

## Study on spin cross composite materials based on mean field theory

Lu Xu

Beijing University of technology, Beijing

**Abstract:** the Hamiltonian of stochastic coupled dynamical system described by Ising model is used to describe the properties of the equilibrium state of the spin cross body, and the micro dynamics is properly selected for analysis. The use of this model in the mean field method supports the existing dynamic equations.

**Key words:** mean field method Glauber dynamic relaxation

Received: 2019-08-21; Accepted: 2019-09-10; Published: 2019-09-29

---

## 基于平均场理论的自旋交叉复合 物材料研究

卢 旭

北京理工大学, 北京

邮箱: xlu00022@sina.com

**摘 要:** 用伊辛模型描述的随机耦合动力系统的哈密顿量去描述自旋交叉体平衡态的性质, 适当选择了微观动力学进行分析。这个模型在平均场方法中的使用, 支持了已有的动力学方程。

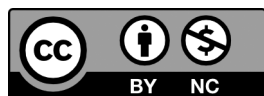
**关键词:** 平均场方法 Glauber 动力学弛豫

收稿日期: 2019-08-21; 录用日期: 2019-09-10; 发表日期: 2019-09-29

Copyright © 2019 by author(s) and SciScan Publishing Limited

This article is licensed under a [Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License](https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/).

<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>



## 1 介绍

近些年来, 人们对自旋交叉复合物材料领域的兴趣越来越高, 自旋交叉复合物材料在不同的系统规定参数例如温度, 压力, 磁场, 光, 在具有合适配位基的  $\text{Fe}(\text{II})$  复合物低自旋 ( $\text{LS}, t_{2g}^6, S=0$ ) 和高自旋 ( $\text{HS}, t_{2g}^4, t_g^2, S=2$ ) 态之间的转换。这些系统是分子可转换固体的例子, 并且具有作为传感器, 静态存储装置, 显示器和开关的潜力。理论上, 许多吸引人的工作把

重点放在自旋交叉复合物从两方面的转换上: 静态和动态的属性上。他们大部分基于伊辛类模型。

Glauber approach 提出了一个用伊辛模型描述的随机耦合动力系统的哈密顿量去描述自旋交叉体平衡态的性质。这个模型在平均场方法中的使用, 得到了先前预期的 S 型的从高自旋向低自旋吸收和跃迁的弛豫曲线。并且热滞回线的运动学特征也得到了合理的解释。

平均场理论是非微扰的。在平均场近似的基础, 可以得到零级近似的哈密

顿量  $H_0$ ，系统的  $H$  可以写成  $H=H_0+V_{res}$ 。

平均场近似是最简单的非微扰理论，它通过自洽场方法把相互作用的主要部分包括到平均场之中，使得剩余相互作用  $V_{res}$  变得比较小，因而可以用微扰论的方法去求解。基于平均场的微扰论在原子物理的某些问题的处理中相当成功。

平均场理论的基本思想是：1) 多体系统各粒子对某一粒子相互作用的迭加和平均，产生一个平均场；2) 这个平均是单体算符，包括非定域（动量有关了）项和自旋—轨道力；3) 产生平均场的过程是一个非线性反馈的过程，对定态问题，还要求自洽；4) 平均场是对多体系统相互作用的非微扰的零级近似，对多体系统的正确描述应当是平均场加剩余相互作用；5) 平均场产生多体系统的独立粒子运动，而剩余相互作用要破坏这种独立粒子运动，引起量子态跃迁，产生粒子之间的多体关联，导致集团运动和集体运动。

## 2 理论分析

在伊辛模型类中，对于习惯上假定的自旋代表着不同退化为两个水平自旋复合分子的两种状态。这种退化用本征值为 +1 和 -1 的  $g_+$  和  $g_-$  表示，分别联系着分子高自旋和低自旋态。说明类伊辛模型和温度依赖下的伊辛模型之间的同构，描述自旋复合现象的哈密顿算符写为

$$H=-J \sum_i, j S_i S_j + \sum_i \left( \Delta - \frac{K_B T}{2} \ln g \right) S_i \quad (1)$$

在表达式中， $H$ ， $\Delta$  直接与假定的单元体联系， $J$  是每一对  $i$  项和  $j$  项之间的相互作用系数， $T$  是绝对零度， $g = \frac{g_+}{g_-}$ 。

