl. der Elektron-Magnonstreuung ist die Energie besser erhalten. Diese Zahlen geben nur eine Abschätzung für die Energieerhaltung durch Streuungen, nicht jedoch über die Fehler, die durch Änderung der Bandstruktur entstanden. Hierzu wurden alle 100 Zeitschritte Rechnungen gemacht, um die Gesamtenergie in Phonon, Magnon und Elektronensystem in der aktuellen Bandstruktur zu bestimmen, siehe Tabellen 12 und 13. Die Abweichungen sind dabei wie erwartet größer, das Problem ist dabei unter anderem die jeweilige genaue 0-Referenz. Ist bei den Phononen klar, welche Energie im System ist, da sie eindeutig durch die Phononenbesetzungszahlen

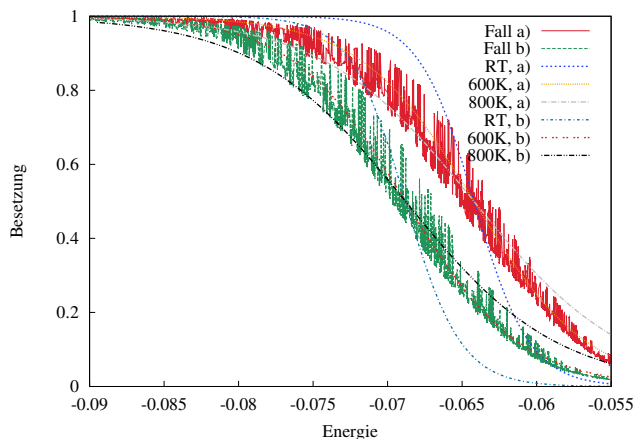


Abbildung 57: Elektronenverteilung Nickel zum 300sten Zeitschritt (entspricht 51, 35 fs für Fall a), 47, 71 fs für Fall b), Länge der Zeitschritte jeweils so gewählt, dass die jeweilige Zeitentwicklung stabil ist, d.h. dass alle berechneten Mittelwerte sich glatt in der Zeit verhalten.). Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle. Die thermische Verteilungskurven zum Vergleich sind jeweils auf die zugehörigen Energien und ein gefittetes chemisches Potential bezogen. Sie dienen als Richtlinie für das Auge.

und die Dispersion bestimmt ist, wird es schon bei den Magnonen schwieriger. Aufgrund der dynamischen Magnonenbandstruktur ist die hier angegebene Energie eine Art untere Abschätzung der Energie, die im Magnonensystem steckt. Bei den Elektronen hingegen fehlt eine passende Energiereferenz.

Zeit [fs] -Subsystem	Nickel Fall a)	Nickel Fall b)
0 -Elektronen	-2378,068	-2378,068
0 -Phononen	3,27294	3,27294
0 -Magnonen	0,02725	0,02725
0 -Summe	-2374,768	-2374,768
10,175 -Elektronen	-2382,228	-2385,077
10,175 -Phononen	3,28179	3,28203
10,175 -Magnonen	0,20251	0,19112
10,175 -Summe	-2378,744	-2381,604
28,5 -Elektronen	-2381,477	-2385,661
28,5 -Phononen	3,29523	3,29623
28,5 -Magnonen	0,28125	0,26825
28,5 -Summe	-2377,9009734	-2382,0962978
51,35/47,71 -Elektronen	-2380,643	-2385,991
51,35/47,71 -Phononen	3,30976	3,30923
51,35/47,71 -Magnonen	0,33651	0,31625
51,35/47,71 -Summe	-2376,997	-2382,365
63,835/54,9 -Elektronen	-2380,307	-2386,113
63,835/54,9 -Phononen	3,31711	3,31362
63,835/54,9 -Magnonen	0,35839	0,32974
63,835/54,9 -Summe	-2376,632	-2382,469
71,429/62,54 -Elektronen	-2380,143	-2386,237
71,429/62,54 -Phononen	3,32131	3,31813
71,429/62,54 -Magnonen	0,36938	0,34221
71,429/62,54 -Summe	-2376,453	-2382,577
79,289/70,4 -Elektronen	-2379,996	-2386,371
79,289/70,4 -Phononen	3,32552	3,32264
79,289/70,4 -Magnonen	0,37936	0,35335
79,289/70,4 -Summe	-2376,291	-2382,695
87,413/78,524 -Elektronen	-2379,864	-2386,509
87,413/78,524 -Phononen	3,32972	3,32718
87,413/78,524 -Magnonen	0,38838	0,36332
87,413/78,524 -Summe	-2376,146	-2382,818

Tabelle 12: Energien in den Subsystemen in mRy pro Atom alle 100 Zeitschritte Nickel. Bei mit / getrennten Zeitangaben ist die erste Angabe auf Fall a) bezogen, die zweite Angabe auf Fall b); wobei eine äquivalente Anzahl an Zeitschritten verschiedener Länge absolviert wurde.

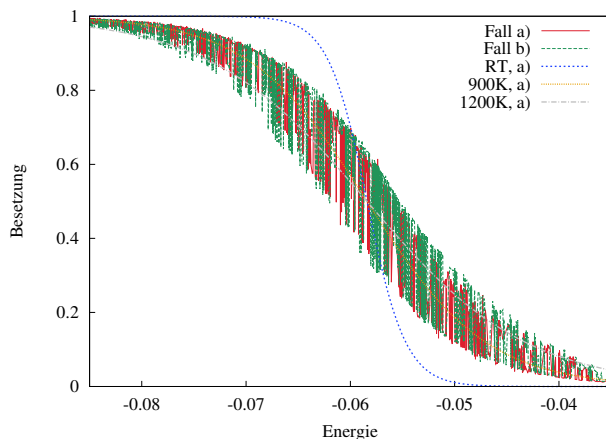


Abbildung 58: Elektronenverteilung Eisen zum 300sten Zeitschritt (entspricht 26,995 fs für Fall a), 27,02 fs für Fall b), Länge der Zeitschritte jeweils so gewählt, dass die jeweilige Zeitentwicklung stabil ist, d.h. dass alle berechneten Mittelwerte sich glatt in der Zeit verhalten.). Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle. Die thermische Verteilungskurven zum Vergleich sind jeweils auf die zugehörigen Energien und ein gefittetes chemisches Potential bezogen. Sie dienen als Richtlinie für das Auge.

Aufgrund der klar nicht thermalisierten Elektronenverteilung, Abbildungen 57 und 58, ist außerdem die Zuweisung einer Temperatur nicht zielführend. Da die Schwankungen der Energien im Elektronensystem bei weitem größer sind als die an die Quasiteilchensubsysteme abgegebene Energie, ist zu hoffen, dass die mit der Zeit fallenden Phonon- und Magnonemissionsraten ein Indiz dafür sind, dass die Elektronenverteilung sich adäquat abkühlt.

Zeit [fs] -Subsystem	Eisen Fall a)	Eisen Fall b)
0 -Elektronen	-1763,830	-1763,830
0 -Phononen	3,19008	3,19008
0 -Magnonen	0,06964	0,06964
0 -Summe	-1760,571	-1760,571
2,62 -Elektronen	-1758,615	-1757,385
2,62 -Phononen	3,19452	3,19454
2,62 -Magnonen	0,33978	0,30721
2,62 -Summe	-1756,443	-1753,883
12,52 -Elektronen	-1758,950	-1757,887
12,52 -Phononen	3,20881	3,20975
12,52 -Magnonen	0,43321	0,39568
12,52 -Summe	-1755,308	-1754,282
26,995/27,02 -Elektronen	-1760,166	-1759,335
26,995/27,02 -Phononen	3,22717	3,23093
26,995/27,02 -Magnonen	0,49666	0,46655
26,995/27,02 -Summe	-1756,443	-1755,638
32,463/34,49 -Elektronen	-1760,578	-1759,883
32,463/34,49 -Phononen	3,23377	3,24173
32,463/34,49 -Magnonen	0,51600	0,49572
32,463/34,49 -Summe	-1756,829	-1756,146
36,827/42,155 -Elektronen	-1760,883	-1760,384
36,827/42,155 -Phononen	3,23879	3,25192
36,827/42,155 -Magnonen	0,52970	0,52084
36,827/42,155 -Summe	-1757,115	-1756,612
40,253/50,155 -Elektronen	-1761,106	-1760,867
40,253/50,155 -Phononen	3,24262	3,26195
40,253/50,155 -Magnonen	0,53960	0,54435
40,253/50,155 -Summe	-1757,324	-1757,061
42,512/58,155 -Elektronen	-1761,245	-1761,318
42,512/58,155 -Phononen	3,24509	3,27168
42,512/58,155 -Magnonen	0,54551	0,56378
42,512/58,155 -Summe	-1757,454	-1757,482

44,92/66,255 -Elektronen	-1761,387	-1761,661
44,92/66,255 -Phononen	3,24770	3,28128
44,92/66,255 -Magnonen	0,55165	0,58023
44,92/66,255 -Summe	-1757,587	-1757,899
47,426/74,551 -Elektronen	-1761,526	-1761,965
47,426/74,551 -Phononen	3,25039	3,29194
47,426/74,551 -Magnonen	0,55778	0,59461
47,426/74,551 -Summe	-1757,718	-1758,079

Tabelle 13: Energien in den Subsystemen in mRy pro Atom alle 100 Zeitschritte Eisen. Bei mit / getrennten Zeitangaben ist die erste Angabe auf Fall a) bezogen, die zweite Angabe auf Fall b); wobei eine äquivalente Anzahl an Zeitschritten verschiedener Länge absolviert wurde.

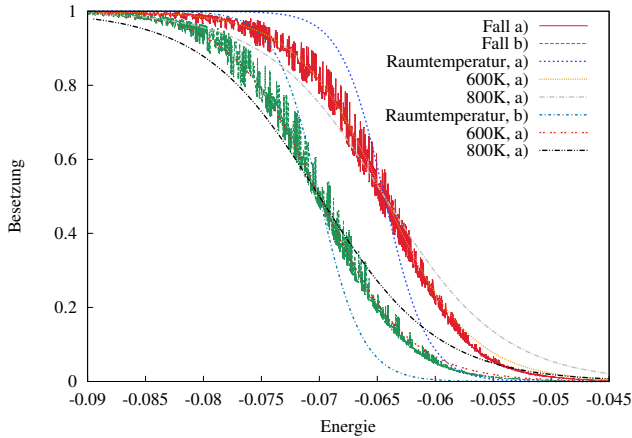


Abbildung 59: Elektronenverteilung Nickel zum 700sten Zeitschritt (entspricht 87,413 fs für Fall a), 78,524 fs für Fall b), Länge der Zeitschritte jeweils so gewählt, dass die jeweilige Zeitentwicklung stabil ist, d.h. dass alle berechneten Mittelwerte sich glatt in der Zeit verhalten.). Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle. Die thermische Verteilungskurven zum Vergleich sind jeweils auf die zugehörigen Energien und ein gefittetes chemisches Potential bezogen. Sie dienen als Richtlinie für das Auge.

Ein Indiz für die richtige Tendenz ist den Abbildungen 59 und 60 zu entnehmen, im Vergleich zu den kleineren Zeiten (siehe Abbildung 57 und 58) hat die Breite und Streuung der Verteilung deutlich abgenommen. Das elektronische System scheint also auf einer längeren Zeitskala einer thermalisierten Verteilung entgegenzustreben, mit im Zeitverlauf abnehmender “Temperatur“. Die genäherte Behandlung der zeitabhängigen Elektronenenergien (siehe Gleichung 99 und 100) garantiert keine strenge Energieerhaltung beim Übergang von einer Bandstruktur zu einer anderen im nächsten Zeitschritt. Es ist zu hoffen, dass die dadurch erzeugten Fehler klein sind.

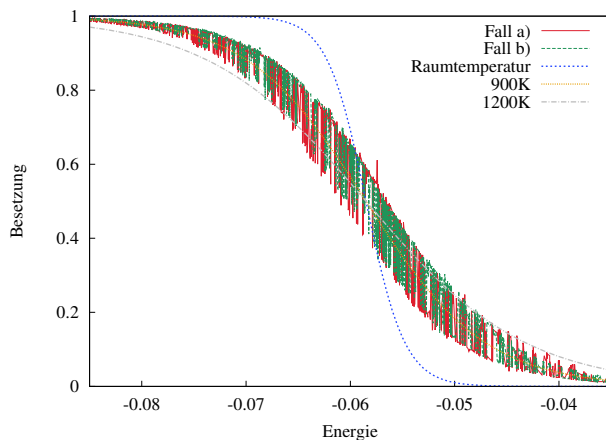


Abbildung 60: Elektronenverteilung Eisen zum 900sten Zeitschritt (entspricht 47,426 fs für Fall a), 74,551 fs für Fall b), Länge der Zeitschritte jeweils so gewählt, dass die jeweilige Zeitentwicklung stabil ist, d.h. dass alle berechneten Mittelwerte sich glatt in der Zeit verhalten.). Die Fälle a) und b) sind die auf Seite 74 beschriebenen Fälle. Die thermische Verteilungskurven zum Vergleich sind jeweils auf die zugehörigen Energien und ein gefittetes chemisches Potential bezogen. Sie dienen als Richtlinie für das Auge.

8 Zusammenfassung, deutsche Version

Im Rahmen der Doktorarbeit wurde das Entmagnetisierungsverhalten der Übergangsmetalle Eisen und Nickel nach ultraschnellen Laserpulsen durch Elektron-Magnon und Elektron-Phononstreuung untersucht. Zur Berechnung der Entmagnetisierungsdynamik wurde ein genäherter Elektron-Magnonstreuoperator in LMTO-ASA Näherung hergeleitet [140]. Mit Hilfe des Streuoperators und ab-initio Rechnungen [5] konnte das Modell der Entmagnetisierung durch reine Elektron-Magnonstreuung [86] widerlegt werden. Ein Modell zur möglichen Erklärung der Entmagnetisierung auf Basis kombinierter Elektron-Magnon und Elektron-Phononstreuung wurde entwickelt [4], [5]. Dieses wurde im Rahmen einer dynamischen Rechnung, basierend auf Boltzmannratengleichungen, überprüft. Die auf Basis der berechneten Zeitentwicklung von jeweils mindestens 50 fs abgeschätzten Entmagnetisierungszeiten sind kürzer als die im Experiment beobachteten Zeiten. Für Nickel ließ sich ein $\tau_{\text{mag}} = 38 - 55$ fs ermitteln, das um einiges kürzer als die $70 - 300$ fs [2] aus dem Experiment ist. Für Eisen ließ sich ein $\tau_{\text{mag}} = 26 - 66$ fs ermitteln, das im großen Rahmen der Werte $50 - 500$ fs (untere Grenze [86], obere Grenze [52]) aus den Experimenten ist.

Die im Rahmen der Rechnung ermittelten maximale Entmagnetisierungs ca. $13 - 17\%$ für Nickel und $3,5 - 8\%$ für Eisen sind trotz moderater Startanregung des elektronischen Systems kleiner als man sie erwarten würde, wenn die Modellmechanismen die ultraschnelle Entmagnetisierung erklären sollten. Eine beobachtete fluenzabhängige ultraschnelle Entmagnetisierung von einigen 10% (auch über 50%) lässt sich vmtl. im Rahmen des Modelles nicht erklären, dass dennoch ein merklicher Beitrag des Modellmechanismus zur Entmagnetisierungsdynamik möglich ist, wird jedoch durch die Ergebnisse unterstützt. Die über die ersten 50 fs gemittelten Entmagnetisierungsraten sind $-5,813 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ bis $-6,311 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ für Nickel, sowie $-7,793 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ bis $-9,710 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ für Eisen. Obwohl relativ leicht Entmagnetisierungsraten aus dem Experiment zu entnehmen sind, gibt es nur wenige Arbeiten, die sowohl eine experimentelle Entmagnetisierungskurve als auch eine dazu gehörige Abschätzung der Elektronentemperatur angeben. Zieht man zum Vergleich die Quelle [62] für Nickel heran, so kann man hier für 1000K eine Entmagnetisierungsrate von ca. $-0,1 \frac{\mu_B}{\text{Atom}}$ in ca. 100 fs aus den Grafiken ablesen. Eine andere Abschätzung für Nickel lie-

fert Quelle [157], welche bei nur 650K eine Entmagnetisierungsrate von ca. $-0,1 \frac{\mu_B}{\text{Atom}}$ in ca. 100 fs (aus den Grafiken ermittelt) liefert. Man darf hierbei im Vergleich zu den in der Arbeit berechneten Entmagnetisierungsraten nicht vergessen, dass die Raten mit der Zeit abnehmen und darum eine Verdopplung der gemittelten Raten für 50 fs die tatsächliche Entmagnetisierung für 100 fs im selben Modell weit überschätzt. Für Eisen gibt es noch weniger Quellen, die Experiment und Elektronentemperatur vereinen, als Beispiel sei erneut Quelle [86] verwendet, welche eine Rate von ca. $-0,2 \frac{\mu_B}{\text{Atom}}$ pro 100 fs für eine als 1000K abgeschätzte Temperatur liefert. Wie die absolute maximale Entmagnetisierung, so sind also auch die Entmagnetisierungsraten im Vergleich zum Experiment zu klein.

