

FÍSICA

REVISTA CUBANA DE FÍSICA

FÍSICA

Sociedad Cubana de Física
y Facultad de Física,
Universidad de La Habana

VOL.37 No.1
JULIO, 2020



FÍSICA Y COVID-19

Portada: Dispositivo para medir cuánto las telas de nasobucos caseros detienen gotas que impactan balísticamente (Trabajo en progreso de V. Marquez y col.)

EDITOR

E. ALTSHULER

Facultad de Física, Universidad de la Habana
ealtshuler@fisica.uh.cu

EDICIÓN ELECTRÓNICA

J. J. GONZÁLEZ, C. GANDARILLA

Facultad de Física, Universidad de la Habana
jgonzalez@fisica.uh.cu, cgandarilla@fisica.uh.cu

E. MARTÍNEZ

NTNU, Norway
martinez.etien@gmail.com

O. ALMORA

University Erlangen-Nuremberg
osbel.almora@fau.de

D. MIRAVET

Centro Atómico Bariloche & Instituto Balseiro
dmiravet@cab.cnea.gov.ar

EDITORES ASOCIADOS

A. J. BATISTA-LEYVA, G. ROJAS-LORENZO

INTEC, La Habana
abatista@instec.cu, german@instec.cu

W. BIETENHOLZ

UNAM, México
wolbi@nucleares.unam.mx

J. O. FOSSUM

NTNU, Noruega
Jon.fossum@ntnu.no

L. H. GREENE

National Magnetic Lab, U.S.A
lhgreene@magnet.fsu.edu

J. -P. GALAUP

Lab. A. Cotton (CNRS) & Univ. Paris-Sud
Jean-pierre.galaup@lac.u.-psud.fr

J. LLOVERA

CUJAE, La Habana
llovera@electrica.cujae.edu.cu

O. de MELO, R. MULET

Facultad de Física, Universidad de La Habana
omelo@fisica.uh.cu, mulet@fisica.uh.cu

P. MUNÉ

Facultad de Ciencias, Universidad de Oriente
mune@cnt.uo.edu.cu

T. PÖSCHEL

University Erlangen-Nuremberg
thorsten.poeschel@fau.de

E. RAMÍREZ-MIQUET

HiFiBio Therapeutics, France
e.ramirez@hifibio.com

T. SHINBROT

Rutgers University
shinbrot@soemail.rutgers.edu

C. A. ZEN-VASCONCELOS

Univ. Federal Rio Grande do Sul
cesarzen@cesarzen.com

COORDENADAS

2 PHYSICS AND COVID-19

[FÍSICA Y COVID-19]

E. Altshuler

ARTÍCULOS ORIGINALES

3 MODELLING STUDY OF NO₂ CONVERSION IN N₂/O₂/H₂O/CO₂ MIXTURES

[ESTUDIO POR MODELACIÓN DE LA CONVERSIÓN DE NO₂ EN MEZCLAS N₂/O₂/H₂O/CO₂]

R. Ahmed Ammar, M. Lemerini, N. Djaouani, S. I. Medjahdi

7 SIMULACIÓN DEL AISLAMIENTO MATRICIAL DE HEXACARBONILO DE TUNGSTENO

[A SIMULATION OF TUNGSTEN HEXACARBONYL MATRIX ISOLATION]

D. Camacho-Granados, Y. Toledo-González, M. Lara-Moreno, G. Rojas-Lorenzo

16 STABILITY AND TRANSITION IN CONTINUOUSLY DEFORMED CELULAR AUTOMATA

[ESTABILIDAD Y TRANSICIÓN EN AUTÓMATAS CELULARES CONTINUAMENTE DEFORMADOS]

K. García-Medina, D. Estévez-Moya, E. Estévez-Rams

24 THE ONSET OF CONVECTIVE ACTIVITY IN AN ANISOTROPIC POROUS MEDIUM LAYER WITH INTERNAL HEATING AND INCONSISTENT GRAVITY EFFECTS

[LLEGADA DE LA ACTIVIDAD DE CONVECCIÓN EN UNA CAPA POROSA ANISOTRÓPICA CON CALENTAMIENTO INTERNO Y EFECTOS GRAVITATORIOS INCONSISTENTES]

D. Yadav

34 INTERCALATION OF CIPROFLOXACIN IN SMECTITE: FIRST PRINCIPLES AND MOLECULAR DYNAMICS CALCULATIONS

[INTERCALACIÓN DE CIPROFLOXACÍN EN SMECTITAS: CÁLCULOS DE PRIMEROS PRINCIPIOS Y DE DINÁMICA MOLECULAR]

A. Lam, G. Rojas-Lorenzo, A. M. Ferrari, A. Rivera, C. M. Zicovich-Wilson, J. Álvarez

44 SYMMETRY ASPECTS OF FISSION FRAGMENT MASS DISTRIBUTION IN ²³⁸U(¹⁸O,F) REACTION

[ASPECTOS DE SIMETRÍA DE LA DISTRIBUCIÓN DE MASA DE FRAGMENTOS DE FISIÓN EN LA REACCIÓN ²³⁸U(¹⁸O,F)]

R. Gupta

COMUNICACIONES ORIGINALES

49 EL JUEGO Y LOS JUGUETES EN EL PROCESO DE ENSEÑANZA-APRENDIZAJE: LA HÉLICE MÁGICA DESDE LA PERSPECTIVA DE LA FÍSICA

[PLAYING AND TOYS IN THE TEACHING-LEARNING PROCESS: THE MAGICAL HELIX FROM THE PHYSICS PERSPECTIVE]

R. Serra, A. Moreno, J.J. Llovera, M. Muramatsu, D. Magalhães

52 ALGUNAS REFLEXIONES SOBRE EL TRATAMIENTO DE INCERTIDUMBRES EN LABORATORIOS DOCENTES DE FÍSICA

[SOME THOUGHTS ON THE TREATMENT OF UNCERTAINTIES IN EDUCATIONAL LABORATORIES OF PHYSICS]

J. B. Cruz-Arencibia, J.J. Llovera, J. M. López-Guerra

PARA FÍSICOS Y NO FÍSICOS

55 EXPLORING THE REASONS BEHIND THE CIRCULAR SHAPE OF DRUMS

[EXPLORANDO LAS RAZONES DETRÁS DE LA FORMA CIRCULAR DE LOS TAMBORES]

P. Nishanth, K. M. Udayanandan

MOMENTOS DE LA FÍSICA EN CUBA

- 58 **CARLOS TRALLERO-GINER: DESDE CUBA, HACIA LATINOAMÉRICA**
[CARLOS TRALLERO-GINER: FROM CUBA, TO LATIN AMERICA]
M. Sánchez-Colina, L. Taliashvili, A. Pentón-madrigal
- 61 **FÍSICA CUBANA EN EL COSMOS: A 40 AÑOS DEL VUELO ESPACIAL CONJUNTO**
[CUBAN PHYSICS IN THE COSMOS: 40 YEARS AFTER THE JOINT SPACE FLIGHT]
V. Marquez-Alvarez
- 70 **MAESTRÍA Y DOCTORADO: LA VIDA MÁS ALLÁ DE LA TESIS**
[MSc AND PhD: LIFE BEYOND THE THESIS]
G. Quintero-Angulo, J. Cerutti-Torres, v. L. Díaz-Melián, D. Suárez-Fontanella, D. Alvear-Terrero
- 73 **RUSSIAN-CUBAN GNSS SERVICE FOR MONITORING AND ANALYSIS OF GEOPHYSICAL
PARAMETERS**
[SERVICIO GNSS RUSO-CUBANO PARA EL MONITOREO Y ANÁLISIS DE PARÁMETROS GEOFÍSICOS]
D. Marshalov, O. Pons-Rodríguez, Yu. Bondarenko, V. Suvirkin, I. Bezrikov, S. Serzhanov
- 77 **NUESTRA FÍSICA EN NOTICIAS**

PHYSICS AND COVID-19

LA FÍSICA Y LA COVID-19

E. ALTSHULER

Editor, Revista Cubana de Física

In a recent effort to contribute fighting the COVID-19 pandemic, The American Physical Society has identified a collection of relevant articles published in its journals, and made them freely available online [1]. If one examines the approximately 25 papers in the list that have been published in the years 2019 and 2020, it is found that most of them deal with networks (see, for example, “Predicting the speed of epidemics networks” [2]) and just one can be classified as biophysical (“Finite T phase behavior of viral capsids as oriented particle shells” [3]). Regardless of what criteria were used to construct the list, the fact is that theoretical papers overwhelmingly dominate –a phenomenon that can be jokingly called THEOVID-19. A few facts explaining this. One is that theoretically understanding the spread of the virus, determining if measures taken by governments influence its dissemination, and suggesting concrete actions to control the pandemic, are goals of the uttermost importance. Another reason is that theoretical research is the logical way to go if you must stay at home for a few months. Indeed, an enthusiastic group of Cuban physicists and mathematicians have been systematically involved in that kind of work during the pandemic, in close coordination with the Cuban Ministry of Health.

Still, I really miss the presence of “more conventional” physics associated with the COVID-19 era, especially when there is plenty of room for it. The transmission of infections from individual to individual and the usefulness of face masks is a red hot topic these days, closely connected with fluid dynamics. For example, the paradigm that an inter-personal distance of the order of two meters is enough to avoid contamination from an infected person has been challenged by a recent Insight in a top medical journal [4], but the claim is mostly based on an earlier “hard-core” physics article reporting sophisticated visualization and mechanical modeling of human sneezing and coughing [5]. This is just a prominent example: the physics of contamination through droplets (with emphasis in aerosols, i.e., particles smaller than a few microns) is all over the literature: classical mechanics, thermodynamics and statistics are essential ingredients in the area. Curiously, a large proportion of that body of work seems

to be authored by chemical and mechanical engineers.

Finally, is the subject of the interaction between droplets and cloths, and other porous materials –quite relevant in evaluating the effectiveness of face masks in stopping airborne infection. The physical techniques used to quantify the particles penetrating masks range from light scattering to contemporary nanotechnology [6]. However, physicists have largely left the subject to other colleagues. Fortunately, over the last few years physicists have used high speed cameras to study in detail how liquid droplets interact with fabrics [7]. This is a return to simplicity –seeing is believing– and also to fundamental physics.

These days, physicists coming from much broader research fields than one might expect –from organic electronics to dark matter– are joining the fight against COVID-19 in many ways: creating a fluorescence test based on the viral load of saliva, designing a ventilator optimized for use in poor countries, attempting to fabricate face masks using cotton candy machines. . . [8]. A whole new brand of “experimental physics” that, besides its usefulness to save lives, has the glamour of being well suited for physics laboratories with scarce resources. Like those in Cuba.

REFERENCES

- [1] <https://journals.aps.org/collections/covid19>.
- [2] S. Moore and T. Rogers, Phys. Rev. Lett. **124**, 068301 (2020).
- [3] A. R. Singh, A. Košmrlj and R. Bruinsma, Phys. Rev. Lett. **124**, 158101 (2020).
- [4] L. Bourouiba, JAMA **323**, 1837 (2020).
- [5] L. Bourouiba, E. Dehandschoewercker and J. W. M. Bush, J. Fluid Mech. **745**, 537 (2014).
- [6] A. Konda, A. Prakash, G. A. Moss, M. Schmoldt, G. D. Grant and S. Gupta, ACS Nano **26**, 6339 (2020).
- [7] D. Soto, H. L. Girard, A. Le Helloco, T. Binder, D. Quéré, and K. K. Varanasi, Phys. Rev. Fluids **3**, 083602 (2018).
- [8] T. Feder, Physics Today **73**, 22 (2020).

MODELLING STUDY OF NO₂ CONVERSION IN N₂/O₂/H₂O/CO₂ MIXTURES

ESTUDIO DE MODELADO DE LA CONVERSIÓN DE NO₂ EN MEZCLAS DE N₂/O₂/H₂O/CO₂

R. AHMED AMMAR[†], M. LEMERINI, N. DJAOUANI, S.I. MEDJAHDI

Laboratory of Theoretical Physics, Department of Physics, Faculty of Sciences, University of Abou Bekr Belkaid, Tlemcen (13000), Algeria; ri.ahmedammar@gmail.com

[†] corresponding author

Recibido 24/11/2019; Aceptado 20/4/2020

The main objective of this study is to understand the time evolution of the nitrogen dioxide specie in N₂/O₂/H₂O/CO₂ mixture gas induced by negative corona discharge at atmospheric pressure. The fundamental chemistry governing NO₂ evolution developed in this paper is based on a full set of processes regrouped in one hundred selected chemical reactions involving twenty molecular, excited, atomic, and charged species. The density was calculated using the continuity equation without the diffusion and convective terms. In literature it has generally been emphasized that certain radicals N, O, and O₃ influence the NO₂ conversion. In this study, we complete them by analyzing others species such as negative ions and radicals. The results show that the environmental condition rate of NO₂ is well affected by the increase of reduced electric field and concentration.

El objetivo principal de este estudio es comprender la evolución del NO₂ en la mezcla gaseosa N₂/O₂/H₂O/CO₂, inducida por una descarga de corona negativa a presión atmosférica. Los fundamentos químicos presentados, que permiten controlar la evolución del NO₂, se basan en un conjunto completo de procesos reagrupados a partir de una selección de 100 reacciones químicas que involucran 20 especies. Se utilizó la ecuación de la continuidad para determinar la densidad excluyendo los términos de difusión y convección. En la literatura se enfatiza que la conversión del NO₂ está influenciada por la presencia de radicales de N, O y O₃. En este trabajo se abre el estudio, además, a la influencia de iones negativos sobre la conversión del NO₂. Los resultados alcanzados permiten relacionar el incremento de la intensidad del campo eléctrico reducido y las concentraciones de las especies con la velocidad de conversión del NO₂ en condiciones ambientales.

PACS: Atomic and molecular physics (Física atómica y molecular) 31.15.E-; dynamics of intermolecular interactions (dinámica de las interacciones intermoleculares), 87.15.hg; corona discharges (descargas de corona) 52.80.Hc.

I. INTRODUCTION

It is well known that gas discharge plasmas are able to initiate chemical reactions in normally inert gas mixtures [1]. These effects can also have a direct impact on the targeted applications such as electron beam processes which were particularly studied for treatment of gaseous effluents polluted by nitrogen oxides (NO_x) and/or sulfur (SO_x) [2–4], ozone production [5–7], medical applications [8–10] and surface treatment [11–13].

The chemical reactivity of the neutral gas mixture enables transformation of the toxic molecule into harmless particles (such as N₂, O or N) or to create acids (such as the nitric acid) inside the plasma. These acids can be transformed into salt (by addition of a base) [14–16].

So, the emission of nitrogen oxides remains one of the major environmental concerns when designing and optimizing combustion systems [17–19]. Gas discharge plasmas and their applications in various domains (physics, chemistry, biology, etc) are being widely studied [20–24]. They can be used for reforming the poisonous pollutants, such as NO_x, SO_x, COX, etc. These studies are based on the numerical equations for the reduction of NO_x gases in reactors. Discharges in N₂/O₂ mixtures can differ considerably from discharges in pure N₂ or O₂ in a number of characteristics (principally, in chemical and ionic composition). Theoretical modeling of kinetic processes

in N₂/O₂ discharges has been developed in several works [25–29]. In the present study, we simulate for various values of reduced electric field (100 Td, 200 Td), the time evolution of twenty chemical species (electrons e, molecules N₂, O₂, H₂O, CO₂, OH, O₃, atoms N, O, H, nitric oxides NO, NO₂, NO₃, N₂O₅, negative ions (O⁻, O₂⁻, O₃⁻, NO₂⁻) and metastables species N(²D), O(¹D), in the mixture (N₂: 76 %, O₂: 8 %, H₂O: 6 % and CO₂: 10 %). These different species react following 150 selected chemical reactions. This simulation must consider various effects induced by the passage of a corona discharge in a mixed gas. For the sake of simplification, we assume that the gas has no convective movement gradients and the pressure remains constant.

II. MATHEMATICAL MODEL

The basic formulas used in the present work consists of a system of equations that takes into account the variation of the density and the chemical kinetics of the environment. We developed a zero dimensional model for solving the transport equations for all species present in the mixture. So, in this model we ignore the spatial variation and we take only the temporal variation. Therefore, this model is designed to follow the time evolution of the species densities by a system of

ordinary differential equations of the following form:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1}^{j_{max}} R_{ij}, \quad R_{ij} = G_{ij} - L_{ij}, \quad \text{where } j = 1, \dots, j_{max} \quad (1)$$

where: N_i represent the species densities, $i = 1$ up to 20 considered in the plasma and R_{ij} the source term depending on the reaction coefficients and corresponding to the contributions from different processes. G_{ij} and L_{ij} represent respectively the gain and loss of species i due to the chemical reactions $j = 1$ up to $j_{max} = 100$. The solution of such a system requires the knowledge of the initial concentrations. The total density N of the gas is given by the ideal gas law:

$$P = Nk_bT. \quad (2)$$

Where P represents the pressure, k_b Boltzmann constant and T the absolute temperature. The reactivity of the gas is taken into account in the source term R_{ij} of the density conservation (1).

$$G_{ij} = \sum_{\mu} K_{\mu}(T)(n_i n_j)_{\mu}, \quad L_{ij} = \sum_{\nu} K_{\nu}(T)(n_i n_j)_{\nu}. \quad (3)$$

$K_{\mu}(T)$ and $K_{\nu}(T)$ are the coefficients of the chemical reaction number μ or ν and $(n_i n_j)$ is the product of densities of species i and j interacting in response to the reaction μ or ν . These coefficients satisfy Arrhenius formula:

$$K_{\mu}(T) = A \exp\left(-\frac{\theta_{\mu}}{T}\right), \quad K_{\nu}(T) = B \exp\left(-\frac{\theta_{\nu}}{T}\right). \quad (4)$$

Where A and B are the constants factor and θ_{μ} and θ_{ν} are the activation energy of the reaction and T the absolute temperature of the species (Table).

III. RESULTS AND DISCUSSIONS

In Fig. 1, we have shown the time evolution of NO_2 density at numerous values of reduced electrical fields: 100, 120, 140, 160, 180 and 200 Td. We observe that for low values, the density does not vary significantly, but, when the field becomes strong the difference in density becomes important. This clearly shows the fundamental role played by the reduced electric field in the evolution of nitrogen dioxide.

