

磁性纳米结构中由激光引起的超快自旋动力学研究*

李春^{1)†} 杨帆²⁾ Georgios Lefkidis³⁾ Wolfgang Hübner³⁾

1) (西北工业大学力学与土木建筑学院, 西安 710072)

2) (西北工业大学出版社, 西安 710072)

3) (凯泽斯劳滕工业大学物理系和 OPTMAS 研究中心, 凯泽斯劳滕 67653, 德国)

(2010年3月5日收到; 2010年5月5日收到修改稿)

以单个磁性中心的 NiO 以及由 Co 和 Ni 等元素构成的双磁性中心的纳米结构为例,总结了近年所做的主要工作. 为了在理论上实现磁性纳米结构中的超快自旋翻转和转移,提出了一种称为 Λ 进程 (Λ process) 的超快自旋转换机理. 在实际计算中,首先采用量子化学第一性原理计算得到磁性纳米结构中精确的隙间 d 电子态,然后考虑外加磁场和自旋轨道耦合分析磁性原子中的自旋局域化程度,最后引入激光脉冲项,研究在其作用下材料的自旋态经由 Λ 进程实现转换的时间历程. 研究结果表明自旋翻转和转移可以在线偏振光的作用下在亚皮秒的时间尺度内完成. 为了进一步实现对磁性分子自旋操控的检测和监控,采用附加于磁性中心上的 CO 分子对磁性分子进行标记. 计算得到的与自旋态相关的 C—O 键振动频率表明自旋操控可以较容易地经由红外光谱实验间接监控.

关键词: 超快自旋动力学, 第一性原理计算, Λ 进程, 磁性纳米结构

PACS: 78.20.Ls, 75.60.Jk, 75.75.+a

1. 引言

随着现代计算机和相关电子信息器件的飞速发展,对磁性存储设备的信息密度和读写速度的需求日益增长. 近 10 年来,磁性存储介质的存储密度不断增大,基于半导体的计算机中央处理器的时钟速度也提高了近两个数量级. 然而,当制造工艺技术不断提高,甚至达到或接近原子尺度时,材料的各种特性因尺度效应已经接近其物理极限. 因此,兼顾存储密度和运算速度,应用新概念对磁性存储技术进行改进,并设计可能的磁性中央处理器是未来发展的必然趋势.

在自旋电子学中,电子的自旋和电荷都可用于逻辑和存储操作,通过对自旋自由度的操控来实现逻辑运算可以极大地提高计算器件的信息密度和运算速度,具有重要的潜在应用前景^[1,2]. 这里包括两方面的问题:一方面是选择适合对自旋自由度进行操控的材料;另一方面就是选择合适的驱动方式使磁逻辑运算(实现运算的最小单位就是自旋的翻转或转移)达到超快(亚皮秒量级)的时间尺度.

激光脉冲可以满足应用所需的超快要求. 这种用激光改变磁性材料自旋状态的机理一经实验发现就引起了人们的广泛关注^[3,4]. 近年来应用超快光学脉冲操控物质自旋态的实验和理论预测也成为相关领域学者争先研究的课题之一^[5-9]. 自从光致磁化在铁磁体中被发现以来^[10,11],一些光驱动的自旋动力学机理相继被提出^[12,13]. 而且已经证实,超快电子-光子相互作用可以导致亚皮秒级的自旋动力学^[14,15]. 理论研究表明磁光响应的飞秒级弛豫源自交换相互作用和自旋轨道耦合(SOC)^[16]. 进而,实验已经证明电子激发可以非热能地控制磁性材料的自旋动力学和磁相^[17,18]. 激光引起的超快自旋重新定向也已在窄带反铁磁体和铁磁体中发现^[19,20]. 人们已经对原子和分子系统中的激光操控有了较深的理解,这进一步激发了人们在实际器件中应用这种机理的愿望. 因此,对非磁或磁性材料的体块、表面以及纳米结构中的电子和自旋动力学的研究近年来引起了国内外学者的关注^[21,22]. 然而,使用超快激光脉冲改变磁性材料自旋状态的机理一直缺少系统的理论研究,尤其是基于第一性原理的量子力学计算,这对从根本上理解这种磁光效

* 国家自然科学基金(批准号:11002109),西北工业大学基础研究基金(批准号:JC200935)和“翱翔之星”计划资助的课题.