认为所有的项的地位都是相等的，对平均场进行平常的处理，所以一个脚标的平均场用无量纲参数可以写为：

$$\frac{H_i}{qJ} = \left[ -m + \left( d - \frac{r}{2} \theta \right) \right] S_i \quad (2)$$

其中  $d = \Delta/qJ$ ， $r = \ln g$ ， $\theta = K_B T/qJ$

$q$  是相邻数， $m = \langle s \rangle$  是每一项的净磁化。

减少的自由能，和自洽方程如下

$$f = \frac{F}{ngJ} = \frac{1}{2} m^2 - \theta \ln \left\{ 2g \cosh \left( \frac{m + (-d + \frac{r}{2} \theta)}{\theta} \right) \right\} \quad (3)$$

$$m = \tanh \left( \frac{m + (-d + \frac{r}{2} \theta)}{\theta} \right) \quad (4)$$

写出自洽方程 (4) 的逆以便把温度表成磁化率的显方程。为了获得系统的状态方程, 分析方法也能用高自旋率  $n_{HS} = (m+1)/2$  写出。

$$\frac{\theta}{2} = \frac{2n_{HS} - 1 - d}{\ln \frac{1}{1g - n_{HS}}} \quad (5)$$

序参量的温度变量是通过在  $0 \leq n_{HS} \leq 1$  区间范围内的  $\theta$  函数得到。

由 *Glauber* 方法, 运动方程随时间演变的几率为  $P(s_1, s_2, \dots, s_N, t)$ 。

主方程为

$$\frac{d}{dt} P(s_1, s_2, \dots, s_N; t) = - \sum_{j=1}^N W_j(s_j) P(s_1, s_2, \dots, s_N; t) + \sum_{j=1}^N W_j(-s_j) P(s_1, s_2, \dots, s_N; t) \quad (6)$$

$W_j(s_j)$  给出了单位时间从  $\{s\}$  变到  $\{s'\}$  的几率 (自旋由  $s_j$  变到  $-s_j$ ) , 由热力学平衡式, 这个细节的平衡导致

$$\frac{W_j(s_j)}{W_j(-s_j)} = \frac{\exp(-\beta E_j s_j)}{\exp(\beta E_j s_j)} \quad (7)$$

这里  $E_j = \Delta - (kT/2) \ln g - \sum_i J s_i$

方程 (7) 只给出了输运率。作的动力学分析, 将进一步的证明, 与方程 (7) 中的指数一致有

$$W_j(s_j) = \frac{1}{2\tau} \exp(-\beta E_j s_j) = \frac{1}{2\tau} (\cosh \beta E_j - s_j \sinh \beta E_j) \quad (8)$$

这里  $1/2\tau$  是分子内与自发自旋翻转相联系的频率, 提供时间范围。由于热力学过程, 它依赖于温度, 就像下式一样:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} e^{-\beta E_a^{(0)}} \quad (9)$$

局部磁化的演化  $\langle S_i \rangle$  由下式给出

$$\frac{d\langle S_i \rangle}{dt} = -2\langle S_i W_i(S_i) \rangle \quad (10)$$

在平均近似场, 并且假设晶格有平移变换的不变性, 微分方程制约着磁化的演化,  $m = \langle S_i \rangle$  是时间的函数, 或换句话说, 宏观主方程, 来源于方程 (10)。

由方程 (8) (9) 有:

$$\tau_0 e^{\beta E_a^{(0)}} \frac{dm}{dt} = \sinh \beta \left( \frac{kt}{2} \ln g - \Delta + qJm \right) - m \cosh \beta \left( \frac{kt}{2} \ln g - \Delta + qJm \right) \quad (11)$$

在热平衡态 ( $dm/dt=0$ ) 减化为平常的平均场方程  $m = \tanh \beta \left[ \left( kt/2 \right) \ln g - \Delta + qJm \right]$ , 就是在方程中给出的自洽方程。

为了方便 (针对实验数据) 系统的平均态按照高自旋假设,  $n_{HS} = (1+m)/2$ , 并且宏观主方程变成

$$\frac{\tau_0}{2} \frac{dn_{HS}}{dt} = (1 - n_{HS}) e^{-\beta \Delta E_{LH}} e^{2\beta q \ln HS} - n_{HS} e^{-\beta \Delta E_{LH}} e^{2\beta q \ln HS} \quad (12)$$

这里  $\Delta E_{LH} = E_a^{(0)} + \Delta + qJ - \left( \frac{kt}{2} \right) \ln(g)$

$$\Delta E_{HL} = E_a^{(0)} + \Delta + qJ - \left( \frac{kt}{2} \right) \ln(g) \quad (13)$$