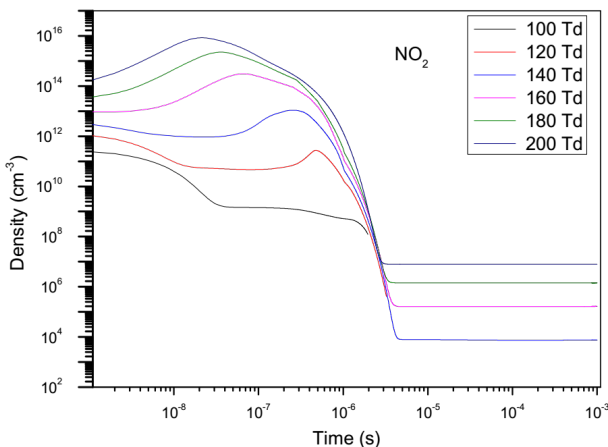


Figure 1. Time evolution of NO_2 density under various values of reduced electric fields: 100, 120, 140, 160, 180 and 200 Td.

In Figs. 2 and 3 we have shown the time evolution of rate coefficient of two reactions that participated in the NO_2 destruction. We note firstly that the effectiveness of these reactions is higher at the beginning than at the end. Secondly, plus the value of the reduced electric field is more important reaction is effective. For example, at 100 Td the rate coefficient does not vary significantly, but at 200 Td we have a significant reduction. We notice to all of these curves that the reactions become less effective after $t = 5 \times 10^{-4}$ s.

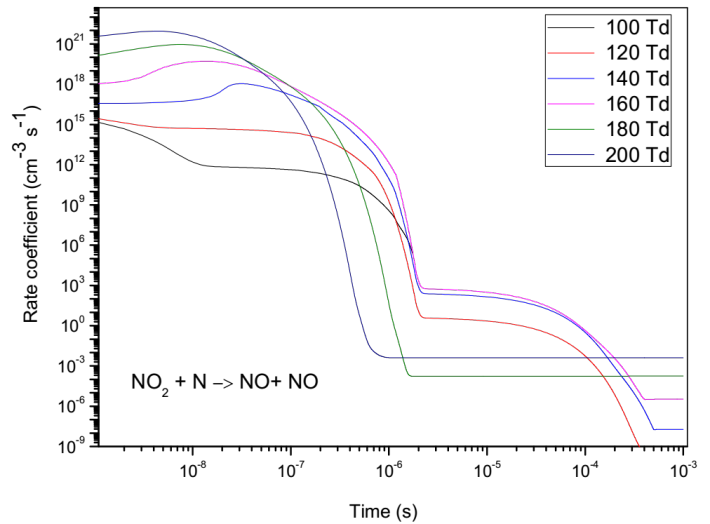


Figure 2. Time evolution of rate coefficient of reaction: $\text{NO}_2 + \text{N} \rightarrow \text{NO} + \text{NO}$ for various values of reduced electric fields: 100, 120, 140, 160, 180, and 200 Td.

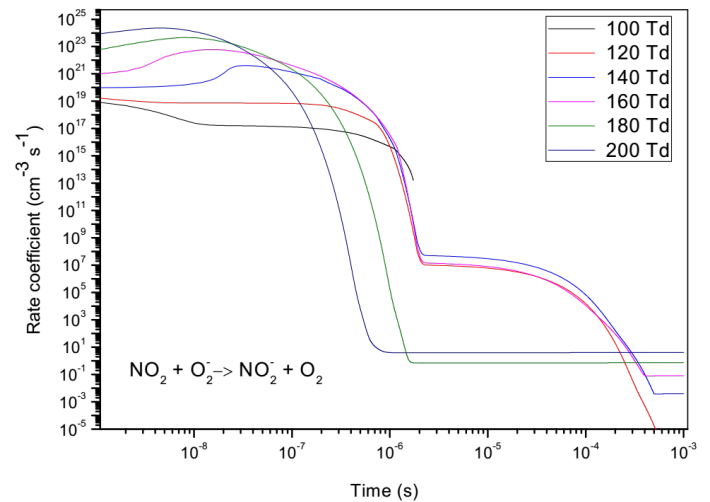


Figure 3. Time evolution of rate coefficient of reaction: $\text{NO}_2 + \text{O}_2^- \rightarrow \text{NO}_2^- + \text{O}_2$ for various values of reduced electric fields: 100, 120, 140, 160, 180, and 200 Td.

Figs. 4 and 5 show the time evolution of NO_2 creation in the same condition as above. Firstly, it is noted that the behavior is the same for all values of the reduced electric field. In the beginning, $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$ is dominant, then $\text{NO} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2$, implying a rapid increase of density number.

Fig. 6 shows the influence of the reduced electric field on the evolution of the rate coefficient which participated on nitrogen dioxide density evolution NO_2 . We notice clearly on this figure that the influence is always important at higher values (140, 160, 180 and 200 Td).

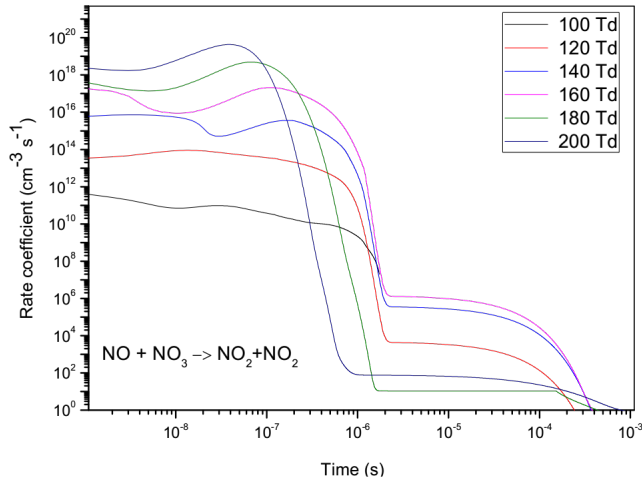


Figure 4. Time evolution of rate coefficient of reaction: $\text{NO} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2$ for various values of reduced electric fields: 100, 120, 140, 160, 180 and 200 Td.

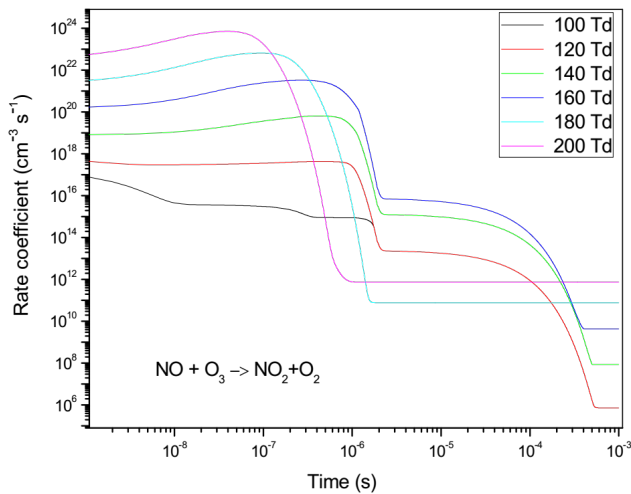


Figure 5. Time evolution of rate coefficient of reaction: $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$ for various values of reduced electric fields: 100, 120, 140, 160, 180 and 200 Td.

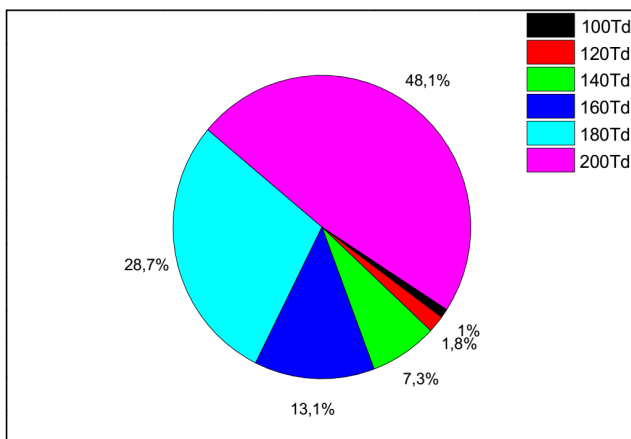


Figure 6. Percentage representation of influence of reduced electric fields: 100, 120, 140, 160, 180 and 200 Td on nitrous oxide NO_2 rate coefficient evolution.

IV. CONCLUSION

In this paper we numerically studied NO_2 conversion in $\text{N}_2/\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}/\text{CO}_2$ mixtures under nonuniform field from the zerodimensional model. As future research prospects, we will study this phenomenon in plasma physics in 2D. The obtained results show the significant conversion of the concentration of NO_2 which is different and depends strongly on the values of reduced electric fields. Finally, these results permit us to determine the vital role played by the reduced electric field on species evolution, and to more deeply perceive various reaction processes affecting the NO_2 magnitude within a gas mixture.

BIBLIOGRAPHY

- [1] Y.P. Raizer, J. Phys. D: Appl. Phys. **37**, 851 (1991).
- [2] J.S. Hammer, Plasma Sources Sci. Technol. **11**, A196 (2002).
- [3] J.S. Chang, Plasma Sources Sci. Technol. **17**, 045004 (2008).
- [4] M. Laroussi, IEEE Trans. Plasma Sci. **24**, 1188 (1996).
- [5] M. Simek and M. Clupek, J. Phys. D: Appl. Phys. **35**, 1171 (2002).
- [6] B. Eliasson and U. Kogelschatz, IEEE Trans. Plasma Sci. **19**, 1063 (1991).
- [7] J. Chen and J.H. Davidson, Plasma Chem. Plasma Process **22**, 495 (2002).
- [8] Y.S. Akishev, A.A. Deryugin, I.V. Kochetov, A.P. Napartovich and N.I. Trushkin, J. Phys. D: Appl. Phys. **26**, 1630 (1993).
- [9] M. Laroussi, A. Fridman, P. Favia and M.R. Wertheimer, Plasma Process. Polym. **7**, 193 (2010).
- [10] A.M. Pointu, A. Ricard, E. Odic, and M. Ganciu, Plasma Process. Polym. **5**, 559 (2008).
- [11] C.C. Wang, S. Roy, J., Appl. Phys. **106**, 013310 (2009).
- [12] E. Moreau, J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 605 (2007).
- [13] G. Fridman and A. Gutsol, Plasma Process. Polym. **5**, 503 (2008).
- [14] C. Tendero, "Torche plasma micro-onde à la presión atmosférica: application au traitement de surfaces métalliques", Ph.D. Thesis, Université de Limoges, France, (2005).
- [15] L. Miao, S. Tanemura, H. Watanabe, Y. Mori, K. Kaneko, and S. Toh, J. Cryst. Growth **260**, 118 (2004).
- [16] F. Fresnet, G. Baravian, L. Magne, S. Pasquiers, C. Postel, V. Puech and A. Rousseau, Plasma Sources Sci. Technol. **11**, 152 (2002).
- [17] J.S. Chang, Plasma Sources Sci. Technol. **17**, 045004 (2008).
- [18] A.K. Ferouani, M. Lemerini, L. Merad and M. Houalef, Plasma Sources Sci. and Technol. **17**, 469 (2015).
- [19] A. Haddouche and M. Lemerini, Plasma Sources Sci. and Technol. **17**, 589 (2015).

- [20] A. Flitti and S. Pancheshnyi, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **45**, 21001 (2009).
- [21] L. Zhao and K. Adamiak, *J. Electrostat.* **63**, 337 (2005).
- [22] S. Katsuki, K. Tanaka, T. Fudamoto, T. Namihira, H. Akiyama and H. Bluhm, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**(1A), 239 (2006).
- [23] M. Capitelli, C.M. Ferreira, B.F. Gordiets and A.I. Osipov, *Plasma Kinetics in Atmospheric Gases* (Springer, Berlin, 2013).
- [24] S. Pancheshnyi, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **46**, 155201 (2013).
- [25] H. Zhao and H. Lin, *Phys. Plasmas* **23**, 073505 (2016).
- [26] A. Hoesl, P. Haefliger and C.M. Franck, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 485207 (2017).
- [27] Y. Itikawa, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **35**, 31 (2006).
- [28] Y. Itikawa, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **38**, 1 (2009).
- [29] A. Bekstein, M. Yousfi, M. Benhenni, O. Ducasse and O. Eichwald, *J. Appl. Phys.* **107**, 103308 (2010).
- [30] I.A. Kossyi, A. YuKostinsky, A.A. Matveyev and V.P. Silakov, *Plasma Sources Sci. Technol.* **1**, 207 (1992).
- [31] R. Atkinson, D.L. Baulch, R.A. Cox, R.F. Hampson, J.A. Kerr, M.J. Rossi and J. Troe, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **26**, 521 (2010).
- [32] L.A. Rosocha, G.K. Anderson, L.A. Bechtold, J.J. Coogan, H.G. Heck, M. Kang, W.H. McCulla, R.A. Tennant and P.J. Wantuck, *Non-Thermal Techniques for Pollution control, part B*, (Springer-Verlag, Berlin, 1993).

Table 1. The main plasma reactions to generate the main species to NO creation, reduction and their reaction coefficients. (Reaction coefficients are in units of $\text{cm}^3 \cdot \text{molecule}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ for two body reactions, and $\text{cm}^3 \cdot \text{molecule}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ for three body reactions). They are taken from the literature [30–32].

	Chemical reactions	Reaction coefficients	Chemical reactions	Reaction coefficients	
R1	$e + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}(^1\text{D}) + e$	$k_1 = 3.2 \times 10^{-11}$	R11	$\text{N}(^2\text{D}) + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	$k_{11} = 0.97 \times 10^{-11}$
R2	$e + \text{N}_2 \rightarrow \text{N} + \text{N} + e$	$k_2 = 2.0 \times 10^{-11}$	R12	$\text{N} + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	$k_{12} = 0.44 \times 10^{-11}$
R3	$e + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{OH} + \text{H} + e$	$k_3 = 3.35 \times 10^{-10}$	R13	$\text{N}_2\text{O}_5 + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{O}_2$	$k_{13} = 1.6 \times 10^{-19}$
R4	$e + \text{CO}_2 \rightarrow \text{CO} + \text{O} + e$	$k_4 = 8.7 \times 10^{-11}$	R14	$\text{NO} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2$	$k_{14} = 2.0 \times 10^{-11}$
R5	$\text{O}(^1\text{D}) + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$	$k_5 = 0.14 \times 10^{-9}$	R15	$\text{NO}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_3$	$k_{15} = 1.2 \times 10^{-13}$
R6	$\text{NO} + \text{O} + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	$k_6 = 2.5 \times 10^{-10}$	R16	$\text{NO} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2$	$k_{16} = 2.0 \times 10^{-11}$
R7	$\text{NO}_2 + \text{N} \rightarrow \text{NO} + \text{NO}$	$k_7 = 2.3 \times 10^{-12}$	R17	$\text{O}_3 + \text{N}_2 \rightarrow \text{O} + \text{O}_2 + \text{N}_2$	$k_{17} = 5.16 \times 10^{-27}$
R8	$\text{NO}_2 + \text{O}_2^- \rightarrow \text{NO}_2^- + \text{O}_2$	$k_8 = 7.0 \times 10^{-10}$	R18	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5 + \text{N}_2$	$k_{18} = 1.01 \times 10^{-27}$
R9	$\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	$k_9 = 0.18 \times 10^{-11}$	R19	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 + \text{N}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5 + \text{N}_2$	$k_{19} = 1.01 \times 10^{-27}$
R10	$\text{NO} + \text{O} \rightarrow \text{N} + 2\text{O}$	$k_{10} = 0.18 \times 10^{-11}$	R20	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5$	$k_{20} = 1.1 \times 10^{-12}$

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



SIMULACIÓN DEL AISLAMIENTO MATRICIAL DE HEXACARBONILO DE TUNGSTENO

A SIMULATION OF TUNGSTEN HEXACARBONYL MATRIX ISOLATION

D. CAMACHO-GRANADOS^{a†}, Y. TOLEDO-GONZÁLEZ^a, M. LARA-MORENO^b, G. ROJAS-LORENZO^a

a) Instituto Superior de Tecnología y Ciencias Aplicadas, Universidad de La Habana, 10400 La Habana, Cuba; dcamacho@instec.cu[†]

b) Université de Bordeaux and CNRS, ISM, UMR 5255, F-33400 Talence, France

† autor para la correspondencia

Recibido 7/2/2020; Aceptado 21/4/2020

Se emplea un modelo de deposición para simular el crecimiento de cristales de gases nobles dopados con impurezas de hexacarbonilo de tungsteno. Las simulaciones se realizan utilizando Dinámica Molecular clásica y con correcciones cuánticas para mejorar la descripción de las interacciones entre los átomos del sistema. Se identifican diferentes sitios en los que puede quedar atrapada la molécula y se analiza la probabilidad y estabilidad de cada uno. Encontramos que la preferencia de un sitio sobre otros se relaciona con las propiedades del cristal y en algunos casos con la temperatura del sistema. Esta información es importante para esclarecer los resultados obtenidos por un grupo de investigadores que estudia la molécula de hexacarbonilo de tungsteno experimentalmente empleando técnicas de aislamiento matricial y espectroscópicas. Los resultados fueron comparados con datos reportados en la bibliografía.

We use a deposition model in order to simulate the grow of rare gases crystals doped with tungsten hexacarbonyl as impurity. The simulations were carried out using Classical Molecular Dynamics, applying quantum corrections to improve the interactions between atoms. Several trapping sites were identified and probabilistic and energetic studies were done as well. We found that sites preference of the molecule is close related with crystallographic properties of rare gases solids and the temperature of the system. The obtained information is quite important to clarify the experimental results obtained by trapping the molecule using matrix isolation technique and infrared spectroscopy. Results were compared with experimental data recorded from previous studies of the system.

PACS: Computer simulations of molecular dynamics (simulaciones computacionales de dinámica molecular), 83.10.Rs; molecular dynamics calculations in atomic and molecular physics (cálculos de dinámica molecular en física atómica y molecular), 31.15.xv; structure of noble gas (estructura de gas noble), 61.25 Bi

I. INTRODUCCIÓN

La técnica de aislamiento matricial se comenzó a utilizar en los años 50 del pasado siglo para atrapar especies químicas reactivas en sólidos cristalinos de gases nobles o sólidos moleculares de H_2 , N_2 , CH_4 , entre otros, de manera que la interacción entre la especie atrapada y la matriz inerte sea débil.