† E-mail: lichun@nwpu.edu.cn

应进而与实验结合为相关材料和结构单元设计提供可靠的理论支持是非常必要的。

为了在理论上实现这种超快过程,我们提出了一种称作 Λ 进程(Λ process)的自旋转换机理(详见 2.1),并且已经证明由这种机理引起的超快自旋转换的时间尺度要小于普通半导体中的自旋动力学^[23,24]. 这一模型已经成功应用于单个磁性中心^[25-27]和双磁性中心^[28,29]的体系结构中,用于实现超快的自旋翻转和转移. 本文以上述工作为背景,首先详细介绍 Λ 进程的机理以及第一性原理计算模型的求解方法;进而针对单磁性中心的 NiO,以及由 Fe, Co, Ni 等元素构成的双磁性中心的纳米结构,系统地展示了经由 Λ 进程的自旋转换机理在实际材料中的实现过程与规律. 研究表明,基于 Λ 进程的自旋翻转或转移能够在亚皮秒的时间尺度内,在呈现自旋局域化的微小磁性体系中实现. 自旋翻转较易完成,而自旋转移目前仅能在非常有限的结构中实现,这也将是本文的后续工作需要解决的关键问题之一. 此外,通过为磁性纳米结构设计红外标记(如 CO 分子),可为实验中对材料自旋态的监控提供一种可行途径.

2. 理论方法和模型

一般来说,实空间和动量空间方法均可用来模拟本文涉及的磁性纳米结构,两者的主要差别是前者可以得到磁性离子局域化的隙间 d 电子态,这是我们在接下来的自旋动力学计算中所需要的. 因此,我们采用了不含经验参数的量子化学从头计算方法,这样不仅可以得到精确的能级,而且能得到体系的波函数. 本文中涉及的第一性原理计算均由 Gaussian^[30] 程序实现,在此基础上应用自编的程序计算相对论性效应和自旋翻转/转移过程中的时间历程.

2.1. Λ 进程

我们所说的 Λ 进程其实是被称为“Hübner 模型”的全光转换机理的进一步发展^[31]. Hübner 和他的同事起初提出了一种由相干激光场驱动的光学跃迁机理,这种跃迁是发生在铁磁体中的基态与严格定义的激发态之间的光学跃迁,且通过 SOC 作用实现激发态上的自旋翻转.

为了更好地理解这个模型的机理,我们以最简单的由激光脉冲关联的二能级量子体系为例解释

该模型的机理^[23]. 假设两个能级间隔为 $\Delta E_{10} \approx 1$ eV,并且激发态的寿命是无限长的. 在一个能量为 $\hbar\omega = \Delta E_{10}$ 的激光脉冲作用下,将发生从初始态 $|0\rangle$ 到激发态 $|1\rangle$ 的跃迁,并且在一定的激光作用时间及脉冲幅值下,激发态被电子完全占据. 此后,激光场又会激发电子逆向返回基态. 也就是说,在这个二能级量子系统中,跃迁将无休止地往复下去,体系的自旋态也不会发生改变.

进而,我们提出了如图 1 所示的 Λ 进程自旋转换机理. 图中 m_j 表示总角动量磁量子数,箭头所指方向为电子在右旋圆偏振光(σ_+)和左旋圆偏振光(σ_-)作用下的跃迁路径, $\hbar\omega$ 代表量子化的激光脉冲能量. 这里的初始态和最终态是通过外加磁场分离三重态得到的,因此二者之间的能量差由 Zeeman 效应确定,且从量子力学观点来看它们是不能同时被占据的. 假设在激光作用以前,初始态被自旋向下的电子占据(如图 1 所示),这些电子在一定激光脉冲作用下首先跃迁到一个自旋混合的激发态(理想情况下其总角动量磁量子数为零),然后继续在激光的作用下发生跃迁,使最终态由自旋向上的电子完全占据,完成整个自旋翻转过程,反之亦然. 应该注意的是,图中所示的中间态是通过 SOC 作用形成的自旋混合态,这样才有可能使其与两个基态之间都可发生跃迁.

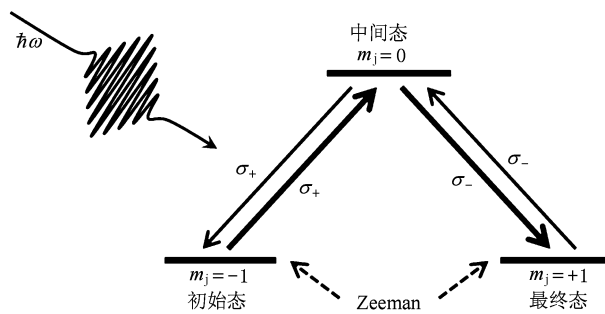


图 1 Λ 进程示意图

2.2. 理论模型及求解

无外场及激光脉冲场时,磁性材料的哈密顿算子如下:

$$\hat{H}^{(0)} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N_{el}} \nabla^2 - \sum_{i=1}^{N_{el}} \sum_{a=1}^{N_{at}} \frac{Z_a}{|\mathbf{R}_a - \mathbf{r}_i|} + \sum_{i=1}^{N_{el}} \sum_{j=1}^{N_{el}} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_{a=1}^{N_{at}} \sum_{b=1}^{N_{at}} \frac{Z_a Z_b}{|\mathbf{R}_a - \mathbf{R}_b|}, \quad (1)$$

