

Параметр ориентационного порядка в упорядоченной фазе твердого дейтерия из нейтронографических данных

В.В. Данчук, Н.Н. Гальцов, М.А. Стржемечный, А.И. Прохвятилов

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина*

E-mail: galtsov@ilt.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 10 июня 2003 г., после переработки 14 августа 2003 г.

Метод прямого восстановления параметра ориентационного порядка η из дифракционных интенсивностей применен для случая ориентационно упорядоченной фазы квантового кристалла пара-D₂. Для этой цели были использованы данные Ярнелла, Миллза и Шука по упругому рассеянию нейтронов. Полученное среднее значение $\eta = 0,368$ близко, но несколько ниже величины 0,4, которая соответствует теоретическому значению при $T = 0$ в приближении молекулярного поля. Природа указанного снижения оценена теоретически с учетом трех факторов, влияющих на абсолютное значение η : термического возбуждения либронов, вращательных ангармонизмов и вращательной поляризации. Показано, что суммарная теоретическая перенормировка (–8,8%) близка к величине, полученной при восстановлении (–8,0%).

Метод прямого відновлення параметра орієнтаційного порядку η із дифракційних інтенсивностей застосовано до випадку орієнтаційно впорядкованої фази квантового кристала пара-D₂. Для цієї цілі було використано дані Ярнелла, Миллза і Шука по пружному розсіяню нейтронів. Одержане середнє значення $\eta = 0,368$ близько, але трохи нижче величини 0,4, котра відповідає теоретичному значенню при $T = 0$ у наближенні молекулярного поля. Природу указанного зниження оцінено теоретично з урахуванням трьох факторів, які впливають на абсолютне значення η : термічного збудження лібронів, обертальних ангармонізмів та обертальної поляризації. Показано, що сумарне теоретичне перенормування (–8,8%) близько до величини, одержаної при відновленні (–8,0%).

PACS: 61.14.Rq, 61.43.Fs, 61.50.Ks, 71.55.Jv

Введение

Суммарный ядерный спин I гомоядерных молекул изотопов водорода может принимать значения 0 и 1 для H₂ и 0, 1 и 2 для D₂. В твердой фазе при достаточно низких температурах модификации с четными I находятся в состоянии с вращательным моментом $J = 0$, а модификации с $I = 1$ имеют вращательный момент, равный 1. Молекулы с $J = 1$ обладают квадрупольным моментом, что определяет наличие нецентрального межмолекулярного взаимодействия и возможность ориентационного упорядочения вращательной подсистемы. Такое превращение имеет место при достаточно низких температурах и при достаточно высоких концентрациях $x \geq 0,55$ модификации с $J = 1$. Исследованию

этого фазового перехода посвящено большое число теоретических и экспериментальных исследований (см., например, [1,2]). В результате было установлено, что переход совершается из высокотемпературной ориентационно разупорядоченной ГПУ фазы в кубическую ориентационно упорядоченную фазу $Pa\bar{3}$ с четырьмя молекулами, ориентированными своими осями вдоль направлений типа $\langle 111 \rangle$ в кристалле. Упорядочение характеризуется параметром ориентационного порядка

$$\eta = \langle P_2(\cos \vartheta) \rangle, \quad (1)$$

где угловые скобки означают термодинамическое и квантовомеханическое усреднение по вращательным состояниям; ϑ — угол между мгновенной ориента-

цией молекулы и соответствующим направлением типа $\langle 111 \rangle$; $P_2(x)$ — полином Лежандра.