Zusätzlich sagt das Modell eine starke Emission von Magnonen voraus, die zu einer stark athermischen Verteilung der Magnonen führen, dies ist im Einklang mit den Ergebnissen in Referenz [156] und den Messungen in Referenz [133]. Die Annahmen, die für die Berechnung des Modelles gemacht wurden, werden umso unpräziser, je mehr Energie ins System transferiert wird, ein Test, ob höhere Starttemperaturen zu höheren Entmagnetisierungen vergleichbar mit dem Experiment führen würde, oder ob das so beschriebene System einen critical slowing down aufweist, ist zwar generell möglich, aber unsinnig. Die möglichen Ursachen der Abweichungen der berechneten Ergebnisse im Vergleich zum Experiment sind vielseitig; zum einen wurden im Rahmen der Rechnung viele Näherungen gemacht, unter anderem zur Bestimmung der Streuoperatoren, der elektronischen Zustände und der Quasiteilchenzustände. Zum anderen wurde die Abschirmung der Wechselwirkungen vernachlässigt und eine willkürliche, modellkonforme Wahl der Wechselwirkungen getroffen.

Um eine präzise Einschätzung des Beitrages von Magnonen (und Phononen) zum Entmagnetisierungsprozess zu gewinnen, sollte ein denkbares zukünftiges besseres Modellsystem zusätzlich sowohl eine Kopplung ans elektromagnetische Feld (um die Laserpulsanregung und Terrahertzemission explizit zu berücksichtigen), als auch die Elektron-Elektronstreuung mitberücksichtigen. Der Vollständigkeit halber sollten alle so betrachteten Subsysteme aneinander gekoppelt werden (insbesondere die Magnon-Phononkopplung) und die Zustände, sowie Matrixelemente selbstkonsistent zu allen berücksichtigten Subsystemen bestimmt werden. Desweiteren wird man zur korrekten Beschreibung der Experimente (insbesondere der Schicht-

dickenabhängigkeit) nicht umhinkommen, die finite Probe (Grenzflächen- Oberflächen- und Quantisierungseffekte) und etwaige Transportprozesse mitzunehmen. Ausserdem sollte die typische semi-klassische Behandlung von Streuungen mit Fermi's goldener Regel und Boltzmannratengleichungen durch quantenkinetische Rechnungen ersetzt werden. Die nichtdiagonalen Terme der Dichtematrizen können die Dynamik eines magnetischen Systems stark beeinflussen (siehe [49]). Der Einfluss nicht-Markovscher Prozesse ist bis dato ungewiss und sollte überprüft werden, ebenso ist bis dato unbekannt, in welcher Ordnung eine geschlossene Form der Gleichungen genähert werden sollte, um eine physikalische, präzise Beschreibung eines magnetischen Systems zu ermöglichen.

Nach Kenntnis des Autors sind keine weiteren Rechnungen zum hier vorgestellten Modell geplant.

9 Conclusion

This phd thesis dealt with the demagnetization behaviour of the transition metals iron and nickel after ultrashort laserpulses due to electron-phonon and electron-magnon scattering. To enable the calculation of the demagnetization dynamics an approximated electron-magnon scattering operator in LMTO-ASA approximation was constructed [140]. A model to describe the ultrafast demagnetization only on basis of electron-magnon scattering [86] could be falsified by time independent [5] ab-initio calculations using the constructed electron-magnon scattering. Thereby a model was suggested as possible explanation for the ultrafast demagnetization on the base of combined electron-phonon and electron-magnon scatterings [4], [5]. This model has been checked using dynamic calculations based on Boltzmann rate equations simulating at least 50 fs time evolution. Following the calculation the extrapolated demagnetization times were a little smaller than expected in comparison to the experimental data., e.g., for nickel $\tau_{\text{mag}} = 38 - 55$ fs which is smaller than the experimental $70 - 300$ fs [2]. For iron the demagnetization time was estimated as $\tau_{\text{mag}} = 26 - 66$ fs, which lies in the very broad experimental range, reaching from $50 - 500$ fs (lower bound given by [86], upper bound by [52]) in the experiment.

The maximum demagnetization for nickel, $13 - 17\%$ and iron $3,5 - 8\%$ were smaller than expected, considering the moderate excitation of the electron system given, if the models' mechanisms explained the experimentally observed demagnetization. Experimentally a fluence dependent demagnetization of several 10% (sometimes even above 50%) may not be explained within the present model. Nevertheless a significant contribution of the model's mechanism to the experimentally observed demagnetization may be expected according to the calculated results. The averaged (the average was taken over the first 50 fs) demagnetization rates are $-5,813 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ to $-6,311 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ for nickel and $-7,793 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ to $-9,710 \frac{10^{-2} \mu_B}{\text{Atom} \cdot 50 \text{ fs}}$ for iron. Although it is quite easy to extract demagnetization rates from experimental curves, the references including both experimental curves and estimations for the electronic temperatures (to ensure a proper comparison) are rare. Taking into consideration reference [62] concerning nickel, one may estimate for 1000K electronic (starting) temperature a demagnetization rate of approximately $-0,1 \frac{\mu_B}{\text{Atom}}$ in about 100 fs which

can be read from the graphs in [62]. Another estimation can be gained of reference [157], here nickel has only an electronic temperature of 650K leading to a demagnetization rate of roughly $-0,1 \frac{\mu_B}{\text{Atom}}$ in about 100 fs (again extracted from the graph). Comparing these rates one should not forget that the rates drop with rising time. Therefore a doubling of the calculated averaged rates for 50 fs will vastly overestimate the rates calculated for 100 fs. For iron there were even less references comparing the experimental results with an estimated electronic temperature, therefore as an example again reference [86] is used. In [86] a demagnetization rate of $-0,2 \frac{\mu_B}{\text{Atom}}$ per 100 fs can be extracted from a graph with an estimated temperature of 1000K. So one has to conclude that the total maximum demagnetization as well as the demagnetization rates are too small compared with the experiment.

Additionally within the model a strong magnon emission is predicted which leads to a strongly non-thermal magnon distribution. This finding is in accordance with the recent results of reference [156] and the measurements of reference [133]. The assumptions made to be able to perform calculations within the model get worse the more energy is transferred into the system. Thereby checking if a higher excitation for the start leads to comparable demagnetization rates with respect to experiment, being able to demagnetize strongly, or if the such described system shows a critical slowing down is in general possible but not reasonable. There are various possible explanations for the discrepancy between the calculated results and the experiment. Clearly the approximations which were made when calculating the scattering operators, electronic and quasiparticle states affect the results. In addition especially the lack of screening effects taken into account and considering only the minimum of possible interactions required for the model may lead to deviations between experiment and results.

To give a definite answer on the contribution of magnons (and phonons) in ultrafast demagnetization, a possible better model system should incorporate in addition a coupling to the electromagnetic field (taking into account laser pulse excitation and THz-emission), as well as taking into account electron-electron scattering. For completeness all considered subsystems should be coupled (especially the magnon-phonon-coupling) and the considered states as well as the matrixelements should be calculated self consistently taking into account all considered subsystems. In addition to get a

proper description of the experiments (especially the layer thickness dependency) one may not avoid to consider the proper quantities of a finite sample (surface, boundary and quantization effects) as well as considering transport. In addition one has to give up the semi-classical description which one implies using Fermi's golden rule and Boltzmann rate equations. Instead quantum kinetic calculations or mathematically equivalent methods should be performed. The non-diagonal terms of density matrices may well influence the dynamics of a magnetic system drastically (see [49]). The influence of non-Markovian processes is still unknown, but has to be checked. Another open question concerning the possible quantum kinetic calculations is at which order of operator products a closed form of equation should be found by an approximated truncation, since an appropriate truncation is needed for a physical and precise treatment of the considered magnetic systems.

To the best knowledge of the author no further calculations are planned related to the suggested model mechanism.

10 Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die hier vorliegende Doktorarbeit eigenständig verfasst habe und die zu Grunde liegenden Quellen und Hilfsmittel nach bestem Wissen und Gewissen vollständig zitiert und ausgewiesen habe.

Stuttgart, den

Michael Haag

11 Anhang

Hier sind alle Rechnungen, die für den Hauptteil der Arbeit zu lang waren. Zusätzlich zu der bisherigen Notation werden noch einige Abkürzungen eingeführt, welche nicht in der Variablenliste aufgeführt sind.

11.1 Berechnung des Elektron-Magnon-Streumatrixelementes in 4 Komponenten

Die kleine Komponente der Wellenfunktion in skalarrelativistischer Näherung für $\Phi_{\mathbf{R}l m \alpha}$:

$$\begin{aligned} |\Phi_{l'm'\alpha'}^{\text{KK}}\rangle = \\ i\hat{\underline{\sigma}}_{\underline{r}_{\mathbf{R}}} \left(-\gamma_{\mathbf{R}l\alpha} + \frac{\Phi_{\mathbf{R}l\alpha}}{2M_{\mathbf{R}l\alpha}c r_{\mathbf{R}}} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_{\underline{r}_{\mathbf{R}j}} \hat{L}_{\mathbf{R}j} \right) Z_{lm} \chi_{\mathbf{R}\alpha} \end{aligned} \quad (127)$$

und für die Energieableitung:

$$\begin{aligned} |\dot{\Phi}_{l'm'\alpha'}^{\text{KK}}\rangle = \\ i\hat{\underline{\sigma}}_{\underline{r}_{\mathbf{R}}} \left(-\dot{\gamma}_{\mathbf{R}l\alpha} + \frac{\dot{\Phi}_{\mathbf{R}l\alpha}}{2M_{\mathbf{R}l\alpha}c r_{\mathbf{R}}} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_{\underline{r}_{\mathbf{R}j}} \hat{L}_{\mathbf{R}j} \right) Z_{lm} \chi_{\mathbf{R}\alpha} \end{aligned} \quad (128)$$

$\hat{\underline{\sigma}}_{\underline{r}_{\mathbf{R}}}$ ist dabei als $\frac{1}{r_{\mathbf{R}}} \sum_i r_{\mathbf{R}i} \hat{\underline{\sigma}}_i$ definiert, also der ‘‘radialen‘‘ Paulimatrix.

$M_{\mathbf{R}l\alpha}(r_{\mathbf{R}}) = m_e + \frac{1}{2c^2}(\epsilon_{\mathbf{R}l\alpha} - V^\alpha(r_{\mathbf{R}}))$ entspricht der generalisierten relativistischen Masse. Wobei V^α das Potential des Elektrons mit Spin α ist. Die Energieableitung von $M_{\mathbf{R}l\alpha}$ wird in der Berechnung von $\dot{\Phi}_{\mathbf{R}l m \alpha}$ vernachlässigt, entsprechend der Näherungen in Christian Illgs Diplomarbeit [158], Seite 23. Ausserdem ist zu erwähnen, dass die Funktionen γ und Φ sowie deren Energieableitungen als radiale Funktionen bezüglich eines Koordinatensystems mit Ursprung im Zentrum der zugehörigen Atomkugel an der Stelle \mathbf{R} definiert sind. Die kubisch Harmonischen Z_{lm} sind bzgl. des selben Koordinatensystem gegeben. Sie hängen jedoch nur von der Richtung in dem Koordinatensystem und nicht vom Radius ab. Die Spinquantisierungsachse ist dabei die z-Achse. Von Interesse sind die Matrix-

elemente bzgl. der kleinen Komponente

$$\begin{aligned} & \left\langle \Phi_{l'm'\alpha'}^{\text{KK}} \left| \hat{H}_{\text{KK}}^{\text{EM}} \right| \Phi_{lm\alpha}^{\text{KK}} \right\rangle = \quad (129) \\ & \left\langle i\hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}'}} \left(-\gamma_{\mathbf{R}'l\alpha'} + \frac{\Phi_{\mathbf{R}'l\alpha'}}{2M_{\mathbf{R}'l\alpha'}c r_{\mathbf{R}'}} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_{\mathbf{R}'j} \hat{L}_{\mathbf{R}'j} \right) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\mathbf{R}'\alpha'} \left| \hat{H}_{\text{KK}}^{\text{EM}} \right| \right. \\ & \left. i\hat{\underline{\sigma}}_{r_{\mathbf{R}}} \left(-\gamma_{\mathbf{R}l\alpha} + \frac{\Phi_{\mathbf{R}l\alpha}}{2M_{\mathbf{R}l\alpha}c r_{\mathbf{R}}} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_{\mathbf{R}j} \hat{L}_{\mathbf{R}j} \right) Z_{lm} \mathcal{X}_{\mathbf{R}\alpha} \right\rangle, \end{aligned}$$

wobei der Zusatz KK im Index, bzw. Superskript bedeutet, dass nur die Beiträge der kleinen Komponente mitgenommen werden, die in der Herleitung der 2 komponentigen Lösung im Hauptteil der Arbeit vernachlässigt wurden. Ist \mathbf{R} nicht gleich \mathbf{R}' ergibt das Matrixelement 0, weil dann kein Überlapp der Wellenfunktionen vorliegt. In Kenntnis dessen wird im Folgenden auf den Index \mathbf{R} verzichtet, da er für die Berechnungen zunächst keine Rolle spielt. Wir schreiben die radiale Paulimatrix aus,

$$\begin{aligned} \frac{1}{r_{\mathbf{R}}} \sum_i r_{\mathbf{R}i} \hat{\underline{\sigma}}_i &= \frac{1}{r} \sum_i r_i \hat{\underline{\sigma}}_i = \quad (130) \\ \hat{x}\hat{\underline{\sigma}}_x + \hat{y}\hat{\underline{\sigma}}_y + \hat{z}\hat{\underline{\sigma}}_z. \end{aligned}$$

Mit “normierten“ Ortskomponentenoperatoren in Ortsdarstellung:

$$\hat{x} = \frac{x}{r}, \hat{y} = \frac{y}{r}, \hat{z} = \frac{z}{r}. \quad (131)$$

Ausserdem lassen sich die imaginären Faktoren i schon einmal verrechnen.

$$\begin{aligned} & \left\langle \hat{\underline{\sigma}}_{r'} \left(-\gamma_{l\alpha'} + \frac{\Phi_{l\alpha'}}{2M_{l\alpha'}c r} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_j \hat{L}_j \right) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \hat{H}_{\text{KK}}^{\text{EM}} \right| \right. \quad (132) \\ & \left. \hat{\underline{\sigma}}_r \left(-\gamma_{l\alpha} + \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}c r} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_j \hat{L}_j \right) Z_{lm} \mathcal{X}_{\alpha} \right\rangle. \end{aligned}$$

Das Vorgehen, das nun folgt, ist analog zum Vorgehen in Gleichung 4.29ff [158], beginnend mit dem Ausschreiben des Wechselwirkungsoperators in 4 Komponenten

$$\underline{\underline{\hat{H}}}^{\text{EM}} = \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 & 0 \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ 0 & 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}. \quad (133)$$

Die untere Blockmatrix hat ein anderes Vorzeichen, da die Wechselwirkung auf das (effektive) Magnetfeld \mathbf{B}_{eff} zurück geführt wird, welches in der Diracgleichung mit der Matrix $\underline{\underline{\beta}}$ (und dem Vektor der Paulimatrizen $\underline{\underline{\sigma}}$) multipliziert wird, die im oberen linken Block der 2x2 Einheitsmatrix entspricht, und im unteren rechten Block genau das negative der 2x2 Einheitsmatrix ist. Da die Lösung der oberen Blockmatrix schon vorliegt (2-Komponenten Lösung im Hauptteil der Arbeit), wird nun versucht, das Produkt der unteren 2x2 Blockmatrix mit der radialen Paulimatrix in Terme der Produkte der Paulimatrizen mit beiden Blockmatrizen auszudrücken. Es geht also darum, die Paulimatrizen “auf die andere Seite zu bringen“. Was folgt sind Berechnungen von Produkten zwischen Paulimatrizen und den Wechselwirkungsblockmatrizen.:

$$-\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (134)$$

$$-\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} = -i \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (135)$$

$$-\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}. \quad (136)$$

Diese 3 Terme versucht man nun als Superposition folgender 6 Terme auszudrücken

$$-\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (137)$$

$$-\begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} = -i \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (138)$$

$$-\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (139)$$

$$-\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (140)$$

$$-\begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} = -i \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}, \quad (141)$$

$$-\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} = -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & -\hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}. \quad (142)$$