其中, N_{el} 和 N_{at} 分别代表电子和原子的数目, \mathbf{r}_i 和 \mathbf{R}_a 分别表示电子和原子的位置矢量, Z_a 是核电荷数. 方程(1)右边第三项为电子之间的相互作用, 在求解无扰动态的波函数时要仔细处理. 我们使用基于量子化学 Gaussian 软件的 Hartree-Fock (HF) 方法及可精确计算分子激发态的更高级的后 HF 算法, 如对称自适应团簇组态相互作用 (SAC-CI) 方法^[32] 来求解电子波函数. 以该波函数为基, 实现哈密顿量及相应薛定谔方程的矩阵化.

当外加一个磁场时, 同时考虑 SOC 作用, 相应的哈密顿量为

$$\hat{H}^{(1)} = \sum_{i=1}^{N_{el}} \frac{Z_a^{eff}}{2c^2 R_i^3} \hat{\mathbf{L}} \cdot \hat{\mathbf{S}} + \sum_{i=1}^{N_{el}} \mu_L \hat{\mathbf{L}} \cdot \mathbf{B} + \sum_{i=1}^{N_{el}} \mu_S \hat{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{B}, \quad (2)$$

式中右边第一项即 SOC 项, 这里的 Z_a^{eff} 为有效核电荷数, $\hat{\mathbf{L}}$ 和 $\hat{\mathbf{S}}$ 分别是轨道和自旋角动量算子, μ_L 和 μ_S 分别为它们二者的旋磁比, \mathbf{B} 代表外加磁场, c 代表光速. 应该注意的是, 在这里还可以再加上电子-声子耦合项来考虑体系中声子对自旋转换机理的影响, 具体请参考文献[26]和[28].

激光脉冲的作用可通过引入含时的激光矢量势 $\mathbf{A}_{laser}(t)$ 来实现, 相应的哈密顿量为

$$\hat{H}^{(2)}(t) = \mathbf{p}^{(0+1)} \cdot \mathbf{A}_{laser}(t) + \hat{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{B}_{laser}(t), \quad (3)$$

其中, $\mathbf{p}^{(0+1)}$ 代表由第二步计算得到的电子动量, 上标(0+1)表示激光脉冲作用于前两步求解静态哈密顿量 $\hat{H}^{(0)}$ 和 $\hat{H}^{(1)}$ 的基础上, $\mathbf{B}_{laser}(t)$ 则表示激光脉冲的磁场. 最后, 通过含时的微扰理论求解如下薛定谔方程:

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = \hat{H}^{(2)}(t) |\Psi(t)\rangle. \quad (4)$$

这样就完成了对磁性纳米结构中由激光引起的电子激发自旋动力学过程的第一性原理描述. 通过对 Λ 进程中初始态、最终态和中间态的适当选择, 体系的自旋就可以在此理论框架下实现翻转或者转移.

3. 结果与讨论

3.1. NiO 中的超快自旋翻转

根据 Λ 进程超快自旋转换机理, 为了实现整个自旋转换过程, 至少需要以下几个能态: 两个几乎简并的纯自旋态作为发生自旋翻转的基态, 还有通过一定自旋混合机理(如 SOC)形成的激发态, 用来

构成 Λ 进程的中间态, 也就是同时具有两种自旋状态的非纯自旋态. 在激光的作用下, 电子可在这个中间态和上述两个基态间发生跃迁. 这就是激光脉冲作用下实现超快自旋翻转的机理. 下面, 我们介绍在实际材料中应用的例子.