Не останавливаясь подробно на истории определения структуры упорядоченной фазы твердых водородов с $J = 1$, отошлем читателя к обзорной литературе [2]. Используя то обстоятельство, что расстояние в пайковском дублете в ЯМР спектре пропорционально параметру ориентационного порядка [3], в [4,5] была построена температурная зависимость параметра порядка в широкой области температур и концентраций пара- D_2 ($J = 1$). Получено хорошее согласие с результатами расчета методом кластерного разложения [6] и расчетов, в которых были использованы экспериментальные данные об энергии либронных возбуждений [5]. Следует заметить, что во всех упомянутых выше экспериментальных работах восстанавливались значения приведенной величины $\bar{\eta}$, т.е. значения η из (1), отнесенные к его значению при $T = 0$. Абсолютные же значения η в низкотемпературных фазах водорода и дейтерия, которые можно было бы, в принципе, восстановить из структурных данных, долго не удавалось получить. Задача определения абсолютных значений η упорядоченных фаз кристаллов, образованных симметричными двухатомными молекулами, может быть относительно легко решена [7] при наличии надежной информации об интенсивностях как структурных, так и сверхструктурных отражений. Интенсивность последних непосредственно связана с характером и степенью ориентационного упорядочения молекул в решетке. В рентгеновских исследованиях [8–10] водорода и дейтерия с большим содержанием модификации $J = 1$ был зафиксирован только фазовый переход ГПУ — ГЦК, но обнаружить в низкотемпературной фазе присущие симметрии $Pa\bar{3}$ сверхструктурные отражения не удалось. Более результативными оказались нейтронографические исследования [11–14] кубической фазы парадейтерия, содержащего свыше 80 % молекул с $J = 1$. Были обнаружены слабые сверхструктурные рефлексы и получено хорошее согласие наблюдаемых и рассчитанных структурных амплитуд рассеяния и, следовательно, экспериментально подтверждена $Pa\bar{3}$ -симметрия низкотемпературной фазы водородов [14]. Измерения [13,14] выполнены на образцах с заметно более высокой концентрацией пара-фракции $J = 1$ ($x > 90\%$) и были более точными, что позволило авторам провести количественное сравнение интенсивностей с теоретическими значениями, рассчитанными с учетом квантовой природы вращения молекул. В частности, были восстановлены экспериментальные значения амплитуд рассеяния $F(\mathbf{q})$ для нескольких брэгговских отражений (общим числом 10) и проведены их сравнения с тео-

ретически рассчитанными значениями $F(\mathbf{q})$, проинтегрированными с использованием волновых функций вращательных состояний с $J = 1$, $m = 1$ в локальной системе координат (вдоль пространственной диагонали куба структуры $Pa\bar{3}$).

Такой расчет показал удовлетворительное согласие с экспериментальными амплитудами рассеяния, что явилось веским доказательством реализации структуры $Pa\bar{3}$. При $T = 0$ все молекулы с $J = 1$ в $Pa\bar{3}$ ориентированы вдоль пространственных диагоналей куба, так что их основное вращательное состояние описывается функцией $|J = 1, m = 0\rangle$, где проекция вращательного движения m выбрана относительно упомянутой диагонали. По определению, параметр ориентационного порядка η при $T = 0$ дается выражением

$$\eta = \langle GS | P_2(\cos \vartheta) | GS \rangle, \quad (2)$$

где $|GS\rangle$ — волновая функция основного состояния. Легко показать [15], что в пренебрежении тонкими эффектами (см. ниже) в рамках простейшего приближения молекулярного поля $|GS\rangle$ совпадает с $|J = 1, m = 0\rangle$ и, как следствие, при $T = 0$ имеем $\eta_0 = 2/5$.

Наличие экспериментальных данных об интенсивностях рассеяния на упорядоченных подрешетках позволяет прямым образом восстановить из них значение параметра порядка. Впервые идея корректного восстановления характеристик ориентационного порядка из дифракционных интенсивностей путем разложения амплитуды рассеяния по сферическим гармоникам принадлежит, по-видимому, Прессу [16] конкретно для случая упорядоченных фаз водородов. Ко времени выхода указанной статьи прецизионных измерений интенсивностей дифракционных линий еще получено не было, и идея осталась без применения. В качестве оценки применимости этого подхода соответствующая процедура была с успехом использована для восстановления η из рентгеноструктурных данных в α -фазе азота [7]. Этот же подход был использован [17] для полуколичественной оценки параметра ориентационного порядка растворов CO_2 -Ag из электронографических данных. Применение этого метода для случая ориентационного упорядочения трехатомных молекул имеет свои особенности [18].

