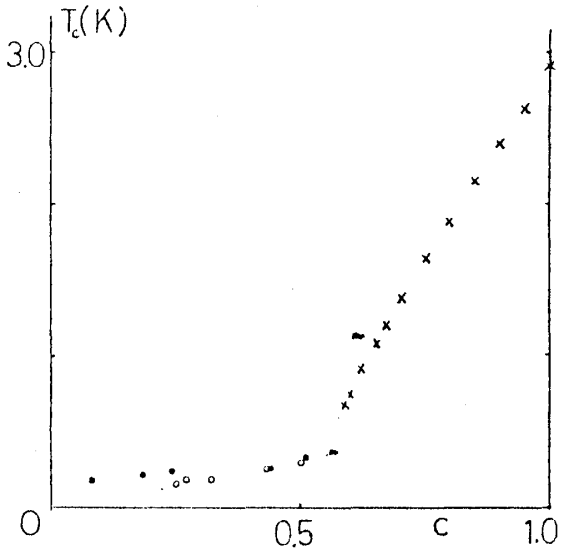
o-H_2 とp-H_2 の混晶に於る相転移

名大 工　山下　護
中野藤生
本間重雄

低温の固体水素において，水素分子の角運動量Jは事実上パラ水素（p-H_2）ではJ＝0，オルソ水素（o-H_2）ではJ＝1である。分子間の異方的な相互作用は電気四重極四重極相互作用[1]によるものが重要で，低温で配向の相転移がある（図1）[2]。

o-H_2の濃度cがc≳0.55の相転移はo-H_2がp-H_2により希薄にされることによると理解されるが，c≲0.55の場合については，はっきりしていない。この場合には相転移はないと考えられるが，c～0.01の場合，十分低温で（～1.4 K）小さなクラスターが出来ることが確められている。c≲0.55ではNMRの吸収スペクトルにPake doubletが認められ，大きなクラスターが形成されていると考えられる。このような観点から図1の相図を検討してみたい。



× J.F.Jarvis,H.Meyer and D.Ramm
∘ N.S.Sullivan, H.Vinegar and R.V.Pound
• H.Ishimoto, K.Nagamine and Y.Kimura

図1.

o-H_2の体系での配向に関するtruncated Hamiltonianは次のものである。

$$\mathcal{H} = \sum_{(i,j)} \zeta_{ij}^{00}\, \theta_i^0\, \theta_j^0 + \triangle \sum \theta_i^0 \qquad (1)$$

ここに $\theta_i^0 = (3J_{Z_i}^2 - 2)/3$，△はフォノン・ライブロン相互作用に起因する異方性エネルギーである。次に

$$\sigma_i \equiv -2\theta_i^0 - 1/3$$
$$= \begin{cases} 1 \;;\; J_{Z_i} = 0 & (\theta_i^0 = -2/3) \\ -1 \;;\; J_{Z_i} = 1, -1 & (\theta_i^0 = 1/3) \end{cases} \tag{2}$$

を導入し，さらに $\sigma_i = 0$ を許し，p-H_2 が格子点 i を占める事を表わすとする。Hamiltonian は次のように表わされる。

$$\mathcal{H} = -U\sum_{(i,j)} \sigma_i^2\sigma_j^2(\sigma_i + 1/3)(\sigma_j + 1/3) - H\sum_i \sigma_i^2(\sigma_i + 1/3) + W'\sum_i \sigma_i^2 \tag{3}$$

$$= -U\sum_{(i,j)} \sigma_i\sigma_j - V\sum_{(i,j)} \sigma_i^2\sigma_j^2 - X\sum_{(i,j)} (\sigma_i^2\sigma_j + \sigma_i\sigma_j^2) - H\sum_i \sigma_i + W\sum_i \sigma_i^2 \tag{4}$$

ここに，$V = U/9$，$X = U/3$，$H = (\triangle - kT\ell n\,2)/2$ であるが，$\sigma_i = -1$ が二重に縮退していることが考慮されている。