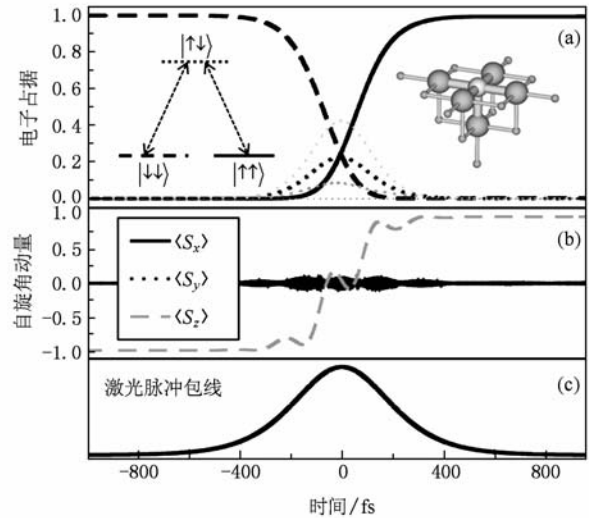


图2 NiO (001) 面 (NiO_5^{-8}) 在激光作用下的自旋翻转过程 (a) 自旋翻转涉及各能态随时间变化的占据情况, 插图是 Λ 进程示意图和 NiO 表面模型; (b) 自旋角动量分量的期望值变化; (c) 实现自旋转换所用激光脉冲包线

对单个磁性中心的情况, 我们分别研究了 NiO 表面和体块两种情况下的自旋转换. 对于自旋密度高、具有反铁磁序的 NiO 来说, 非线性光学是对其进行研究的理想工具. 为了检测和监控 NiO 的自旋动力学, 我们建立了一种系统的方法研究 NiO 材料中的光学二次谐波产生, 解释了为什么具有中心对称结构的 NiO 仍可产生二次谐波信号, 详见参考文献[33]和[34], 本文不再赘述. NiO 模型采用双重填充的团簇结构, 分别用 NiO_5^{-8} 和 NiO_5^{-10} 来研究表面和体块. 团簇先由一层等效核势 (ECP) 包围, 用来模拟紧邻 Ni 离子的静电作用, 如图 2(a) 中插图所示, 然后整个结构外部再用点电荷场进行二次填充, 用来描述周围的马德隆势.

根据 Λ 进程自旋转换机理, 为了完成自旋翻转, 必须选择一个合适的具有混合自旋态的激发态作为中间态. 多种不同情况的计算分析表明, 要实现高效的自旋转换, 须满足从两个基态到激发态的跃迁矩阵单元的绝对值相当. 图 2 所示为 NiO(001) 面在激光作用下的自旋转换过程. 图 2(a) 中的粗虚线和粗实线分别代表自旋转换的初始态和最终态, 也就是 Λ 进程中先后被不同自旋态电子占据的两

个基态,点虚线代表自旋混合的激发态,即 Λ 进程中的中间态.从图2(b)自旋分量期望值变化的时间历程可以很清楚地看出这种由激光引起的自旋转换过程.在计算中外加磁场垂直于 NiO 表面,激光的极化方向与表面平行.我们发现使用线偏振光可以实现最优的自旋转换过程,且激光的传播方向与外加磁场平行,这与 Koopmans 等的实验研究结果是一致的^[35].需要说明的是,使用圆偏振光仅可以打通 Λ 进程中如图 1(b)所示的一条路径,也就是说只允许 $m_j = -1$ 和 $m_j = 0$ 之间(右旋圆偏振光)或 $m_j = 0$ 和 $m_j = +1$ 之间(左旋圆偏振光)发生跃迁,而使用线偏振光(也就是左右旋圆偏振光的叠加)则可以选择性地控制其跃迁路径,从而实现从具有一种自旋态的初始基态(如 $m_j = -1$)经由自旋混合的激发态($m_j = 0$)最终到达自旋方向与初始态相反的另一个基态($m_j = +1$).

3.2. 双磁性中心结构 A-B (A, B = Ni, Co, Fe)

以上针对 NiO 的研究仅涉及到一个磁性中心(Ni)的情况,这对于未来磁性逻辑器件的应用来说是远远不够的.为了实现多功能的逻辑运算和超快的信息存储,不仅需要自旋翻转,更重要的是能够操控自旋器件中自旋的转移.也就是说最理想的情况是自旋的翻转和转移能在同一个结构单元内实现.这就要求在材料的选择和设计上必须考虑具有多个磁性中心的结构.

小的磁性团簇很可能将是构成新一代自旋逻辑器件的基本单位,这是由于其较高的自旋密度和

窄带电子结构,为实现相干自旋操控提供了可能.本文涉及的双磁性中心结构具有上述特点,且均为实验中可合成的磁性纳米团簇.我们先从由 Ni, Co, Fe 等磁性元素构成的 A-B 型的二聚物结构开始研究.这些微小磁性团簇可以通过基体沉淀方法合成(中性的)或由气相混合选择得到(带电的).使用 SAC-CI 方法计算可以得到这些结构的能级.这种方法是后 HF 方法中精度和计算成本都很高的一种方法,其实现主要是通过为多个多体激发态的构型相互作用建立适当的叠加,因此对描述磁性体系中需要考虑的关联作用尤为合适.由于我们主要考虑磁性基态,也就是三重态,因此对体系总电子数不是偶数的结构(Ni-Co 和 Co-Fe)分别加了一个单位电荷,以便使它们的总电子数为偶数.