Мотивацией настоящей работы явились следующие соображения. Во-первых, с момента опубликования работ [11,14] заметно углубилось понимание природы квантовых кристаллов, что позволяет убрать ряд неточностей в опубликованных трактовках. Во-вторых, на базе имеющихся структурных данных представляется реальной возможность опробовать теперь уже для квантовых кристаллов ме-

тод прямого восстановления абсолютных величин параметра ориентационного порядка η из интенсивностей дифракционных линий [7,17]. И в-третьих, фактически впервые ставится вопрос о численной оценке следующих из теории тонких эффектов во вращательной динамике твердых водородов.

2. Теория

Структурная амплитуда рассеяния нейтронов может быть представлена в следующей форме [19]:

$$F(\mathbf{q}) = \sum_i b_i e^{-w_i} e^{2\pi i(\mathbf{q}\mathbf{r}_i)}, \quad (3)$$

где b_i — амплитуда рассеяния связанным ядром атома i (в данном конкретном случае — атома D), \mathbf{r}_i нумерует векторы рассеивающих атомов в пределах элементарной ячейки; \mathbf{q} — переданный при рассеянии импульс;

$$w_i = 8\pi^2 \overline{\mathbf{u}_i^2} [\sin \theta / \lambda]^2; \quad (4)$$

θ — угол рассеяния; λ — длина волны де Бройля нейтронов; $\overline{\mathbf{u}_i^2}$ — среднеквадратичное тепловое смещение атома i в изотропном приближении [19]. В нейтронографии амплитуда рассеяния связанным ядром атома i не зависит от межплоскостного расстояния (угла дифракции). Зависимость от углов входит в выражение для температурного фактора Дебая — Валлера (4). Исходя из этого, структурная амплитуда рассеяния может быть записана в виде

$$F(\mathbf{q}) = b_D e^{-w(\mathbf{q})} \sum_c \exp(2\pi i \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_c) \cos \xi(\mathbf{q} \cdot \mathbf{m}_c), \quad (5)$$

где суммирование проводится по четырем подрешеткам c структуры $Pa3$; \mathbf{R}_c нумерует центры молекул; \mathbf{m}_c — мгновенное направление единичного вектора вдоль соответствующей молекулярной оси в подрешетке c ; $\xi = 2\pi d/a$, где $d = 0,3707 \text{ \AA}$ является половиной межъядерного расстояния в молекуле D_2 , $a = 5,0760 \text{ \AA}$ — параметр решетки. Значения d и a взяты из работы [14]. В этой же работе экспериментальные структурные данные приведены не в виде интенсивностей, а в виде значений структурных амплитуд для соответствующих дифракционных линий без учета постоянного множителя b_D в (5). Эти структурные амплитуды и были использованы нами для восстановления параметра ориентационного порядка.

Для коротких молекул хорошим приближением для структурных амплитуд (5) является сумма первых двух слагаемых [7]:

$$F(\mathbf{q}) = b_D e^{-w(\mathbf{q})} \left[4j_0(\xi q) - 5\eta j_2(\xi q) \sum_c G_c(\mathbf{q}) \right], \quad (6)$$

где $j_n(x)$ — сферические функции Бесселя, $G_c(\mathbf{q})$ имеет тот же смысл, что и в [7]. С помощью методики, предложенной в [7], была аналогичным образом рассчитана ошибка применения приближенной формулы (6) для регулярных и сверхструктурных линий, представленных в [14] для почти чистого пара- D_2 . Как и предполагалось, вследствие малой длины молекулы D_2 даже для дальних сверхструктурных линий ошибка не превышала 1% для случая $\eta = 1$ по сравнению с результатами точного расчета [20] для жестко ориентированных молекул. Такая точность определяет высокую надежность процедуры восстановления величины η из экспериментальных значений амплитуд рассеяния. Важным свойством формулы (6) является то, что для регулярных линий отличным от нуля оказывается только первое слагаемое в (6), а для сверхструктурных отражений — только второе. Такое разделение дает возможность определить из эксперимента показатель $w(\mathbf{q})$ в экспоненте в (6). С учетом этого факта запишем (6) для величины $F(\mathbf{q})/b_D$ в виде

$$F(\mathbf{q})/b_D \equiv f_r^{\text{calc}} + \eta f_s^{\text{calc}}. \quad (7)$$

