

磁性体系中热导的非平衡态计算方法

孙纬地, 徐 贵*

中国工程物理研究院研究生院 北京

【摘要】磁性绝缘体中热传导机制在自旋电子学与自旋热电子学中具有重要应用价值。近年研究发现,磁振子对热导率的贡献在铁磁与反铁磁材料中不可忽视,传统声子热导模型难以全面解释实验现象。本文在自旋动力学框架下,基于海森堡模型发展了适用于纯自旋体系的热流计算方法。我们首次推导出自旋构型驱动下非平衡稳态中的界面热流表达式,并结合郎之万自旋热浴机制,开发了能量追踪模块以验证公式准确性。本研究将热导频谱分析方法扩展至自旋动力学系统,为理解磁性材料中自旋激发对热运输的贡献提供了理论工具,也为今后磁性材料热导率的理论预测与实验对比建立新方法基础。

【关键词】磁性材料; 自旋动力学; 非平衡态模拟; 界面热流计算

【收稿日期】2024年11月8日

【出刊日期】2024年12月20日

【DOI】10.12208/j.pstr.20240009

Calculation methods for thermal conductivity in non-equilibrium magnetic systems

Weidi Sun, Ben Xu*

Graduate School, China Academy of Engineering Physics, Beijing

【Abstract】 Thermal transport in magnetic insulators plays a crucial role in spintronics and spin caloritronics. While magnon contributions to thermal conductivity are significant in both ferromagnetic and antiferromagnetic materials, conventional phonon-based models remain insufficient. Here, we develop a spin-dependent heat current formalism within the Heisenberg model framework. We derive, for the first time, the interfacial heat flux expression under spin-driven nonequilibrium steady states, validated through Langevin spin dynamics with an energy-tracking scheme. Our work extends spectral thermal analysis to spin systems, providing both a theoretical tool for understanding spin-mediated thermal transport and a new methodology for predicting magnetic material thermal conductivity.

【Keywords】 Magnetic materials; Spin dynamics; Nonequilibrium simulation; Interfacial heat flux

1 介绍

对绝缘磁性材料中热传导机制的深入理解,对于其在自旋电子学与自旋热电子学领域的应用至关重要。在这些应用中,热导率作为调控热流速率与效率的关键参数,是最重要的物性指标之一。现代理论研究表明,铁磁(ferromagnet)与反铁磁(antiferromagnet)绝缘体中的热传导不仅由声子-晶格集体振动主导,还受到磁振子(磁系统的自旋波激发)影响。针对体心立方(BCC)铁^[1,2]与面心立方(FCC)镍^[3]等材料的实验证实,仅考虑声子理论模型无法完整描述某些

磁性材料的热导特性。因此,建立一种能够同时表征磁性材料中晶格振动与自旋波特征的热导率分析方法,对沟通理论与实验具有重要意义。

近年来,针对非磁性材料已发展出多种计算总热导率及其频谱分解的计算方法,频谱解析分析可揭示不同频率的集体激发对热运输的贡献机制,以及各类散射过程对这些贡献的调制作用。例如在分子动力学(Molecular Dynamics)中频谱热流方法可用于计算以声子为唯一热载体的晶格体系热导率及其频谱分解。然而此方法无法直接适用于引入自旋

第一作者简介: 孙纬地(1995-)男,汉族,黑龙江黑河市人,硕士在读,单位:中国工程物理研究院研究生院,研究方向:磁性材料热运输。

*通讯作者: 徐贵

自由度的磁性体系, 这促使研究者尝试改进计算方法以适合磁性体系热学性质计算。

在分子动力学模拟框架下, Tranchida 等人发展了自旋-晶格耦合分子动力学方法的通用实现方案^[4], 其中基于 LLG 方程构建了包含自旋变量的运动方程。基于该方法, Zhou 等^[5]与 Ge 等^[6]分别计算了 BCC 铁和 Co-Cu 界面的自旋与晶格热导率。由此自然引申出将晶格体系频谱热导率计算方法类比应用于磁性体系的思路。

本研究聚焦于开发在仅含自旋自由度的自旋动力学 (SD) 模拟中的热流计算方法, 以实现铁磁与反铁磁体系自旋热导率的频谱解析计算。为此, 我们推导非平衡自旋动力学模拟中海森堡哈密顿量下, 由瞬时自旋构型表示的界面热流表达式——这是后续磁性体系频谱热流计算的关键步骤。通过稳态条件下非平衡体系输入热流与任一时刻任一界面中热流的对比验证, 我们将严格检验这些公式的正确性。

2 方法

为简化研究, 我们仅考虑存在海森堡交换相互作用的纯自旋体系, 其哈密顿量为:

$$H_{ex} = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J(r_{ij}) \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j. \quad (1)$$

