

Cristalización de *para*-Hidrógeno: ¿una transición (de primer orden) cuántica a temperatura finita?

C. Cabrillo^{1*}, F. Fernández-Alonso², R. Fernández-Perea¹, F. J. Bermejo³, M. A. González⁴, C. Mondelli⁴, E. Farhi⁴

¹*Instituto de Estructura de la Materia, IEM-CSIC, Serrano 123, Madrid 28006, Spain.*

²*ISIS Facility, Rutherford Appleton Laboratory, Chilton, Didcot, Oxfordshire OX11 0QX, United Kingdom*

³*IEM-CSIC, Unidad Asociada de Física Aplicada, Department of Electricity and Electronics, University of the Basque Country, P.O. Box 664, 48080 Bilbao, Spain*

⁴*Institut Laue Langevin, 6 rue Jules Horowitz 38042, Grenoble Cedex 9, France*

Los sólidos cuánticos se caracterizan por grandes fluctuaciones cuánticas incluso a las más bajas temperaturas de tal modo que la aproximación armónica no es aplicable ni tan siquiera a temperatura cero. El ejemplo más notable es el cristal de *para*-Hidrógeno (*para*-H₂). Dado su carácter molecular y su mínima masa, tanto los grados de libertad rotacionales como los traslacionales muestran un comportamiento fuertemente cuántico. De hecho la isotropía del estado rotacional fundamental $J = 0$ implica un promediado cuántico que tiende a minimizar los efectos anisotrópicos. De ahí que el potencial intermolecular resulta adecuadamente descrito mediante un potencial efectivo completamente isotrópico¹ de tal forma que una primera aproximación semi-cuántica útil en muchos cálculos, consiste simplemente en una dinámica clásica bajo dicho potencial isotrópico ignorando completamente la estructura de dímero de la molécula.

El estado cristalino fundamental del *para*-H₂ es una estructura hcp con una distancia de primeros vecinos de $R_{NN} = 3.78 \text{ \AA}$ y una temperatura de fusión de 14.8 K. En esta fase el desplazamiento cuadrático medio (dcm) del centro de masas molecular debido a la energía de punto cero, esto es, a la deslocalización cuántica, es suficiente para explorar el corazón repulsivo del potencial de interacción. Como consecuencia el cristal se expande para minimizar su energía libre de tal forma que el valor de R_{NN} mencionado arriba es sustancialmente mayor que la distancia correspondiente al mínimo del potencial H₂-H₂, esto es, $R \simeq 3.41 \text{ \AA}$. Como consecuencia de esta notable expansión de volumen ($\sim 30 \%$), la aproximación de Born-Karman produce modos normales inestables caracterizados por frecuencias imaginarias¹. Esta sería la señal de identidad de un sólido cuántico. Por otro lado, dada la ligereza de la molécula la energía del primer nivel rotacional es muy alta, más concretamente $E_{J=0 \rightarrow 1} = 14.6 \text{ meV}$ ($\sim 170 \text{ K}$) de tal forma que el carácter cuántico de las rotaciones es conspicuo mientras que la molécula rota de forma prácticamente libre incluso en la fase cristalina. El momento angular molecular permanece como un buen número cuántico pero poco se sabe de la forma de línea espectral.

Los estudios teóricos, empezando por los trabajos pioneros de Elliot y Hartmann² y de Van Kranendonk y colaboradores³, han identificado como mecanismo prin-

cipal de ensanchamiento de dicha línea una sutil ruptura de la degeneración inducida por el campo cristalino dependiente de la anisotropía del campo fonónico⁴. Estas cantidades son difíciles de calcular ya que son muy sensibles al delicado balance entre las fuerzas experimentadas por una molécula situada en una red periódica altamente simétrica. Desde el lado experimental, el acceso directo a la anchura de línea de la transición $J = 0 \rightarrow 1$ (ópticamente prohibida) es todo un reto ya que las anchuras estimadas son del orden del μeV para una energía de transición de unos 14.6 meV.

Recientemente⁵, utilizando la técnica de eco de espín neutrónico inelástico hemos tenido éxito en medir dicha anchura de línea en función de la temperatura en todo el rango de existencia del cristal. Para ello hemos hecho uso de lo que podría considerarse como el montaje experimental de dispersión de neutrones más completo posible de tal forma que en la misma muestra y las mismas condiciones termodinámicas se pudo medir también dispersión de Bragg, que nos da información directa sobre la expansión de la red cristalina, y el factor de forma molecular, que nos da información directa sobre el dcm molecular. Sorprendentemente ninguna de estas tres cantidades muestra una dependencia con la temperatura apreciable en todo el rango de temperaturas de existencia del cristal. Es decir, el cristal se muestra completamente expandido ya desde la temperatura de cristalización.

En la presente ponencia argumentaremos que este comportamiento termodinámico inesperado se puede entender si la transición de fase de cristalización está inducida por fluctuaciones cuánticas debidas a la deslocalización asociada al carácter ondulatorio de la dinámica no ya del cristal sino del líquido antes de cristalizar.

* ccabrilo@foton0.iem.csic.es

¹ I.F. Silvera, Rev. Mod. Phys. **52**, 393 (1980).

² R.J. Elliot and M.W. Hartmann, Proc. Phys. Soc. (London) **90**, 671 (1967).

³ J. Van Kranendonk, *Solid Hydrogen: Theory of the Properties of Solid H₂, HD, and D₂* (Plenum Press, New York, 1983).

⁴ V.G. Manzhelii and Y.A. Freiman, *Physics of Cryocrystals* (American Institute of Physics, New York, 1997).

⁵ F. Fernández-Alonso et al, Phys. Rev. B **86**, 144524 (2012).