Проблема учета фактора Дебая — Валлера $w(\mathbf{q})$ заключается в следующем. Выражение для $w(\mathbf{q})$ в (4) обычно представляют в виде (см., например, [20])

$$w(\mathbf{q}) = \frac{6\pi^2 \hbar^2 H^2}{M k_B \Theta a^2} \left[\Phi\left(\frac{\Theta}{T}\right) + \frac{1}{4} \right], \quad (8)$$

где Θ — температура Дебая; $\Phi(x)$ — известная функция Дебая — Валлера; M — масса атома дейтерия; k_B — постоянная Больцмана и $H^2 \equiv h^2 + k^2 + l^2$ (h, k, l — индексы отражающих плоскостей). Выражение (8) получено в предположении, что самосогласованная потенциальная яма, в которой движется частица, является квадратичной. Однако даже с учетом всех возможных факторов в квантовом кристалле любого изотопа водорода потенциальная яма весьма далека от гармонической [21]. Поэтому истинное значение среднеквадратичного смещения частицы следует, если это возможно, определять из эксперимента. К счастью, в рассматриваемом случае такая возможность существует. Из (4) и (8), в частности, следует, что показатель экспоненты в (5) пропорционален H^2 . Это дает возможность использовать измеренные Ярнеллом и соавторами [14] амплитуды рассеяния для регулярных рефлексов, которые должны описываться выражением $f_r^{\text{calc}} \propto j_0(\xi q) \exp[-w(\mathbf{q})]$, где $w(\mathbf{q})$ можно представить в виде BH^2 . На рис. 1 построена зависимость $\ln[F_r^{\text{exp}}/j_0(\xi q)]$ от H^2 , где F_r^{exp} полагается, естественно, пропорциональным f_r^{calc} . Видно, что линейная зависимость хорошо вы-

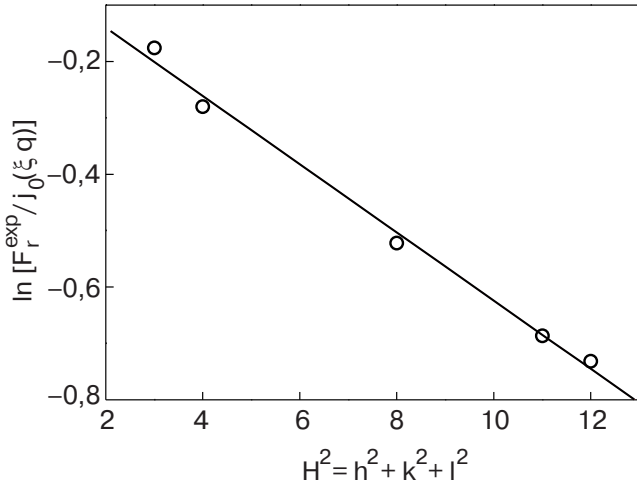


Рис. 1. К определению коэффициента B в факторе Дебая – Валлера.

полняется, в результате чего для B получаем значение 0,0605, что после соответствующего пересчета близко к значению, определенному в [14] по формуле самосогласованного гармонического приближения.

В отличие от работы [7], где параметр ориентационного порядка был восстановлен прямо из интенсивностей, в работе [14] в нашем распоряжении имелись структурные амплитуды, что более удобно. В результате значения η определяли из соотношения

$$\eta = \frac{F_s^{\text{exp}} f_r^{\text{calc}}}{F_r^{\text{exp}} f_s^{\text{calc}}}, \quad (9)$$

где F_s^{exp} и F_r^{exp} – полученные на основании данных эксперимента по рассеянию нейтронов амплитуды рассеяния для отражений соответствующих типов, а f_s^{calc} и f_r^{calc} определены в (7) и получаются в результате численного расчета.