注意到这里对于低温的表述 ( $\Delta E_{LH} \gg \Delta E_{HL}$ ) 类似于 Hauser, Gutlich 提出的唯象表述, 解释光激发后的高自旋系统的弛豫曲线  $\frac{dn_{HS}}{dt} = -K_{HL}^0(T) n_{HS} e^{a(T)}$  (14)

鉴于上面的表述设定  $K_{HL}^0(T) = (2/\tau_0 e^{\beta \Delta E_{HL}})$  和  $a(T) = -2\beta qJ$ 。

Glauber 动力学导出的输运率和平均场动力学方程的结果类 Arrhenius 动力学方程有点小小的不同。

$$W_i^G(S_j) = \frac{1}{2\tau} (1 - s_j \tanh \beta E_j) \quad (15)$$

$$\frac{dm}{dt} = -\frac{1}{\tau} e^{\beta E_a^{(0)}} \left[ -m + \tanh \beta \left( qJm - \Delta + \frac{kT}{2} \ln g \right) \right] \quad (16)$$

这个动力方程, 当然, 规定了与类 Arrhenius 动力模型相同的平衡态 (稳定和 unstable)。动力方程的低温形式是:

$$\frac{dm}{dt} = -\frac{1}{\tau} e^{\beta E_a^{(0)}} (1+m) \quad (17)$$

这个方程赋予弛豫一个线性特性。Monte Carlo 动力学也有同样的困难。实际上, 它在于复合体自旋的随机选择, 其翻转输运率为:

$$P\left(\frac{\Delta E}{kT}\right) = \frac{e^{-\Delta E/kT}}{1 + e^{-\Delta E/kT}} \quad (18)$$

这里  $\Delta E$  是在自旋翻转上的能量变化。

在单位时间内, 一个蒙特卡罗步长 (MCS), 选择  $N$  自旋, 并且它们的翻

转是经过试验检验的, 磁场变化率是:

$$\frac{dm}{dt} = -\frac{2N_+}{N} \frac{e^{-\varepsilon/kT}}{1+e^{\varepsilon/kT}} + \frac{2N_-}{N} \frac{e^{\varepsilon/kT}}{1+e^{\varepsilon/kT}} \quad (19)$$

这里  $N_+$ ,  $N_-$  是相应的自旋向上, 向下的数目, 并且  $\varepsilon = 2(qJm - \Delta + kT/2 \ln g)$ 。

用平均场方法处理, 上面的方程变成:

$$\frac{dm}{dt} = -m + \tanh \beta \left( qJm - \Delta + \frac{kT}{2} \ln g \right) \quad (20)$$

### 3 实验数据的比较

Glauber 动力学在平均场方法中取得的结果, 与 Arrhenius 型的低温行为不同。把结果与自旋复合体的典型的实验弛豫数据进行比较, 样品是  $[\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}(\text{btr})_2(\text{NCS})_2] \cdot \text{H}_2\text{O}$ , 选择合成物的  $x=0.3 \cdots 0.5$ 。有下列内容: (1) 可以得到与 Arrhenius 型的曲线很好的一致, 与其它选择明显不同。(2) 温度更加低时, 与 Arrhenius 型一致的曲线相互作用变强, 当  $x=0.5$  和  $T=45\text{K}$  时有显示。一个基本的原因是相互作用的影响加强了能量势垒, 延缓了弛豫。

### 参考文献

- [1] R. J. Glauber, J. Math. Phys. 4, 294 ~ 1963.
- [2] A. Bousseksou, J. Nasser, J. Linares, K. Boukheddaden, and F. Varret, J. Phys. 12, 1381 ~ 1992.
- [3] 张志东. Chinese Journal of Natur, Vol. 30 No. 2, 94 ~ 98.
- [4] K. Boukheddaden, J. Linares, a) E. Codjovi, and F. Varret, Journal Of Applied Physics, 93, 7103 ~ 7105.
- [5] J. Dely, A. Bobak, Physica B 388, 49 (2007) .
- [6] 张为民, 张淳源, 张平. 微观力学中的对应原理, 湘潭大学自然科学学报. Vol. 25 No. 4, Dec. 2003, 64 ~ 69.
- [7] 刘其鹏, 刘晓宇. 一种基于平均场理论的格栅材料均匀化方法 [J]. 应用力学学报, 2014, 31 (1): 43-48.