En el proceso de obtención de las muestras que se analizan experimentalmente, siendo una muestra el sistema compuesto por la matriz con la molécula atrapada en su interior, la molécula puede ser alojada en sitios con geometrías distintas, por lo que sus interacciones con el medio que la rodea pueden variar de una muestra a otra. Como consecuencia de este fenómeno, que juega un papel muy importante en la espectroscopía de los huéspedes atrapados en las matrices (anfritrones) [1–3], siendo sistemas idealmente iguales, los resultados espectroscópicos obtenidos difieren. Sin embargo, experimentalmente, es complicado y en ocasiones imposible identificar las distintas geometrías de los sitios y analizar cuál tiene mayor influencia y peso en los resultados.

Recientemente Thon *et.al* [4–6] han comparado las propiedades vibracionales del hexacarbonilo de tungsteno ($W(CO)_6$), mediante espectroscopía infrarroja (IR), al atraparlo en matrices de gases nobles de Ar, Kr, Ne y en

sólidos moleculares de pH_2 , N_2 y CH_4 . Sus resultados aportan nuevos datos con vista al entendimiento de la dinámica vibracional del enlace C – O en la molécula. Encontraron que la estructura del espectro de absorción es compleja en los sólidos cristalinos criogénicos, lo que refleja el efecto de sitios. A partir de los resultados experimentales Thon *et.al* [4–6], consideran que en matrices con estructuras cristalográficas *fcc*, cuya distancia al vecino más próximo es $\sim 0.4\text{ nm}$, los sitios sustitucionales con geometría octaédrica (O_h) se obtienen tras remover 13 átomos de la matriz, y que el espacio que ocupa la vacancia formada es suficiente para alojar una molécula de $W(CO)_6$. Basándose en esta hipótesis sugieren que los sitios con geometría O_h deben estar presentes en las matrices de Ar, Kr y Ne, de ahí la complejidad del espectro obtenido. Sin embargo, experimentalmente no les es posible saber con certeza las características y forma de la vacancia.

La Dinámica Molecular Clásica ha sido ampliamente empleada en este tipo de problemas con anterioridad por varios autores, esclareciendo satisfactoriamente los resultados obtenidos en los trabajos experimentales [2, 7–17]. Sin embargo, es ampliamente aceptado [18, 19] que simular sistemas que involucren átomos ligeros, como es el caso del Ne, con la aproximación clásica puede conducir a resultados erróneos que se desvían del comportamiento observado para estos sistemas en el experimento.

Para un sistema compuesto de átomos, la hipótesis clásica puede ser probada mediante la longitud de onda térmica de de Broglie Λ

$$\Lambda = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_bT}} \quad (1)$$

donde m es la masa del átomo, \hbar la constante de Plank dividida por 2π , k_b la constante de Boltzman y T la temperatura del sistema. Si ($\Lambda/a \ll 1$), siendo a la distancia media al vecino más próximo, es posible calcular propiedades termodinámicas en el equilibrio clásicamente. La tabla I muestra los valores obtenidos en [19] al emplear la ecuación (1) para distintos gases nobles: se observa que en cuanto al comportamiento cuántico antes descrito el neón supera tres veces a al argón, cinco al kriptón y nueve al xenón.

Tabla 1. Longitud de onda térmica de de Broglie para átomos de distintos gases nobles. Valores tomados de la Tabla 1 de [19]

Gas noble	Λ/a
Ne	0.260
Ar	0.083
Kr	0.046
Xe	0.028

Existen varias técnicas para incluir efectos cuánticos en simulaciones clásicas. Uranga-Piña *et. al* [19] describen a los átomos con el potencial del oscilador anarmónico en equilibrio térmico a una temperatura efectiva T' , de modo que las simulaciones clásicas se realicen a esta temperatura efectiva y así corregir los efectos de energía de punto cero aumentando la energía cinética del sistema. La relación entre la temperatura física T y la efectiva se describe como

$$T' = \frac{T_b}{1 + \frac{3gk_bT_b}{(m\omega^2)^2} \left[\tanh\left(\frac{\hbar\omega}{k_bT}\right) \right]}, \quad (2)$$

siendo

$$T_b = \frac{\hbar\omega}{2k_b} \left[\tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_bT}\right) \right]^{-1}, \quad (3)$$

ω la frecuencia del oscilador anarmónico, m la masa de los átomos, \hbar la constante de Plank dividida por 2π , k_b la constante de Boltzman y g el coeficiente anarmónico.

Pirani *et. al* [20–22] han empleado en varios estudios un potencial de interacción por pares que tiene la forma básica de un Lennard–Jones, pero incluye un término de corrección que es capaz de describir mejor las interacciones entre átomos, por este motivo ha sido denominado *Improved Lennard–Jones*.

Otra forma de tener en cuenta los efectos cuánticos en simulaciones con modelos clásicos es utilizar un potencial clásico y realizarle una corrección a partir de la metodología propuesta por Feynman y Hibbs [23]. Este método ha sido estudiado y empleado exitosamente por varios autores [24–28]. Los resultados obtenidos de esta manera permiten ganar en exactitud con respecto a los modelos clásicos sin un consumo de cómputo excesivo comparado a las simulaciones empleando Dinámica Molecular Clásica.

El interés fundamental del presente estudio está dirigido a modelar y simular el crecimiento de sólidos de gases nobles dopados con hexacarbonilo de tungsteno, con el empleo de diferentes aproximaciones para considerar efectos cuánticos como el movimiento de punto cero. Entre las aproximaciones que se utilizan está la corrección cuántica a la temperatura y el empleo de potenciales efectivos que dependen directamente de la temperatura, como son los potenciales de Feynman-Hibbs de 2do y 4to orden, o de potenciales parametrizados para un rango de temperaturas como el Improved Lennard-Jones. El trabajo está organizado, a continuación, en una sección de materiales y métodos, donde se explican brevemente las características del modelo que se utiliza y los métodos de simulación que se emplean. La siguiente sección está dedicada a los resultados obtenidos, los cuales se analizan en la sección dedicada a las discusiones y finalmente se presentan las conclusiones.

II. MATERIALES Y MÉTODOS

La construcción del modelo teórico, que permite la simulación del proceso de crecimiento de las matrices de gases nobles dopadas con $W(CO)_6$, se realiza sobre la base de considerar las principales características del experimento. En este último, las muestras experimentales se obtienen de la condensación de un gas a baja presión, constituido por una mezcla con proporciones establecidas de átomos anfitriones y moléculas huéspedes, sobre una superficie que se mantiene a muy baja temperatura. En los estudios experimentales se analizan los sistemas integrados por Ne, Ar y Kr. En este trabajo se estudian todos estos casos antes mencionados y se incluye, además, el estudio del sistema con Xe.

II.1. Modelo físico

El modelo físico empleado para simular el crecimiento de la matriz se fundamenta en trabajos anteriores [2, 14–17, 29] y se representa esquemáticamente en la figura 1.

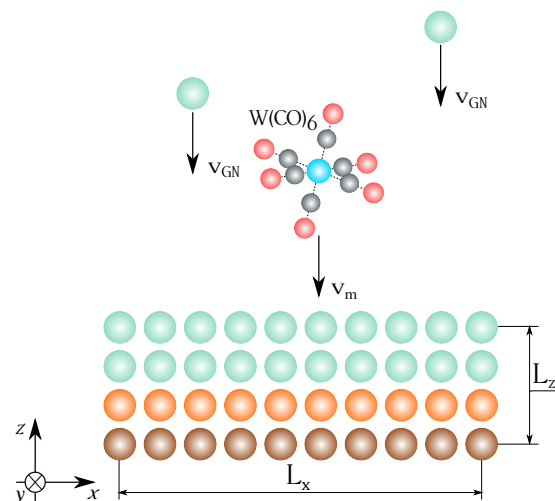


Figura 1. Representación gráfica del modelo físico empleado en las simulaciones de crecimiento matricial.

Inicialmente se construye un sustrato del material anfitrión replicando una celda unidad *fcc* 6, 6 y 2 veces en las direcciones *x*, *y* y *z* respectivamente, para un total de cuatro capas y 288 átomos. En la tabla II se muestra, para cada gas noble, la distancia al vecino más próximo empleada y las consecuentes longitudes del sustrato.

Tabla 2. Datos cristalográficos utilizados en la composición del sustrato y las correspondientes longitudes en cada dirección cartesiana.

Gas noble	r_{nn} [Å]	$L_x (= L_y), L_z$ [Å]	Ref.
Ne	3.16	24.58, 6.70	[30]
Ar	3.78	29.40, 8.02	[18]
Kr	3.98	30.96, 8.44	[18]
Xe	4.34	33.76, 9.21	[18]

Los átomos de la capa inferior del sustrato se mantienen fijos, representando la superficie enfriada sobre la que se depositan los elementos. La capa siguiente actúa como un termostato: un algoritmo de reescalamiento de velocidades [18] mantiene al sistema a una temperatura establecida extrayendo la energía que a este adiciona el impacto de las partículas depositadas. Las restantes capas permanecen solo bajo la influencia de las restricciones propias del potencial empleado.

Las partículas depositadas comienzan su recorrido desde posiciones aleatorias en el plano (*x*, *y*), a una altura que asegure la interacción gradual del elemento que está siendo depositado con respecto a los que ya forman parte del sistema. Su velocidad inicial se establece solo en la dirección negativa de *z*, tomando en consideración que se simula una porción muy pequeña de la muestra y que tras la deposición de varios átomos la superficie estará ondulada.

II.2. Simulación

En primera instancia se deposita la molécula de $W(CO)_6$ y luego, cada 5 fs, se deposita un átomo de gas noble. Este intervalo de tiempo, que caracteriza al flujo de material depuesto, garantiza que la energía adicional transmitida al sistema por el impacto sea lentamente transferida a los grados de libertad vibracionales del cristal. El aumento de energía es disipado lentamente por la segunda capa, de modo que el sistema se encuentre en equilibrio cuando se libere la siguiente partícula a deponer. Como consecuencia del impacto de la partícula siendo depositada con el sólido crecido, en la zona cercana a la interacción se experimentará un aumento de la temperatura. Este fenómeno posibilita cierto grado de movilidad de las partículas en las capas superiores del sólido y su posterior acomodamiento para continuar creciendo la estructura cristalina. La matriz se considera finalizada tras la deposición de 419 átomos de gas noble.

Se utilizan condiciones periódicas de frontera en las direcciones *x* y *y* con el radio de corte $R_c = L_x/2$. El paso de integración es $dt = 1$ fs y se emplea el algoritmo de Verlet de velocidades [31, 32] para la integración de las ecuaciones del movimiento de las partículas. La velocidad inicial de los átomos de gas noble depositados es $v_{GN} = 4$ Å/ps y la de la molécula $v_m = v_{GN} \sqrt{m_{GN}/m_m}$, empleando el teorema de

equipartición de la energía. La segunda capa del sustrato se mantiene a 4 K.

II.3. Potenciales de interacción

Las interacciones intramoleculares del $W(CO)_6$ se simulan mediante el campo de fuerzas *Classical Force Field* (C.F.F) [33], empleando sus términos de enlace, ángulos planos y ángulos diedros.

Las interacciones interatómicas entre los átomos de la molécula y cada gas noble (GN) se describen por una función del tipo Van der Waals 9-6 [34]

$$U(r_{ij}) = \varepsilon_{ij} \left[\left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^9 - \left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^6 \right] \quad (4)$$

Los parámetros de la ecuación (4) se obtienen mediante las reglas de combinación que reflejan las ecuaciones (5) y (6). Los valores de los parámetros utilizados para el cálculo del potencial se muestran en la tabla III para cada elemento.

$$\varepsilon_{ij} = 2 \frac{\sigma_i^3 \cdot \sigma_j^3}{\sigma_i^6 + \sigma_j^6} \sqrt{\varepsilon_i \cdot \varepsilon_j} \quad (5)$$

$$\sigma_{ij} = \sqrt[6]{\frac{\sigma_i^6 + \sigma_j^6}{2}} \quad (6)$$

Tabla 3. Parámetros empleados para los elementos del sistema con la función descrita por la ecuación (4).

Elemento	ε_i [kcal/mol]	σ_i [Å]
Ne	0.071	3.13
Ar	0.246	3.84
Kr	0.299	4.14
Xe	0.455	4.56
C	0.054	4.01
O	0.240	3.54
W	12.05	2.93

Las interacciones interatómicas entre los gases nobles, con excepción del Ne, se simulan por una función potencial del tipo Lennard–Jones (L–J). Los parámetros utilizados se presentan en la tabla IV.

Tabla 4. Parámetros empleados por la función del tipo L–J para simular las interacciones interatómicas GN–GN del Ar, Kr y Xe.

Elemento	ε_i [kcal/mol]	σ_i [Å]
Ar	0.246	3.84
Kr	0.299	4.14
Xe	0.455	4.56

A diferencia de los ya mencionados gases nobles, las interacciones Ne–Ne han sido simuladas con anterioridad por varios autores [8, 9] con una función potencial del tipo Morse, como la mostrada a continuación

$$U(r_{ij}) = D \left[1 - e^{-\alpha(r_{ij}-r_0)} \right]^2 - D, \quad (7)$$

con parámetros $D = 29.36 \text{ cm}^{-1}$, $\alpha = 2.088 \text{ Å}^{-1}$ y $r_0 = 3.091 \text{ Å}$.

También, Pirani y col. [20] proponen una función potencial capaz de describir comportamientos cuánticos y se emplea para simular interacciones Ne–Ne en el mencionado estudio. La forma funcional es

$$U(r_{ij}) = \varepsilon \left[\frac{m}{n(r) - m} \left(\frac{r_m}{r_{ij}} \right)^{n(r)} - \frac{n(r)}{n(r) - m} \left(\frac{r_m}{r_{ij}} \right)^m \right], \quad (8)$$

donde ε y r_m son la profundidad del pozo del potencial y su localización, respectivamente. El valor de m es 6 para sistemas neutro–neutro, 4 para iónico–neutro y 1 para iónico–iónico. Además, $n(r)$ depende de $r = r_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ y toma la forma

$$n(r) = \beta + 4 \left(\frac{r}{r_m} \right) \quad (9)$$

siendo β un factor relacionado con la dureza de las partes interactuantes. De acuerdo con la investigación de Pirani y col. para el sistema Ne–Ne $\beta = 9$.

Con el objetivo de incluir correcciones cuánticas en los sistemas simulados es posible desarrollar la función potencial clásica requerida según la metodología propuesta por Feynman y Hibbs [23]. En concordancia con Sesé [26], la corrección cuántica de Feynman–Hibbs se obtiene de la siguiente manera:

$$U_{AB}^{FH(2p)}(\vec{r}) = \sum_{n=0}^p \frac{1}{n!} \left(\frac{\beta \hbar^2}{24 \mu} \right)^n \nabla^{2n} [U_{AB}(\vec{r})] \quad (10)$$

donde $\nabla^0 = 1$, $p = 0, 1, 2$ corresponde al potencial clásico U_{AB} , al Feynman–Hibbs de orden 2 (FH2) y al Feynman–Hibbs de orden 4 (FH4), respectivamente, $\beta = 1/k_b T$ y μ es la masa reducida de las partículas interactuantes. En el caso que $U_{AB}(\vec{r})$ depende de $r = |\vec{r}|$, partiendo de la ecuación (10) y siguiendo los resultados obtenidos en [27] se tiene que

$$U_{AB}^{FH2}(r) = U_{AB}(r) + \frac{\beta \hbar^2}{24 \mu} \left[U_{AB}''(r) + \frac{2}{r} U_{AB}'(r) \right] \quad (11)$$

y

$$U_{AB}^{FH4}(r) = U_{AB}^{FH2}(r) + \frac{1}{2} \left(\frac{\beta \hbar^2}{24 \mu} \right)^2 \left[U_{AB}^{(IV)}(r) + \frac{4}{r} U_{AB}'''(r) \right] \quad (12)$$

El criterio selectivo entre el término cuadrático y el de orden cuatro se basa en la temperatura del sistema. Rodríguez–Cantano y col. [27] reportan que los potenciales FH2 y FH4 son útiles para temperaturas $4\text{K} \leq T \leq 6\text{K}$, mientras que para temperaturas $T > 6\text{K}$ el uso de FH2 es más acertado. En estos intervalos, si bien no se encuentran en perfecta concordancia con los resultados obtenidos de cálculos cuánticos más exactos, los potenciales efectivos mejoran significativamente al clásico. Por su menor costo computacional, en este trabajo se utiliza el desarrollo de segundo orden.

III. RESULTADOS

Se realizaron los cálculos para simular 1000 crecimientos de cada uno de los sistemas GN/W(CO)₆ a las temperaturas

del experimento y efectiva. Con el objetivo de identificar los sitios se tomó como criterio la forma geométrica que adopta el medio inmediato que rodea a la molécula en uno de los planos que contiene al átomo de tungsteno (centro de simetría de la molécula).

III.1. Matrices de Ne

Para estudiar al sistema Ne/W(CO)₆ se emplean cuatro aproximaciones. La primera, designada como U_{Morse} , simula las interacciones Ne–Ne según la función de energía potencial tipo Morse descrita en la ecuación (7), las interacciones interatómicas Ne – W, Ne – C y Ne – O según la función Van der Waals descrita por la ecuación (4) y las interacciones intramoleculares del W(CO)₆ empleando el campo de fuerzas C.F.F. La temperatura establecida es la física: 4 K.

La figura 2 muestra las geometrías de los sitios así obtenidos. En el 96 % de las simulaciones la molécula quedó equilibrada dentro de la matriz tras remover 10 átomos de gas noble. El sitio obtenido de esta forma se ha denominado S3. Las restantes contribuciones son casi insignificantes: con remoción de 8 átomos (S1) el 1 %, 9 átomos (S2) el 1 % y 12 átomos (S4) el 2 %. Obsérvese que la geometría de los sitios S2 y S4 solo difieren de S3 en la posición de uno de los átomos mostrados y en consecuencia en el número de vacancias. De manera general y teniendo en cuenta que el sitio es una cavidad y no solo el plano mostrado como criterio de identificación se puede afirmar que se está en presencia del mismo sitio, pero logrado tras remover un número diferente de átomos. En su conjunto el sitio se identifica como S234.