为节省篇幅,本文仅对由 Ni, Co 两种元素组成的不同结构进行讨论.表 1 中列出了计算得到的由 Ni 和 Co 两种元素组成的 3 种不同结构的自旋密度分布,按能量从低到高的次序列出了前 5 个三重态的情况.从表中很明显看出,对于由相同元素构成的结构(Ni-Ni 和 Co-Co),自旋密度是对等分布在两个原子上的,自旋向上或自旋向下的电子态没有局域化于某个原子上,因此只能允许整体上的自旋翻转.然而对于由不同元素构成的结构($[\text{Ni-Co}]^+$),它的结构不再是完全对称的,因此计算得到的自旋密度也出现了很明显的局域化.在这种情况下,通过我们专门为其开发的遗传算法程序^[36],选择合适的初始态、最终态和中间态,同时对激光参数进行优化,就可以在自旋局域化的原子上实现自旋翻转.

表 1 计算得到的一些结构的前 5 个能量最低的三重态的自旋密度分布

结构	原子	三重态 1	三重态 2	三重态 3	三重态 4	三重态 5
Ni-Ni	Ni1	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
	Ni2	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
Co-Co	Co1	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
	Co2	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
$[\text{Ni-Co}]^+$	Ni	1.924	1.015	1.924	0.025	1.014
	Co	0.076	0.985	0.076	1.975	0.986
Ni-Ni-CO	Ni1	1.028	1.001	0.981	0.999	0.794
	Ni2	1.028	1.002	0.981	0.999	0.794
Co-Co-CO	Co1	1.961	0.033	1.689	0.011	0.052
	Co2	0.028	1.940	0.297	1.943	1.880
$[\text{Ni-Co-CO}]^+$	Ni	0.060	1.915	1.753	0.129	1.988
	Co	1.945	0.073	0.236	1.853	-0.010

3.3. 磁性分子的红外标记

尽管使用理论方法可以较容易地计算材料的自旋状态和自旋密度,但在实验中对体系的自旋态进行监控却一直是个难题.目前对材料表面的自旋检测只能通过磁扫描隧道显微镜在特殊的分辨率下完成.然而,在理论上对磁性材料与结构的设计有可能使这些自旋态变得“可见”.这里我们以 CO 分子作为磁性纳米结构自旋态的一个标记,也就是说,使一个 CO 分子附着在磁性纳米结构的一个磁性原子上,这样整个磁性体系的电子结构不会发生很大的变化,同时对结构对称性的破坏有利于实现自旋局域化.这时,如果 CO 分子的 C—O 键振动频率是与整个分子的自旋状态相关的,则在实验中就可以较容易地通过获得的 CO 分子的红外光谱来间接实现对材料自旋状态的监控.

我们主要对以 Ni 和 Co 为双磁性中心的纳米结构进行了附加 CO 分子的研究.对于 Ni-Ni 和 Co-Co 两种结构,如表 1 所示,没有 CO 附着的时候其自旋密度在两个相同的元素上是完全一致的.而当我们分别对其附加一个 CO 分子以后,计算得到的自旋密度分布出现了明显的变化.在 Ni-Ni-CO 结构中,两个 Ni 原子的自旋密度值是完全一致的,而在 Co-Co-CO 中,自旋密度在两个 Co 原子上的分布产生了明显的局域化.这说明 CO 分子的附着并没有从根本上改变 Ni-Ni 自旋密度对等分布的特点,从而不适合本文介绍的自旋转换过程.因此在这两种结构中我们在 Co-Co-CO 中实现了自旋翻转.