Gleichung (134) (welcher die Rolle einer Art x-Komponente zukommt (analog dazu sind Gleichung (135), (136) als y und z Komponenten zu interpretieren aufgrund der Paulimatrix, die in die Rechnung jeweils einging)) lässt sich ohne Probleme durch Gleichung (140) ausdrücken. Bzgl. der anderen Gleichungen wird es komplizierter. Vielleicht nicht die beste aber eine allgemeine Lösung ist folgende: Man splittet dazu die Matrix $\hat{H}_{\text{KK}}^{\text{EM}}$ in spin diagonale $\hat{H}_{\text{KK,diag}}^{\text{EM}}$ und nicht spin diagonale Einträge $\hat{H}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}}$ auf. Die Lösung für den spindagonalen Teil ist durch die Gleichung 4.29 in [158] gegeben:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{KK,diag}}^{\text{EM}} \hat{\sigma}_r = & -\begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \cdot \hat{\sigma}_r = -\hat{\sigma}_r \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \\ & - \hat{z} \hat{\sigma}_z \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (143)$$

Betrachtet man nur die nicht diagonalen Wechselwirkungsbeiträge, so ist durch die Gleichungen (134) und (140) für die die x Komponente schon geklärt, wie man das Resultat der Multiplikation der Matrix von rechts mit $\hat{\underline{\sigma}}_x$ umschreiben kann in die Multiplikation einer Matrix mit vertauschten Komponenten von links mit $\hat{\underline{\sigma}}_x$. Es fehlt noch die Betrachtung der y und z Komponenten: y - setzt man $\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}}$ und $\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}}=0$ (im Einklang mit den Näherungen beim Streuoperator im Hauptteil und um Terme vom Typ von reinen Magnonemissions- sowie -absorptionstermen zu erhalten) folgt :

$$\hat{y}_{\underline{\sigma}_y} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \cdot \hat{y}_{\underline{\sigma}_y} \quad (144)$$

Also Gleichung (135) = - (141). Schliesslich für die z-Komponente Gleichung (136) = - (139).

$$\hat{z}_{\underline{\sigma}_z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \cdot \hat{z}_{\underline{\sigma}_z} \quad (145)$$

Auffällig ist, dass bei $\hat{\underline{\sigma}}_z$ jeweils die selbe Matrix von links und von rechts mit $\hat{\underline{\sigma}}_z$ multipliziert wird, während bei $\hat{\underline{\sigma}}_x$, $\hat{\underline{\sigma}}_y$ jeweils die Elemente vertauscht sind. Die weitere Rechnung umfasst nur Terme bzgl. $\hat{H}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}}$, gegebenenfalls ist aber bekannt, wie man die anderen Terme hinzufügen könnte.

Zusammenfassend folgt

$$\begin{aligned} & \left(-\hat{x}\hat{\underline{\sigma}}_x + \hat{y}\hat{\underline{\sigma}}_y \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}\hat{\underline{\sigma}}_z \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} = \\ & - \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \cdot \hat{\underline{\sigma}}_r. \end{aligned} \quad (146)$$

Da $\hat{\underline{\sigma}}_r = \hat{\underline{\sigma}}_r^\dagger$ gilt, lässt sich die für die weitere Rechnung wichtige Größe $\underline{\underline{\sigma}}_r \underline{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \underline{\underline{\sigma}}_r = \hat{\underline{\underline{H}}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}}$, siehe Gleichung (132), bestimmen. Es ergibt sich zu

$$\begin{aligned} & \hat{\underline{\sigma}}_r \cdot \left(\left(-\hat{x}\hat{\underline{\sigma}}_x + \hat{y}\hat{\underline{\sigma}}_y \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}\hat{\underline{\sigma}}_z \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\ & = (-\hat{x}^2 + \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \\ & - \left(2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\ & \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\ & - \left(i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right). \end{aligned} \quad (147)$$

Mit dem Ergebnis lässt sich das Übergangsmatrixelement (132) bzgl. der kleinen Komponente schreiben als:

$$\begin{aligned}
& \left\langle \left(-\gamma_{l'\alpha'} + \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \sum_j \hat{\sigma}_{\equiv j} \hat{L}_j \right) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \widehat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right. \right. \\
& \left. \left(-\gamma_{l\alpha} + \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_j \hat{\sigma}_{\equiv j} \hat{L}_j \right) Z_{lm} \mathcal{X}_{\alpha} \right\rangle \\
& = \left\langle \left(-\gamma_{l'\alpha'} + \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \sum_j \hat{\sigma}_{\equiv j} \hat{L}_j \right) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \right. \\
& \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
& - \left(i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
& \left. \mathcal{X}_{\alpha} \left(-\gamma_{l\alpha} + \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_j \hat{\sigma}_{\equiv j} \hat{L}_j \right) Z_{lm} \right\rangle + \\
& \left\langle \left(-\gamma_{l'\alpha'} + \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \sum_j \hat{\sigma}_{\equiv j} \hat{L}_j \right) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \right. \\
& (-\hat{x}^2 + \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \\
& - \left(2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
& \left. \left(-\gamma_{l\alpha} + \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_j \hat{\sigma}_{\equiv j} \hat{L}_j \right) Z_{lm} \mathcal{X}_{\alpha} \right\rangle. \tag{148}
\end{aligned}$$

Die Werte bzgl. der Ortsfunktionen, $x^2 - y^2, z^2, xy, xz, yz$ (in der Ortsdarstellung, in Form unserer "normierter" Ortskomponentenoperatoren), lassen sich durch kubisch Harmonische ausdrücken. [159]

$$\hat{x}^2 - \hat{y}^2 = \frac{x^2 - y^2}{r^2} = Z_{22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}}, \quad (149)$$

$$2\hat{x}\hat{y} = \frac{2xy}{r^2} = Z_{2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}}, \quad (150)$$

$$\hat{x}\hat{z} = \frac{2xz}{r^2} = Z_{21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}}, \quad (151)$$

$$\hat{y}\hat{z} = \frac{2yz}{r^2} = Z_{2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}}, \quad (152)$$

$$\hat{z}^2 = \frac{z^2}{r^2} = Z_{20} \sqrt{\frac{16\pi}{45}} + \frac{1}{3}. \quad (153)$$

Desweiteren seien hier die Gauntkoeffizienten eingeführt:

$$G_{lm, l'm'}^{l'', m''} = \int d\Omega' Z_{l'm'} Z_{l''m''} Z_{lm} \quad (154)$$

Sie geben das Winkelintegral dreier kubisch Harmonischer an. Die meisten der Koeffizienten sind dabei 0. (Bedingungen siehe z.B. Dissertation Bernd Maier [159])

Damit sind die Terme in Gleichung (148), die sich bei der Ausmultiplikation der Terme in Bra und Ket von (148) ergeben, bzgl. γZ_{lm} , schon berechenbar. Für diese ergibt sich:

$$\begin{aligned}
& \left\langle \gamma_{l'\alpha'} Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \widehat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| \mathcal{X}_{\alpha} \gamma_{l\alpha} Z_{lm} \right\rangle \\
&= \langle \gamma_{l'\alpha'} Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} | \\
& \left(Z_{21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
& - \left(i Z_{2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
& \left(-Z_{22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
& \left(Z_{20} \sqrt{\frac{16\pi}{45}} + \frac{1}{3} \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \\
& - \left(i Z_{2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) | \mathcal{X}_{\alpha} \gamma_{l\alpha} Z_{lm} \rangle. \quad (155)
\end{aligned}$$

Die Winkelintegration lässt sich analytisch durchführen, die radiale muss numerisch berechnet werden.

Es verbleibt:

$$\begin{aligned}
 & \int dr r^2 \gamma_{l'\alpha'}^* \gamma_{l\alpha} \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(G_{lm,l'm'}^{21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
 & - \left(i G_{lm,l'm'}^{2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-G_{lm,l'm'}^{22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(G_{lm,l'm'}^{20} \sqrt{\frac{16\pi}{45}} + \delta_{ll',mm'} \frac{1}{3} \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \\
 & \left. - \left(i G_{lm,l'm'}^{2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \right\} \mathcal{X}_\alpha. \quad (156)
 \end{aligned}$$

Ansonsten verbleiben die folgenden Terme zu berechnen:

$$\left\langle -\gamma_{l'\alpha'} Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \widehat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| \mathcal{X}_\alpha \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \sum_j \hat{\sigma}_{\underline{j}} \hat{L}_j Z_{lm} \right\rangle, \quad (157)$$

$$\left\langle \mathcal{X}_{\alpha'} \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} c r} \sum_j \hat{\sigma}_{\underline{j}} \hat{L}_j Z_{l'm'} \left| \widehat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| -\mathcal{X}_\alpha Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle, \quad (158)$$

$$\left\langle \mathcal{X}_{\alpha'} \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} c r} \sum_j \hat{\sigma}_{\underline{j}} \hat{L}_j Z_{l'm'} \left| \widehat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| \right. \\
 \left. \mathcal{X}_\alpha \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \sum_j \hat{\sigma}_{\underline{j}} \hat{L}_j Z_{lm} \right\rangle. \quad (159)$$

Die Berechnung des ersten Terms erfolgt dabei analog zur Berechnung des zweiten. Zur Berechnung des zweiten Termes, spaltet man die Summe über j in Komponenten auf. Beginnend mit der x Komponente, auf der nächsten Seite:

$$\begin{aligned}
& \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \hat{\sigma}_x \hat{L}_x Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \hat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| - \mathcal{X}_{\alpha} Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle \\
&= \frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \hat{\sigma}_x (\hat{L}^+ + \hat{L}^-) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \hat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| - \mathcal{X}_{\alpha} Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle \\
&= -\frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} (\hat{L}^+ + \hat{L}^-) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \right. \right. \\
&\quad \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right. \\
&\quad \left. - i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
&\quad \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
&\quad \left. - 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \left| \mathcal{X}_{\alpha} Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle. \tag{160}
\end{aligned}$$

Man kann die kubischen in sphärischen Harmonischen ausdrücken um die Drehimpulsoperatoren anwenden zu können.

$Z_{lm} = \sum_{m_0} K_{lmm_0} Y_{lm_0}$, die Wirkung von L^+ , L^- auf Y_{lm_0} ist bekannt,

$$\begin{aligned}
L^{\pm} Y_{lm_0} &= \hbar \sqrt{(l \mp m_0)(l \pm m_0 + 1)} Y_{l(m_0 \pm 1)} \\
&= E_{lm_0}^{\pm} Y_{l(m_0 \pm 1)}, \tag{161}
\end{aligned}$$

wobei $E_{lm_0}^{\pm}$ den numerische Vorfaktor abkürzt. Folgende Abkürzungen erweisen sich im weiteren Verlauf als sinnvoll :

$$\int d\Omega' Y_{l'm_0'}^* Z_{l''m''} Z_{lm} = C_{lm,l'm_0'}^{l''m''} \tag{162}$$

und $\int d\Omega' Y_{l'm_0'}^* Z_{l''m''} Y_{lm_0} = D_{lm_0,l'm_0'}^{l''m''}$, sowie

$$\begin{aligned}
 \int d\Omega' Y_{l'm'_0}^* Z_{lm} &= I_{lm}^{l'm'_0}, \text{ damit ergibt sich die x-Komponente zu} \\
 &= -\frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} cr} \left| \sum_{m'_0} K_{l'm'l'm'_0}^* \left(E_{l'm'_0}^+ Y_{l'(m'_0+1)}^* + E_{l'm'_0}^- Y_{l'(m'_0-1)}^* \right) \right. \right. \\
 &\mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \left(Z_{21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \right. \\
 &- i Z_{2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \Bigg) + \\
 &\left(-Z_{22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \right. \\
 &\left. \left(Z_{20} \sqrt{\frac{16\pi}{45}} + \frac{1}{3} \right) \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 &\left. \left. - i Z_{2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \right\} \mathcal{X}_\alpha Z_{lm} \left| \gamma_{l\alpha} \right\rangle. \tag{163}
 \end{aligned}$$

Nach dem Ausführen der Winkelintegration verbleibt

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* c r} \gamma_{l\alpha} \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
& \left(\left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{21} + E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{21} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \right. \\
& \left. \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right. \\
& - i \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{2-1} + E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{2-1} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \\
& \left. \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
& \left(- \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{22} + E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{22} \right) \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \right. \\
& \left. \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
& \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{20} + E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{20} \right) + \right. \\
& \left. \frac{1}{3} \delta_{ll'} \left(E_{l'm'_0}^+ I_{lm}^{l'(m'_0+1)} + E_{l'm'_0}^- I_{lm}^{l'(m'_0-1)} \right) \right) \cdot \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \\
& - i \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{2-2} + E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{2-2} \right) \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \\
& \left. \left. \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \right\} \mathcal{X}_\alpha. \tag{164}
\end{aligned}$$

Die y Komponente folgt mehr oder weniger analog :

$$\begin{aligned}
 & \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \hat{\sigma}_{\equiv y} \hat{L}_y Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \hat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| - \mathcal{X}_{\alpha} Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle = \\
 & - \frac{1}{2i} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \hat{\sigma}_{\equiv y} \left(\hat{L}^+ - \hat{L}^- \right) Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \hat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| - \mathcal{X}_{\alpha} Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle \\
 & = + \frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* cr} \gamma_{l\alpha} \sum_{m'_0} K_{l'm'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^{\dagger} \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(- \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{21} - E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{21} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \right. \\
 & \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \\
 & i \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{2-1} - E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{2-1} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \\
 & \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) \left. \right) + \\
 & \left(\left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{22} - E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{22} \right) \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \right. \\
 & \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \\
 & - \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{20} - E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{20} \right) + \right. \\
 & \left. \frac{1}{3} \delta_{l\omega} \left(E_{l'm'_0}^+ I_{lm}^{l'(m'_0+1)} - E_{l'm'_0}^- I_{lm}^{l'(m'_0-1)} \right) \right) \cdot \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \\
 & i \left(E_{l'm'_0}^+ C_{lm,l'(m'_0+1)}^{2-2} - E_{l'm'_0}^- C_{lm,l'(m'_0-1)}^{2-2} \right) \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \\
 & \left. \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right\} \mathcal{X}_{\alpha}. \tag{165}
 \end{aligned}$$

Die Wirkung von L_z ist bekannt,

$$L_z Y_{lm} = \hbar m Y_{lm}, \quad (166)$$

und somit ergibt sich die z Komponente:

$$\begin{aligned}
& \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} cr} \hat{\sigma}_z \hat{L}_z Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \left| \hat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right. - \mathcal{X}_{\alpha} Z_{lm} \gamma_{l\alpha} \right\rangle \\
&= - \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* cr} \gamma_{l\alpha} \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
& \quad \left(\hbar m'_0 C_{lm,l'm'_0}^{21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
& \quad \left. - i\hbar m'_0 C_{lm,l'm'_0}^{2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
& \quad \left(-\hbar m'_0 C_{lm,l'm'_0}^{22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \right. \\
& \quad \left. \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \hbar m'_0 C_{lm,l'm'_0}^{20} + \frac{1}{3} \delta_{ll'} (\hbar m'_0 I_{lm}^{l'm'_0}) \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right. \\
& \quad \left. \left. - i\hbar m'_0 C_{lm,l'm'_0}^{2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \right\} \mathcal{X}_{\alpha}. \quad (167)
\end{aligned}$$

