

ABSORPTION INFRA-ROUGE DEPENDANT DU SPIN DANS LES CRISTAUX ANTI-FERROMAGNETIQUES

S. KOIDE

Institut de Physique, Université de Genève, Suisse

Y. MIZUNO

College of General Education, University of Tokyo, Japan

A. TSUCHIDA

Department of Physics, Faculty of Science, University of Tokyo, Japan

Reçu le 24 septembre 1964

Dans un article récent [1], nous avons proposé un nouveau mécanisme pour l'absorption infra-rouge très faible dépendant du spin dans les cristaux anti-ferromagnétiques de NiO [2]. Comme il est bien connu, les spins des ions Ni^{++} sont mutuellement couplés par l'interaction superéchange qui peut être exprimée par l'hamiltonien $H_{\text{ex}} = \sum_{\langle \alpha \beta \rangle} J_{\alpha \beta} (\mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta)$. Le champ de radiation peut influencer sur ce système de spins par les vibrations du réseau: en effet, le paramètre $J_{\alpha \beta}$ est très sensible aux distances entre ions, et, en même temps, dépend du champ électrique dans lequel la paire d'ions est placée. Ainsi la radiation infra-rouge pourra causer une transition dipolaire électrique qui entraîne des changements à la fois dans l'état du système des spins et dans le nombre de phonons. Ce mécanisme est exprimé par l'hamiltonien $H_1 = -\mathbf{E} \cdot \mathbf{P}$. Le moment dipolaire effectif est défini par

$$\mathbf{P} = \sum_{\langle \alpha \beta \rangle} (\mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta) \mathbf{Q}_{\alpha \beta}, \quad (1)$$

où

$$\mathbf{Q}_{\alpha \beta} = -\sum_{\gamma} \left(\frac{\partial^2 J_{\alpha \beta}}{\partial \mathbf{E} \partial \mathbf{R}_\gamma} \right)_0 \delta \mathbf{R}_\gamma. \quad (2)$$

Dans l'article cité [1], nous avons effectué le calcul en utilisant le modèle le plus simple du champ moléculaire pour le système des spins. Bien que l'allure générale du spectre observé puisse être prévue par cette approximation, la théorie ne peut donner que le squelette du spectre. Nous nous proposons ici de présenter une amélioration de ce calcul.

Le spectre d'absorption est donné par la transformée de Fourier de la fonction d'auto-corrélation de l'opérateur moment dipolaire $\mathbf{P}(t)$ dont le mouvement est décrit par l'hamiltonien H_0 du système des spins et des phonons en absence de la radiation.

Comme nous en avons discuté dans l'article cité [1], la corrélation mutuelle entre deux paires différentes de spins sera négligeable aux hautes températures. Alors la fonction d'auto-corrélation est donné par

$$\langle \mathbf{P}(t) \cdot \mathbf{P}(0) \rangle = \quad (3)$$

$$= \sum_{\langle \alpha \beta \rangle} \langle (\mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta)_t (\mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta)_0 \rangle \langle \mathbf{Q}_{\alpha \beta}(t) \cdot \mathbf{Q}_{\alpha \beta}(0) \rangle.$$

avec

$$\begin{aligned} \langle (\mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta)_t (\mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta)_0 \rangle &= \sum_{i,f} e^{i(E_i - E_f)t/\hbar} \\ &\times |\langle i | \mathbf{S}_\alpha \cdot \mathbf{S}_\beta | f \rangle|^2 e^{-E_i/kT} / \sum_i e^{-E_i/kT}. \end{aligned} \quad (4)$$

Afin de calculer [4], nous prenons le système de 12 spins qui se compose des spins \mathbf{S}_α , \mathbf{S}_β et de leurs voisins les plus proches couplés par l'interaction de superéchange. Ecrivons les composantes z des spins comme M_α , M_β , M_m et M_n , où m et n tiennent lieu de voisins de α et β respectivement. Nous supposons que l'énergie de notre système de 12 spins est donné par

$$\begin{aligned} E(M_\alpha, M_\beta; M_m, M_n) &= J(M_\alpha M_\beta + M_\alpha \sum_m M_m + \\ &+ M_\beta \sum_n M_n) + g\beta H' (\sum_m M_m - \sum_n M_n), \end{aligned} \quad (5)$$

où H' est un champ effectif qui tient compte de l'interaction entre \mathbf{S}_m ou \mathbf{S}_n et ses voisins à l'extérieur du système. Les états initiaux et finaux $|i\rangle$ et $|f\rangle$ seront alors spécifiés par toutes les combinaisons possibles des valeurs de $(M_\alpha, M_\beta; M_m, M_n)$. On peut donc écrire