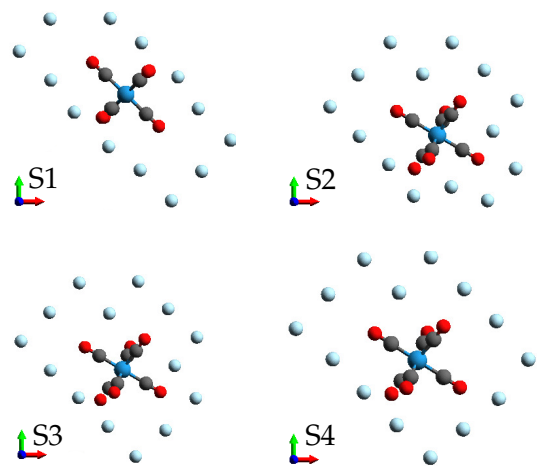


Figura 2. Geometría de los principales sitios identificados en el sistema Ne/W(CO)₆ empleando la aproximación U_{Morse} .

La segunda aproximación, denominada U_{Teff} , es la corrección a la temperatura dada por la ecuación (2). Las interacciones se simulan de la misma manera que en U_{Morse} , pero en lugar de 4 K la simulación se realiza a la temperatura efectiva $T' = 15.1\text{K}$ obtenida de la ecuación (2) para este sistema.

En el 99 % de las simulaciones la molécula quedó atrapada en el interior de la matriz tras remover 7 átomos de Ne, ocupando el sitio denominado S5-x. El restante 1 % de las simulaciones

presenta una geometría distinta que se logra tras remover 10 átomos de Ne, designada como S6 (ver figura 3).

La tercera aproximación, denominada U_{ILJ} , se basa en el empleo de la ecuación (8) para simular las interacciones interatómicas Ne–Ne. El resto de las interacciones se mantiene como en la aproximación U_{Morse} y la temperatura es la física: 4 K.

El 100 % de las simulaciones presentan a la molécula en un sitio donde ha removido 7 átomos de Ne y el átomo de tungsteno ocupa una posición sustitucional en la red cristalina. Este sitio se ha denominado S5-y (ver figura 3). La configuración así obtenida muestra un estado de equilibrio muy marcado.

Obsérvese que el sitio S5-x, obtenido al utilizar la aproximación U_{Teff} es esencialmente el mismo que el obtenido al emplear la aproximación U_{ILJ} (S5-y), solo variando la dirección en que se orienta la molécula. En casos como este, donde solo cambia la dirección cristalográfica en que se orienta la molécula no se consideran distintos los sitios. Es por esto que los sitios denominados S5-x y S5-y son, en definitiva, el mismo sitio S5.

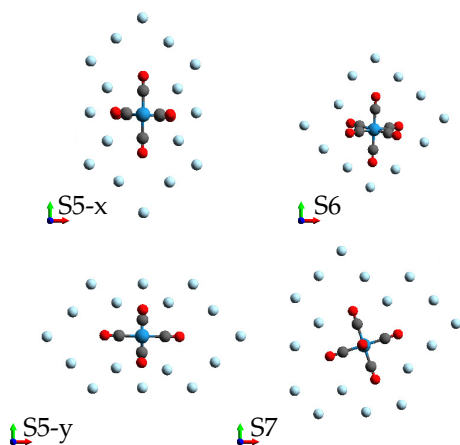


Figura 3. Geometría de los principales sitios identificados en el sistema Ne/W(CO)₆ empleando la aproximación U_{Teff} (S5-x y S6), la aproximación U_{ILJ} (S5-y) y la aproximación U_{FH2} (S7).

Los valores de los parámetros empleados en las funciones de energía potencial se reportan en la literatura para cierto rango de temperaturas. Estos se extraen, en ocasiones, de experimentos como los de espectroscopía de infra-rojo, que se realizan sobre los sistemas de interés a determinada temperatura. En otras ocasiones, se obtienen a partir de cálculos *ab-initio*, donde la temperatura del sistema se define como 0 K.

La incorporación del efecto de la temperatura en la interacción, permite incluir en la simulación clásica efectos cuánticos como el movimiento de punto cero. Esto se logra introduciendo la temperatura efectiva. Potenciales efectivos, como los de Feynman-Hibbs, incluyen explícitamente su dependencia con la temperatura, y por tanto consideran el movimiento de punto cero. En el caso del potencial U_{ILJ} , sus parámetros fueron optimizados para reproducir las interacciones en un rango de temperaturas, de modo que describa correctamente dicho efecto cuántico. Para las interacciones Ne-Ne se utilizó este potencial a temperaturas

entre 2K y 30K [27]. El rango estudiado contiene tanto a la temperatura física, a la que se realizó el experimento, como a la temperatura efectiva calculada para los sólidos de Ne.

Las dos aproximaciones que se abordaron para incluir los efectos cuánticos asociados al movimiento de punto cero (U_{Teff} y U_{ILJ}) aportaron resultados similares.

La cuarta aproximación, denominada U_{FH2} , simula las interacciones entre los elementos del sistema con los mismos potenciales de interacción que la aproximación U_{Morse} pero utilizando el desarrollo FH2 de las ecuaciones (4) y (7).

Las matrices obtenidas al emplear esta aproximación presentan alto grado de deformación del cristal en la zona superior de la molécula. Este hecho dificulta la identificación de las vacancias y en consecuencia la descripción de los sitios. Sin embargo, se identifica generalmente la remoción de entre 13 y 15 átomos para ubicar la impureza en el cristal. Este comportamiento se debe a la mayor repulsividad del potencial de interacción interatómico, con respecto a los anteriormente descritos. En la figura 3 se muestra la geometría del sitio obtenido (S7).

Debido a las irregularidades en las matrices de la aproximación U_{FH2} se decidió realizar esta misma simulación pero sin corregir las funciones de energía potencial que describen las interacciones interatómicas Ne – O, Ne – C y Ne – W. O sea, en este caso solo se aplicó la metodología propuesta por Feynman y Hibbs a la ecuación (7) que describe las interacciones Ne–Ne. Los resultados muestran también un alto grado de deformación de la matriz de gas noble encima de la molécula, y los sitios obtenidos son mucho más variados que el único obtenido empleando la corrección cuántica en todas las interacciones. Esta aproximación se identifica como U_{FH2-SN} , haciendo referencia a que “solo se aplica en el neón” la corrección.

El hecho que las aproximaciones U_{FH2} y U_{FH2-SN} presenten un alto grado de deformación de la matriz puede significar que el uso de las correcciones Feynman–Hibbs no son adecuadas para describir este tipo de sistema. Sin embargo, las interacciones entre átomos de Ne son muy bien descritas con esta aproximación. En la figura 4 se muestran tres matrices seleccionadas aleatoriamente de las muestras generadas y se observan las deformaciones que claramente induce la presencia de la impureza, pues en el caso que no se ha depositado la molécula, solo átomos de gas noble, la estructura cristalina muestra una composición adecuada.

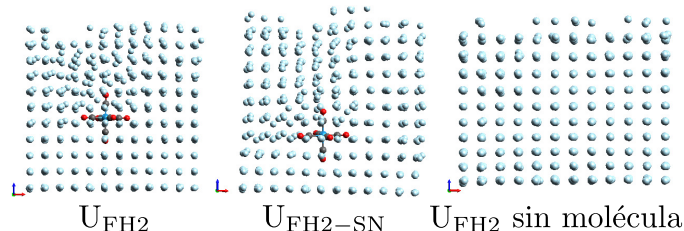


Figura 4. Vista lateral de las matrices obtenidas con el empleo de las diferentes aproximaciones FH2 para describir al sistema.

Precisamente una pregunta clave a responder para entender los espectros obtenidos en este tipo de experimento es cuánto

deforma la presencia de la molécula al medio que la rodea. Una comparación de la influencia de la impureza en las matrices de neón empleando las cuatro aproximaciones utilizadas se muestra en la figura 5. En ella se presenta la función de distribución radial de los átomos de Ne promediada en todas las simulaciones. Se observa que de manera general ocurren desviaciones al introducirse la molécula en el interior de la matriz.

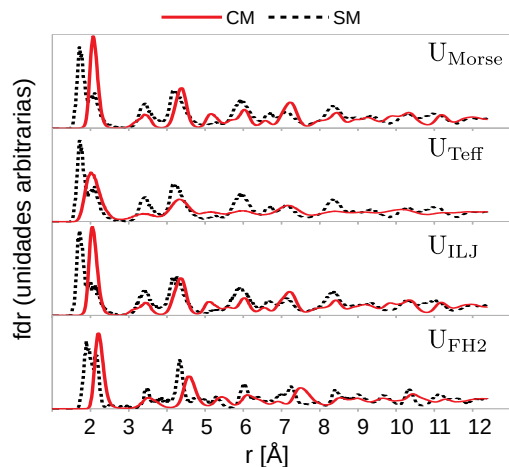


Figura 5. Funciones de distribución radial calculadas para las cuatro aproximaciones utilizadas en la simulación del sistema $\text{Ne}/\text{W}(\text{CO})_6$. CM se refiere a que el cálculo se realiza “con la molécula” en el interior de la matriz y SM a que se realiza “sin la molécula”.

Al emplear la aproximación U_{Teff} se observa la mayor deslocalización de las bandas. Esto se debe al aumento de la amplitud de las vibraciones de los átomos del cristal con respecto a su posición de equilibrio como consecuencia del aumento de la temperatura. Incluso las aproximaciones de Feynman–Hibbs muestran menor deslocalización de las bandas debido a que solo presentan estructuras cristalinas desordenadas en zonas específicas del cristal.

El comportamiento general mostrado en la figura 5 describe un desplazamiento de los picos hacia valores mayores del radio cuando se deposita la molécula. Esto indica que la influencia de la impureza dentro de la matriz no solo evita que los átomos, en el proceso de deposición, conformen el cristal de neón, o sea, crea vacancias, sino que además ejerce cierta repulsión sobre los que estén ubicados en sus alrededores.

Las simulaciones realizadas con la aproximación U_{ILJ} conducen a un mayor equilibrio y organización en la estructura de la matriz. La explicación a este resultado se encuentra en la forma funcional del potencial. En la figura 6 se representa la corrección que introduce U_{ILJ} en la zona atractiva del potencial, de manera que la energía de interacción entre los átomos que se encuentran en la mencionada zona está caracterizada por un pozo más profundo en 4.36 cm^{-1} respecto al pozo que aparece con la aproximación U_{Morse} . Esto permite sugerir que con la aplicación de la aproximación U_{ILJ} el sistema alcanza ligeramente mayor estabilidad que con el caso de la aproximación U_{Morse} .

La figura 6 muestra que al aplicar la corrección U_{FH2} el mínimo de la función potencial se desplaza de forma que donde había equilibrio ahora existe una fuerte repulsión, además

la profundidad del pozo se reduce. Como consecuencia, las interacciones al emplear la corrección FH2 son más repulsivas y la matriz se deforma en mayor medida. Sin embargo, es importante observar que la matriz solo se deforma en la zona superior de la molécula y que en las restantes áreas del cristal mantiene un alto grado de simetría (ver figura 4).

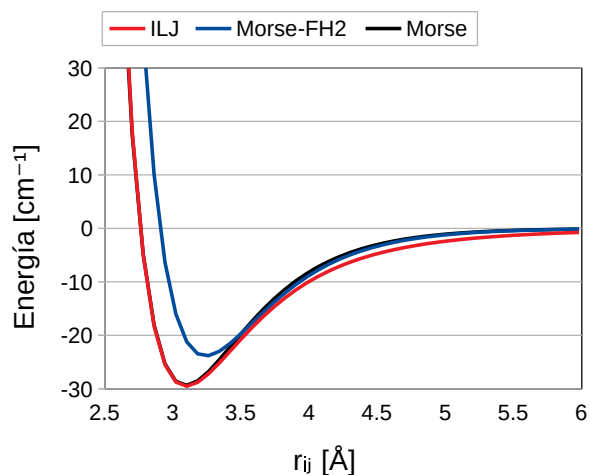


Figura 6. Potenciales de interacción por pares que describen las interacciones interatómicas $\text{Ne} - \text{Ne}$ en las aproximaciones U_{Morse} , U_{ILJ} y U_{FH2} aplicado a la ecuación (7).

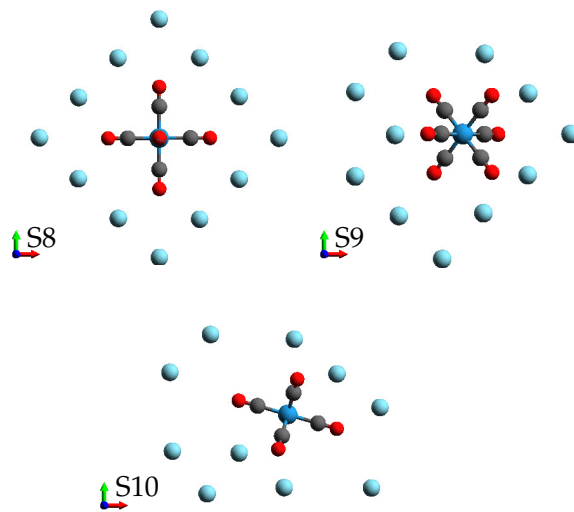


Figura 7. Geometría de los principales sitios identificados en los sistemas $(\text{Ar}, \text{Kr}, \text{Xe})/\text{W}(\text{CO})_6$ empleando el potencial L–J para las interacciones GN–GN.

Tabla 5. Distribución de sitios y vacancias (v) en que queda atrapada la molécula $\text{W}(\text{CO})_6$ en matrices de Ne a 4 K y a 15.1 K.

	S1 (%)	S234 (%)			S5 (%)	S6 (%)
	8v	9v	10v	12v	7v	10v
4 K	1.0	1.0	96.0	2.0	0.0	0.0
15.1 K	0.0	0.0	0.0	0.0	99.0	1.0

En los sistemas formados por GN más pesados ($\text{Ar}, \text{Kr}, \text{Xe}$) el comportamiento es más clásico, y por tanto no se consideró la aproximación U_{FH2} en el estudio de los mismos. Por otro lado, las aproximaciones U_{Teff} y U_{ILJ} aportaron resultados similares en el estudio de las matrices de Ne. Estos elementos fueron considerados para estudiar al resto de los sistemas solo con las aproximaciones clásica y U_{Teff} .

En la tabla V se resumen las características de los principales sitios siguiendo el criterio establecido en el párrafo anterior.

En las matrices de Ar, Kr y Xe se identifican tres sitios fundamentales en los que queda atrapada la molécula. Sus geometrías se muestran en la figura 7.

III.2. Matrices de Ar

En las muestras de Ar/W(CO)₆, a la temperatura física $T = 4$ K, se obtuvieron distintos sitios en los que puede alojarse la molécula en el cristal. En el 63 % de las ocasiones la molécula adopta la configuración S8 al desplazar 6 átomos de Ar, mientras que en el 35.9 % de las muestra la impureza se deposita en el sitio S9 desplazando entre 6 y 7 átomos de la red cristalina. En el 1.1 % de las simulaciones la molécula suele depositarse adoptando la configuración S10, removiendo entre 8 y 9 átomos de Ar.

Al realizar las simulaciones a la temperatura efectiva $T' = 30.9$ K, en el 5.7 % de las muestras la impureza se deposita generando el sitio S8, desplazando 6 átomos de la matriz. En el restante 94.3 % de las simulaciones la molécula adopta la configuración S9, desplazando entre 6 y 7 átomos de Ar. La tabla VI resume la distribución de los sitios antes descrita.

Tabla 6. Distribución de sitios y vacancias (v) en que queda atrapada la molécula W(CO)₆ en matrices de Ar a 4 K y a 30.9 K.

	S8 (%)		S9 (%)		S10 (%)	
	6v	6v	7v	8v	9v	9v
4 K	63	17.1	18.8	1.1	0	0
30.9 K	5.7	81.9	12.4	0	0	0

Tabla 7. Distribución de sitios y vacancias (v) en que queda atrapada la molécula W(CO)₆ en matrices de Kr a 4 K y a 25.9 K.

	S8 (%)		S9 (%)		S10 (%)	
	6v	6v	7v	8v	9v	9v
4 K	3.0	96.6	0.4	0	0	0
25.9 K	3.1	96.7	0.2	0	0	0

Este sistema muestra una marcada dependencia con la temperatura. En las simulaciones a 4 K la molécula adopta 3 configuraciones diferentes (S8, S9 y S10), siendo S8 la configuración predominante. Al aumentar la temperatura hasta 30.9K existe una redistribución de los sitios. A esta temperatura la impureza se deposita solo en dos sitios (S8 y S9), siendo S9 el sitio principal.

III.3. Matrices de Kr

En el 2.3 % de las muestras de Kr/W(CO)₆, a la temperatura física $T = 4$ K, la molécula se deposita en la configuración S8, desplazando 6 átomos de Kr, mientras que en el 97.0 % de las simulaciones la impureza es atrapada en el sitio S9, desplazando entre 6 y 7 átomos de la red cristalina. Al realizar las simulaciones a la temperatura efectiva $T = 25.9$ K, el 3.3 % de las matrices adopta una configuración S8, removiendo 6 átomos de la matriz, mientras que en el 96.7 % la impureza se deposita en el sitio S9, desplazando entre 6 y 7 átomos del cristal. La tabla VII muestra los detalles antes expuestos.

III.4. Matrices de Xe

En el 95.5 % de las muestras, a la temperatura física $T = 4$ K, la molécula se aloja en el interior de la matriz de Xe desplazando 6 átomos, en la configuración S9, mientras el 4.5 % de las ocasiones se deposita adoptando la configuración S8, desplazando también 6 átomos del cristal. Al aplicar la corrección a la temperatura en este sistema se obtienen resultados similares. El 95.9 % de las muestras se depositan en una configuración S9 generando 6 vacancias y el restante 4.1 % desplaza también 6 vacancias pero la molécula adopta una configuración S8. La tabla VIII muestra los resultados descritos.

Tabla 8. Distribución de sitios y vacancias (v) en que queda atrapada la molécula W(CO)₆ en matrices de Xe a 4 K y a 26 K.

	S8 (%)		S9 (%)		S10 (%)	
	6v	6v	7v	8v	9v	9v
4 K	4.5	95.5	0	0	0	0
26 K	4.1	95.9	0	0	0	0

IV. DISCUSIÓN

En la tabla IX se reportan los valores de distancia al vecino más próximo (r_{nn}) de los sólidos de GN, factor importante en la formación de los sitios en que queda atrapada la impureza en las diferentes matrices.

Tabla 9. Distancia al vecino más próximo (r_{nn}) que caracteriza a los sólidos de gases nobles.