表 2 计算得到的不同自旋态对应的 C—O 振动频率及 C—O 键长

结构	三重态	C—O 键长/ Å	C—O 频率/ cm ⁻¹	自旋局域化
[Ni-Co-CO] ⁺	1	1.1518	2252	Co
	3	1.1509	2257	Ni
	5	1.1514	2208	Ni
[Co-Ni-CO] ⁺	1	1.1532	2149	Ni
	3	1.1545	2363	Co
	5	1.1518	2160	—

对于 [Ni-Co]⁺, CO 分子的附着有两种可能,即与 Ni 或 Co 成键,我们分别对这两种情况进行了计算.首先需要对结构进行几何优化, [Co-Ni-CO]⁺ 和 [Ni-Co-CO]⁺ 两种结构在优化后都是接近线性的,

如图 3 顶部插图所示.二者的总能差别也不是很大,说明这两种结构在制备过程中都是有可能形成的.为了精确预测 C—O 键长及其对应的振动频率,几何优化过程是在已经优化好的 [Ni-Co]⁺ 结构的基础上分两步完成的.首先对附着 CO 分子后的结构用 HF 方法重新进行进行结构优化,这与没有附着 CO 前的结构优化过程是类似的.第二步是在前一步优化的基础上,使用 SAC-CI 方法对整个结构,尤其是 CO 局部结构进行高精度的优化,这样就可以得到不同自旋态所对应的不同的 C—O 键长,如表 2 所示,同时表中也列出了不同 C—O 键长对应的振动频率.从这些结果可以看出,不同自旋态对应的不同 C—O 振动频率之间的差别在实验中是可以分辨的,这就为实验检测材料的自旋态提供了一种可能.

以 [Ni-Co-CO]⁺ 为例,不同的自旋态对应着不同的 C—O 键长,同时也对应着不同的 C—O 键振动频率.从表 2 最后一栏可以看出,自旋态 3 和 5 的自旋主要集中于 Ni 原子,而自旋态 1 则局域化于 Co 原子上,通过对 Λ 进程中基态和中间态的合理选择,以及对激光脉冲的参数优化,就有可能实现自旋在单个磁性原子上的翻转和不同磁性原子之间的转移.

我们通过 Λ 进程实现了 [Ni-Co-CO]⁺ 中自旋在 Co 原子上的翻转和自旋从 Ni 原子到 Co 原子的转移^[28].图 3 中分别显示了在激光作用下,自旋在 Co 原子上的由下而上的翻转和自旋从 Ni 原子到 Co 原子的转移.以图 3(a) 的自旋翻转为例,顶部插图为结构优化后的分子构型和自旋翻转的示意图,曲线图上半部分显示的是参与自旋翻转过程的各个能态的占据情况随时间的演化历程,深色虚线和实线分别代表发生自旋翻转的初始态和最终态,其变化趋势表明在激光脉冲作用下,局域化于 Co 原子中的电子实现了由下到上的自旋翻转.其他浅色点虚线表示参与整个自旋翻转过程的其他激发态(Λ 进程中的中间态).图的下半部分给出了自旋角动量不同方向分量的期望值随时间变化的结果,从中明显可以看出 y 方向的自旋角动量分量在整个过程后发生了翻转.图 3(b) 自旋转移过程的实现原理和图 3(a) 类似,所不同的是在我们研究的这种情况下,自旋转移的实现仅涉及到一个自旋混合的激发态,而自旋翻转过程包含了多个不同的激发态.但这并不影响 Λ 进程在亚皮秒的时间尺度内完成.