Die anderen (analogen) Terme, welche aus dem ersten Term gefolgt wären, werden mit Hilfe folgender Abkürzungen ausgedrückt:

$$\int d\Omega' Y_{lm_0} Z_{l'm'} Z_{l''m''} = \tilde{C}_{lm_0, l'm'}^{l''m''}, \quad (168)$$

sowie $\int d\Omega' Y_{lm_0} Z_{l'm'} = \tilde{I}_{l'm'}^{lm_0}$. Der Term bzgl. x ist

$$\begin{aligned} & \left\langle -\mathcal{X}_{\alpha'} Z_{l'm'} \gamma_{l'\alpha'} \left| \hat{H}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \hat{\sigma}_x \hat{L}_x Z_{lm} \mathcal{X}_{\alpha} \right\rangle \\ &= -\frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \gamma_{l'\alpha'}^* \sum_{m_0} K_{lm m_0} \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\ & \quad \left(\left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1), l'm'}^{21} + E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1), l'm'}^{21} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \right. \\ & \quad \left(\begin{array}{cc} 0 & -H_{EI\uparrow\downarrow} - H_{EI\downarrow\uparrow} \\ H_{EI\uparrow\downarrow} + H_{EI\downarrow\uparrow} & 0 \end{array} \right) \\ & \quad - i \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1), l'm'}^{2-1} + E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1), l'm'}^{2-1} \right) \\ & \quad \left. \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & H_{EI\downarrow\uparrow} - H_{EI\uparrow\downarrow} \\ H_{EI\uparrow\downarrow} - H_{EI\downarrow\uparrow} & 0 \end{array} \right) \right) + \\ & \quad \left(- \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1), l'm'}^{22} + E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1), l'm'}^{22} \right) \right. \\ & \quad \left. \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} H_{EI\uparrow\downarrow} & 0 \\ 0 & H_{EI\downarrow\uparrow} \end{array} \right) \right) + \\ & \quad \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1), l'm'}^{20} + E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1), l'm'}^{20} \right) \right. \\ & \quad \left. \frac{1}{3} \delta_{l'l'} \left(E_{lm_0}^+ \tilde{I}_{l'm'}^{l(m_0+1)} + E_{lm_0}^- \tilde{I}_{l'm'}^{l(m_0-1)} \right) \right) \cdot \left(\begin{array}{cc} H_{EI\downarrow\uparrow} & 0 \\ 0 & H_{EI\uparrow\downarrow} \end{array} \right) \\ & \quad \left. - i \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1), l'm'}^{2-2} + E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1), l'm'}^{2-2} \right) \right. \\ & \quad \left. \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} -H_{EI\uparrow\downarrow} & 0 \\ 0 & H_{EI\downarrow\uparrow} \end{array} \right) \right) \left. \right\} \mathcal{X}_{\alpha}. \quad (169) \end{aligned}$$

Term bzgl. y :

$$\begin{aligned}
& \left\langle -\mathcal{X}_{\alpha'} Z_{l'm'} \gamma_{l'\alpha'} \left| \widehat{\underline{H}}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \hat{\sigma}_y \hat{L}_y Z_{lm} \mathcal{X}_{\alpha} \right\rangle \\
&= -\frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \gamma_{l'\alpha'}^* \sum_{m_0} K_{lm m_0} \mathcal{X}_{\alpha'} \cdot \left\{ \right. \\
& \quad \left(\left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{21} - E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{21} \right) \right. \\
& \quad \left. \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & H_{EI\uparrow\downarrow} + H_{EI\downarrow\uparrow} \\ H_{EI\uparrow\downarrow} + H_{EI\downarrow\uparrow} & 0 \end{pmatrix} + \right. \\
& \quad i \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{2-1} - E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{2-1} \right) \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \\
& \quad \left. \begin{pmatrix} 0 & H_{EI\downarrow\uparrow} - H_{EI\uparrow\downarrow} \\ H_{EI\downarrow\uparrow} - H_{EI\uparrow\downarrow} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
& \quad \left(- \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{22} - E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{22} \right) \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \right. \\
& \quad \left. \begin{pmatrix} H_{EI\uparrow\downarrow} & 0 \\ 0 & -H_{EI\downarrow\uparrow} \end{pmatrix} + \right. \\
& \quad \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{20} - E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{20} \right) + \right. \\
& \quad \left. \frac{1}{3} \delta_{ll'} \left(E_{lm_0}^+ \tilde{I}_{l'm'}^{l(m_0+1)} - E_{lm_0}^- \tilde{I}_{l'm'}^{l(m_0-1)} \right) \right) \cdot \begin{pmatrix} H_{EI\downarrow\uparrow} & 0 \\ 0 & -H_{EI\uparrow\downarrow} \end{pmatrix} + \\
& \quad i \left(E_{lm_0}^+ \tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{2-2} - E_{lm_0}^- \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{2-2} \right) \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \\
& \quad \left. \left. \begin{pmatrix} H_{EI\uparrow\downarrow} & 0 \\ 0 & H_{EI\downarrow\uparrow} \end{pmatrix} \right) \right\} \mathcal{X}_{\alpha}. \tag{170}
\end{aligned}$$

Term bzgl. z:

$$\begin{aligned}
 & \left\langle -\mathcal{X}_{\alpha'} Z_{l'm'} \gamma_{l'\alpha'} \left| \widehat{H}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \right| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \widehat{\sigma}_z \widehat{L}_z Z_{lm} \mathcal{X}_{\alpha} \right\rangle \\
 &= - \int dr r^2 \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} c r} \gamma_{l'\alpha'}^* \sum_{m_0} K_{lm m_0} \mathcal{X}_{\alpha'} \cdot \left\{ \right. \\
 & \quad \left(\hbar m_0 \tilde{C}_{lm_0, l' m'}^{21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
 & \quad - i \hbar m_0 \tilde{C}_{lm_0, l' m'}^{2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \Bigg) + \\
 & \quad \left(-\hbar m_0 \tilde{C}_{lm_0, l' m'}^{22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
 & \quad \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \hbar m_0 \tilde{C}_{lm_0, l' m'}^{20} + \frac{1}{3} \delta_{ll'} \hbar m_0 \tilde{l}^{lm_0} \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \\
 & \quad \left. - i \hbar m_0 \tilde{C}_{lm_0, l' m'}^{2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right\} \mathcal{X}_{\alpha}. \quad (171)
 \end{aligned}$$

Es bleiben die 9 Terme von

$$\left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \sum_j \hat{\underline{\sigma}}_j \hat{L}_j Z_{l'm'} \mathcal{X}_{\alpha'} \right| \widehat{H}_{\text{KK,ndiag}}^{\text{EM}} \left| \mathcal{X}_{\alpha'} \sum_j \hat{L}_j \hat{\underline{\sigma}}_j Z_{l'm'} \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \right\rangle \quad (172)$$

zu berechnen. Wobei alle Kombinationen von x, y und z Komponenten ausgerechnet werden. Um das Ganze halbwegs übersichtlich zu gestalten, führe ich folgende Abkürzungen ein:

$$\begin{aligned} v_{lm_0, l'm'_0}^{xx} &= E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0+1)} + \\ &E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)} + E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0+1)} + \\ &E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0-1)}, \end{aligned} \quad (173)$$

$$\begin{aligned} v_{lm_0, l'm'_0}^{xy} &= E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0+1)} - \\ &E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)} + E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0+1)} - \\ &E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0-1)}, \end{aligned} \quad (174)$$

$$v_{lm_0, l'm'_0}^{xz} = \hbar m_0 E_{l'm'_0}^+ \delta_{lm_0, l'(m'_0+1)} + \hbar m_0 E_{l'm'_0}^- \delta_{lm_0, l'(m'_0-1)}, \quad (175)$$

$$\begin{aligned} v_{lm_0, l'm'_0}^{yx} &= E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0+1)} + \\ &E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)} - E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0+1)} - \\ &E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0-1)}, \end{aligned} \quad (176)$$

$$\begin{aligned} v_{lm_0, l'm'_0}^{yy} &= E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0+1)} - \\ &E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)} - E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^+ \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0+1)} + \\ &E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^- \delta_{l(m_0-1), l'(m'_0-1)}, \end{aligned} \quad (177)$$

$$v_{lm_0, l'm'_0}^{yz} = \hbar m_0 E_{l'm'_0}^+ \delta_{lm_0, l'(m'_0+1)} - \hbar m_0 E_{l'm'_0}^- \delta_{lm_0, l'(m'_0-1)}, \quad (178)$$

11.1 Berechnung des Elektron-Magnon-Streumatrixelementes in 4 Komponenten

$$v_{lm_0, l' m'_0}^{xx} = \hbar m'_0 (E_{lm_0}^+ \delta_{l(m_0+1), l' m'_0} + E_{lm_0}^- \delta_{l(m_0-1), l' m'_0}), \quad (179)$$

$$v_{lm_0, l' m'_0}^{zy} = \hbar m'_0 (E_{lm_0}^+ \delta_{l(m_0+1), l' m'_0} - E_{lm_0}^- \delta_{l(m_0-1), l' m'_0}). \quad (180)$$

Sowie:

$$\begin{aligned} w_{lm_0, l' m'_0}^{xx, l'' m''} &= E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0+1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} + \\ &E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0+1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''} + E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0-1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} + \\ &E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0-1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''}, \end{aligned} \quad (181)$$

$$\begin{aligned} w_{lm_0, l' m'_0}^{xy, l'' m''} &= E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0+1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} - \\ &E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0+1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''} + E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0-1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} - \\ &E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0-1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''}, \end{aligned} \quad (182)$$

$$\begin{aligned} w_{lm_0, l' m'_0}^{xz, l'' m''} &= \hbar m_0 E_{l' m'_0}^+ D_{lm_0, l' (m'_0+1)}^{l'' m''} + \\ &\hbar m_0 E_{l' m'_0}^- D_{lm_0, l' (m'_0-1)}^{l'' m''}, \end{aligned} \quad (183)$$

$$\begin{aligned} w_{lm_0, l' m'_0}^{yx, l'' m''} &= E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0+1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} + \\ &E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0+1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''} - E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0-1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} - \\ &E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0-1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''}, \end{aligned} \quad (184)$$

$$\begin{aligned} w_{lm_0, l' m'_0}^{yy, l'' m''} &= E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0+1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} - \\ &E_{lm_0}^+ E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0+1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''} - E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^+ D_{l(m_0-1), l' (m'_0+1)}^{l'' m''} + \\ &E_{lm_0}^- E_{l' m'_0}^- D_{l(m_0-1), l' (m'_0-1)}^{l'' m''}, \end{aligned} \quad (185)$$

$$\begin{aligned} w_{lm_0, l' m'_0}^{yz, l'' m''} &= \hbar m_0 E_{l' m'_0}^+ D_{lm_0, l' (m'_0+1)}^{l'' m''} - \\ &\hbar m_0 E_{l' m'_0}^- D_{lm_0, l' (m'_0-1)}^{l'' m''}, \end{aligned} \quad (186)$$

$$w_{l m_0, l' m'_0}^{zx, l'' m''} = \hbar m'_0 E_{l m_0}^+ D_{l(m_0+1), l' m'_0}^{l'' m''} + \hbar m'_0 E_{l m_0}^- D_{l(m_0-1), l' m'_0}^{l'' m''}, \quad (187)$$

$$w_{l m_0, l' m'_0}^{zy, l'' m''} = \hbar m'_0 E_{l m_0}^+ D_{l(m_0+1), l' m'_0}^{l'' m''} - \hbar m'_0 E_{l m_0}^- D_{l(m_0+1), l' m'_0}^{l'' m''}. \quad (188)$$

Nun kann man sich dem Berechnen der einzelnen Terme widmen, die im Einzelnen aufgelistet folgen.

xx:

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{4} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} (\hat{L}_+ + \hat{L}_-) Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
 & \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_{\alpha} \left| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} (\hat{L}_+ + \hat{L}_-) Z_{lm} \right\rangle \\
 & = \frac{1}{4} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^*cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{xx,21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i w_{lm_0, l'm'_0}^{xx,2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{xx,22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \right. \\
 & \left. \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{xx,20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{xx} \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - i w_{lm_0, l'm'_0}^{xx,2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_{\alpha}. \quad (189)
 \end{aligned}$$

xy:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{4} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} cr} (\hat{L}_+ + \hat{L}_-) Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
& \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \left(\begin{array}{ccc} +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & & 0 \\ & 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \right. \\
& \left. i\hat{y}\hat{z} \cdot \left(\begin{array}{ccc} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & & 0 \\ & 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right) + \\
& \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \hat{z}^2 \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \right. \\
& \left. 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \middle| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} (\hat{L}_+ - \hat{L}_-) Z_{lm} \rangle \\
& = \frac{1}{4} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
& \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{xy, 21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{ccc} +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & & 0 \\ & 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \right. \\
& \left. i w_{lm_0, l'm'_0}^{xy, 2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{ccc} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & & 0 \\ & 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right) + \\
& \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{xy, 22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \right. \\
& \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{xy, 20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{xy} \right) \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \\
& \left. i w_{lm_0, l'm'_0}^{xy, 2-2} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \tag{190}
\end{aligned}$$

xz:

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} (\hat{L}_+ + \hat{L}_-) Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
 & \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & - i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \left. \right) \right. + \\
 & \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
 & - 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \middle| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \hat{L}_z Z_{lm} \rangle \\
 & = \frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^*cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_{m_0} K_{lmm_0} \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{xz,21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & - i w_{lm_0, l'm'_0}^{xz,2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \left. \right) + \\
 & \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{xz,22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \right. \\
 & \left. \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{xz,20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{xz} \right) \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - i \sqrt{\frac{16\pi}{15}} w_{lm_0, l'm'_0}^{xz,2-2} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \quad (191)
 \end{aligned}$$

Es folgt yx:

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{4} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} cr} (\hat{L}_+ - \hat{L}_-) Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
& \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \left(\begin{array}{cc} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \right. \\
& \left. \left. i\hat{y}\hat{z} \cdot \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right) \right) + \\
& \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \hat{z}^2 \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \right. \\
& \left. \left. 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) \right) \right\} \mathcal{X}_\alpha \middle| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} (\hat{L}_+ + \hat{L}_-) Z_{lm} \rangle \\
& = -\frac{1}{4} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
& \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{yx, 21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \right. \\
& \left(i w_{lm_0, l'm'_0}^{yx, 2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right) + \\
& \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{yx, 22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \right. \\
& \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{yx, 20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{yx} \right) \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \\
& \left. \left. i \sqrt{\frac{16\pi}{15}} w_{lm_0, l'm'_0}^{yx, 2-2} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) \right) \right\} \mathcal{X}_\alpha. \tag{192}
\end{aligned}$$

yy:

$$\begin{aligned}
 & -\frac{1}{4} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} (\hat{L}_+ - \hat{L}_-) Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
 & \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \left| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} (\hat{L}_+ - \hat{L}_-) Z_{lm} \right\rangle \\
 & = -\frac{1}{4} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}^*cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_{m_0} K_{lmm_0} \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{yy,21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i w_{lm_0, l'm'_0}^{yy,2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{yy,22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \right. \\
 & \left. \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{yy,20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{yy} \right) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - i \sqrt{\frac{16\pi}{15}} w_{lm_0, l'm'_0}^{yy,2-2} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \tag{193}
 \end{aligned}$$

yz:

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} cr} (\hat{L}_+ - \hat{L}_-) Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
& \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \right. \\
& \left. i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
& \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \right. \\
& \left. 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \left| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} \hat{L}_z Z_{lm} \right\rangle \\
& = -\frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
& \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{yz, 21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \right. \\
& \left. i w_{lm_0, l'm'_0}^{yz, 2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
& \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{yz, 22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \right. \\
& \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{yz, 20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{yz} \right) \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \\
& \left. i \sqrt{\frac{16\pi}{15}} w_{lm_0, l'm'_0}^{yz, 2-2} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \tag{194}
\end{aligned}$$