Проведя расчет η для 20-ти имевшихся в нашем распоряжении отношений интенсивностей сверхструктурных отражений к регулярным и усреднив полученные значения η , мы получили $\bar{\eta} = 0,368 \pm 0,006$, или $\eta = 2/5 - \Delta\eta$ с $\Delta\eta = 0,032$. Полученное значение прекрасно согласуется с теоретическим значением нулевого приближения $\eta_0 = 0,4$, однако имеется систематическое смещение к меньшим значениям $\Delta\eta / \eta_0 \simeq -8\%$. Данная работа, таким образом, демонстрирует универсальность, простоту и точность предложенного в работе [7] метода восстановления ориентационного параметра порядка не только для классических молекулярных кристаллов из двухатомных молекул, но и для квантовых. Тот факт, что значения η были восстановлены из нейтронографических данных, подтверждает независимость

применимости метода от экспериментальных методик. Для удовлетворительного применения предложенного метода необходимо только знать с достаточной точностью интегральные интенсивности (или структурные амплитуды).

Помимо расчета η по результатам нейтронографических исследований D_2 с пара-концентрацией $x > 90\%$ [14], мы попытались восстановить параметр ориентационного упорядочения по результатам работы [11], где концентрация p - D_2 была чуть выше 80%. Однако наши расчеты соответствующих структурных амплитуд показали (и это совпадает с выводами анализа Ярнелла с соавторами [14]), что для сверхструктурных линий значения структурных амплитуд в [11] сильно завышены. В работе [14] были сделаны оценки изменения концентрации пара-модификации за время эксперимента. Из приведенных данных следует, что даже для самой высокой концентрации p - D_2 $x \simeq 96\%$ ее изменение не превышало 2% за время эксперимента. Для образцов с более низкой концентрацией эти изменения были соответственно пропорционально меньшими.

3. Обсуждение результатов

Таким образом, мы получили абсолютные значения η в хорошем согласии с теоретическим значением приближения молекулярного поля 0,4, но систематически ниже его на $\Delta\eta \simeq 0,032$. Рассмотрим и оценим три наиболее веские причины этого уменьшения.

Тепловые либроны. Наиболее очевидной причиной представляется влияние тепловых либраций, возбуждение которых является разупорядочивающим фактором. Оценку этого эффекта можно сделать в рамках простейшего одночастичного приближения, в котором волновые функции локальных возбужденных состояний суть $|\text{Ex}(\pm 1)\rangle = |J = 1, m = \pm 1\rangle$. Считаем, что заселенность этих состояний пропорциональна $p = e^{-E/kT}$, где E – средневзвешенная энергия либронных возбуждений относительно основного состояния. Квантовомеханическое среднее по возбужденному состоянию

$$\eta_m \equiv \langle \text{Ex}(m) | P_2(\cos \vartheta) | \text{Ex}(m) \rangle = 1/5$$

не зависит от знака m . Значение η как термодинамическое среднее имеет вид ($\eta_0 = 2/5$)

$$\eta = \frac{\sum_m \eta_m e^{-E_m/kT}}{\sum_m e^{-E_m/kT}}, \quad (10)$$

где суммирование производится по трем значениям проекции вращательного момента в состоянии $J = 1$.

В итоге имеем (порядковый индекс 1 означает отклонение за счет тепловых либронов)

$$\eta \equiv 2/5 - \Delta\eta_1 = \frac{2/5(1-p)}{1+2p}, \quad (11)$$

что дает $\Delta\eta_1 = 2/[5p / (1+2p)]$, или $\Delta\eta_1/\eta_0 = p/(1+2p)$. Принимая во внимание температуру нейтронографического эксперимента [14] $T = 1,5$ К и определенное экспериментально [22] термодинамически средневзвешенное значение $E = 19,2$ К, получаем оценку $\Delta\eta_1/\eta_0 = 2,3 \cdot 10^{-4}$. Таким образом, влияние либронов оказывается пренебрежимо малым.