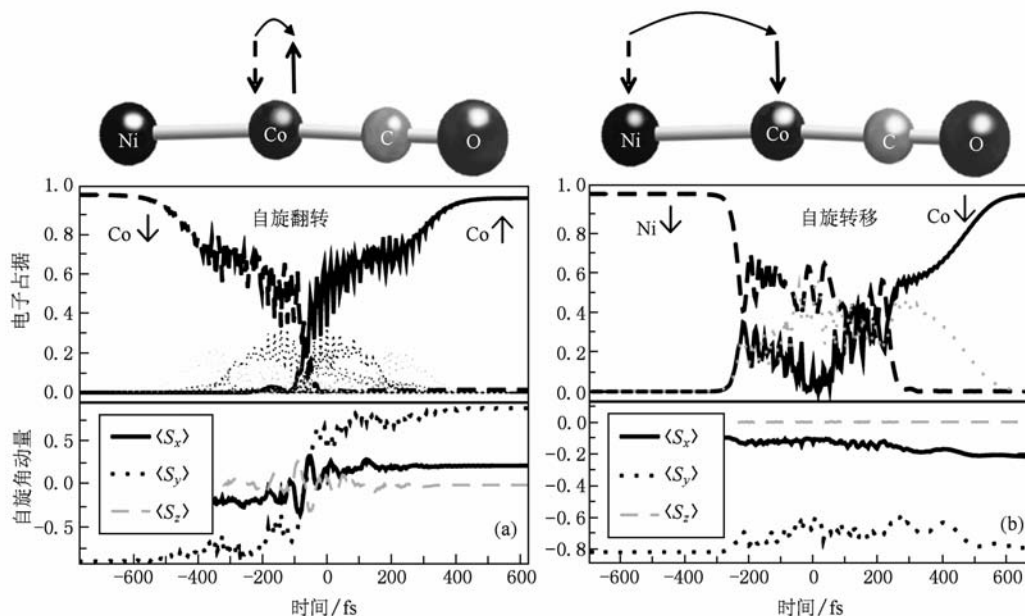


图3 激光作用下 $[\text{Ni-Co-CO}]^+$ 中的自旋翻转和转移(顶部插图为结构优化后的分子构型以及自旋翻转和转移的示意图) (a)Co原子上的自旋翻转;(b)从Ni原子到Co原子的自旋转移

4. 总结与展望

本文以单磁性中心的NiO材料和双磁性中心的A-B型磁性团簇为例,系统介绍了应用第一性原理计算,经由我们提出的 Λ 进程,研究磁性纳米结构中超快自旋动力学的新方法.此方法将第一原理量子化学计算和考虑相对论效应的含时哈密顿量的求解相结合,并应用自己开发的程序考虑外加磁场和SOC作用,同时对激光参数进行优化,可以很好的应用于由激光引起的磁性纳米结构中的超快自旋翻转/转移研究.此外,磁性分子红外标记的引入为实验监控材料的自旋态和自旋操控提供了新的思路.

到目前为止,我们应用此方法已经成功实现了多个磁性纳米结构中的自旋翻转,以及个别结构中不同磁性原子间的自旋转移,且转移率很高,整个过程的时间尺度均在亚皮秒量级.然而我们在研究中也发现,自旋转移的实现还是有一定的难度,而这一点可能正是未来自旋逻辑器件应用中很关键的问题^[37].因此,进一步的研究需要对磁性纳米材料和结构进行优化设计,分析结构中可能影响材料自旋转移能力的因素,找到一般规律,为未来自旋器件的实际应用提供切实可行的理论依据.

感谢陕西师范大学物理学与信息技术学院屈世显教授的讨论与建议.

- [1] Xia J, Ge W, Chang K 2008 *Semiconductor Spintronics* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [夏建白、葛惟昆、常凯 2008 半导体自旋电子学(北京:科学出版社)]
- [2] Zhan W S 2006 *Physics* **35** 811 (in Chinese) [詹文山 2006 物理 **35** 811]
- [3] Berezovsky J, Mikkelsen M H, Stoltz N G, Coldren L A, Awschalom D D 2008 *Science* **320** 349
- [4] Zhang G P, Hübner W, Lefkidis G, Bai Y, George T F 2009 *Nature Physics* **5** 499
- [5] Koopmans B, Malinowski G, Dalla Longa F, Steiauf D, Fahnle M, Roth T, Cinchetti M, Aeschlimann M 2010 *Nature Mater.* **9** 259
- [6] Guo L J, Wüstenberg J P, Oleksiy A, Bauer M, Aeschlimann M 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3200 (in Chinese) [郭立俊、Jan-Peter Wüstenberg、Andreyev Oleksiy、Michael Bauer、Martin Aeschlimann 2005 物理学报 **54** 3200]
- [7] He W, Zhan Q F, Wang D Y, Chen L J, Cheng Z H 2008 *Chin. Phys. B* **17** 1902
- [8] Liu X D, Wang W Z, Gao R X, Zhao J H, Wen J H, Lin W Z, Lai T S 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 3857 (in Chinese) [刘晓东、王玮竹、高瑞鑫、赵建华、文锦辉、林位株、赖天树 2008 物理学报 **57** 3857]