Die letzten 3 Terme der Auflistung sind zx:

$$\begin{aligned}
 & \frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \hat{L}_z Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
 & \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \left| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} (\hat{L}_+ + \hat{L}_-) Z_{lm} \right\rangle \\
 & = \frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^*cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{zx, 21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i w_{lm_0, l'm'_0}^{zx, 2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{zx, 22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} + \right. \\
 & \left. \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{zx, 20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{zx} \right) \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - i \sqrt{\frac{16\pi}{15}} w_{lm_0, l'm'_0}^{zx, 2-2} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \quad (195)
 \end{aligned}$$

zy:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{2} \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'} cr} \hat{L}_z Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
& \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \right. \\
& \left. i\hat{y}\hat{z} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) \right) + \\
& \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \left(\begin{array}{cc} +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \hat{z}^2 \cdot \left(\begin{array}{cc} +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & \\ 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \right. \\
& \left. 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \middle| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} (\hat{L}_+ - \hat{L}_-) Z_{lm} \rangle \\
& = \frac{1}{2} \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}^*}{2M_{l'\alpha'}^* cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha} cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \\
& \left(w_{lm_0, l'm'_0}^{zy, 21} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \right. \\
& i w_{lm_0, l'm'_0}^{zy, 2-1} \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} 0 & \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \end{array} \right) + \\
& \left(-w_{lm_0, l'm'_0}^{zy, 22} \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \cdot \left(\begin{array}{cc} +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \right. \\
& \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} w_{lm_0, l'm'_0}^{zy, 20} + \frac{1}{3} v_{lm_0, l'm'_0}^{zy} \right) \cdot \left(\begin{array}{cc} +\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & \\ 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) + \\
& \left. i \sqrt{\frac{16\pi}{15}} w_{lm_0, l'm'_0}^{zy, 2-2} \cdot \left(\begin{array}{cc} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & -\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{array} \right) \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \tag{196}
\end{aligned}$$

zz:

$$\begin{aligned}
 & \left\langle \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}cr} \hat{L}_z Z_{l'm'} \middle| \mathcal{X}_{\alpha'}^\dagger \cdot \left\{ \right. \right. \\
 & \left(\hat{x}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 & \left. - i\hat{y}\hat{z} \cdot \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-(\hat{x}^2 - \hat{y}^2) \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} + \hat{z}^2 \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \\
 & \left. - 2i\hat{x}\hat{y} \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha \left| \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \hat{L}_z Z_{lm} \right\rangle \\
 & = \int dr r^2 \frac{\Phi_{l'\alpha'}}{2M_{l'\alpha'}^*cr} \frac{\Phi_{l\alpha}}{2M_{l\alpha}cr} \sum_{m_0} K_{lm m_0} \sum_{m'_0} K_{l'm' m'_0}^* \mathcal{X}_{\alpha'} \cdot \left\{ \right. \\
 & \left(\sqrt{\frac{4\pi}{15}} (\hbar^2 m'_0 m_0 D_{lm_0, l' m'_0}^{2;1}) \cdot \begin{pmatrix} -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & +\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right. \\
 & - i\sqrt{\frac{4\pi}{15}} (\hbar^2 m'_0 m_0 D_{lm_0, l' m'_0}^{2;-1}) \cdot \\
 & \left. \begin{pmatrix} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} & 0 \\ 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(-\sqrt{\frac{16\pi}{15}} (\hbar^2 m'_0 m_0 D_{lm_0, l' m'_0}^{2;2}) \cdot \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) + \\
 & \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \hbar^2 m'_0 m_0 D_{lm_0, l' m'_0}^{2;0} + \frac{1}{3} \delta_{ll'} \hbar^2 m'_0 m_0 \delta_{m_0 m'_0} \right) \cdot \\
 & \begin{pmatrix} 0 & -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \\
 & \left. - i\sqrt{\frac{16\pi}{15}} (\hbar^2 m'_0 m_0 D_{lm_0, l' m'_0}^{2;-2}) \cdot \begin{pmatrix} 0 & \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \\ -\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} & 0 \end{pmatrix} \right) \left. \right\} \mathcal{X}_\alpha. \quad (197)
 \end{aligned}$$

Womit alle Terme der kleinen Komponente gegeben sind.

11.2 Zusammenfassung der zusätzlichen Terme der 4 Komponenten Lösung

Es liegt nahe, die Ergebnisse aufzusummieren und die Ergebnisse bzgl. der einzelnen Komponenten der Matrix und somit der Spinorientierung der Muffin-Tin-Orbitale aufzulösen. Beginnend mit auf, auf bzw. up, up, entsprechend der 1, 1 (Zeile, Spalte) Matrixkomponente bzgl. der unteren Blockmatrix (verknüpft die Spinorteile der kleinen Komponente). Dabei wurden die w und v gleich aufsummiert. Die Gleichungen sind in DIN A5 über eine Seite lang.

$$\begin{aligned}
& \int dr r^2 \gamma_{l\uparrow} \gamma_{l'\uparrow}^* \cdot \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(G_{lm,l'm'}^{21} \cdot \left(-\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) - \right. \\
& \left. iG_{lm,l'm'}^{2-1} \cdot \left(\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \right) \right) - \int dr r \gamma_{l\uparrow} \frac{\Phi_{l'\uparrow}^*}{2M_{l'\uparrow}^* c} \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \cdot \\
& \left[E_{l'm'_0}^+ \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-C_{lm,l'(m'_0+1)}^{22} - iC_{lm,l'(m'_0+1)}^{2-2} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. + \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} C_{lm,l'(m'_0+1)}^{20} + \frac{\delta_{ll'}}{3} I_{lm}^{l'(m'_0+1)} \right) \right) \right) \\
& + \hbar m'_0 \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\left(-\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) C_{lm,l'm'_0}^{21} \right. \\
& \left. - iC_{lm,l'm'_0}^{2-1} \cdot \left(\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \right) \right) \right] - \int dr r \frac{\Phi_{l\uparrow}}{2M_{l\uparrow} c} \gamma_{l'\uparrow}^* \sum_{m_0} K_{lm m_0} \cdot \\
& \left[E_{lm_0}^+ \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-\tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{22} + i\tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{2-2} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. + \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \tilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{20} + \frac{\delta_{ll'}}{3} \tilde{I}_{l'm'}^{l(m_0+1)} \right) \right) \right) \\
& + \hbar m_0 \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\left(-\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{21} \right. \\
& \left. - i\tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{2-1} \cdot \left(\hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \right) \right) \right] \\
& + \int dr \frac{\Phi_{l\uparrow} \cdot \Phi_{l'\uparrow}^*}{4M_{l'\uparrow}^* \cdot M_{l\uparrow}} \sum_{m'_0 m_0} K_{l'm'm'_0}^* K_{lm m_0} \cdot
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \left[\sqrt{\frac{4\pi}{15}} E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^+ \cdot \left(\left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \cdot D_{l(m_0+1),l'(m'_0+1)}^{21} \right. \right. \\
& - i \left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) D_{l(m_0+1),l'(m'_0+1)}^{2-1} \left. \left. \right) + \right. \\
& \hbar \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \left(m_0 E_{l',m'_0}^+ \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(-D_{lm_0,l'(m'_0+1)}^{22} - i D_{lm_0,l'(m'_0+1)}^{2-2} \right) \right. \\
& \left. + m'_0 E_{l,m_0}^+ \widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(-D_{l(m_0+1),l'm'_0}^{22} + i D_{l(m_0+1),l'm'_0}^{2-2} \right) \right) \\
& + \widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \hbar m_0 E_{l',m'_0}^+ \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{lm_0,(l'm'_0+1)}^{20} + \frac{\delta_{l',m_0(m'_0+1)}}{3} \right) + \\
& \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \cdot \hbar m'_0 E_{l,m_0}^+ \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{l(m_0+1),l'm'_0}^{20} + \frac{\delta_{l',(m_0+1)m'_0}}{3} \right) \\
& - \hbar^2 m_0 m'_0 \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(D_{lm_0,l'm'_0}^{21} \left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) - \right. \\
& \left. i D_{lm_0,l'm'_0}^{2-1} \left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) \left. \right]. \tag{198}
\end{aligned}$$

Weiter geht es mit dem runter, runter bzw. down, down Term, entsprechend der 2, 2 (Zeile, Spalte) Matrixkomponente:

$$\begin{aligned}
& \int dr r^2 \gamma_{l\downarrow} \gamma_{l'\downarrow}^* \cdot \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(G_{lm,l'm'}^{21} \cdot \left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right. \\
& - i G_{lm,l'm'}^{2-1} \cdot \left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \left. \right) - \int dr r \gamma_{l\downarrow} \frac{\Phi_{l'\downarrow}^*}{2M_{l'\downarrow c}^*} \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \cdot \\
& \left[E_{l'm'_0}^- \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-C_{lm,l'(m'_0-1)}^{22} + i C_{lm,l'(m'_0-1)}^{2-2} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} C_{lm,l'(m'_0-1)}^{20} + \frac{\delta_{l',l'(m'_0-1)}}{3} I_{lm}^{l'(m'_0-1)} \right) \right) \right) \\
& + \hbar m'_0 \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\left(-\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) C_{lm,l'm'_0}^{21} \right. \\
& \left. - i C_{lm,l'm'_0}^{2-1} \left(\widehat{H}_{\downarrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) \left. \right] -
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \int dr r \frac{\Phi_{l\downarrow}}{2M_{l\downarrow}c} \gamma_{l\downarrow}^* \sum_{m_0} K_{lm m_0} \cdot \\
& \left[E_{lm_0}^- \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-\tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{22} - i\tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{2-2} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. + \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{20} + \frac{\delta_{ll'}}{3} \tilde{l}'^{l(m_0-1)} \right) \right) \right] \\
& + \hbar m_0 \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\left(-\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{21} \right. \\
& \left. - i\tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{2-1} \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) + \int dr \frac{\Phi_{l\downarrow} \cdot \Phi_{l'\downarrow}^*}{4M_{l'\downarrow}^* \cdot M_{l\downarrow}} \sum_{m'_0, m_0} K_{l'm' m'_0}^* \cdot \\
& K_{lm m_0} \cdot \left[\sqrt{\frac{4\pi}{15}} E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^- \cdot \left(\left(-\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \cdot D_{l(m_0-1),l'(m'_0-1)}^{21} \right. \right. \\
& \left. \left. + i \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) D_{l(m_0-1),l'(m'_0-1)}^{2-1} \right) \right] + \\
& \hbar \sqrt{\frac{16\pi}{15}} \left(m_0 E_{l',m'_0}^- \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(D_{lm_0,l'(m'_0-1)}^{22} - iD_{lm_0,l'(m'_0-1)}^{2-2} \right) \right. \\
& \left. + m'_0 E_{l,m_0}^- \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(D_{l(m_0-1),l'm'_0}^{22} + iD_{l(m_0-1),l'm'_0}^{2-2} \right) \right) \\
& - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \hbar m_0 E_{l',m'_0}^- \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{lm_0,(l'm'_0-1)}^{20} + \frac{\delta_{ll',m_0(m'_0-1)}}{3} \right) - \\
& \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \hbar m'_0 E_{l,m_0}^- \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{l(m_0-1),l'm'_0}^{20} + \frac{\delta_{ll',(m_0-1)m'_0}}{3} \right) + \\
& \hbar^2 m_0 m'_0 \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(D_{lm_0,l'm'_0}^{21} \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right. \\
& \left. - iD_{lm_0,l'm'_0}^{2-1} \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) \left. \right]. \tag{199}
\end{aligned}$$

Es folgt nun die hoch, runter bzw. up, down Komponente. Sie entspricht der 2, 1 (Zeile, Spalte) Komponente der Matrix.

$$\begin{aligned}
& \int dr r^2 \gamma_{l\uparrow} \gamma_{l'\downarrow}^* \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-G_{lm,l'm'}^{22} - iG_{lm,l'm'}^{2-2} \right) + \right. \\
& \left. \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} G_{lm,l'm'}^{20} + \frac{\delta_{ll',mm'}}{3} \right) \right) - \int dr r \gamma_{l\uparrow} \frac{\Phi_{l'\downarrow}^*}{2M_{l'\downarrow}^* c} \cdot \\
& \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \cdot \left[E_{l'm'_0}^- \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(-C_{lm,l'(m'_0-1)}^{21} \left(\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. + iC_{lm,l'(m'_0-1)}^{2-1} \left(\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) \right. \\
& \left. + \hbar m'_0 \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(C_{lm,l'm'_0}^{22} + iC_{lm,l'm'_0}^{2-2} \right) - \right. \right. \\
& \left. \left. \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} C_{lm,l'm'_0}^{20} + \frac{\delta_{ll',l'm'_0}}{3} I_{lm}^{l'm'_0} \right) \right) \right] - \int dr r \gamma_{l'\downarrow}^* \frac{\Phi_{l\uparrow}}{2M_{l\uparrow} c} \cdot \\
& \sum_{m_0} K_{lmm_0} \cdot \left[E_{lm_0}^+ \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(\widetilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{21} \left(\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. - i\widetilde{C}_{l(m_0+1),l'm'}^{2-1} \left(\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) \right. \\
& \left. + \hbar m_0 \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(-\widetilde{C}_{lm_0,l'm'}^{22} - i\widetilde{C}_{lm_0,l'm'}^{2-2} \right) + \right. \right. \\
& \left. \left. \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \widetilde{C}_{lm_0,l'm'}^{20} + \frac{\delta_{ll',l'm'_0}}{3} \widetilde{I}_{l'm'_0}^{m_0} \right) \right) \right] + \int dr \frac{\Phi_{l\uparrow} \cdot \Phi_{l'\downarrow}^*}{4M_{l'\downarrow}^* \cdot M_{l\uparrow}} \cdot \\
& \sum_{m'_0 m_0} K_{l'm'm'_0}^* K_{lmm_0} \cdot \left[E_{lm_0}^- E_{l'm'_0}^+ \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \right. \right. \\
& \left. \left. \left(-D_{l(m_0-1),l'(m'_0+1)}^{22} + iD_{l(m_0-1),l'(m'_0+1)}^{22} \right) \right. \right. \\
& \left. \left. + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{l(m_0-1),l'(m'_0+1)}^{20} + \frac{\delta_{ll',(m_0-1)(m'_0+1)}}{3} \right) \right) \right] +
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \hbar \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \left(\left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \left(-m_0 E_{l',m'_0}^- D_{lm_0,l'(m'_0-1)}^{21-} \right. \right. \\
& \left. \left. m'_0 E_{l,m_0}^+ D_{l(m_0+1),l',m'_0}^{21} \right) + i \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \cdot \right. \\
& \left. \left(m_0 E_{l',m'_0}^- D_{lm_0,l'(m'_0-1)}^{2-1} + m'_0 E_{l,m_0}^+ D_{l(m_0+1),l',m'_0}^{2-1} \right) \right) \\
& + \hbar^2 m_0 m'_0 \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(D_{lm_0,l'm'_0}^{22} + i D_{lm_0,l'm'_0}^{2-2} \right) \right. \\
& \left. - \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{lm_0,l'm'_0}^{20} + \frac{\delta_{ll',m_0 m'_0}}{3} \right) \right) \Bigg]. \quad (200)
\end{aligned}$$

Zuletzt die runter, hoch bzw. down, up Komponente. Sie entspricht der 1, 2 (Zeile, Spalte) Komponente der Matrix.

$$\begin{aligned}
& \int dr r^2 \gamma_{l\downarrow} \gamma_{l'\uparrow}^* \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-G_{lm,l'm'}^{22} + i G_{lm,l'm'}^{2-2} \right) + \right. \\
& \left. \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} G_{lm,l'm'}^{20} + \frac{\delta_{ll',mm'}}{3} \right) \right) - \int dr r \gamma_{l\downarrow} \frac{\Phi_{l'\uparrow}^*}{2M_{l'\uparrow}^* c} \cdot \\
& \sum_{m'_0} K_{l'm'm'_0}^* \cdot \left[E_{l'm'_0}^+ \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \left(C_{lm,l'(m'_0+1)}^{21} \right) \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right. \\
& \left. - i C_{lm,l'(m'_0+1)}^{2-1} \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) + \hbar m'_0 \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(-C_{lm,l'm'_0}^{22} \right. \right. \right. \\
& \left. \left. + i C_{lm,l'm'_0}^{2-2} \right) + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} C_{lm,l'm'_0}^{20} + \frac{\delta_{ll',l'm'_0}}{3} I_{lm}^{l'm'_0} \right) \right) \Bigg] \\
& - \int dr r \gamma_{l'\uparrow}^* \frac{\Phi_{l\downarrow}}{2M_{l\downarrow} c} \sum_{m_0} K_{lmm_0} \cdot \left[E_{lm_0}^- \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \cdot \right. \\
& \left. \left(-\tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{21} \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) + i \tilde{C}_{l(m_0-1),l'm'}^{2-1} \left(\hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \right) \right. \\
& \left. + \hbar m_0 \cdot \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \hat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(\tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{22} - i \tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{2-2} \right) - \right. \right. \\
& \left. \left. \hat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} \tilde{C}_{lm_0,l'm'}^{20} + \frac{\delta_{ll'} \tilde{l}_{l'm_0}}{3} \right) \right) \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \int dr \frac{\Phi_{l\downarrow} \cdot \Phi_{l'\uparrow}^*}{4M_{l'\uparrow}^* \cdot M_{l\downarrow}} \sum_{m'_0, m_0} K_{l'm'm'_0}^* K_{lm m_0} \cdot \left[E_{lm_0}^+ E_{l'm'_0}^- \cdot \right. \\
& \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \cdot \left(-D_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)}^{22} - iD_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)}^{22} \right) \right) \\
& + \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{l(m_0+1), l'(m'_0-1)}^{20} + \frac{\delta_{ll', (m_0+1)(m'_0-1)}}{3} \right) \left. \right) \\
& + \hbar \sqrt{\frac{4\pi}{15}} \left(\left(\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} + \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \left(-m_0 E_{l', m'_0}^+ D_{lm_0, l'(m'_0+1)}^{21} - \right. \right. \\
& \left. \left. m'_0 E_{l, m_0}^- D_{l(m_0-1), l', m'_0}^{21} \right) + i \left(\widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \right) \cdot \right. \\
& \left. \left(m_0 E_{l', m'_0}^+ D_{lm_0, l'(m'_0+1)}^{2-1} + m'_0 E_{l, m_0}^- D_{l(m_0-1), l', m'_0}^{2-1} \right) \right) \\
& + \hbar^2 m_0 m'_0 \left(\sqrt{\frac{16\pi}{15}} \widehat{H}_{\uparrow\downarrow}^{\text{EM}} \left(D_{lm_0, l'm'_0}^{22} - iD_{lm_0, l'm'_0}^{2-2} \right) \right. \\
& \left. - \widehat{H}_{\downarrow\uparrow}^{\text{EM}} \left(\sqrt{\frac{16\pi}{45}} D_{lm_0, l'm'_0}^{20} + \frac{\delta_{ll', m_0 m'_0}}{3} \right) \right) \left. \right]. \tag{201}
\end{aligned}$$