$$|i\rangle = |M_\alpha, M_\beta; M_m, M_n\rangle \quad (6)$$

$$|f\rangle = |M_\alpha \pm 1, M_\beta \mp 1; M_m, M_n\rangle,$$

d'où on obtient facilement

$$|\langle i | S_{\alpha} \cdot S_{\beta} | f \rangle|^2 = \frac{1}{4} (S \mp M_{\alpha}) (S \pm M_{\alpha} + 1) \quad (7)$$

$$\times (S \pm M_{\beta}) (S \mp M_{\beta} + 1).$$

On peut aisément voir que la quantité $(E_f - E_i)/J$ peut prendre les $24S + 1$ valeurs entières qui satisfont la condition $12S - 1 \geq (E_f - E_i)/J \geq -12S + 1$. Dans notre approximation, l'intensité de chacune de ces absorptions est proportionnelle à la probabilité de la transition (7) et au facteur de Boltzmann $\exp(-E_i/kT)$. La valeur du paramètre $H'(T)$ est déterminée par la méthode de Bethe [3].

Puisque l'énergie d'excitation du système des spins est, en moyenne, beaucoup plus grande que celle du système des phonons, la largeur du spectre de phonons ne joue aucun rôle important dans notre problème. Nous allons donc négliger la dispersion du spectre de phonons et adopter le modèle d'Einstein comme nous avons fait dans la calcul antérieur. Dans ce cas là, la partie dépendante des phonons dans l'expression (3) se réduit à la forme

$$\langle Q_{\alpha\beta}(t) \cdot Q_{\alpha\beta}(0) \rangle = (1 + \langle n \rangle) e^{-i\omega_p t} + \langle n \rangle e^{i\omega_p t}, \quad (8)$$

où ω_p est (la valeur moyenne de) la pulsation des phonons, et $\langle n \rangle = [\exp(\hbar\omega_p/kT) - 1]^{-1}$. En combinant (8) avec la partie de spin, on peut obtenir le spectre théorique de bande. Les résultats du calcul numérique sont montrés dans la figure 1 par les enveloppes des lignes dont les longueurs sont proportionnelles aux intensités calculées de la façon cidessus.

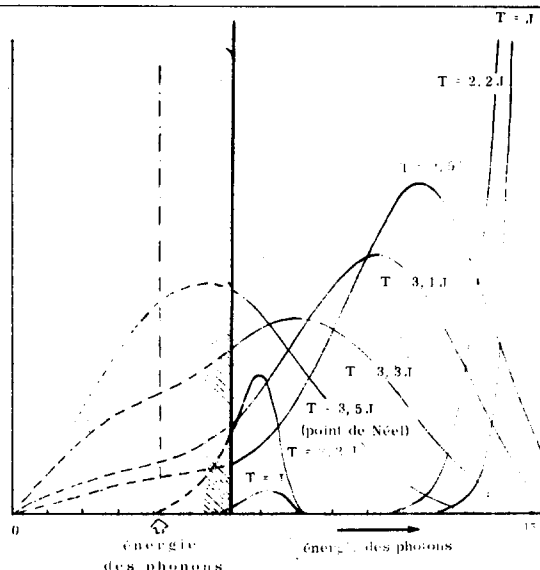


Fig. 1. Spectres théoriques de l'absorption dépendant du spin pour diverses températures. Les hachures sont tracées à la position supposée de la limite de l'absorption infra-rouge ordinaire. Cette position est déterminée de façon à obtenir un bon accord avec les spectres expérimentaux (cf. fig. 5 de la référence 2).

Références

1. Y. Mizuno et S. Koide, *Phys. kondens. Materie* 2 (1964) 166.
2. R. Newman et R. M. Chrenko, *Phys. Rev.* 114 (1959) 1507.
3. H. A. Bethe, *Proc. Roy. Soc. A* 150 (1935) 552.

THREE-QUANTUM ANNIHILATION OF POSITRONS IN ALKALI HALIDES

A. GAINOTTI, E. GERMAGNOLI, G. SCHIANCHI and L. ZECCHINA

Istituto di Fisica dell'Università, Parma, Italy

Received 25 September 1964

Recent experimental results pointed out that the decay features of positrons in alkali halides are not consistent with the hypothesis of a free positron-electron annihilation. Bisi et al. [1, 2] found a complex decay, a large percentage of annihilations involving a long lifetime $\tau_2 \approx 5 \times 10^{-10}$ sec; moreover Gainotti et al. [3] gave evidence that in a number of alkali halides three-quantum

annihilation is significantly more probable than calculated in the case of free positron-electron annihilation.

Positronium formation was considered energetically impossible in crystalline alkali halides [4]. In partial disagreement with this conclusion, recent calculations [5] suggest that positronium formation is energetically possible in