Вращательная поляризация. Каждая молекула в структуре $Pa3$ находится в молекулярном поле, которое в собственной системе отсчета этой молекулы имеет вид [15,23]

$$V = V_c C_{20}(\mathbf{w}), \quad (12)$$

\mathbf{w} — вектор ориентации молекулы;

$$V_c = -(5/3)19Г, \quad (13)$$

где определенная экспериментально [1] константа квадруполь-квадрупольного взаимодействия $Г$ для дейтерия составляет величину 1,026 К. Поле (12) поляризует собственное основное состояние $|10\rangle$ молекулы, подмешивая более высокие вращательные состояния и в первую очередь состояние с $J = 3$. Применяя стандартную теорию возмущения, легко показать, что в первом приближении одночастичная волновая функция Ψ имеет вид

$$\Psi = |10\rangle + \frac{3\sqrt{3}V_c}{50\sqrt{7}B} |30\rangle, \quad (14)$$

где $B = 42,97$ К — вращательная постоянная молекулы дейтерия (поправкой к нормировке пренебрегаем, поскольку она имеет второй порядок малости по параметру разложения $V_c/(10B) \simeq 0,076$). Исходя из (14), можно оценить поправку $\Delta\eta_2/\eta_0$, обусловленную вращательной поляризацией основного вращательного состояния:

$$\Delta\eta_2/\eta_0 = \frac{27}{350} \frac{V_c}{B}, \quad (15)$$

откуда следует $\Delta\eta_2/\eta_0 \simeq -5,8\%$. Интересно отметить, что при малых отрицательных V_c молекулярное поле оказывает разупорядочивающее действие для антисимметричного состояния $J = 1$. При больших отношениях V_c/B упорядочение, естественно, усиливается. Такая же ситуация имеет место и для ротатора в поле кубической симметрии [24].

Вращательные ангармонизмы. Хорошо известно [23,25], что вращательная динамика состояний $J = 1$, взаимодействующих посредством квадруполь-квадрупольных сил, отличается (особенно в ориентацион-

но упорядоченной фазе) большими ангармонизмами. Влияние этого фактора на параметр ориентационного порядка η приводит к его уменьшению на величину $\Delta\eta_3/\eta_0 \simeq -2,5\%$ [23]. При более последовательном рассмотрении этой проблемы получено значение $-3,0\%$ [26].

Таким образом, совместный учет указанных трех факторов приводит к теоретическому значению $\Delta\eta_{\text{calc}}/\eta_0 \simeq -8,8\%$, что оказывается очень близким к полученному нами (хотя и с большой суммарной погрешностью) экспериментальному значению $-8,0\%$. Мы можем указать (см. выше) только статистическую ошибку определения, причем собственная ошибка метода и ошибка восстановления константы в факторе Дебая — Валлера незначительны. К сожалению, Ярнелл и др. [14] не приводят ошибку определения амплитуд рассеяния, но, если судить по опубликованным нейтронограммам (см. рис. 5 из [14]), ошибка не может быть малой.

4. Выводы

1. Метод восстановления абсолютных значений параметра ориентационного порядка в упорядоченных фазах молекулярных кристаллов, состоящих из двухатомных частиц, из дифракционных (в данном случае нейтронографических) данных оказался эффективным и для квантового кристалла дейтерия.

2. Значение ориентационного параметра порядка $\eta = 0,368$, полученное из нейтронографических данных Ярнелла с соавторами [14], близко к $\eta_0 = 0,4$, что соответствует теоретическому значению при $T = 0$ для приближения молекулярного поля. Относительное отклонение от η_0 составляет -8% .

3. Проведен теоретический анализ причин, которые могут приводить к перенормировке η . Показано, что наиболее сильное влияние оказывают два фактора: вращательная поляризация основного вращательного состояния и вращательные ангармонизмы. Суммарная перенормировка за счет этих двух факторов составляет $-8,8\%$, что на удивление близко к значению, полученному нами при восстановлении η из данных по дифракции нейтронов. Тепловые либроны оказывают пренебрежимо малое (по крайней мере для температуры нейтронного эксперимента 1,8 К) влияние на величину η . Поскольку первые два фактора слабо зависят от температуры, величина η , приведенная к значению при $T = 0$, должна слабо зависеть от температуры, что следует из различных экспериментов [4,5].

Авторы выражают искреннюю благодарность рецензенту, конструктивные замечания которого помогли значительно улучшить статью. Настоящая ра-

бота выполнена при поддержке фонда CRDF (грант UP2-2445-KH-02).