Eine etwaige weitere Vereinfachung ergäbe sich bei Berücksichtigung dessen, was die Relation der Kugelflächenfunktionen mit m und $-m$ für die Terme $D(l, m, \dots) \pm iD(l-m, \dots)$, etc. bedeuten, vmtl. lässt sich da noch etwas kürzen. Ein genauerer Blick verrät, dass alle Terme diesen Typs auf Integrale beruhen. In deren Summe lassen sich zwei Harmonische ausklammern; übrig bleibt eine Klammer, in der zwei kubisch Harmonische, eine davon mit i multipliziert, bzgl. $\pm m$ addiert oder subtrahiert werden. Es handelt sich dabei immer um die Kombinationen von $l = 2, m = 2$ und $l = 2, m = -2$. Anschaulicher wird es vmtl. an einem Beispiel, in Gleichung (198) taucht z.B. folgender Term auf:

$$\begin{aligned}
& \left(-C_{lm, l'(m'_0+1)}^{22} - iC_{lm, l'(m'_0+1)}^{2-2} \right) = \\
& \int d\Omega' Y_{l'(m'_0+1)}^* Z_{lm} \cdot (-Z_{22} - iZ_{2-2}) \tag{202}
\end{aligned}$$

Der Term in der Klammer lässt sich wiederum als Summe von

sphärischen Harmonischen ausdrücken:

$$\begin{aligned} (-Z_{22} - iZ_{2-2}) = \\ \left(-\frac{1}{\sqrt{2}} (Y_{22} + Y_{2-2}) - i \cdot \left(\frac{i}{\sqrt{2}} (Y_{22} - Y_{2-2}) \right) \right) = \\ -\frac{2}{\sqrt{2}} Y_{2-2}, \end{aligned} \tag{203}$$

was jedoch nicht weiter verfolgt wurde, da für die Berechnung der Matrixelemente zwischen den LMTO-Funktionen mit der geringste Zeitaufwand nötig ist und deshalb kein merklicher praktischer Nutzen aus der Vereinfachung des Ergebnisses hätte gezogen werden können.

12 Danksagung

Herzlichen Dank an alle, die zum Erfolg dieser Arbeit beigetragen haben, insbesondere möchte ich dabei folgenden Personen danken:

- **Prof. Dr. Manfred Fähnle** für die Unterstützung während allen Phasen der Arbeit in Rat und Tat zu jeder Zeit. Ausserdem für das Lehren des Nachhakens, bis eine Sache wirklich soweit verstanden ist wie möglich.
- **Prof. Dr. Günter Wunner** dafür, den Mitbericht auf sich genommen zu haben.
- **Prof. Dr. Gert Denninger** für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.
- **Prof. Dr. Peter Oppeneer** für die Übernahme des zusätzlichen Mitberichtes.
- **Dr. Christian Illg** für das Einweisen in die Software, zahllose Erklärungen und Diskussionen sowie das gute Betriebsklima und logisches “Debugging“ meiner Ideen.
- **Nicolas Teeny** für zahlreiche Diskussionen, auch nachdem er schon an einem anderen Thema in Heidelberg zu arbeiten begonnen hatte.
- **Michael Kopp** für immer ein offenes Ohr und hilfreiche Tipps auch und gerade für etwas “ambitioniertere“ Ideen.
- **Frank Schweiner** für zahlreiche hilfreiche Diskussionen und den wichtigsten Beitrag zum Gewinn eines zweiten Platzes bei dem Quiz der Weihnachtsfeier.
- **Thodoris Tsatsoulis** für das Hinterfragen von scheinbar Klarem, was häufig zu einer neuen Einsicht führte.
- **Johan Briones** für zahlreiche Diskussionen und Ernährungstipps.
- **Dr. Benedikt Müller** für zahlreiche Diskussionen, hilfreiche Tipps für Numerik.
- **Der gesamten Abteilung Schütz** für die tolle Atmosphäre und gute Zusammenarbeit.

- **Dr. Thorsten Kersting und Dr. Damir Zajec** dafür, dass sie mich auf die Doktorarbeit aufmerksam gemacht haben, und für ihre Tipps.
- **Der EDV-Abteilung insbesondere Heinz Schühle und Franz-Werner Gergen**, dafür, dass sie mit Rat und Tat schnell und kompetent Computerprobleme behoben und die Rechnungen somit erst möglich gemacht haben.
- **Allen Korrekturlesern und Korrekturleserinnen** dafür, dass sie sich die Mühe machten, das Chaos etwas zu ordnen.

13 Quellenverzeichnis

Literatur

- [1] E. Beaupaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel. *Phys. Rev. Lett.*, 76, 4250, May 1996.
- [2] Jakob Walowski. *Physics of laser heated ferromagnets: Ultrafast demagnetization and magneto-Seebeck effect*. PhD thesis, Georg-August-Universität Göttingen, 2012.
- [3] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing. All-Optical Magnetic Recording with Circularly Polarized Light. *Phys. Rev. Lett.*, 99, 047601, Jul 2007.
- [4] Christian Illg, Michael Haag, and Manfred Fähnle. Ultrafast demagnetization after laser irradiation in transition metals: Ab initio calculations of the spin-flip electron-phonon scattering with reduced exchange splitting. *Phys. Rev. B*, 88(21), 214404, 2013.
- [5] Michael Haag, Christian Illg, and Manfred Fähnle. Role of electron-magnon scatterings in ultrafast demagnetization. *Phys. Rev. B*, 90, 014417, Jul 2014.
- [6] G. Kotliar, S. Y. Savrasov, K. Haule, V. S. Oudovenko, O. Parcollet, and C. A. Marianetti. Electronic structure calculations

- with dynamical mean-field theory. *Rev. Mod. Phys.*, 78, 865, Aug 2006.
- [7] P. Hohenberg and W. Kohn. Inhomogeneous Electron Gas. *Phys. Rev.*, 136, B864, Nov 1964.
- [8] U von Barth and L Hedin. A local exchange-correlation potential for the spin polarized case. i. *J. Phys. C.*, 5(13), 1629, 1972.
- [9] W. Kohn and L. J. Sham. Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects. *Phys. Rev.*, 140, A1133, Nov 1965.
- [10] John P. Perdew and Yue Wang. Accurate and simple density functional for the electronic exchange energy: Generalized gradient approximation. *Phys. Rev. B*, 33, 8800, Jun 1986.
- [11] John P. Perdew and Yue Wang. Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy. *Phys. Rev. B*, 45, 13244, Jun 1992.
- [12] A. I. Liechtenstein, V. I. Anisimov, and J. Zaanen. Density-functional theory and strong interactions: Orbital ordering in Mott-Hubbard insulators. *Phys. Rev. B*, 52, R5467, Aug 1995.
- [13] Zhigang Wu and R. E. Cohen. More accurate generalized gradient approximation for solids. *Phys. Rev. B*, 73, 235116, Jun 2006.
- [14] F. Zahariev, S. S. Leang, and Mark S. Gordon. Functional derivatives of meta-generalized gradient approximation (meta-GGA) type exchange-correlation density functionals. *J. Chem. Phys.*, 138(24), 244108, JUN 28 2013.
- [15] Axel D. Becke. A new mixing of Hartree-Fock and local density functional theories. *J. Chem. Phys.*, 98(2), 1372, 1993.
- [16] O.K. Andersen. Simple approach to the band-structure problem. *Solid State Commun.*, 13(2), 133, 1973.
- [17] C. Ederer. *Theorie magneto-optischer Effekte im Röntgenbereich und Anwendung auf niedrigdimensionale magnetische Systeme*. PhD thesis, Max-Planck Institute for Metals Research and University of Stuttgart, 2003.

- [18] Olaf Grotheer. *Ab-initio Berechnungen der Spinwellenspektren von Eisen, Kobalt und Nickel*. PhD thesis, Max-Planck Institute for Metals Research and University of Stuttgart, 2002.
- [19] Christian Illg, Bernd Meyer, and Manfred Fähnle. Frequencies and polarization vectors of phonons: Results from force constants which are fitted to experimental data or calculated *ab initio*. *Phys. Rev. B*, 86, 174309, Nov 2012.
- [20] Paolo Giannozzi, Stefano Baroni, Nicola Bonini, Matteo Calandra, Roberto Car, Carlo Cavazzoni, Davide Ceresoli, Guido L Chiarotti, Matteo Cococcioni, Ismaila Dabo, Andrea Dal Corso, Stefano de Gironcoli, Stefano Fabris, Guido Fratesi, Ralph Gebauer, Uwe Gerstmann, Christos Gougoussis, Anton Kokalj, Michele Lazzeri, Layla Martin-Samos, Nicola Marzari, Francesco Mauri, Riccardo Mazzarello, Stefano Paolini, Alfredo Pasquarello, Lorenzo Paulatto, Carlo Sbraccia, Sandro Scandolo, Gabriele Sclauzero, Ari P Seitsonen, Alexander Smogunov, Paolo Umari, and Renata M Wentzcovitch. QUANTUM ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials. *J. Phys.: Condens. Matter*, 21(39), 395502, 2009.
- [21] David Vanderbilt. Soft self-consistent pseudopotentials in a generalized eigenvalue formalism. *Phys. Rev. B*, 41, 7892, Apr 1990.
- [22] John P. Perdew, Kieron Burke, and Matthias Ernzerhof. Generalized Gradient Approximation Made Simple. *Phys. Rev. Lett.*, 77, 3865, Oct 1996.
- [23] A G McLellan. Angular momentum states for phonons and a rotationally invariant development of lattice dynamics. *J. Phys. C.*, 21(7), 1177, 1988.
- [24] Igor Žutić, Jaroslav Fabian, and Sankar Das Sarma. Spintronics: Fundamentals and applications. *Rev. Mod. Phys.*, 76, 323, 2004.
- [25] Andrii V. Chumak, Alexander A. Serga, and Burkard Hillebrands. Magnon transistor for all-magnon data processing. *Nat. Commun.*, 5, 4700, AUG 2014.

- [26] M Krawczyk and D Grundler. Review and prospects of magnonic crystals and devices with reprogrammable band structure. *J. Phys. Condens. Matter*, 26(12), 123202, 2014.
- [27] A Einstein. Quantum theory of the ideal gas. *Sitzungsberichte Der Preussischen Akademie der Wissenschaften physikalisch-mathematische Klasse*, page 18, 1925.
- [28] Wolfgang Ketterle. When Atoms Behave as Waves: Bose-Einstein Condensation and the Atom Laser (Nobel Lecture). *ChemPhysChem*, 3(9), 736, 2002.
- [29] OV Misochko, M Hase, K Ishioka, and M Kitajima. Transient Bose-Einstein condensation of phonons. *Phys. Lett. A*, 321(5-6), 381, FEB 16 2004.
- [30] Hui Deng, Hartmut Haug, and Yoshihisa Yamamoto. Exciton-polariton Bose-Einstein condensation. *Rev. Mod. Phys.*, 82(2), 1489, MAY 12 2010.
- [31] S. O. Demokritov, V. E. Demidov, O. Dzyapko, G. A. Melkov, A. A. Serga, B. Hillebrands, and A. N. Slavin. Bose-Einstein condensation of quasi-equilibrium magnons at room temperature under pumping. *Nature*, 443(7110), 430, SEP 28 2006.
- [32] S.H. Liu. Frozen magnon theory and its application to commensurate antiferromagnetic chromium alloys. *J. Magn. Magn. Mater.*, 25(1), 97, 1981.
- [33] Adam Jacobsson, Biplob Sanyal, Marjana Ležaić, and Stefan Blügel. Exchange parameters and adiabatic magnon energies from spin-spiral calculations. *Phys. Rev. B*, 88, 134427, Oct 2013.
- [34] Paweł Buczek, Arthur Ernst, and Leonid M. Sandratskii. Interface Electronic Complexes and Landau Damping of Magnons in Ultrathin Magnets. *Phys. Rev. Lett.*, 106, 157204, Apr 2011.
- [35] Manfred Niesert. *Ab initio Calculations of Spin-Wave Excitation Spectra from Time-Dependent Density-Functional Theory*. PhD thesis, RWTH Aachen University, 2011.
- [36] C.-K. Loong. Neutron scattering investigation of magnetic excitations at high energy transfers (invited). *J. Appl. Phys.*, 57(8), 3772, 1985.

- [37] A. A. Serga, C. W. Sandweg, V. I. Vasyuchka, M. B. Jungfleisch, B. Hillebrands, A. Kreisel, P. Kopietz, and M. P. Kostylev. Brillouin light scattering spectroscopy of parametrically excited dipole-exchange magnons. *Phys. Rev. B*, 86, 134403, Oct 2012.
- [38] Christian Illg. *Ab-initio modeling of ultrafast demagnetization after laser irradiation in nickel, iron and cobalt*. PhD thesis, Max-Planck Institute for Intelligent Systems and University of Stuttgart, 2013.
- [39] F. Cardarelli. *Materials Handbook: A Concise Desktop Reference*. Springer, 2000.
- [40] C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H.-J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette. Experimental Confirmation of the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Sum Rules for Iron and Cobalt. *Phys. Rev. Lett.*, 75, 152, Jul 1995.
- [41] John R. Hook and Henry Edgar Hall. *Solid State Physics*. Wiley, New York, 2. rev. ed., 1995.
- [42] Francis J. Arlinghaus and Ruth A. Reck. Calculations of the electronic spin and orbital magnetic moments and g' in ferromagnetic nickel. *Phys. Rev. B*, 11, 3488, May 1975.
- [43] Raymond A. Serway and John W. Jewett. *Physics for Scientists and Engineers with Modern Physics*. Cengage Learning, Clifton Park, NY, 0009. Aufl., 2013.
- [44] Alexander Baral, Svenja Vollmar, Steffen Kaltenborn, Hans Christian Schneider, Reexamination of the Elliott-Yafet Spin-Relaxation Mechanism eingereicht bei New Journal of Physics 2015.
- [45] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann. Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization. *Nat. Mater.*, 9, 259, 2010.
- [46] D. Steiauf and M. Fähnle. Elliott-Yafet mechanism and the discussion of femtosecond magnetization dynamics. *Phys. Rev. B*, 79, 140401, Apr 2009.