交换作用常数 $J(r_{ij})$ 满足 Bethe-Slater Curve $J(r_{ij}) =$

$$4a \left(\frac{r_{ij}}{d} \right)^2 \left(1 - b \left(\frac{r_{ij}}{d} \right)^2 \right) e^{-\left(\frac{r_{ij}}{d} \right)^2} \Theta(R_c - r_{ij}) \quad (2)$$

其中参数 a, b, d 和截断距离 R_c 通过拟合实际材料第一性原理计算结果确定。由于纯自旋体系中原子位置固定, 后文将 $J(r_{ij})$ 简记为 J_{ij} 。

2.1 非平衡自旋动力学模拟中界面热流计算公式

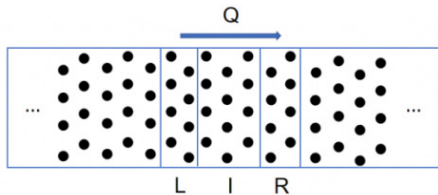


图1 非平衡自旋动力学模拟示意图

其中 L、I、R 分别代表体系中近邻的三个区域, 在体系两端施加 Langevin/spin 热浴从而在三个区域的界面处形成稳定的热流。

如图 1 所示, 假设一纯自旋体系中存在向右稳

定的热流, 其处在非平衡稳态。为计算区域 L 与区域 I 或区域 R 与区域 I 界面上的热流, 我们首先计算区域 I 中所有粒子的总能量 E_I :

$$E_I = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j \quad (3)$$

其中原子 $i, j \in I, i \neq j$ 。之后对 E_I 求导, 由于纯自旋体系中 J_{ij} 不随时间变化, 我们可以得到:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} E_I &= -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} \left(\frac{d\vec{s}_i}{dt} \cdot \vec{s}_j + \frac{d\vec{s}_j}{dt} \cdot \vec{s}_i \right) \\ &= -\sum_{i,j} J_{ij} \left(\frac{d\vec{s}_i}{dt} \cdot \vec{s}_j \right). \end{aligned} \quad (4)$$

自旋自由度运动方程^[7]为:

$$\begin{aligned} \frac{d\vec{s}_i}{dt} &= \vec{\omega}_i \times \vec{s}_i = \left(\frac{1}{\hbar} \sum_{i'}^{neighbor} J_{ii'} \vec{s}_{i'} \right) \times \vec{s}_i \\ &= \frac{1}{\hbar} \left(\sum_l J_{il} \vec{s}_l + \sum_k J_{ik} \vec{s}_k + \sum_r J_{ir} \vec{s}_r \right) \times \vec{s}_i \end{aligned} \quad (5)$$

其中原子 i' 是原子 i 的相邻原子, 原子 l, k 和 r 分别代表区域 L, I, R 中的原子。其中用符号 k 来表示为防止混淆。然后将 Eq.4 带入 Eq.5 中得:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} E_I &= -\frac{1}{\hbar} \sum_{i,j} J_{ij} \\ &\quad \left(\left(\sum_l J_{il} \vec{s}_l + \sum_k J_{ik} \vec{s}_k + \sum_r J_{ir} \vec{s}_r \right) \times \vec{s}_i \right) \cdot \vec{s}_j \end{aligned} \quad (6)$$

式 6 中右侧的求和包含三项, 其中部分项可进行简化处理。首先, 第二项因包含所有 $(\vec{s}_i \times \vec{s}_k) \cdot \vec{s}_j$ 排列组合而相互抵消, 该项为零。其次, 当系统处于稳态时, $\frac{d}{dt} E_I$ 时间平均值为零, 这意味着式 6 中第一项与第三项的时间平均值之和也必须为零。因此, 由于区域 L 中原子的存在, 区域 I 中原子能量增加速率时间平均值即为式 6 中右侧第一项:

$$Q = \left\langle -\frac{1}{\hbar} \sum_{i,j} \sum_l J_{ij} J_{il} (\vec{s}_l \times \vec{s}_i) \cdot \vec{s}_j \right\rangle \quad (7)$$

所以式 7 也为自旋体系界面热流表达式。

2.2 自旋热流计算公式的正确性验证

为验证所推导公式正确性, 我们基于开源 LAMMPS 软件的 SPIN 模块进行了自旋动力学模拟, 以计算非平衡自旋体系热流。当系统达到稳态时, 由公式 7 计算的界面热流 Q 应当等于通过

Langevin/spin 热浴区域的热流 (Q_{hot} 和 Q_{cold})。然而, 与晶格体系中 Langevin 热浴不同, LAMMPS 无法直接输出自旋热浴施加的 Q_{hot} 或 Q_{cold} 。虽然 S.Nikolov 等人在其研究中实现了该统计功能^[8], 但未披露具体细节。为此, 我们自主修改了 LAMMPS 自旋 (spin) 包的源代码, 使 Langevin/spin 热浴能够逐时间步输出进入或离开热浴区域的能量。