GN	Ne	Ar	Kr	Xe
r_{nn}	3.16	3.76	4.01	4.35

Como era de esperar al aumentar r_{nn} disminuye el número de átomos removidos de los sólidos de gases nobles. En las matrices de Ne existen varios probables, desplazando entre 6 y 13 átomos de la red cristalina. En los sólidos de Ar son removidos entre 6 y 9 átomos de la matriz en 3 sitios diferentes (S8, S9 y S10). La impureza en matrices de Kr se deposita en 2 configuraciones diferentes (S8 y S9) generando vacancias de entre 6 y 7 átomos del cristal. En los sólidos de Xe la molécula se deposita en los mismos sitios que en la matriz de Kr, aunque es importante destacar de que en este sistema la molécula huésped solo desplaza 6 átomos del cristal.

En las matrices de Ar la distancia al vecino más próximo (r_{nn}), posee un valor intermedio entre los valores r_{nn} de las matrices de Xe y Ne. Es por ello que en este sistema se observan configuraciones que generan vacancias, con un número de átomos desplazados entre los valores correspondientes de los sistemas anteriores. Esto hace que para esta matriz se produzca un mayor número de configuraciones. A la temperatura de 4K el sitio predominante en los sólidos de Ar es el S8, producto de una estabilidad cinética de esta configuración. Al aumentar la temperatura, la molécula obtiene la energía necesaria para alcanzar su configuración más estable (S9), desplazando de igual manera 6 átomos del cristal.

IV.1. Energía de solvatación

Un parámetro importante en la caracterización de los sitios es su estabilidad. Una forma de caracterizar la estabilidad del sitio es empleando la energía de interacción del $W(CO)_6$ con todos los átomos de gases nobles que se encuentran a su alrededor, en este caso en un bloque de $(5 \times 5 \times 4)a$, siendo a la constante de la red cristalina; el parámetro así calculado se conoce como energía de solvatación. En la figura 8 se muestra un histograma de energía de solvatación para cada sistema.

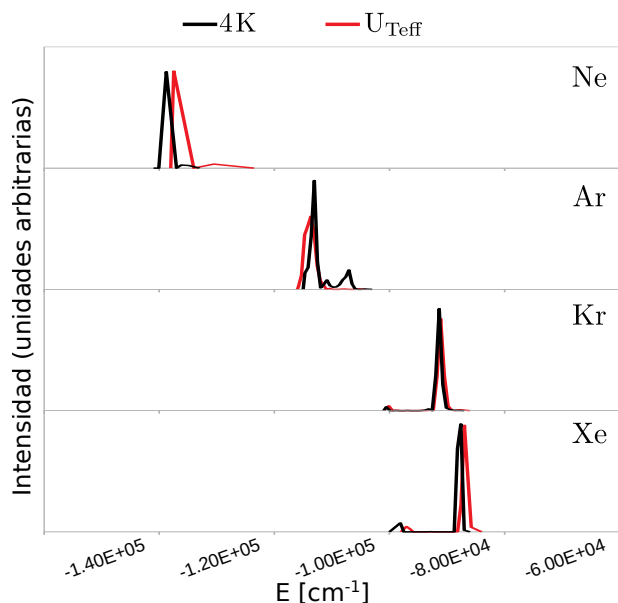


Figura 8. Histograma de energía de solvatación para cada sistema simulado a 4 K y a temperatura efectiva.

Una sola banda se observa en Ne a 4 K, y está asociada a la configuración S234. A la temperatura efectiva $T' = 15.1$ K, y debido a la redistribución de los sitios experimentada por el sistema, esta banda corresponde a la configuración S5, donde se desplazan 7 átomos de la matriz. La intensidad de las bandas se correlaciona con los detalles presentados en la tabla V.

Con respecto a la energía de solvatación el sistema $Ar/W(CO)_6$ presenta un comportamiento interesante. A 4 K se observan 3 bandas, la mayor de ellas está asociada al sitio S8, que remueve 6 átomos de Ar; la menor está relacionada con la configuración S10, que desplaza entre 8 y 9 átomos de la matriz; la banda restante corresponde al sitio S9, que desplaza de la red entre 6 y 7 átomos. Al cambiar a la temperatura efectiva 30.9 K, debido a un reordenamiento de los sitios, aparece solo una banda correspondiente a la configuración S9, que desplaza entre 6 y 7 átomos del retículo cristalino. La intensidad de las bandas en Ar está relacionada con los detalles presentados en la VI.

Los sistemas $Kr/W(CO)_6$ y $Xe/W(CO)_6$ no tienen una dependencia marcada con la temperatura, fenómeno que se observa en la distribución de sitios de las tablas VII y VIII, respectivamente. Ambos sistemas presentan un comportamiento similar, tienen 2 bandas. La mayor de ellas corresponde al sitio S9, que desplaza entre 6 y 7 átomos de la

matriz, la menor de las bandas es prácticamente despreciable y se relaciona con la configuración S8, que remueve 6 átomos del cristal.

Para los sólidos de Kr y de Xe dopados con $W(CO)_6$, una de las bandas presentes en el histograma de energías de solvatación, a la temperatura efectiva, corresponde a los sitios S8, con contribuciones de alrededor del 3 % y el 4 % respectivamente. Sin embargo, en las matrices de Ar, para la temperatura efectiva, la contribución de estos sitios no se aprecia, a pesar de tener un peso de casi un 6 %. Esto se debe a que en los cristales de Ar, se produce una mayor deslocalización de los átomos del sólido, con el aumento de la temperatura, en comparación con las matrices de Kr y Xe. Como consecuencia de la mayor deslocalización, las configuraciones S8 y S9 adquieren valores cercanos de energía, contribuyendo a una única banda, más ancha, en el histograma de energías de solvatación.

De manera general, se establece una clara relación entre las bandas observadas en el histograma de energía de solvatación y las distribuciones de sitios obtenidas. Se puede apreciar que los sitios que generan cavidades menores usualmente poseen menor energía que aquellos que remueven un número mayor de átomos de la red. La energía de solvatación tiene un papel fundamental en la estabilización de la molécula en cada configuración adoptada.

IV.2. Comparación con los experimentos

Los autores de los experimentos sugieren la presencia de efectos de sitio en los sistemas $GN/W(CO)_6$, existiendo diferentes configuraciones de la impureza en un mismo cristal. Además plantean que las cavidades que genera la molécula son mayores conforme disminuye el radio al vecino más próximo en estos sólidos. Estos resultados son consistentes con los presentados anteriormente.

Al realizar un *annealing* en $Kr/W(CO)_6$ hasta 60 K en los experimentos se observan variaciones en la intensidades de las bandas en el espectro IR debido a una redistribución de los sitios [5]. Este resultado se corresponde con los resultados reportados en la tabla VII: al aumentar la temperatura en este sistema existe una tendencia a la mayor estabilización de la configuración S9, por lo que es de esperar que para la temperatura reportada en el experimento la contribución del sitio S8 desaparezca.

V. CONCLUSIONES

La simulación de sistemas $GN/W(CO)_6$ muestra que la molécula es atrapada mayoritariamente en 4 configuraciones, desplazando entre 6 y 12 átomos del sólido. La cantidad de átomos removidos y los tipos de sitios depende de la matriz, siendo más variado en las matrices más ligeras (Ne y Ar). Sitios de 13 átomos removidos, como los que sugieren los trabajos experimentales, no fueron observados. Para las matrices de Ne se obtuvieron sitios con hasta 12 átomos removidos. La cantidad de átomos desplazados depende principalmente de los potenciales de interacción $GN-W(CO)_6$ y de las características geométricas de los cristales. Los sitios que generan una menor cavidad son usualmente los más

estables, producto de factores termodinámicos y estéricos. Solo los sistemas Ne/W(CO)₆ y Ar/W(CO)₆ presentan una dependencia marcada con la temperatura, corroborándose una vez más que al disminuir la masa del GN los efectos cuánticos en las matrices son más pronunciados.

Los resultados obtenidos, al utilizar potenciales aditivos por pares del tipo Lennard Jones, para simular las interacciones gas noble-gas noble, introduciendo correcciones cuánticas a la temperatura, en las aproximaciones anarmónicas y armónicas, condujeron a los mismos resultados que proporcionó la descripción de las interacciones gas noble-gas noble, a través del potencial aditivo por pares Improved Lennard-Jones, el cual está parametrizado en función de la temperatura. Sobre la base de los resultados que aportaron estas dos vías de introducir las correcciones cuánticas en el modelo, no hay un criterio que permita definir la mejor de estas dos aproximaciones. Los potenciales efectivos de Feynman-Hibbs no aportaron buenos resultados, al no poder estabilizarse la estructura del sólido.

AGRADECIMIENTOS

Los autores desean reconocer la colaboración del profesor Maykel Marquez Mijares y del personal del Sistema de Cálculo Computacional Avanzado del Instituto Superior de Tecnologías y Ciencias Aplicadas por el apoyo brindado durante la realización de este trabajo. G. Rojas-Lorenzo agradece la colaboración de las investigadoras del Instituto de Ciencias Moleculares de Orsay, C. Crepin y W. Chin.

Esta investigación fue financiada por el CITMA a través del Programa Nacional de Ciencias Básicas PNCB P223LH001-108, y por el proyecto Hubert Curien - Carlos J. Finlay 41805NA.

REFERENCIAS

- [1] M. Winter, K. Seranski, y U. Schurath, *Chem. Phys.* **159**, 235 (1992).
- [2] G. Rojas-Lorenzo, M. Lara-Moreno, A. Gutierrez-Quintanilla, M. Chevalier, C. Crépin, *Low Temp. Phys.* **45**, 317 (2019).
- [3] E. L. Rodríguez-Rodríguez, L. Uranga-Piña, A. Martínez-Mesa, *Rev. Cubana Fis.* **30**, 14 (2013).
- [4] R. Thon, *et. al.*, *J. Phys. Chem. A* **117**, 8145 (2013).
- [5] R. Thon, W. Chin, D. Chamma, J.-p. Galaup, A. Ouvrard, B. Bourguignon y col., *J. Chem. Phys.* **145**, 1 (2016).
- [6] R. Thon *et. al.*, *J. Lumin.* **191**, 78 (2017).
- [7] S. Jimenez, M. Chergui, G. Rojas-Lorenzo, J. Rubayo-Soneira, *J. Chem. Phys.* **114**, 5264 (2001).
- [8] F. Vigliotti, L. Bonacina, M. Chergui, G. Rojas-Lorenzo, J. Rubayo-Soneira, *Chem. Phys. Lett.* **362**, 31 (2002).
- [9] G. Rojas-Lorenzo, J. Rubayo-Soneira, F. Vigliotti, M. Chergui, *Phys. Rev. B* **67**, 1 (2003).
- [10] G. Rojas-Lorenzo, J. Rubayo-Soneira, S. A. Fernández, M. Chergui, *J. Chemistry A* **107**, 8225 (2003).
- [11] G. Rojas-Lorenzo, J. Rubayo-soneira, S. F. Alberti, *Chem. Phys.* **362**, 34 (2009).
- [12] R. Lozada García y G. Rojas-Lorenzo, *Rev. Cubana Fis.* **28**, 28 (2011), *Rev. Cubana Fis. (errata)* **29**, 49 (2012).
- [13] R. Lozada-García, G. Rojas-Lorenzo, C. Crépin, M. Ryan, J. G. McCaffrey, *J. Phys. Chem. A* **119**, 2307 (2014).
- [14] C. Crépin, P. De Pujo, B. Bouvier, V. Brenner, P. Millié, *Chem. Phys.* **272**, 243 (2001).
- [15] R. Fraenkel y Y. Haas, *Chem. Phys. Lett.* **220**, 77 (1994).
- [16] R. Fraenkel y Y. Haas, *Chem. Phys.* **186**, 185 (1994).
- [17] R. Fraenkel, *et. al.*, *J. Phys. Chem. A* **104**, 3786 (2000).
- [18] G. Rojas-Lorenzo, "Estructura y Dinámica de Matrices de Gases Nobles Dopadas", Tesis Doctoral, Instituto Superior de Ciencias y Tecnología Nucleares (2003).
- [19] L. Uranga-Piña, A. Martínez-Mesa, J. Rubayo-Soneira, y G. Rojas-Lorenzo, *Chem. Phys. Lett.* **429**, 450 (2006).
- [20] F. Pirani, S. Brizi, L. F. Roncaratti, P. Casavecchia, D. Cappelletti, y F. Vecchiocattivi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **10**, 5489 (2008).
- [21] F. Pirani, G. S. Maciel, D. Cappelletti, y V. Aquilanti, *Int. Rev. Phys. Chem.* **25**, 165 (2006).
- [22] F. Pirani, M. Albertí, A. Castro, M. Moix Teixidor, y D. Cappelletti, *Chem. Phys. Lett.* **394**, 37 (2004).
- [23] R. P. Feynman y A. R. Hibbs, *Quantum Mechanics and Path Integrals: Emended Edition* (2010).
- [24] G. A. Voth, *The J. Chem. Phys.* **94**, 4095 (1991).
- [25] N. Tchouar, F. Ould-Kaddour, y D. Levesque, *J. Chem. Phys.* **121**, 7326 (2004).
- [26] L. M. Sesé, *Mol. Phys.* **85**, 931 (1995).
- [27] R. Rodríguez-Cantano, R. Pérez De Tudela, M. Bartolomei, M. I. Hernández, J. Campos-Martínez, T. González-Lezana y col., *J. Phys. Chem. A* **120**, 5370 (2016).
- [28] L. M. Sesé, *Mol. Phys.* **78**, 1167 (1993).
- [29] M. Ryan, M. Collier, P. D. Pujo, C. Cre, y J. G. McCaffrey, *J. Phys. Chem. A* **114**, 3011 (2010).
- [30] D. R. Lide y W. M. Haynes, (editores) *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (2018), 19na edición.
- [31] V. Loup y L. Verlet, *Phys. Rev.* **159**, 98 (1967).
- [32] V. Loup y L. Verlet, *Phys. Rev.* **165**, 201 (1968).
- [33] H. Sun, S. J. Mumby, J. R. Maple, y A. T. Hagler, *J. Am. Chem. Soc.* **116**, 2878 (1994).
- [34] D. A. Pearlman, *et. al.*, *Comput. Phys. Commun.* **91**, 1 (1995).

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



STABILITY AND TRANSITION IN CONTINUOUSLY DEFORMED CELLULAR AUTOMATA

ESTABILIDAD Y TRANSICIÓN EN AUTÓMATAS CELULARES CONTÍNUAMENTE DEFORMADOS

K. GARCÍA-MEDINA^a, D. ESTÉVEZ-MOYA^a Y E. ESTÉVEZ-RAMS^{a,b,†}

a) Facultad de Física, Universidad de la Habana, San Lázaro y L., 10400, La Habana, Cuba

b) Instituto de Ciencias y Tecnología de Materiales, University of Havana (IMRE), 10400 La Habana, Cuba; estevez@fisica.uh.cu

† corresponding author

Recibido 26/2/2020; Aceptado 1/6/2020

The behavior of continuously deformed cellular automata rules is explored. The analysis is performed in terms of three entropic measures, entropy density, excess entropy, and entropy distance. These measures have been suggested to be indicative of the capabilities in the storage, processing, and transmission of information. A wealth of different behaviors is found that points to a richness of unexplored rules. Transitions can involve the loss of memory between the discrete rules at the start and end of the deformation parameter values. The behavior of the entropic measures, especially the surge of excess entropy on the verge of transition to disordered states, suggests the occurrence of enhanced computation at the edge of chaos for different types of phase transitions.

Se estudia el comportamiento de autómatas celulares continuamente deformados. El análisis se efectúa en términos de magnitudes entrópicas indicativas de las capacidades del sistema de almacenar, producir y transportar información. Se hallaron una amplitud de comportamientos al abrir el espacio de reglas a un conjunto infinito irracional aún sin explorar. Transiciones pueden comprender la pérdida de memoria al comienzo y al final de la transición. Aumento de la capacidad de cómputo al borde del caos es hallado y se muestra que tal proceso puede ocurrir en diferentes tipos de transiciones de fases pero en todos los casos, caracterizada por un aumento brusco del exceso de entropía.

PACS: Entropy in information theory (entropía en teoría de la información), 89.70.cf

I. INTRODUCTION

The idea of a dynamical system as a computational system that stores, transmit, and produces information is a compelling one that has been the focus of attention for a while [1]. Cellular automata (CA) are a kind of system that can exhibit from very trivial behavior to very complex one, including universal Turing machine capabilities [2]. This richness of behavior comes despite being defined by local rules that act over a neighborhood for each given cell. The spatiotemporal diagrams of CA can show from complete randomness to long-range correlation both in the spatial and temporal dimensions (See [3] and reference therein).

The enhanced computation at the edge of chaos hypothesis (EOC) states that in certain dynamical systems, as the dynamics evolve towards a chaotic regime, improved computational capabilities of the system are claimed to be found on the verge of the transition [4–6]. Improved computational capabilities can mean that the system, given appropriate initial conditions, can perform some “useful” task. However, in a more general context, it can be taken to mean that the system is capable of improved capacity to store, transmit, and produce information in Shannon sense [7].

There are several natural and artificial systems where EOC has been claimed to occur [8–12]; CA has been one of them. Langton [5] used a λ parameter, defined as the fraction of quiescent state in a CA rule. A quiescent state is an arbitrary chosen one. Langton [5] and afterward, Packard [13] performed numerical simulations to conclude

that, on average, as λ , increases from 0, the CA rules define spatiotemporal maps that change from a fixed point regime, to periodic, to complex and finally to chaotic behavior. Packard [13] even claimed that CA capable of algorithmic abilities were to be sought at those critical values of λ where a transition to the chaotic behavior occurs. Crutchfield et al. [7] performed extensive Monte Carlo simulations and failed to found EOC in the sense of Packard claim.

Recently Estevez et al. [14] have shown evidence of EOC in CA but in the broader sense and working with rules that can change continuously as a transition is made from one rule to another. The idea is to change one or several entries in the CA rule allowing a geometry to be introduced in the CA space. Two instances of EOC were reported by Estevez et al. as measured using entropic magnitudes that characterize spatial disorder or spatial structuring. The price paid for such continuous deformation of CA rules is that discrete states are abandoned. In their study, the λ parameter plays no role in the transition.

In this contribution, we further explore EOC in elementary CA. We introduce stability diagrams to characterize the robustness of rules under entries deformation. A classification of rule transition is attempted based on the observed experimental results. Several EOCs are reported and discussed in the text. The paper is organized as follows: first, CA are formally introduced, and continuous deformation of CA rules is defined following the pioneer works of Pedersen [15]. The entropic magnitudes used to characterize the dynamical behavior of the system are introduced. Results

are described from numerical simulations and discussed. Conclusion follows.