- [47] Michael Haag, Christian Illg, and Manfred Fähnle. Influence of magnetic fields on spin-mixing in transition metals. *Phys. Rev. B*, 90(13), 134410, OCT 14 2014.
- [48] B. Y. Mueller, A. Baral, S. Vollmar, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, H. C. Schneider, and B. Rethfeld. Feedback Effect during Ultrafast Demagnetization Dynamics in Ferromagnets. *Phys. Rev. Lett.*, 111, 167204, Oct 2013.
- [49] Johan Briones. Quantum kinetic theory of ultrafast demagnetization of ferromagnetic films after excitation with a femtosecond optical laser pulse. Master's thesis, Max-Planck Institute for Intelligent Systems and University of Stuttgart, 2015.
- [50] Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel, and Theo Rasing. Ultrafast optical manipulation of magnetic order. *Rev. Mod. Phys.*, 82, 2731, Sep 2010.
- [51] Víctor López-Flores, Jacek Arabski, Christian Stamm, Valérie Halté, Niko Pontius, Eric Beaurepaire, and Christine Boeglin. Time-resolved x-ray magnetic circular dichroism study of ultrafast demagnetization in a CoPd ferromagnetic film excited by circularly polarized laser pulse. *Phys. Rev. B*, 86, 014424, Jul 2012.
- [52] A. Weber, F. Pressacco, S. Günther, E. Mancini, P. M. Oppeneer, and C. H. Back. Ultrafast demagnetization dynamics of thin Fe/W(110) films: Comparison of time- and spin-resolved photoemission with time-resolved magneto-optic experiments. *Phys. Rev. B*, 84, 132412, Oct 2011.
- [53] A. Melnikov, A. Alekhin, D. Buerstel, D. Diesing, T. O. Wehling, I. Rungger, M. Stamenova, S. Sanvito, and U. Bovensiepen. Ultrafast non-local spin dynamics in metallic bilayers by linear and non-linear magneto-optics. In Bigot, JY and Hübner, W and Rasing, T and Chantrell, R, editor, *ULTRAFAST MAGNETISM I*, volume 159 of *Springer Proceedings in Physics*, page 34. European Res Agcy; French Minist Educ & Research; Natl Sci Res Ctr; Univ Strasbourg; Univ Kaiserslautern, 2015. Ultrafast Magnetization Conference, Strasbourg, FRANCE, OCT 28-NOV 01, 2013.

- [54] K. C. Kuiper, T. Roth, A. J. Schellekens, O. Schmitt, B. Koopmans, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann. Spin-orbit enhanced demagnetization rate in Co/Pt-multilayers. *Applied Physics Letters*, 105(20), 202402, 2014.
- [55] Georg M. Mueller, Gerrit Eilers, Zhao Wang, Malte Scherff, Ran Ji, Kornelius Nielsch, Caroline A. Ross, and Markus Munzenberg. Magnetization dynamics in optically excited nanostructured nickel films. *New J. Phys.*, 10, 123004, DEC 4 2008.
- [56] C. vonKorff Schmising, M. Giovannella, D. Weder, S. Schaffert, J. L. Webb, and S. Eisebitt. Nonlocal ultrafast demagnetization dynamics of Co/Pt multilayers by optical field enhancement. *New J. Phys.*, 17, 033047, MAR 31 2015.
- [57] Daniel Steil, Sabine Alebrand, Tobias Roth, Michael Krauß, Takahide Kubota, Mikihiro Oogane, Yasuo Ando, Hans Christian Schneider, Martin Aeschlimann, and Mirko Cinchetti. Band-Structure-Dependent Demagnetization in the Heusler Alloy $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$. *Phys. Rev. Lett.*, 105, 217202, Nov 2010.
- [58] Xiankai Jiao, Yang Ren, Zongzhi Zhang, Qinyuan Jin, and Yaowen Liu. Modeling of the Laser-Heating Induced Ultrafast Demagnetization Dynamics in Ferrimagnetic Thin Films. *IE-EE Trans. Magn.*, 49(7), 3191, JUL 2013.
- [59] Christoph Trabant. *Ultrafast photoinduced phase transitions in complex materials probed by time-resolved resonant soft x-ray diffraction*. PhD thesis, Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Potsdam, 2014.
- [60] Andreas Walter Fognini. *Ultrafast demagnetization: an electronic point of view*. PhD thesis, ETH Zürich, 2014.
- [61] A. Fognini, G. Salvatella, R. Gort, T. Michlmayr, A. Vaterlaus, and Y. Acremann. The influence of the excitation pulse length on ultrafast magnetization dynamics in nickel. *Struct. Dyn.*, 2(2), 024501, 2015.

- [62] T. Roth, A. J. Schellekens, S. Alebrand, O. Schmitt, D. Steil, B. Koopmans, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann. Temperature Dependence of Laser-Induced Demagnetization in Ni: A Key for Identifying the Underlying Mechanism. *Phys. Rev. X*, 2, 021006, May 2012.
- [63] F. Dalla Longa, J. T. Kohlhepp, W. J. M. de Jonge, and B. Koopmans. Influence of photon angular momentum on ultrafast demagnetization in nickel. *Phys. Rev. B*, 75, 224431, Jun 2007.
- [64] Martina Giovannella. Time resolved magneto-optical measurements of ultrafast demagnetization dynamics. Tesi di laurea magistratale, Universita degli Studi di Pisa, 2013.
- [65] Ingrid Cotoros, Jigang Wang, Xinyu Liu, Jacek K. Furdyna, and Daniel S. Chemla. Ultrafast Photoinduced Ferromagnetic Order in a Magnetic Semiconductor Heterostructure. In Corkum, P and DeSilvestri, S and Nelson, KA and Riedle, E, editor, *ULTRAFAST PHENOMENA XVI*, volume 92 of *Springer Series in Chemical Physics*, page 197, 2009. 16th International Conference on Ultrafast Phenomena, European Phys Soc, Stresa, ITALY, JUN 09-13, 2008.
- [66] M. S. Si, J. Y. Li, D. S. Xue, and G. P. Zhang. Manipulating femtosecond magnetism through pressure: First-principles calculations. *Phys. Rev. B*, 88(14), 144425, OCT 29 2013.
- [67] Karel Carva, Marco Battiato, and Peter M. Oppeneer. Is the controversy over femtosecond magneto-optics really solved? *Nature Phys.*, 7, 665, Sep 2011.
- [68] *Ultrafast Magnetism I: Proceedings of the International Conference UMC 2013 Strasbourg, France, October 28th - November 1st, 2013 (Springer Proceedings in Physics)*. Springer, 2014.
- [69] Emmy Noether. Invarianten beliebiger Differentialausdrücke. (German) JFM 46.0675.01. *Gött. Nachr.*, 1918, 37, 1918.
- [70] Emmy Noether. Invariant variational problems. (Invariante Variationsprobleme.) (German) JFM 46.0770.01. *Gött. Nachr.*, 1918, 235, 1918.

- [71] Manfred Fähnle, Michael Haag, and Christian Illg. Is the angular momentum of a ferromagnetic sample after exposure to a fs laser pulse conserved? *J. Magn. Magn. Mater.*, 347, 45, 2013.
- [72] Torsten Fließbach. *Allgemeine Relativitätstheorie* - . Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 6. Aufl., 2012.
- [73] Lifa Zhang and Qian Niu. Angular Momentum of Phonons and the Einstein-de Haas Effect. *Phys. Rev. Lett.*, 112, 085503, Feb 2014.
- [74] Thodoros Tsatsoulis. Transfer of angular momentum from the electrons to the lattice during ultrafast demagnetization. Master's thesis, Max-Planck Institute for Intelligent Systems and University of Stuttgart, 2015.
- [75] D. A. Garanin and E. M. Chudnovsky. Angular momentum in spin-phonon processes. *Phys. Rev. B*, 92, 024421, Jul 2015.
- [76] D. J. Griffiths. *Introduction to Electrodynamics*, pages 358, 359. Pearson, 2008.
- [77] M. S. Si and G. P. Zhang. Resolving photon-shortage mystery in femtosecond magnetism. *J. Phys. Condens. Matter*, 22(7), 076005, FEB 24 2010.
- [78] E. Beaurepaire, G. M. Turner, S. M. Harrel, M. C. Beard, J.-Y. Bigot, and C. A. Schmuttenmaer. Coherent terahertz emission from ferromagnetic films excited by femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 84(18), 2004.
- [79] L. P. Gaffney, P. A. Butler, M. Scheck, A. B. Hayes, F. Wenander, M. Albers, B. Bastin, C. Bauer, A. Blazhev, S. Boenig, N. Bree, J. Cederkall, T. Chupp, D. Cline, T. E. Cocolios, T. Davinson, H. DeWitte, J. Diriken, T. Grahn, A. Herzan, M. Huysse, D. G. Jenkins, D. T. Joss, N. Kesteloot, J. Konki, M. Kowalczyk, Th. Kroell, E. Kwan, R. Lutter, K. Moschner, P. Napiorkowski, J. Pakarinen, M. Pfeiffer, D. Radeck, P. Reiter, K. Reynnders, S. V. Rigby, L. M. Robledo, M. Rudigier, S. Sambhi, M. Seidlitz, B. Siebeck, T. Stora, P. Thoele, P. Van Duppen, M. J. Vermeulen, M. von Schmid, D. Voulot, N. Warr, K. Wimmer, K. Wrzosek-Lipska, C. Y. Wu, and

- M. Zielinska. Studies of pear-shaped nuclei using accelerated radioactive beams. *Nature*, 497(7448), 199, MAY 9 2013.
- [80] A. Einstein. Experimenteller Nachweis der Ampèreschen Molekularströme. *Naturwissenschaften*, 3, 237, may 1915.
- [81] Michael Krauß, Tobias Roth, Sabine Alebrand, Daniel Steil, Mirko Cinchetti, Martin Aeschlimann, and Hans Christian Schneider. Ultrafast demagnetization of ferromagnetic transition metals: The role of the Coulomb interaction. *Phys. Rev. B*, 80, 180407, Nov 2009.
- [82] B.Y. Mueller, M. Haag, M. Fähnle, Ab-initio theory for ultrafast magnetization dynamics with a dynamic band structure eingereicht bei PRB 2015.
- [83] M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer. Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization. *Phys. Rev. Lett.*, 105, 027203, Jul 2010.
- [84] K. Carva, M. Battiato, and P. M. Oppeneer. *Ab Initio* Investigation of the Elliott-Yafet Electron-Phonon Mechanism in Laser-Induced Ultrafast Demagnetization. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 207201, Nov 2011.
- [85] K. Carva, M. Battiato, D. Legut, and P. M. Oppeneer. *Ab initio* theory of electron-phonon mediated ultrafast spin relaxation of laser-excited hot electrons in transition-metal ferromagnets. *Phys. Rev. B*, 87, 184425, May 2013.
- [86] E. Carpena, E. Mancini, C. Dallera, M. Brenna, E. Puppini, and S. De Silvestri. Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films. *Phys. Rev. B*, 78, 174422, 2008.
- [87] C. Boeglin, E. Beaurepaire, V. Halte, V. Lopez-Flores, C. Stamm, N. Pontius, H. A. Duerr, and J. Y. Bigot. Distinguishing the ultrafast dynamics of spin and orbital moments in solids. *Nature*, 465(7297), 458, MAY 27 2010.
- [88] C.W. Haas and H.B. Callen. *Ferromagnetic relaxation and resonance line width*. Academic, New York, 1963.

- [89] U Bovensiepen. Ultra-fast dynamics of coherent lattice and spin excitations at the Gd(0001) surface. *Appl Phys A Mater Sci Process*, 82(3), 395, MAR 2006.
- [90] Ji-Wan Kim, Mircea Vomir, and Jean-Yves Bigot. Controlling the Spins Angular Momentum in Ferromagnets with Sequences of Picosecond Acoustic Pulses. *Sci. Rep.*, 5, 8511, FEB 17 2015.
- [91] M Schwartz. Electric Dipole Approximation and the Canonical Formalism in Electrodynamics. *Phys. Rev.*, 123(5), 1903, 1961.
- [92] Shen Jian, Zhang Huai-Wu, and Li Yuan-Xun. Terahertz Emission of Ferromagnetic Ni-Fe Thin Films Excited by Ultrafast Laser Pulses. *Chin. Phys. Lett.*, 29(6), 067502, JUN 2012.
- [93] Riccardo Hertel. Theory of the inverse Faraday effect in metals. *J. Magn. Magn. Mater.*, 303(1), L1, 2006.
- [94] Hui-Liang Zhang, Yan-Zhong Wang, and Xiang-Jun Chen. A simple explanation for the inverse Faraday effect in metals. *J. Magn. Magn. Mater.*, 321(24), L73, 2009.
- [95] C. W. Sandweg, Y. Kajiwara, A. V. Chumak, A. A. Serga, V. I. Vasyuchka, M. B. Jungfleisch, E. Saitoh, and B. Hillebrands. Spin Pumping by Parametrically Excited Exchange Magnons. *Phys. Rev. Lett.*, 106, 216601, May 2011.
- [96] B. Lenk, H. Ulrichs, F. Garbs, and M. Münzenberg. The building blocks of magnonics. *Phys. Rep.*, 507(4-5), 107, 2011.
- [97] C. E. Graves, A. H. Reid, T. Wang, B. Wu, S. de Jong, K. Vahaplar, I. Radu, D. P. Bernstein, M. Messerschmidt, L. Mueller, R. Coffee, M. Bionta, S. W. Epp, R. Hartmann, N. Kimmel, G. Hauser, A. Hartmann, P. Holl, H. Gorke, J. H. Mentink, A. Tsukamoto, A. Fognini, J. J. Turner, W. F. Schlotter, D. Rolles, H. Soltau, L. Strueder, Y. Acremann, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, Th Rasing, J. Stoehr, A. O. Scherz, and H. A. Duerr. Nanoscale spin reversal by non-local angular momentum transfer following ultrafast laser excitation in ferrimagnetic GdFeCo. *Nature Mater.*, 12(4), 293, APR 2013.

- [98] L. H. F. Andrade, M. Vomir, J. Kim, M. Sanchez Piaia, A. D. Santos, and J. Y. Bigot. Ultrafast Demagnetization and Precession Damping Times in Rare Earth Doped Cobalt Films. In *2013 CONFERENCE ON LASERS AND ELECTRO-OPTICS (CLEO)*, Conference on Lasers and Electro-Optics, 2013. Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), San Jose, CA, JUN 09-14, 2013.
- [99] D. Steil, O. Schmitt, R. Fetzner, T. Kubota, H. Naganuma, M. Oogane, Y. Ando, A. K. Suszka, O. Idigoras, G. Wolf, B. Hillebrands, A. Berger, M. Aeschlimann, and M. Cinchetti. Ultrafast magnetization dynamics in Co-based Heusler compounds with tuned chemical ordering. *New J. Phys.*, 16, 063068, JUN 30 2014.
- [100] Muhammad Sultan, Alexey Melnikov, and Uwe Bovensiepen. Ultrafast magnetization dynamics of Gd(0001): Bulk versus surface. *Phys. Status Solidi B*, 248(10), 2323, OCT 2011.
- [101] G Bihlmayer, O Rader, and R Winkler. Focus on the Rashba effect. *New J. Phys.*, 17(5), 050202, 2015.
- [102] CH Park, BC Lee, and JI Lee. Spin-asymmetry of the density of states for bulk and surface Fe, Co, and Ni. *J. Korean Phys. Soc.*, 47(4), 655, OCT 2005.
- [103] R. Knorren, K. H. Bennemann, R. Burgermeister, and M. Aeschlimann. Dynamics of excited electrons in copper and ferromagnetic transition metals: Theory and experiment. *Phys. Rev. B*, 61, 9427, Apr 2000.
- [104] Steffen Kaltenborn and Hans Christian Schneider. Spin-orbit coupling effects on spin-dependent inelastic electronic lifetimes in ferromagnets. *Phys. Rev. B*, 90(20), 201104, NOV 5 2014.
- [105] A. J. Schellekens, N. de Vries, J. Lucassen, and B. Koopmans. Exploring laser-induced interlayer spin transfer by an all-optical method. *Phys. Rev. B*, 90(10), 104429, SEP 30 2014.
- [106] Dennis Rudolf, Chan La-O-Vorakiat, Marco Battiato, Roman Adam, Justin M. Shaw, Emrah Turgut, Pablo Maldonado, Stefan Mathias, Patrik Grychtol, Hans T. Nembach, Thomas J. Silva, Martin Aeschlimann, Henry C. Kapteyn, Margaret M.