- [9] Gao R X, Xu Z, Chen D X, Xu C D, Chen Z F, Liu X D, Zhou S M, Lai T S 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 0580 (in Chinese) [高瑞鑫、徐振、陈达鑫、徐初东、陈志峰、刘晓东、周仕明、赖天树 2009 物理学报 **58** 0580]
- [10] Beaurepaire E, Merle J C, Daunois A, Bigot J Y 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4250
- [11] Hohlfeld J, Matthias E, Knorren R, Bennemann K H 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 4861
- [12] Koopmans B, Ruigrok J J M, Dalla Longa F, de Jonge W J M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 267207
- [13] Chovan J, Kavousanaki E G, Perakis I E 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 057402
- [14] Zhang G P, Hübner W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3025
- [15] Gómez-Abal R, Ney O, Satitkovitchai K, Hübner W 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 227402
- [16] Hübner W, Zhang G P 1998 *Phys. Rev. B* **58** R5920
- [17] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, Pisarev R V, Balashov A M, Rasing Th 2005 *Nature* **435** 655
- [18] Lottermoser T, Lonkai T, Amann U, Hohlwein D, Ihringer J, Fiebig M 2004 *Nature* **430** 541
- [19] Stamm C, Kachel T, Pontius N, Mitzner R, Quast T, Holldack K, Khan S, Lupulescu C, Aziz E F, Wietstruk M, Dürr H A, Eberhardt W 2007 *Nature Mater.* **6** 740
- [20] Pontius N, Bechthold P S, Neeb M, Eberhardt W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 1132
- [21] Wu M W, Weng M Q, Cheng J L 2007 *Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting 2007* edited by Borisenko V E, Gurin V S, Gaponenko S V (Singapore: World Scientific Publishing Company) p14
- [22] Han X F 2008 *Physics* **37** 392 (in Chinese) [韩秀峰 2008 物理 **37** 392]
- [23] Gómez-Abal R, Hübner W 2002 *Phys. Rev. B* **65** 195114
- [24] Gómez-Abal R, Hübner W 2003 *J. Phys. : Condens. Matter* **15** S709
- [25] Lefkidis G, Hübner W 2007 *Phys. Rev. B* **76** 014418
- [26] Lefkidis G, Hübner W 2009 *J. Magn. Magn. Mater.* **321** 979
- [27] Lefkidis G, Zhang G P, Hübner W 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 217401
- [28] Li C, Hartenstein T, Lefkidis G, Hübner W 2009 *Phys. Rev. B* **79** 180413 (R)
- [29] Hartenstein T, Lefkidis G, Hübner W, Zhang G P, Bai Y 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 07D305
- [30] Frisch M J 2004 Gaussian 03, Revision B. 03 (Wallingford: Gaussian Inc.)
- [31] Stohr J, Siegmann H C 2006 *Magnetism-From Fundamentals to Nanoscale Dynamics* (Berlin Heidelberg: Springer-Verlag) p753
- [32] Nakatsuji H <http://www.sbchem.kyoto-u.ac.jp/nakatsuji-lab/sacci.html>
- [33] Lefkidis G, Hübner W 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 077401
- [34] Lefkidis G, Hübner W 2006 *Phys. Rev. B* **74** 155106
- [35] Dalla Longa F, Kohlhepp J T, de Jonge W J M, Koopmans B 2007 *Phys. Rev. B* **75** 224431
- [36] Hartenstein T, Li C, Lefkidis G, Hübner W 2008 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** 164006
- [37] Hübner W, Kersten S P, Lefkidis G 2009 *Phys. Rev. B* **79** 184431

Laser-induced ultrafast spin dynamics research on magnetic nanostructures*

Li Chun^{1)†} Yang Fan²⁾ Georgios Lefkidis³⁾ Wolfgang Hübner³⁾

1) (School of Mechanics, Civil Engineering and Architecture, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

2) (Northwestern Polytechnical University Press, Xi'an 710072, China)

3) (Department of Physics and Research Center OPTIMAS, Kaiserslautern University of Technology, 67653 Kaiserslautern, Germany)

(Received 5 March 2010; revised manuscript received 5 May 2010)

Abstract

In this paper, taking one-magnetic-center NiO and two-magnetic-center nanostructures composed of Co and Ni as examples, we review our recent works in this field. To theoretically achieve ultrafast spin flip and transfer in magnetic nanostructures, an ultrafast spin dynamics mechanism, namely Λ process, was proposed. To properly simulate the laser-matter interaction, the accurate intragap d-states were predicted firstly through quantum chemistry calculations; then the spin localizations on magnetic atoms were analyzed considering external magnetic field and spin-orbit coupling; at last, laser pulse term was turned on to study the time history of the spin switching scenario via the Λ process. It was shown that spin flip and transfer can be achieved in a subpicosecond regime with linearly polarized light. In order to further realize checking and monitoring of the spin manipulations in magnetic molecules, a CO molecule was attached to one magnetic center to serve as an infrared marker. The calculated spin-state-dependent C-O stretching frequencies indicate that spin manipulations can be indirectly monitored through infrared spectrum experiments.

Keywords: ultrafast spin dynamics, first-principles calculations, Λ process, magnetic nanostructures

PACS: 78.20.Ls, 75.60.Jk, 75.75.+a

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11002109), the Fundamental Research Fund (Grant No. JC200935) and the Ao-Xiang Star Project of Northwestern Polytechnical University.

† E-mail: lichun@nwpu.edu.cn