まず，徐冷系としての取扱いをする。(4)の型の Hamiltonian を持つ体系の相図の概略は知られており[3]，結果を概観出来る。しかし今の場合，(3)を用いる方が便利である。秩序パラメーターとして $s \equiv \langle \sigma_i + \sigma_i^2/3 \rangle$ 一つを導入すればよい。濃度 c は $c = \langle \sigma_i^2 \rangle$ により得られる。平均場近似では平衡条件として，

$$s = \tau(Uzs/kT), \tag{5}$$

$$\tau(x) = \frac{2\{\mathrm{sh}(x + H/kT) + \mathrm{ch}(x + H/kT)/3\}}{2\,\mathrm{ch}(x + H/kT) + \exp(W/kT - x/3)} \tag{6}$$

が得られる。露に示さないが，熱力学的ポテンシャル $\Phi(s)$ 及び(5)式に基いて相転移が論じられる。結果を図2に示す。($\triangle/Uz = -0.1$) 破線は相分離曲線，破線内は共存領域である。

次に急冷系の取扱いをする。平均場近似では Hamiltonian は次のように得られる。

$$\mathcal{H} = -Uc^2\sum_{(i,j)} \sigma_i\sigma_j - c(\triangle - kT\ell n\,2 + 2Uzc/3)/2\sum_i \sigma_i \tag{7}$$

転移温度は次のように得られるが，右辺の不等式を満足しなければならない。

$$\frac{kT_c}{Uz} = \frac{1}{\ell n\, 2}\left[\frac{\Delta}{Uz} + \frac{2}{3}c\right] \leq c \tag{8}$$

併せて図2に示す（実線）。

徐冷系の取扱いでは相分離することにより，$c \lesssim 0.55$ でも比較的高温で相転移が起る。実際には相分離は起らないと考えられるが，十分大きなクラスターが出来れば観測にかかるはずである。この場合，転移温度は粒子が自由に動き得る徐冷系に比べ低く，図2の一点鎖線のようになると考えられる。ここでの近似は必ずしも満足出来るものではないが，この範囲でも，十分大きなクラスターが出来るという考え方に基き，$c \lesssim 0.55$ の領域での実験事実が理解できるのではないか。

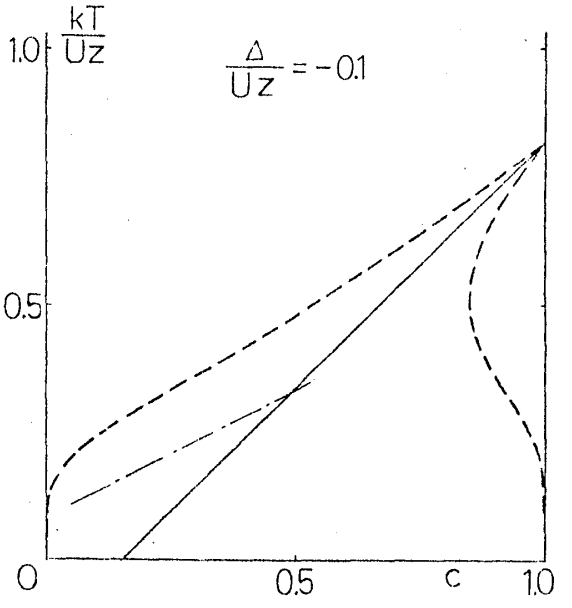


図2.

参 考 文 献

1) T. Nakamura, Prog. Theor. Phys. **14** (1955), 135.

2) J. F. Jarvis, H. Meyer and D. Ramm, Phys. Rev. **178** (1969), 1461.
N. S. Sullivan, H. Vinegar and R. V. Pound, Phys. Rev. **B12** (1975), 2596.
H. Ishimoto, K. Nagamine and Y. Kimura, J. Phys. Soc. Japan **35** (1973), 300.

3) D. Mulcamel and M. Blume, Phys. Rev. **A10** (1974), 610.