- Murnane, Claus M. Schneider, and Peter M. Oppeneer. Ultrafast magnetization enhancement in metallic multilayers driven by superdiffusive spin current. *Nat. Commun.*, 3, 1037, SEP 2012.
- [107] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid state physics*. Science: Physics. Saunders College, 1976.
- [108] Khalil Zakeri. Elementary spin excitations in ultrathin itinerant magnets. *Phys. Rep.*, 545(2), 47, 2014. Elementary spin excitations in ultrathin itinerant magnets.
- [109] N. Moisan, G. Malinowski, J. Mauchain, M. Hehn, B. Vodungbo, J. Luening, S. Mangin, E. E. Fullerton, and A. Thiaville. Investigating the role of superdiffusive currents in laser induced demagnetization of ferromagnets with nanoscale magnetic domains. *Sci. Rep.*, 4, 4658, APR 11 2014.
- [110] B. Pfau, S. Schaffert, L. Mueller, C. Gutt, A. Al-Shemmary, F. Buettner, R. Delaunay, S. Duesterer, S. Flewett, R. Fromenter, J. Geilhufe, E. Guehrs, C. M. Guenther, R. Hawaldar, M. Hille, N. Jaouen, A. Kobs, K. Li, J. Mohanty, H. Redlin, W. F. Schlotter, D. Stickler, R. Treusch, B. Vodungbo, M. Klaeui, H. P. Oepen, J. Luening, G. Gruebel, and S. Eisebitt. Ultrafast optical demagnetization manipulates nanoscale spin structure in domain walls. *Nat. Commun.*, 3, 1100, OCT 2012.
- [111] Boris Vodungbo, Julien Gautier, Guillaume Lambert, Anna Barszczak Sardinha, Magali Lozano, Stephane Sebban, Mathieu Ducouso, Willem Boutu, Kaigong Li, Bharati Tudu, Marina Tortarolo, Ranjit Hawaldar, Renaud Delaunay, Victor Lopez-Flores, Jacek Arabski, Christine Boeglin, Hamed Merdji, Philippe Zeitoun, and Jan Luening. Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network. *Nat. Commun.*, 3, 999, AUG 2012.
- [112] G. P. Zhang, W. Huebner, Georgios Lefkidis, Yihua Bai, and Thomas F. George. Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism. *Nature Phys.*, 5(7), 499, JUL 2009.

- [113] Jean-Yves Bigot, Mircea Vomir, and Eric Beaurepaire. Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses. *Nature Phys.*, 5(7), 515, JUL 2009.
- [114] Ritwik Mondal, Marco Berritta, Karel Carva, and Peter M. Oppeneer. *Ab initio* investigation of light-induced relativistic spin-flip effects in magneto-optics. *Phys. Rev. B*, 91, 174415, May 2015.
- [115] H.-S. Rhie, H. A. Dürr, and W. Eberhardt. Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Ni/W(110) Films. *Phys. Rev. Lett.*, 90, 247201, Jun 2003.
- [116] E. Carpena. Ultrafast demagnetization of metals: Collapsed exchange versus collective excitations. *Phys. Rev. B*, 91(17), 174414, MAY 14 2015.
- [117] G P Zhang, M S Si, Y H Bai, and Thomas F George. Magnetic spin moment reduction in photoexcited ferromagnets through exchange interaction quenching: beyond the rigid band approximation. *J. Phys. Condens. Matter*, 27(20), 206003, 2015.
- [118] Y. Ren, Y. L. Zuo, M. S. Si, Z. Z. Zhang, Q. Y. Jin, and S. M. Zhou. Correlation Between Ultrafast Demagnetization Process and Gilbert Damping in Amorphous TbFeCo Films. *IEEE Trans. Magn.*, 49(7), 3159, JUL 2013.
- [119] B. Y. Mueller and B. Rethfeld. Relaxation dynamics in laser-excited metals under nonequilibrium conditions. *Phys. Rev. B*, 87, 035139, Jan 2013.
- [120] B. Y. Mueller and B. Rethfeld. Thermodynamic μT model of ultrafast magnetization dynamics. *Phys. Rev. B*, 90, 144420, Oct 2014.
- [121] C. L. S. Kantner, M. C. Langner, W. Siemons, J. L. Blok, G. Koster, A. J. H. M. Rijnders, R. Ramesh, and J. Orenstein. Determination of the spin-flip time in ferromagnetic SrRuO₃ from time-resolved Kerr measurements. *Phys. Rev. B*, 83, 134432, Apr 2011.
- [122] Daniel S. Fisher. Scaling and critical slowing down in random-field Ising systems. *Phys. Rev. Lett.*, 56, 416, Feb 1986.

- [123] A. J. Schellekens and B. Koopmans. Comparing Ultrafast Demagnetization Rates Between Competing Models for Finite Temperature Magnetism. *Phys. Rev. Lett.*, 110, 217204, 2013.
- [124] Sven Essert and Hans Christian Schneider. Electron-phonon scattering dynamics in ferromagnetic metals and their influence on ultrafast demagnetization processes. *Phys. Rev. B*, 84, 224405, 2011.
- [125] M. Battiato, K. Carva, and P. M. Oppeneer. Theory of laser-induced ultrafast superdiffusive spin transport in layered heterostructures. *Phys. Rev. B*, 86, 024404, Jul 2012.
- [126] Emrah Turgut. *Studying Laser-Induced Spin Currents Using Ultrafast Extreme Ultraviolet Light*. PhD thesis, Faculty of the Graduate School of the University of Colorado Department of Physics and JILA, 2014.
- [127] A. J. Schellekens and B. Koopmans. Controlling ultrafast transport in magnetic heterostructures. In Bigot, JY and Hübner, W and Rasing, T and Chantrell, R, editor, *ULTRAFAST MAGNETISM I*, volume 159 of *Springer Proceedings in Physics*, page 232. European Res Agcy; French Minist Educ & Research; Natl Sci Res Ctr; Univ Strasbourg; Univ Kaiserslautern, 2015. Ultrafast Magnetization Conference, Strasbourg, FRANCE, OCT 28-NOV 01, 2013.
- [128] Gyung-Min Choi, Byoung-Chul Min, Kyung-Jin Lee, and David G. Cahill. Spin current generated by thermally driven ultrafast demagnetization. *Nat. Commun.*, 5, 4334, JUL 2014.
- [129] Emrah Turgut, Chan La-o vorakiat, Justin M. Shaw, Patrik Grychtol, Hans T. Nembach, Dennis Rudolf, Roman Adam, Martin Aeschlimann, Claus M. Schneider, Thomas J. Silva, Margaret M. Murnane, Henry C. Kapteyn, and Stefan Mathias. Controlling the Competition between Optically Induced Ultrafast Spin-Flip Scattering and Spin Transport in Magnetic Multilayers. *Phys. Rev. Lett.*, 110, 197201, May 2013.
- [130] U. Atxitia and O. Chubykalo-Fesenko. Ultrafast magnetization dynamics rates within the Landau-Lifshitz-Bloch model. *Phys. Rev. B*, 84, 144414, Oct 2011.

- [131] D Thonig and J Henk. Gilbert damping tensor within the breathing Fermi surface model: anisotropy and non-locality. *New J. Phys.*, 16(1), 013032, 2014.
- [132] U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, R. W. Chantrell, U. Nowak, and A. Rebei. Ultrafast Spin Dynamics: The Effect of Colored Noise. *Phys. Rev. Lett.*, 102, 057203, Feb 2009.
- [133] A. B. Schmidt, M. Pickel, M. Donath, P. Buczek, A. Ernst, V. P. Zhukov, P. M. Echenique, L. M. Sandratskii, E. V. Chulkov, and M. Weinelt. Ultrafast Magnon Generation in an Fe Film on Cu(100). *Phys. Rev. Lett.*, 105, 197401, 2010.
- [134] Sang-Jun Yun, Cheong-Gu Cho, and Sug-Bong Choe. Simultaneous excitation of two different spinwave modes by optical ultrafast demagnetization. *Appl. Phys. Express*, 8(6), 063009, JUN 2015.
- [135] A. Manchon, Q. Li, L. Xu, and S. Zhang. Theory of laser-induced demagnetization at high temperatures. *Phys. Rev. B*, 85(6), 064408, FEB 17 2012.
- [136] C. P. Chui and Yan Zhou. Spin-lattice dynamics simulation of external field effect on magnetic order of ferromagnetic iron. *AIP Adv.*, 4(3), 037110, 2014.
- [137] W.F. Schlosser. The temperature dependence of the magnetic moment of iron, nickel and Invar for $T/T_c < 0.5$. *Phys. Lett. A*, 40(3), 195, 1972.
- [138] A. T. Aldred. Temperature dependence of the magnetization of nickel. *Phys. Rev. B*, 11, 2597, Apr 1975.
- [139] K. Karlsson and F. Aryasetiawan. Spin-wave excitation spectra of nickel and iron. *Phys. Rev. B*, 62, 3006, Aug 2000.
- [140] Michael Haag, Christian Illg, and Manfred Fähnle. Theory of scattering of crystal electrons at magnons. *Phys. Rev. B*, 87, 214427, Jun 2013.
- [141] Xóchitl I. Saldaña and J. S. Helman. Elastic and magnon-inelastic differential cross sections of spin-polarized low-energy electrons in magnetic nickel and iron. *Phys. Rev. B*, 16, 4978, 1977.

- [142] S. V. Halilov, H Eschrig, A. Y. Perlov, and P. M. Oppeneer. Adiabatic spin dynamics from spin-density-functional theory: Application to Fe, Co, and Ni. *Phys. Rev. B*, 58, 293, 1998.
- [143] T. Holstein and H. Primakoff. Field Dependence of the Intrinsic Domain Magnetization of a Ferromagnet. *Phys. Rev.*, 58, 1098, Dec 1940.
- [144] Charles Kittel. *Quantum theory of solids*. Wiley, New York, 1963.
- [145] L. C. Davis and S. H. Liu. Electron-Magnon Interaction in Ferromagnetic Transition Metals. *Phys. Rev.*, 163, 503, 1967.
- [146] O K Andersen and O Jepsen. Explicit, First-Principles Tight-Binding Theory. *Phys. Rev. Lett.*, 53(27), 2571, 1984.
- [147] R. Singer, M. Fähnle, and G. Bihlmayer. Constrained spin-density functional theory for excited magnetic configurations in an adiabatic approximation. *Phys. Rev. B*, 71, 214435, 2005.
- [148] A. Fognini, T. U. Michlmayr, G. Salvatella, C. Wetli, U. Ramsperger, T. Baehler, F. Sorgenfrei, M. Beye, A. Eschenlohr, N. Pontius, C. Stamm, F. Hieke, M. Dell'Angela, S. de Jong, R. Kukreja, N. Gerasimova, V. Rybnikov, A. Al-Shemmary, H. Redlin, J. Raabe, A. Foehlich, H. A. Duerr, W. Wurth, D. Pescia, A. Vaterlaus, and Y. Acremann. Ultrafast reduction of the total magnetization in iron. *Appl. Phys. Lett.*, 104(3), 032402, JAN 20 2014.
- [149] A. K. Rajagopal and Mogus Mochena. Spin-orbit interactions in the many-body theory of magnetic electron systems. *Phys. Rev. B*, 57, 11582, May 1998.
- [150] R. J. Elliott. Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. *Phys. Rev.*, 96, 266, Oct 1954.
- [151] Y. Yafet. In F. Seitz and D. Turnbull, editors, *Solid State Physics*, volume 14, page 79. Academic, New York, 1963.
- [152] Leonard J. Brillson. *Appendix 6: Derivation of Fermi's Golden Rule*, pages 552–554. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2010.

-
- [153] J. Schilp, T. Kuhn, and G. Mahler. Electron-phonon quantum kinetics in pulse-excited semiconductors: Memory and renormalization effects. *Phys. Rev. B*, 50, 5435, Aug 1994.
- [154] Nicolas Teeny. Quantum Kinetic Theory for Demagnetization after Femtosecond Laser Pulses. Master's thesis, Max-Planck Institute for Intelligent Systems and University of Stuttgart, 2014.
- [155] H. J. Qin, Kh. Zakeri, A. Ernst, L. M. Sandratskii, P. Buczek, A. Marmorodoro, T. H. Chuang, Y. Zhang, and J. Kirschner. Long-living terahertz magnons in ultrathin metallic ferromagnets. *Nat. Commun.*, 6, 6126, JAN 2015.
- [156] Erlend G. Tveten, Arne Brataas, and Yaroslav Tserkovnyak. Electron-magnon scattering in magnetic heterostructures far out of equilibrium. *Phys. Rev. B*, 92, 180412, Nov 2015.
- [157] U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, J. Walowski, A. Mann, and M. Münzenberg. Evidence for thermal mechanisms in laser-induced femtosecond spin dynamics. *Phys. Rev. B*, 81, 174401, 2010.
- [158] Christian Illg. Ab-initio Elliott-Yafet modeling of ultrafast demagnetization after laser irradiation. Diplomarbeit, Max-Planck-Institut für Metallforschung Research und Universität Stuttgart, 2009.
- [159] Bernd Meyer. *Entwicklung eines neuen ab-initio mixed-basis-Pseudopotentialprogrammes und Untersuchung atomarer Fehlstellen in Molybdän und intermetallischen Verbindungen*. PhD thesis, Max-Planck Institute for Intelligent Systems and University of Stuttgart, 1998.

14 Publikationsliste

Während der Arbeit entstanden folgende Publikationen:

1. C. Illg, M., B. Y. Mueller, G. Czycholl, and M. Fähnle. Transition matrix elements for electron-phonon scattering: Phenomenological theory and ab initio electron theory. *Phys. Rev. B*, 92(19), 195109, NOV 5 2015.

2. M. Fähnle, C. Illg, M. Haag, and N. Teeny. Theory of Ultrafast Demagnetization after Femtosecond Laser Pulses. *Acta Phys. Pol. A*, 127(2), 170-175, FEB 2015. 14th European Conference on Physics of Magnetism (PM), Poznan, POLAND, JUN 23-27, 2014.
3. C. Illg, M. Haag, and M. Fähnle. Ultrafast demagnetization after laser pulse irradiation in Ni: Ab-initio electron-phonon scattering and phase space calculations. In Bigot, J. Y. and Hübner, W. and Rasing, T. and Chantrell, R., editors, *ULTRAFAST MAGNETISM I*, volume 159 of *Springer Proceedings in Physics*, pages 131-133, GEWERBESTRASSE 11, CHAM, CH-6330, SWITZERLAND, 2015. European Res Agency; French Minist Educ & Research; Natl Sci Res Ctr; Univ Strasbourg; Univ Kaiserslautern, SPRINGER INT PUBLISHING AG. Ultrafast Magnetization Conference, Strasbourg, FRANCE, OCT 28-NOV 01, 2013.
4. M. Haag, C. Illg, and M. Fähnle. Influence of magnetic fields on spin- mixing in transition metals. *Phys. Rev. B*, 90(13), 134410, OCT 14 2014.
5. M. Fähnle, M. Haag, and C. Illg. Is the angular momentum of a ferromagnetic sample after exposure to a fs laser pulse conserved? *J. Magn. Magn. Mater.*, 347, 45-46, DEC 2013.
6. M. Haag, C. Illg, and M. Fähnle. Role of electron-magnon scatterings in ultrafast demagnetization. *Phys. Rev. B*, 90(1), 014417, JUL 15 2014.
7. M. Haag, C. Illg, and M. Fähnle. Theory of scattering of crystal electrons at magnons. *Phys. Rev. B*, 87(21), 214427, JUN 28 2013.
8. Christian Illg, Michael Haag, Nicolas Teeny, Jens Wirth, and Manfred Fähnle. Physical and mathematical justification of the numerical Brillouin zone integration of the Boltzmann rate equation by Gaussian smearing. *J. Theor. Appl. Phys.*, online, not (yet) assigned to an issue, 1-6, 2015.
9. J. Briones, N. Teeny, B. Y. Mueller, M. Haag, and M. Fähnle. Ultrafast demagnetization after laser excitation of Ni: A quantum kinetical calculation. *Phys. Rev. B*, (submitted), 2015.

-
10. T. Tsatsoulis, C. Illg, M. Haag, B.Y. Mueller, L. Zhang, and M. Fähnle. Ultrafast Demagnetization after Femtosecond Laser Pulses: Transfer of Angular Momentum from the Electronic System to Magnetoelastic Spin-Phonon Modes. *Phys. Rev. Lett.*, (submitted), 2015.
 11. B. Y. Mueller, M. Haag, and M. Fähnle. Ab-initio theory for ultrafast magnetization dynamics with a dynamic band structure. *Phys. Rev. X*, (submitted), 2016.