II. CELLULAR AUTOMATA

For the purpose of this paper a discrete cellular automaton can be defined by the tern (Σ, s, Φ) , where Σ is a finite alphabet which will be taken as binary ($\Sigma = \{0, 1\}$); $s = s_0, s_1, \dots, s_{N-1}$ is a set of sites arranged in a ring, and; Φ is a local updating rule. If $s^t = s_0^t, s_1^t, \dots, s_{N-1}^t$ denotes a particular configuration of the sites values at time t , then

$$s_i^t = \Phi \left[s_{i-r}^{(t-1)}, \dots, s_{i-1}^{(t-1)}, s_i^{(t-1)}, s_{i+1}^{(t-1)}, \dots, s_{i+r}^{(t-1)} \right]. \quad (1)$$

We will be considering the so called elementary rules (ECA) where $r = 1$ and equation (1) reduces to

$$s_i^t = \Phi \left[s_{i-1}^{(t-1)}, s_i^{(t-1)}, s_{i+1}^{(t-1)} \right]. \quad (2)$$

The above definition leads to a look up table for the ECA rule,

s_{i-1}	s_i	s_{i+1}	rule
0	0	0	$\Phi(0, 0, 0)$
0	0	1	$\Phi(0, 0, 1)$
0	1	0	$\Phi(0, 1, 0)$
0	1	1	$\Phi(0, 1, 1)$
1	0	0	$\Phi(1, 0, 0)$
1	0	1	$\Phi(1, 0, 1)$
1	1	0	$\Phi(1, 1, 0)$
1	1	1	$\Phi(1, 1, 1)$

There are a total of $2^{2^3} = 256$ possible ECA rules which can be labelled in different ways. Wolfram numbering scheme assign to each rule Φ a label R according to [16]:

$$R = \Phi(0, 0, 0)2^0 + \Phi(0, 0, 1)2^1 + \Phi(0, 1, 0)2^2 + \dots + \Phi(1, 1, 1)2^7. \quad (3)$$

Instead we can use the binary number $\Phi(1, 1, 1) \dots \Phi(0, 1, 0) \Phi(0, 0, 1) \Phi(0, 0, 0)$, which is the binary representation of R . For example

$$01110110 \rightarrow R = 118$$

There are a total of $2^{2^3} = 256$ possible ECA rules.

Langston λ [5] parameter can be defined as

$$\lambda = \frac{[\Phi(1, 1, 1) + \dots + \Phi(0, 1, 0) + \Phi(0, 0, 1) + \Phi(0, 0, 0)]}{8}$$

which is just the fraction of entries in the CA rule that turns a state into 1, taken as the quiescent state.

II.1. Continuous state CA

The ECA rules define a hypercube; each corner of the hypercube is labeled by a rule, so there are 256 corners. Two corners of the hypercube share and edge if they differ in only one entry. The construction is equivalent to a graph, each node of the graph represents a rule, and two nodes are linked

by an edge if they differ in one entry. Figure 1 shows the local topology of the graph around one rule up to second neighbors. The problem of the discrete CA space is that two rules sharing an edge need not have a more similar behavior than two nodes that do not share an edge. There is no apparent geometry in the CA discrete space: In the ECA rules, no apparent geometric order can be defined, were behavior changes gradually as the system changes from one rule to the next in the ordering.

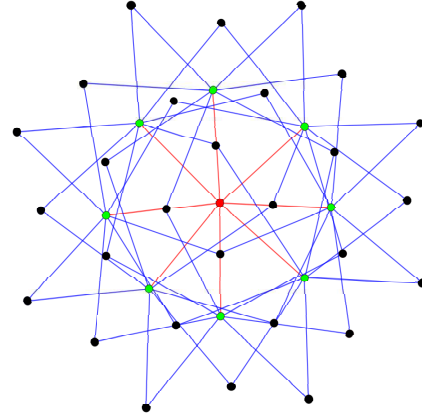


Figure 1. Local topology of the connectivity graph representing the ECA rules. Green nodes connected by red edges are the first neighbors. Black nodes represent the second neighbors. The complete graph of the 256 rules can be built around a central one by incorporating more coordination spheres.

In an attempt to define a gradual transition from one rule to another, Pedersen sacrificed the discrete nature of the CA rules and allowed to deform CA rules in a continuous way [15]. The idea goes as follows, Consider a rule with binary representation 01110110 (ECA: 118) and make any of the entries a continuous variable, for example, 01 ξ 10110, now ξ can change continuously from 1 to 0 and the initial binary rule changes gradually to the final binary rule 0101001 (ECA: 86) (See figure 2).

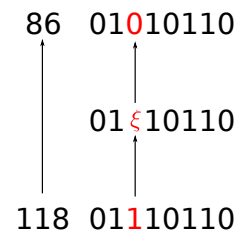


Figure 2. The transition from one rule to another as we continuously change an entry in the look-up table.

One can chose how when changing ξ the rule transforms, in a number of ways, whose specifics have been shown not to be essential for the analysis. We follow Pedersen [15]. A real valued function β , taken as $\beta(s_{i-1}s_i s_{i+1}) = 4s_{i-1} + 2s_i + s_{i+1}$, and an interpolating function $f(x): f(\beta(s_{i-1}s_i s_{i+1})) : [0, 7] \rightarrow [0, 1]$ are defined. β will transform the neighborhood configuration into a real value which will be used as the argument of $f(x)$. On the other ahnd, the interpolating function must give the discrete case for integer values of its argument but, apart from that, can be chosen freely. Following Pedersen, a quadratic interpolating function will be used for non integer value of the argument x ,

$$f(x) = \begin{cases} 2[f(n+1) - f(n)](x-n)^2 + f(n), & \text{for } n \leq x \leq n+1/2 \\ 2[f(n) - f(n+1)](x-n-1)^2 + f(n+1), & \text{for } n+1/2 \leq x \leq n+1 \end{cases} \quad (4)$$

while the corresponding discrete rule is used if the argument x is an integer. $n(\equiv \lfloor x \rfloor)$ is the largest integer smaller than x ($f(n)$ will therefore correspond to the discrete rule of the CA, already defined by Φ).

The introduction of a real variable ξ within a rule means that the states of the cells are no longer binary values $\{0, 1\}$ but any real value in the interval $[0, 1]$. In order to recover the binary values for the cell states, once all cell values have been updated, a threshold is calculated. All cell values above the threshold are taken as 1, 0 otherwise. As a threshold, the mean value over all cells at a given time is used. This discretization is again, the one followed by Pedersen, another choice would be to use the median as a threshold value. The latter preserves the balance between the two states and removes any dynamic associated with the production of symbols.

The simulations were performed over a ring of 5×10^3 cells. As the initial configuration, random values were used (random binary digits were taken from www.random.org). The system was left to evolve for 5×10^3 time steps. Averaging over different initial conditions was done before presenting the results. It was noticed that the average result did not differ from the individual runs. We settle to present the average over ten different initial conditions, as increasing the number did not change the results. The last ten spatial configurations were taken for each run, so the final averaging was over 10^2 spatial configurations. Also, calculations were occasionally performed for 10^4 , 5×10^4 , 10^5 , and 10^6 cells to see if size dependence was an issue in the simulations. In all cases, the result did not change with the number of cells.

A dynamical system is chaotic if and only if it is transitive, and its periodic points set is dense in the phase space [17]. For a system to be transitive, surjectivity is a necessary condition. Hedlund [18] has proved that a one-dimensional discrete CA is surjective if and only if is k -balanced for all $k \in \mathbb{N}$. In the case of ECA rules, a 1-balance implies that the binary look-up table of the rule must have the same number of 0's and 1's. We will consider a discrete binary CA k -balanced if, evolving from a random starting sequence, the fraction of one symbol (0 or 1) remains $1/2$ in the k th time step.

III. ENTROPIC MEASURES

Consider a bi-infinite sequence $S^{(t)} = \dots s_{-2}^{(t)} s_{-1}^{(t)} s_0^{(t)} s_1^{(t)} s_2^{(t)} \dots$, where $s_i^{(t)}$ is the binary symbol observed in the cell i at time step t . We denote by $S^{(t)}(i, L)$ the substring of length L , starting at cell s_i , and by $S(\cdot, L)$ the sequence of the substring regardless of the starting cell position $S(\cdot, L) = S(i, L)$. $p[S(\cdot, L)]$ is the probability of finding the sequence $S(\cdot, L)$ in the bi-infinite string. Shannon

block entropy of length L is given by,

$$H_S(L) = - \sum_{S(\cdot, L)} p[S(\cdot, L)] \log p[S(\cdot, L)]. \quad (5)$$

where the sum goes over all possible sequences $S(\cdot, L)$ of length L . Entropy density can be written in terms of the block entropy,

$$h_\mu(S) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{H_S(L)}{L}. \quad (6)$$

Shannon entropy density h_μ will be used as a measure of information production [19].

There are different procedures to estimate h_μ directly from the data [20, 21]. In this work, estimation via Lempel-Ziv factorization [22] will be used; details can be found elsewhere [23]. Our data for each estimation will be the 10^5 binary values of each configuration $s^{(t)}$ studied.

For a measure of the amount of structuring in a sequence, excess entropy E , originally termed as effective complexity measure [24], will be used. Let $I[X : Y] = H[X] + H[Y] - H[X, Y]$ be the mutual information between X and Y [19]. $I[X : Y]$ is a measure of the amount of information one variable carries regarding the other. Excess entropy measures the mutual information between two infinite halves of the sequence [24, 25],

$$E(S) = I[\dots, s_{-1} : s_0, s_1, \dots], \quad (7)$$

that is, how much information one half carries about the other and vice-versa. E measures the correlation at all scales in a process and is related to the intrinsic memory of a system, related to pattern production and context preservation [25]. Excess entropy is also estimated through Lempel-Ziv factorization using a random shuffle procedure [26], as explained in [14].

Finally, we need a measure of the sensitivity of the system evolution to the initial conditions. A fingerprint of chaoticity is that small perturbations of initial conditions lead to an exponential growth of the difference in the trajectories. We need a metric to measure a "distance" between two sequences, a trivial choice is the so called Hamming distance, which is the fraction of sites where both sequences are different [19]. The Hamming distance can be unsatisfactory for several reasons, consider, for example, a CA rule that merely shifts the initial string by one cell to the left. Hamming distance between two consecutive sequences could have maximum Hamming distance, and yet, the production of the new sequence is quite trivial. In contrast, we need a metric that captures the difficulty of predicting a second sequence from the knowledge of the first one. This type of distance is called information distance and will be denoted by $d(s, p)$. An information distance based

on algorithmic randomness [27] will be used. The algorithmic randomness (also known as Kolmogorov complexity) of a string $K(s)$ is the length of the shortest algorithm s^* capable of producing the string s on a Universal Turing Machine ($K(s) = |s^*|$). Accordingly, $K(s|p^*)$, known as algorithmic conditional randomness, is the length of the shortest program able to reproduce s if the program p^* , reproducing the string p , is given. $d(s, p)$ can be defined as [28],

$$d(s, p) = \frac{\max\{K(s|p^*), K(p|s^*)\}}{\max\{K(s), K(p)\}}. \quad (8)$$

$d(s, p)$ measures how "hard" is, from an algorithmic perspective, to reproduce string s and p : two sequences which can be derived one from the other by a small-sized algorithm, will result in a small $d(s, p)$. $d(s, p)$ will be estimated again using Lempel-Ziv factorization as explained in [23],

$$d_{LZ}(s, p) = \frac{h_\mu(sp) - \min\{h_\mu(s), h_\mu(p)\}}{\max\{h_\mu(s), h_\mu(p)\}}. \quad (9)$$

To test for chaoticity, d_{LZ} will be used in the following way, two identical initial conditions, only differing in one site s_i taken randomly, are left to evolve. After a sufficient number of time steps, the information distance between both systems is calculated using (9). In this way, d_{LZ} is a measure of the system sensitivity to a minimum perturbation of the initial state. We tested the results for different initial conditions, again no change was observed for averaging using more than ten pairs of initial conditions; the final averaging was therefore taken for 20 different pairs of initial conditions.

For a sequence, S , large values of excess entropy, and low values of entropy density signal the prevalence of patterns in the sequence and the lack of randomness or unpredictability. In such a case, observing a sufficiently long but finite substring of the sequence leads to a prediction of the whole string with a small error. It is said that the system has a large intrinsic memory, but a small information production, when the entropy density is high, and the excess entropy is low, predictability is hard and, regardless of the length of the observed substring, the reconstruction of the whole sequence can not be done with a small error [25]. It is said that the system has a high information production but small intrinsic memory.

In a random sequence, there are no correlations between cell values for any block length. For that reason, the mutual information between the sequence two halves is zero, and excess entropy is zero, the system has no intrinsic memory. Every cell value carries new information, as it can not be predicted from the knowledge of other cells, information production is high, and entropy density is near 1. A significant computational capability will need a balance between information production and information storage if we think of the computational capabilities as the system's ability to store, transmit, and modify information.

IV. RESULTS AND DISCUSSION

As already described, we perform a transformation between two discrete rules by changing one entry ξ in the rule table.

There is a new rule for each different real value of ξ ; therefore, formally, an infinite number of rules can be found between the two discrete rules at the extreme. However, when analyzing entropy density and excess entropy of the "intermediate" rules, we find that there are intervals where the dynamic behavior of the rules do not change. At a certain value of the ξ parameter, a jump in h_μ and E is found. The jumps are taken as indicative of a "phase transition". In the whole range, $[0, 1]$ of variation of the ξ parameter, several of such jumps can occur. In our study we identified six different types of behaviors as a discrete ECA rule changes to another discrete ECA rule

1. There are no jumps in h_μ and E jumps in the whole region of variation of ξ . This can only happen if discrete ECA rules at both sides have the same type of spatiotemporal map.
2. There is a single jump in h_μ and E in the whole region of variation of ξ .
3. There are two jumps in h_μ and E in the whole region of variation of ξ . Usually, the first jump results in a high value of entropy density and a low value of excess entropy, the second jump is in the opposite.
4. h_μ and E shows irregular behavior with multiple jumps in the region of variation of ξ .
5. When transitioning to a high entropy density state, excess entropy shows a well-defined peak, which can be narrower or broader.

Some rules can show a mixture of behaviors.

Transition 238 \rightarrow 239 is an example of the first type (Figure 3). Both discrete rules have trivial spatiotemporal maps: After a transient, they reduce any initial random condition to a sequence of 0's.

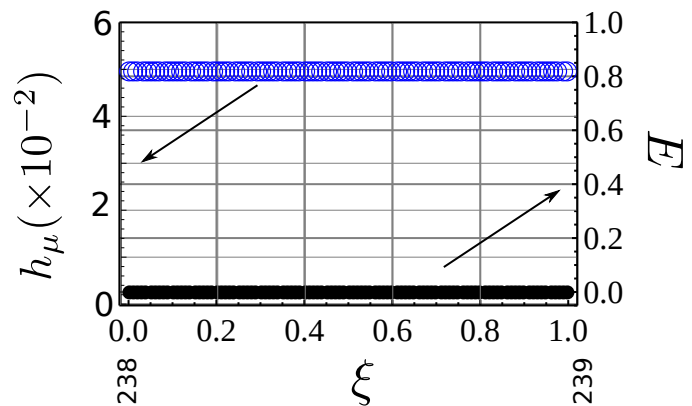


Figure 3. Entropy density (blue) and excess entropy (black) behaviour along the transition 238 \rightarrow 239. Both end rules are trivial as they transform any initial condition to zero. The small value of h_μ above zero is consequence of the bias in the numerical estimation due to the finite nature of data. This is an example of type 1 transition.

For the other types of transitions, some jump in the entropic measures is found while changing the corresponding look-up table entry. It will be convenient to define a stability criteria that characterize how robust is a transition to changes in the ξ entry.

A stability parameter is defined for a given entry in a CA rule, as the value of ξ (ξ is changing from $0 \rightarrow 1$) or $1 - \xi$ (ξ is changing from $1 \rightarrow 0$) where a jump in the dynamical behavior is observed as measured by both h_μ and E . For each discrete state CA rule, we have a total of 8 possible transitions by changing each entry on the look-up table (figure 1).

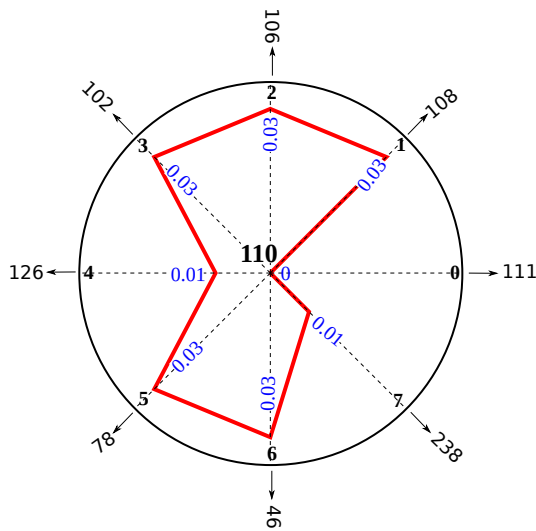


Figure 4. Stability diagram for rule 110. Changing each of the 8 entries in the look-up table determines a transition between ECA 110 and another ECA rule. In blue the stability value where a "phase" transition is seen as a jump in h_μ and E .