为验证修改后代码可靠性, 我们构建了 $2 \times 2 \times 2$ 个元胞的 BCC 铁晶格的测试体系: 设置 Langevin/spin 热浴(目标 $T_s = 10K$)与 nve/spin 系综, 初始条件为全平行自旋态 ($T_s = 0K$)。通过追踪升温过程中每个时间步添加的磁性能 $E_{langevin}$, 将其与体系总磁能变化做对比, 确认代码正确性。

进一步, 为检验式 7, 我们建立 $2 \times 2 \times 30$ 个元胞的 BCC 铁晶格非平衡态自旋动力学模拟体系, 重点验证箱体中心附近任意界面处计算的热流是否与经过位于两端热浴的热流 Q_{hot} 或 Q_{cold} 相等。晶格常数设为 2.8645 (该参数仅影响非 J_{ij} 的取值)。为降低计算成本, 仅考虑最近邻相互作用, 相应地将截断半径 RC 设为 2.6。通过调节系数 a 的正负值 ($a > 0$ 为铁磁态, $a < 0$ 为反铁磁态) 研究不同磁有序状态, 并取 $b = 0.2171$ 、 $d = 1.841$ 。边界条件设置为 x 、 y 方向周期性边界, 而沿能量传输方向 (z 方向) 采用非周期性 shrink-wrapped 边界。Langevin/spin 热浴的阻尼常数设为 0.01。按照 LAMMPS 自旋动力学模拟要求, 对所有原子施加自旋自由度的微正则 (NVE) 系综。对于铁磁体系, 初始时刻所有自旋矢量均沿 z 方向取向, 磁矩大小设为 2.2 玻尔磁子; 反铁磁体系则采用相同磁矩大小但随机取向的初始配置。当系统建立稳态温度梯度后, 继续模拟 100 ps 以采集足够数据。所有模拟的时间步长均设为 0.5 fs。

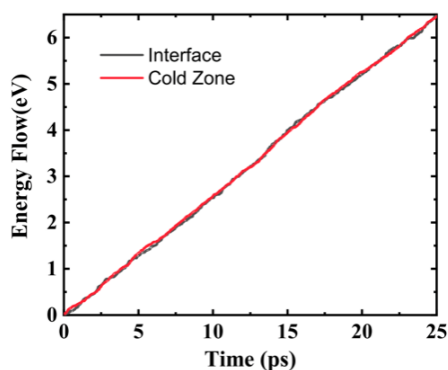


图2 自旋界面热流计算公式的正确性检测

3 结果与讨论

首先测试表明我们自主开发的 Langevin/spin 热浴能量统计功能 (tally) 能够准确输出每一时间步热浴施加或移除的磁性能量值。第二, 如图 2 所示, 当系统达到稳态后, 在任意时刻通过界面的能量始终等于冷端 Langevin/spin 热浴移除的能量, 证实我们提出的界面自旋热流表达式的正确性。其中红线为累计通过冷区的磁性能量, 黑线为累计通过体系中间一界面处的能量。

4 结论

类比晶格体系热流的推导, 我们推导出分子动力学 框架下只有海森堡交换相互作用的纯自旋体系中的热流表达式。该表达式的特点在于将热流用自旋构型表示, 未来可直接应用于自旋体系频谱热流的计算。为验证磁性热流公式的正确性, 我们也独立开发 LAMMPS 软件 Langevin/spin 控温方法中追踪加入能量的功能, 同时也可使 LAMMPS 直接输出界面热流。通过对比相同模拟中用不同方法计算的稳态热流, 我们验证了整个计算方法是自洽的。

参考文献

- [1] W. Fulkerson, J. Moore, and D. McElroy, Journal of Applied Physics 37, 2639 (1966).
- [2] N. Bäklund, Journal of Physics and Chemistry of Solids 20, 1 (1961).
- [3] R. Powell, R. Tye, and M. Hickman, International Journal of Heat and Mass Transfer 8, 679 (1965).
- [4] J. Tranchida, S. Plimpton, P. Thibaudau, and A. Thompson, Journal of Computational Physics 372, 406 (2018).
- [5] Y. Zhou, J. Tranchida, Y. Ge, J. Murthy, and T. S. Fisher, Phys. Rev. B 101, 224303 (2020).
- [6] Y. Ge, Y. Zhou, and T. Fisher, Journal of Applied Physics 130, 235108 (2021).
- [7] K.-H. Yang and J. O. Hirschfelder, Phys. Rev. A 22, 1814 (1980).
- [8] S. Nikolov, J. Tranchida, K. Ramakrishna, L. Lokamani, A. Cangi, and M. Wood, Journal of Materials Science 57, 1 (2022).

版权声明: ©2024 作者与开放获取期刊研究中心(OAJRC)所有。本文章按照知识共享署名许可条款发表。

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



OPEN ACCESS