1. I.F. Silvera, *Rev. Mod. Phys.* **52**, 393 (1980).
2. *Physics of Cryocrystals*, V.G. Manzhelii and Yu.A. Freiman (eds.), AIP Publ., New York (1996).
3. A.B. Harris, *Phys. Rev.* **B1**, 1881 (1970); *Phys. Rev.* **B2**, 3495 (1970); *J. Appl. Phys.* **42**, 1574 (1971).
4. H. Meyer, F. Weinhaus, B. Maraviglia, and R.L. Mills, *Phys. Rev.* **B6**, 1112 (1972).
5. W.N. Hardy, I.F. Silvera, and J.P. McTague, *Phys. Rev.* **B12**, 753 (1975).
6. J. Lee and J.C. Raich, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 1137 (1971).
7. N.N. Galtsov, O.A. Klenova, and M.A. Strzhemechny, *ФНТ* **28**, 517 (2002).
8. A.F. Schuch and R.L. Mills, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 616 (1966).
9. A.F. Schuch, R.L. Mills, and D.A. Depatie, *Phys. Rev.* **165**, 1032 (1968).
10. C.S. Barrett, L. Meyer, and D.A. Depatie, *J. Chem. Phys.* **45**, 834 (1966).
11. K.F. Mucker, S. Talhouk, P.S. Harris, and D. White, *Phys. Rev. Lett.* **16**, 799 (1966).
12. K.F. Mucker, P.M. Harris, D. White, and R.A. Erikson, *J. Chem. Phys.* **49**, 1922 (1968).
13. R.L. Mills, J.L. Yarnell, and A.F. Schuch, *Proc. LT-19*, part 2, Plenum Press, New York (1974), p. 203.
14. J.L. Yarnell, R.L. Mills, and A.F. Schuch, *ФНТ* **1**, 366 (1975).
15. J. Van Kranendonk, *Solid Hydrogen*, Plenum Press, New York—London (1983).
16. W. Press, *Acta Crystallogr.* **A29**, 252 (1973); *ibid.* 257 (1973).
17. М.А. Стржемечный, А.А. Солодовник, С.И. Коваленко, *ФНТ* **24**, 889 (1998).
18. В.В. Данчук, А.А. Солодовник, М.А. Стржемечный (готовится к печати).
19. Ю.З. Нозик, Р.П. Озеров, К. Хенниг, *Структурная нейтронография*, т. 1, Атомиздат, Москва (1979).
20. Л.И. Миркин, *Справочник по рентгеноструктурному анализу поликристаллов*, ГИФМЛ, Москва (1961).
21. W.B.J.M. Janssen and A. van der Avoird, *Phys. Rev.* **B42**, 838 (1990).
22. D. Ramm, H. Meyer, and R.L. Mills, *Phys. Rev.* **B1**, 2763 (1970).
23. C.F. Coll, III and A.B. Harris, *Phys. Rev.* **2**, 1176 (1970); *ibid.* **4**, 2781 (1971).
24. A.F. Devonshire, *Proc. Roy. Soc.* **A153**, 601 (1936).
25. J.C. Raich and R.D. Etters, *Phys. Rev.* **168**, 425 (1968).
26. Ф.П. Онуфриева, *ФНТ* **3**, 1050 (1977).

Orientational order parameter in the ordered phase of solid deuterium from neutron diffraction data

V.V. Danchuk, N.N. Galtsov, M.A. Strzhemechny, and A.I. Prokhvatilov

The method of direct reconstruction of the orientational order parameter η from integrated diffraction intensities is applied to the case of the orientationally ordered phase of the quantum para-D₂ crystal. To this end, the elastic neutron scattering results by Yarnell, Mills, and Schuch were used. The reconstructed quantity $\eta = 0.368$ is close to but systematically somewhat below the value 0.4, which corresponds to the theoretical value obtained for $T = 0$ within the molecular field approximation. The deviation of the real η from the molecular-field value was estimated with account of the following three factors which can affect the absolute η value: thermally activated librions, rotational anharmonicities, and rotational polarization. The total calculated re-normalization of η (−8.8%) is very close to that (−8.0%) reconstructed from the neutron scattering experiments.