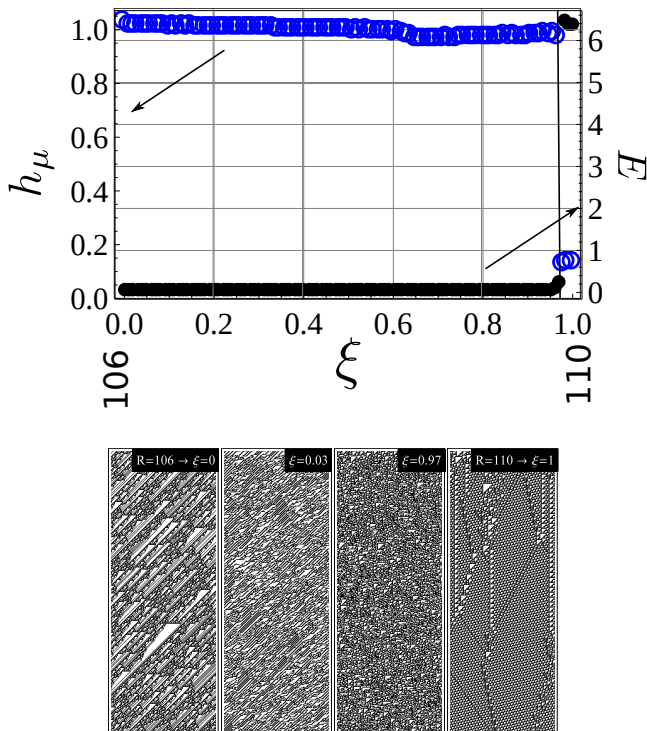


Figure 5. (up) Entropy density (blue) and excess entropy (black) behaviour along the transition $110(01101110) \rightarrow 106(01101010)$. This type of transition is characterized by a single jump in the entropy density and the excess entropy in the whole range of the $(01101\xi10)$ entry. Rule 110 is confirmed to be a complex rule capable of exhibiting universal Turing machine capabilities. (down) Spatio-temporal map of both discrete rules and two rules at intermediate values of ξ .

In figure 4 the stability diagram of rule 110 is shown. From the stability values, it is seen that rule 110 has a phase change

for rather small values: the rule is sensitive to small variations of its look-up table. Figure 5 (up) shows the change in the entropic measures as a function of ξ . For the transformation, $110 \rightarrow 106$, which corresponds to a change in the entry $01101\xi10$ starting with $\xi = 1$, both the entropy density and the excess entropy have only one jump for a value of $1 - 0.03$ (see figure 4). ECA 110 is a complex rule where Universal Turing Machine computation capabilities have been found [16]. ECA 106 has been reported to be a complex rule, but the spatiotemporal maps of figure 5 (down) shows that in rule 106, we do not find the same time persistence of local structures as those found in rule 110. At the intermediate values of ξ , the spatiotemporal maps show a behavior more resembling rule 106, which corroborates the entropic measures result. This type of transition is typical of the second one. At one extreme ($\xi = 0$) rule 106, local characteristic patterns are found in the spatiotemporal maps, as ξ changes these features become smaller ($\xi = 0.03$) up to a value ($\xi = 0.97$) where a qualitative change in behavior is observed. The final rule ($\xi = 1$) exhibits a different dynamics than the original one.

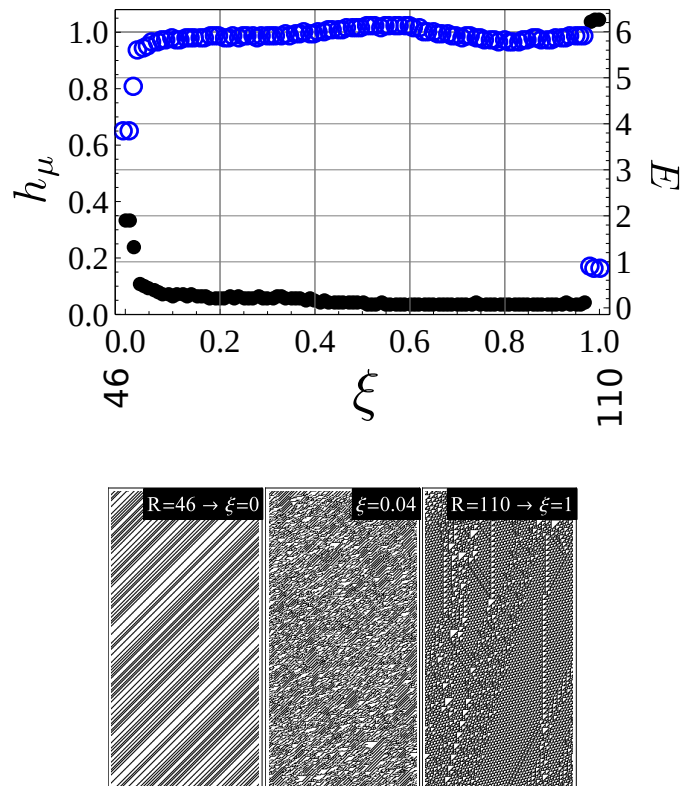


Figure 6. (up) Entropy density (blue) and excess entropy (black) behaviour along the transition $110(01101110) \rightarrow 46(00101110)$. This type of transition is characterized by two jumps in the entropy density and the excess entropy as the $(0\xi101110)$ entry changes value. Rule 46 is a shift rule where the initial values are shifted to the left one cell at each time step. (down) Spatio-temporal map of both discrete rules and a rule at an intermediate value of ξ .

For rule ECA 110 as we change the six (counting start at zero) entry $0\xi101110$ towards rule 46, the third type of behavior is found (see figure 6 (up)). In this case, two jumps in the entropic measures can be observed, resulting in that for intermediate values of ξ , the qualitative behavior of the spatiotemporal maps is different from both extreme discrete rules. ECA 46 is a shift map. It shifts the initial configuration one cell to the left

at each time step, as can be seen in the first spatiotemporal map of figure 6 (down)). For intermediate values of ξ , the spatiotemporal map is different from both discrete ECA rules, as observed in the second spatiotemporal map of figure 6 (down). This intermediate rule exhibits large values of h_μ and small values of excess entropy, pointing to chaotic behavior. A similar transition is found for all entries of the rule 110 except 01101 ξ 10 described previously.

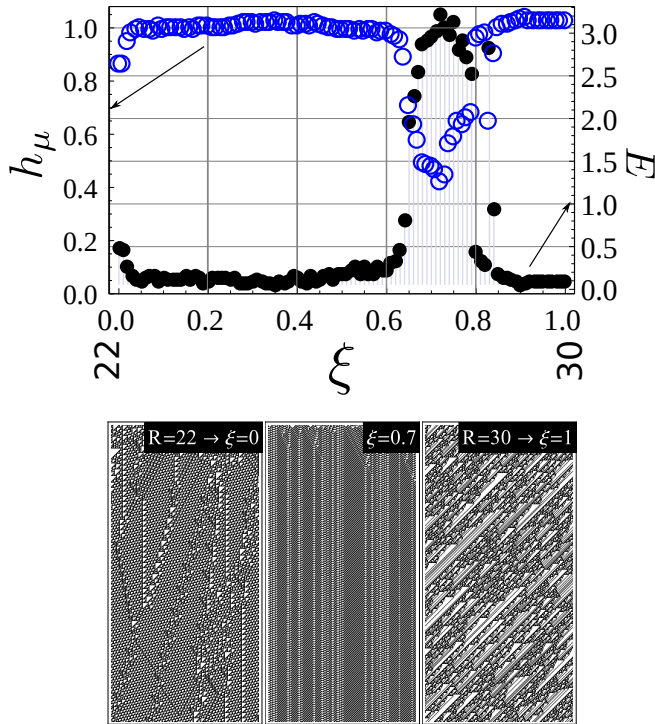


Figure 7. (up) Entropy density (blue) and excess entropy (black) behaviour along the transition 22(00011010) \rightarrow 30(00011110). This type of transition is characterized by two jumps in the entropy density and the excess entropy as the (00011 ξ 10) entry changes value. Rule 22 is an interesting rule, with an initial configuration of only one cell set to one, it develops a fractal structure following the Pascal triangle construction. (down) Both discrete rules give rise to chaotic spatiotemporal maps, at an intermediate value of ξ loss of randomness and increase structuring is observed.

The transition from ECA 22 to ECA 30 is another example of a transition with two clear jumps in the entropy measures but different from the previous example. As figure 7 shows, the discrete rules are spatially chaotic as seen through the entropy density and the excess entropy yet, in the interval of $\xi \in [0.63, 0.8]$ to lower values of entropy density and larger values of excess entropy. h_μ does not decrease to zero, but to an intermediate value slightly above 0.4, while E jumps to a value of 3. The intermediate value of information production and increased information structuring can be observed in the second map of figure 7 (down).

The transition from rule 78 to rule 76 is an example of an irregular transition as measured by the entropic magnitudes (Figure 8 (up)). Rule 76 has binary representation 01001110 and changing the second entry 010011 ξ 0 moves towards rule 78 (01001100). After a few steps, both rules are trivial, as can be seen in Figure 8 (down). Rule 76 only differs from the identity rule in the entry of the most significant bit, while rule 78 differs in two entries from the identity rule. Starting from

a random initial configuration rule, 76 does little in terms of ordering, and as a result, entropy density remains high, while almost no structuring is performed and $E = 0$. At a ξ value around 0.05, this dynamics is lost. h_μ jumps to values around 0.15, and excess entropy jumps to values around 3. From there on, both measures fluctuate. Fluctuations in h_μ ranges from 0 to 0.7, while in E from 1.6 to 5. The reader must notice that there is no unique dependency between h_μ and E , the same value of entropy density can result in different values of excess entropy, showing that the different continuous rules are of different natures. From the value $\xi = 0.8$ to 1, the dynamics as measured by h_μ and E settles to values around those found for the rule 78. Rule 78 is able to transform the initial random condition and perform some amount of structuring as both h_μ and E attains intermediate values. Rule 78 is 1-balanced, so erasure of one symbol is not a driving force in the structuring of the initial configuration.

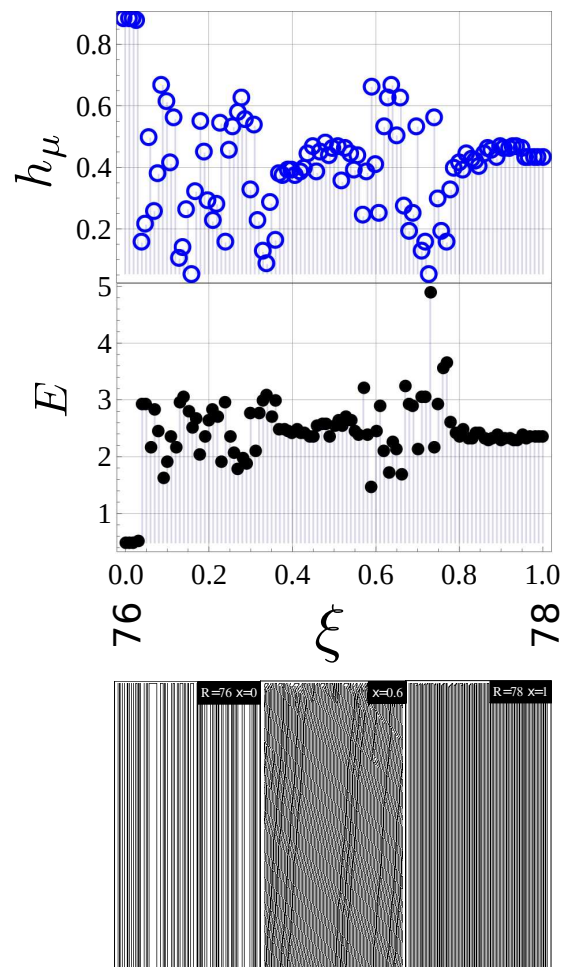


Figure 8. (up) Entropy density (blue) and excess entropy (black) behaviour along the transition 76(01001100) \rightarrow 78(01001110). This type of transition is characterized by an irregular behaviour of both the entropy density and the excess entropy as the (010011 ξ 0) entry changes value. (down) Spatio-temporal map of the discrete rules and an intermediate rule with $\xi = 0.6$. After a transient interval, both discrete rules are rather trivial.

Finally, a different type of transition is shown in figure 9. The transition is from rule 46 \rightarrow 62, but in figure 9 only the initial region of the transition is shown. The striking feature of this transition is the occurrence of a peak for the excess entropy just before a jump of h_μ towards higher values. At the same point,

d_{LZ} also has a jump. This transition has been described before and claimed to be a fingerprint of enhanced computation at the edge of chaos [14]. The spatiotemporal maps show a shift behaviour for rule 46 (9a), right to the phase transition chaotic behaviour is recognized (9c). At the edge of chaos (9b), the spatiotemporal map is more complex, showing a mixture of shift behavior and the production of features that persist in time and interact between them.

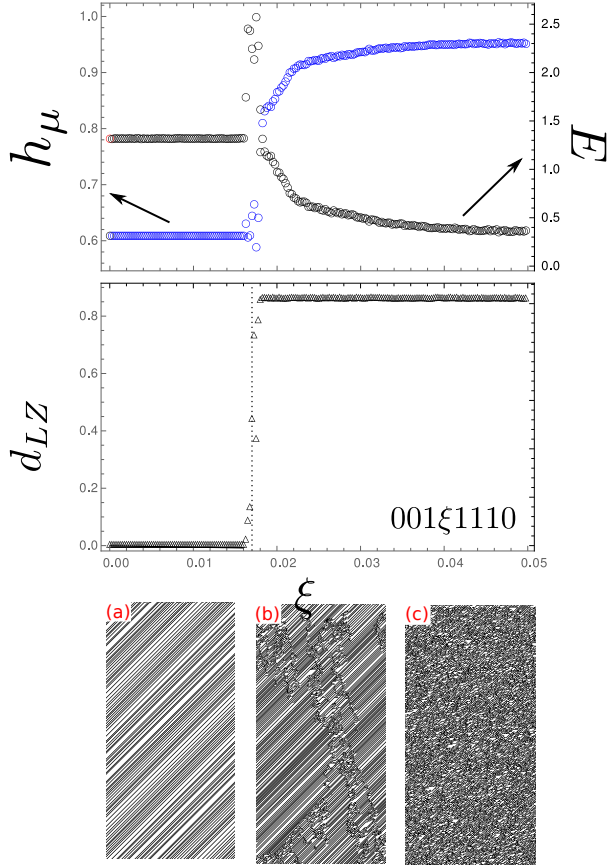


Figure 9. (upper) Entropy density (blue) and excess entropy (black) behavior in a small initial interval of the transition $46 \rightarrow 63$. (middle) The information distance d_{LZ} between two one cell perturbed initial condition after a large number of time steps. A peak in the excess entropy happens just on the verge of a jump in the entropy density towards chaotic behavior. This is further emphasized by the fact that the sensitivity to the initial conditions, as measured by d_{LZ} , has a jump to higher values at the same values where the jump in h_μ can be seen. This behavior is taken as evidence for enhanced computation at the edge of chaos. (lower) (a) corresponds to the spatial-temporal maps at $\xi = 0$; (b) at the $\xi = 0.018$ value where the E attains a maximum and; (c) at $\xi = 0.05$.

A transition with similar feature and yet different in other aspects are that of rule $146 \rightarrow 144$ shown in figure 10. In the interval $\xi \in [0.12, 0.3]$ several transitions occurs. The system at rule 144 has a value of entropy density around 0.57 that drops to zero at $\xi = 0.12$. The excess extropy, which was around 0.2, also drops to zero. At $\xi = 0.2$ h_μ has a jump to 0.85 and increases in a short interval to reach 1 at $\xi = 0.3$. Just before the jump of the entropy density, a very narrow peak in excess entropy can be seen, reaching a value of 4 to drop immediately reaching zero at $\xi = 0.3$ (figure 10left). The spatiotemporal maps (10right) help to understand the transitions. At $\xi = 0.18$ where $h_\mu = 0$, the map shows the occurrence of a triggering effect. Erasure of symbols starts

at some time step rapidly evolving to overtake the whole spatial configuration, $E = 0$ due to the constant nature of the arrangement. At $\xi = 0.22$, where E has a maximum, restructuring of the initial random condition happens at an initial transient stage of a few steps and then a combination of shift map and the emergence of local features with small-time span can be seen which appear random. Finally, at $\xi = 0.3$, a random map shows small, uncorrelated, short-lived features. Although it is clear that the surge of excess entropy is related to a spatiotemporal map with better processing, production, and storage of information, the spatiotemporal map is by no means complex, perhaps pointing to an insufficient improvement of those abilities.

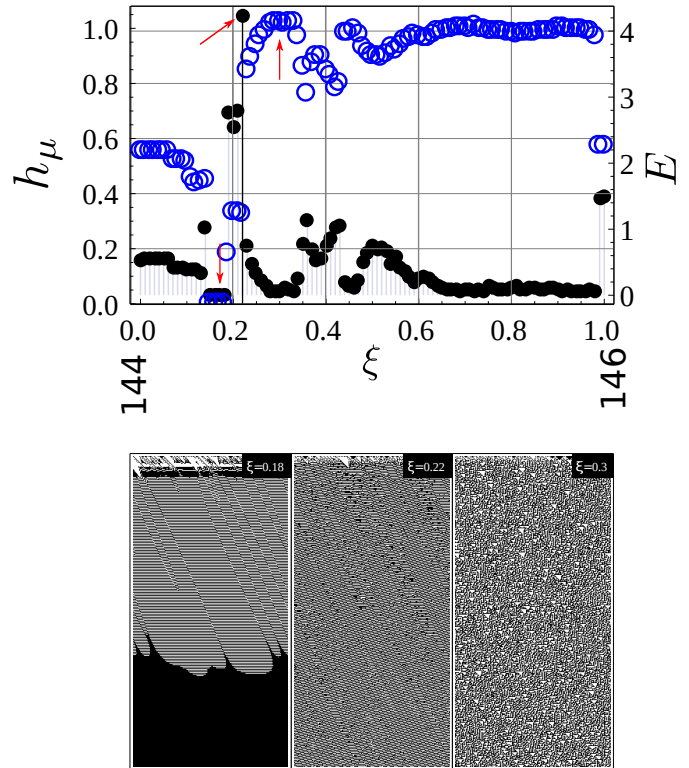


Figure 10. (up) Entropy density (blue) and excess entropy (black) behaviour along the transition $144 \rightarrow 146$. A peak in the excess entropy happens just on the verge of a jump in the entropy density towards chaotic behaviour, before that at $\xi \approx 0.18$ entropy density and excess entropy drops to zero.(down) Spatio-temporal maps of the three points marked with arrow in the right plot. See text for details.

V. CONCLUSION

The results show the richness of transitions that can be found in ECA rules. For those transitions between discrete rules that involve intervals with chaotic behavior ($h_\mu \approx 1$, $E = 0$), memory is necessarily lost in the transition: both discrete ECA rules do not share information in terms of behavior. EOC can happen in a number of transition and indeed has been reported for a number of them, the nature of the EOC can show different variations, but all involve a surge in the excess entropy at the onset of chaos. Our work suggests that if more than two entries in the look-up table are changed simultaneously, unexplored regions can emerge in a two-dimensional phase space. Such simulations have been

performed and will be reported elsewhere. In this regard, what we are witnessing in our results, can be the one-dimensional intercept of such regions, which could explain some of the observed behaviors as a projection of regions from higher dimensions.

ACKNOWLEDGEMENT

Two of the authors acknowledge the support given, under a visitor program, by the MPI-PKS in Dresden.

REFERENCES

- [1] J. P. Crutchfield, *Nature* **8**, 17 (2012).
- [2] S. Wolfram, *Theory and applications of cellular automata* (World Scientific Press, Singapur, 1986).
- [3] J. Kari, *Th Comp Science* **334**, 3 (2005).
- [4] J. P. Crutchfield and K. Young, W. H. Zurek, ed., *Complexity, entropy, and the physics of information*, 223-269 (Addison Wesley, Redwood City, 1990).
- [5] C. G. Langton, *Physica D* **42**, 12 (1990).
- [6] S. A. Kauffman and S. Johnson, C. Langton, G. Taylor, J. D. Farmer and S. Rasmussen, eds., *Artificial Life II*, 325-368 (Addison Wesley, Redwood City, 1992).
- [7] J. P. Crutchfield, P. T. Haber and M. Mitchell, *Comput Systems* **7**, 89 (1993).
- [8] Z. Su, R. W. Rollins and E. R. Hunt, *Phys Rev A* **40**, 2689 (1989).
- [9] R. V. Sole, S. C. Manrubia, B. Luque, J. Delgado and J. Bascompte, *Complexity* **XX**, 13 (1996).
- [10] N. Bertschinger and T. Natschlager, *Neural computation* **16**, 1413 (2004).
- [11] J. M. Beggs, *Phil Trans of the Royal Soc of London A: Math, Phys and Eng Science* **366**, 329 (2008).
- [12] J. Boedecker, O. Obst, J. T. Lizier, N. M. Mayer and M. Asada, *Theory Biosci.* **131**, 205 (2012).
- [13] N. H. Packard, J. A. S. Kelso, A. J. Mandell and M. F. Shlesinger, eds., *Dynamic patterns in complex systems*, 293-301 (World Scientific, Singapore, 1988).
- [14] E. Estevez-Rams, D. Estevez-Moya, K. Garcia-Medina and R. Lora-Serrano, *Chaos* **29**, 043105 (2019).
- [15] J. Pedersen, *Complex systems* **4**, 653 (1990).
- [16] S. Wolfram, *A new kind of science* (Wolfram media Inc., Champaign, Illinois, 2002).
- [17] J.-C. Dubacq, B. Durand and E. Formenti, *Theor. Comp. Sci.* **259**, 271 (2001).
- [18] G. A. Hedlund, *Math Systems Theory* **3**, 320 (1969).
- [19] T. M. Cover and J. A. Thomas, *Elements of information theory*. Second edition (Wiley Interscience, New Jersey, 2006).
- [20] T. Schurmann and P. Grassberg, *Chaos* **6**, 414 (1999).
- [21] A. Lesne, J.L. Blanc and L. Pezard, *Phys. Rev. E* **79**, 046208 (2009).
- [22] A. Lempel and J. Ziv, *IEEE. Trans. Inf. Theory* **IT-22**, 75 (1976).
- [23] E. Estevez-Rams, R. Lora-Serrano, C. A. J. Nunes and B. Aragón-Fernández, *Chaos* **25**, 123106 (2015).
- [24] P. Grassberger, *Int. J. Theor. Phys.* **25**, 907 (1986).
- [25] J. P. Crutchfield and D. Feldman, *Chaos* **13**, 25 (2003).
- [26] O. Melchert and A. K. Hartmann, *Phys. Rev. E* **91**, 023306 (2015).
- [27] A. N. Kolmogorov, *Probl Inf Transm (English Trans)* **1**, 1 (1965).
- [28] M. Li, X. Chen, X. Li, B. Ma and P. M. B. Vitanyi, *IEEE Trans. Inf. Theory* **50**, 3250 (2004).

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



THE ONSET OF CONVECTIVE INSTABILITY IN AN ANISOTROPIC POROUS MEDIUM LAYER WITH INTERNAL HEATING AND VARYING GRAVITY

LLEGADA DE LA ACTIVIDAD DE CONVECCIÓN EN UNA CAPA POROSA ANISOTRÓPICA CON CALENTAMIENTO INTERNO Y EFECTOS GRAVITATORIOS INCONSISTENTES

D. YADAV^{a†}

Department of Mathematical & Physical Sciences, University of Nizwa, P.O.B.-616, Oman; dhananjayadav@gmail.com

† corresponding author

Recibido 25/1/2020; Aceptado 17/6/2018

In this article, the impact of consistent internal heat source and varying downward gravity force on the onset of convective movement in an anisotropic porous matrix is studied numerically applying the high-term Galerkin technique. The gravity field variations with depth z are considered to be of four types: (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$. Outcomes show that both the thermal anisotropy parameter η and gravity variation parameter λ delay the onset of convection, while the internal heating parameter H_s and the mechanical anisotropy parameter ξ speed up the arrival of convective activity. The dimension of the convection cells boosts with η , ξ and λ , while it diminishes with H_s . It is also identified that the system shows maximum stability for case (d), while it is minimum for case (c).

En este artículo se estudia numéricamente el impacto de una fuente de calor interna y una fuerza de gravedad variable que apunta hacia abajo, sobre el comienzo de la convección en una matriz porosa anisotrópica, aplicando la técnica de términos alto de Galerkin. La variación del campo gravitatorio con la profundidad z se considera de cuatro tipos: (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, y (d) $G(z) = -(e^z - 1)$. Los resultados muestran que tanto el parámetro de anisotropía térmica η como el de variación de la gravedad λ retrasan el comienzo de la convección, mientras que el parámetro de calentamiento interno H_s y el de anisotropía mecánica ξ aceleran el comienzo de la actividad convectiva. La dimensión de las celdas de convección aumenta η , ξ y λ , mientras que decrece H_s . También se observa que el sistema muestra máxima estabilidad para el caso (d), y mínima para (c).

PACS: Convection (convección), 44.25.+f; Thermal convection (fluid dynamics) (convección térmica (dinámica de fluidos)), 47.55.pb; Porous materials, flow through (materiales porosos, flujo a través), 47.56.+r

I. INTRODUCTION

Convective instability in a porous medium, associated to buoyancy due to temperature gradients, has attracted strong interest in the past as well as nowadays because of its many applications. They include underground transport of impurities, chilling of electronic components, the underground exclusion of nuclear waste, petroleum drilling, chemical and food practicing [1–6]. The study of the onset of convective flow in a porous layer starts with the Horton-Rogers-Lapwood (HRL) instability problem [7]. There, the authors studied heat driven convection and obtained that the critical Darcy-Rayleigh number is $4\pi^2$. The extension of the classical HRL convection problem was well reviewed by Nield and Bejan [8].

Anisotropy in porous media, which arises from non-symmetrical pattern of porous matrix or fibres, is commonly found in nature and in many engineering applications. Rock, soils and fibrous insulating materials are excellent instances of anisotropic porous media. The thermal instability in a layer of porous matrix with anisotropic permeability was originally studied by Castinel and Combarous [9]. They obtained the conditions on the start of convection experimentally as well as theoretically. Epherre [10] extended the instability examination to a porous medium layer with anisotropic thermal diffusivity. Nonlinear

instability due to a heat gradient in an anisotropic porous matrix was studied by Kvernfold and Tyvand [11]. They derived the criterion for the start of convection theoretically. Later, Degan *et al.* [12], Payne *et al.* [13], Rees and Postelnicu [14], Govinder [15], Malashetty and Swamy [16], Yadav and Kim [17], Shivakumara *et al.* [18] and Mahajan and Nandal [19] extended this problem to the cases of vertical anisotropic porous layer, anisotropic permeability on Darcy's law, inclined anisotropic porous layer, Coriolise effect, double diffusive convection, transient convective activities, local thermal non-equilibrium and Brinkman effects, respectively.

The impact of internal heating plays a very important character on the thermal convection in porous media due to its natural occurrence as well as its importance to control the convective motion in many engineering applications. A practical situation, in which a porous medium can have internal heat source, occurs in the underground removal of radioactive dissipate materials, geophysics, crystal growth, miniaturization of electronic components and exothermic chemical processes in packed-bed reactors. The power of internal warming on the onset of convection in a porous matrix was explored by Gasser and Kazimi [20]. They obtained the critical interior and outer Rayleigh numbers for the start of convective motion. Parthiban and Patil [21] investigated the convective activity in an asymmetric porous

layer with internal heating and inclined heat gradient. The effects of Darcy number and uniform heat supply on the onset of convection in a porous medium layer was studied by Nouri-Borujerdi *et al.* [22]. Bhadauria *et al.* [23] examined the significance of rotation on the start of convection in an anisotropic porous layer with internal heat generation by a weak nonlinear analysis. Very recently, Storesletten and Rees [24] researched the onset of convection in an inclined anisotropic porous layer persuaded by a constant distribution of internally heat sources. For more details on the onset of convection with internal warm source, we refer the reader to references [25–35].

Although most studies related to convective instability are concerned with constant gravity field, convection due to a varying gravity field has received small attention. However, there are many convective conditions that exist in science and engineering such as large scale flows in the Earth's crust and in crystals growth where the variation of gravity with depth in the apparatus is important [36–39]. Therefore, the analysis of fluid convection with changeable gravity appears essential. Kaloni and Qiao [40] examined the arrival of heat convection in a porous matrix with inclined thermal gradient and gravitational field which was changing linearly with depth in the layer. Alex *et al.* [41–43] extended their stability examination with throughflow, internal heat source and anisotropic. They detected that gravity increasing upwards is a destabilizing influence. Rionero and Straughan [44] presented the convective instability in a porous matrix with a uneven gravity field and heat source using linear and non-linear investigations. They studied three different categories of changeable gravity fields on the initiation of convective activity. The influence of magnetic force and gravity difference on the launch of convective movement in porous matrix was examined by Harfash [45]. Afterward, Mahajan and Sharma [46], Chand *et al.* [47] and Yadav [48] examined the influence of uneven gravitational force on the nanofluid convective motion. Very recently, Yadav [49] examined the significance of uneven gravity force and even throughflow on the start of convection in a Darcian porous medium and found that these parameters are to suspend the start of convective activity. The extension with rotation was also made by Yadav [50].

Due to the important applications of the internal heat source and the deviation of gravitational force with depth (linear, parabolic, binomial and exponential) in sedimentary basins, epeirogenic and orogenic activities of the Earth's crust, and crustal structures [51–53], in this article we examine the internal heat source effect on the onset of convection in a fluid saturated anisotropic porous medium layer with four types of gravitational force variation: (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$ numerically. The simulations are performed and explored for the internal heat source and the gravity deviation parameters on the arrival of convection via figures and tables.

II. MODELLING OF THE PROBLEM

An infinite parallel layer of fluid saturated anisotropic porous layer bounded among the limits $z = 0$ and $z = h$, and heated

from below is considered. The layer is acted upon by a regular heat supply Q_0 and uneven gravitational field $g(z)$ which depends on the vertical aspect z and acts in the reverse z -way. The temperatures at the lower and upper boundaries are presumed to be θ_1 and θ_2 ($\theta_2 < \theta_1$), respectively. Under the assumptions of Darcy's law, the relevant governing equations are [25,54,55]:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (1)$$

$$0 = -\nabla P - \mu \tilde{\mathbf{K}}^{-1} \mathbf{u} - \rho_0 [1 - \beta(\theta - \theta_0)] g(z) \hat{\mathbf{e}}_z, \quad (2)$$

$$\left[(\rho c)_m \frac{\partial}{\partial \tau} + (\rho c)_f (\mathbf{u} \cdot \nabla) \right] \theta = \nabla \cdot (\tilde{\mathbf{k}}_m \cdot \nabla \theta) + Q_0. \quad (3)$$

Here, $g(z) = g_0 [1 + \lambda G(z)]$ is the changeable gravity, $G(z)$ is the functional value for the uneven gravity field, θ is the temperature, g_0 is the reference density, λ is the gravity variation parameter, τ indicates the time, \mathbf{u} indicates the velocity, ρ_0 indicates the density of fluid at reference temperature $\theta_2 = \theta_0$, μ indicates the viscosity, β indicates the thermal growth coefficient, $(\rho c)_f$ and $(\rho c)_m$ denote heat capacities of the fluid and effective porous matrix, $\tilde{\mathbf{K}}^{-1}$ and $\tilde{\mathbf{k}}_m$ are the converse of the permeability and the thermal conductivity tensors of the porous medium, respectively and defined as:

$$\tilde{\mathbf{K}}^{-1} = K_x^{-1} \hat{\mathbf{e}}_x \hat{\mathbf{e}}_x + K_y^{-1} \hat{\mathbf{e}}_y \hat{\mathbf{e}}_y + K_z^{-1} \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_z, \quad (4)$$

$$\tilde{\mathbf{k}}_m = k_{mx} \hat{\mathbf{e}}_x \hat{\mathbf{e}}_x + k_{my} \hat{\mathbf{e}}_y \hat{\mathbf{e}}_y + k_{mz} \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_z. \quad (5)$$

In this examination, we have taken the horizontal mechanical and thermal isotropy, i.e. $K_x^{-1} = K_y^{-1}$ and $k_{mx} = k_{my}$. The above governing Eqs. (1-3) are non-dimensionalized by taking the subsequent substitution:

$$\begin{cases} (x, y, z) = h(x, y, z), & \theta = \theta \Delta \theta + \theta_c, & \mathbf{u} = k_v \mathbf{u} / h, \\ \tau = h^2 \tau / k_v, & P = \mu_{nf} k_v P / K_z, \end{cases} \quad (6)$$

where $k_v = k_{mz} / (\rho c)$, $\Delta \theta = \theta_1 - \theta_2$. Then, non-dimensional form of Eqs. (1-3) after reduced the five unknowns u, v, w, P and θ to two (w and θ) by operating on Eq. (2) with $\hat{\mathbf{e}}_z \cdot \nabla \times \nabla \times$ are (after disregarding the tie superscripts for ease):

$$\nabla_H^2 w + \frac{1}{\xi} \frac{\partial^2 w}{\partial z^2} - R_D \nabla_H^2 \theta [1 + \lambda G(z)] = 0, \quad (7)$$

$$\gamma \frac{\partial \theta}{\partial \tau} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \theta = \left(\eta \nabla_H^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \theta + \text{Hs}. \quad (8)$$

Here, $\nabla = \hat{\mathbf{e}}_x \partial / \partial x + \hat{\mathbf{e}}_y \partial / \partial y + \hat{\mathbf{e}}_z \partial / \partial z$, $\nabla_H^2 = \partial^2 / \partial x^2 + \partial^2 / \partial y^2$, $\xi = K_x / K_z$ represents the mechanical anisotropy parameter, $R_D = \rho_0 \beta h K_z g_0 \Delta \theta / (\mu k_{fm})$ represents the thermal Rayleigh-Darcy number, $\text{Hs} = h^2 Q_0 / (\Delta \theta (\rho c)_f k_v)$ represents the internal heating parameter, $\eta = k_{mx} / k_{mz}$ represents the thermal anisotropy parameter, and $\gamma = (\rho c)_m / (\rho c)_f$ represents the heat capacity ratio. The boundary conditions can be written as:

$$\begin{cases} w = 0, & \theta = 1, & \text{at } z = 0, \\ w = 0, & \theta = 0, & \text{at } z = 1. \end{cases} \quad (9)$$

The basic condition is assumed to be quiescent and of the form: $\mathbf{u}_b = (0, 0, 0)$, $\theta_b = \theta_b(z)$. Then the conduction status temperature is obtained as:

$$\theta_b = 1 - z - \frac{Hs}{2}z(z - 1). \quad (10)$$

III. STABILITY EQUATIONS

We assume the disturbance variables as $\mathbf{u} = \mathbf{u}_b + \mathbf{u}'$ and $\theta = \theta_b + \theta'$. Here \mathbf{u}' and θ' indicate the perturbed measures from their basic situation and assumed to be very small. On inserting the above values of \mathbf{u} and θ into Eqs. (7) and (8) and linearizing, we have the stability equations as:

$$\nabla_H^2 \tilde{w}' + \frac{1}{\xi} \frac{\partial^2 \tilde{w}'}{\partial z^2} = R_D \nabla_H^2 \theta' [1 + \lambda G(z)] = 0, \quad (11)$$

$$\gamma \frac{\partial \theta'}{\partial \tau} + (\mathbf{u}' \cdot \nabla) \theta_b + (\mathbf{u}_b \cdot \nabla) \theta' = \left(\eta \nabla_H^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \theta'. \quad (12)$$

We assume the result of the perturbed quantities as [56–63]:

$$(\tilde{w}', \theta') = [\tilde{w}(z), \tilde{\theta}(z)] \exp i(\kappa x + \chi y) + \sigma \tau, \quad (13)$$

where κ and χ represent the horizontal wave numbers and σ represents the expansion rate of volatility. On application of Eq. (13) into Eqs. (11) and (12), we can write:

$$\left[\frac{1}{\xi} D^2 - a^2 \right] \tilde{w} + a^2 R_D \tilde{\theta} [1 + \lambda G(z)] = 0, \quad (14)$$

$$-\frac{d\theta_b}{dz} \tilde{w} + [D^2 - \eta a^2 - \gamma \sigma] \tilde{\theta} = 0, \quad (15)$$

where $d/dz \equiv D$ and $a = \sqrt{\kappa^2 + \chi^2}$ represents the wave number. In the perturbation formation, the boundary states are:

$$\tilde{w} = \tilde{\theta} = 0, \quad \text{at } z = 0, 1, \quad (16)$$

IV. SOLUTION TECHNIQUE

Galerkin procedure is employed to crack the arrangement of linear Eqs. (14) and (15). So the variables are assumed as:

$$\tilde{w} = \sum_{k=1}^N A_k \tilde{w}_k \quad \text{and} \quad \tilde{\theta} = \sum_{k=1}^N B_k \tilde{\theta}_k \quad (17)$$

Here A_k and B_k are constants and, \tilde{w}_k and $\tilde{\theta}_k$ satisfy the boundary conditions (Eq. (16)) and assumed as $\tilde{w}_k = \tilde{\theta}_k = \sin k\pi z$. Using Eq. (17) into Eqs. (14) and (15) and applying the orthogonal characteristics, we have:

$$C_{jk} A_k + D_{jk} B_k = 0, \quad E_{jk} A_k + F_{jk} B_k = \sigma G_{jk} B_k. \quad (18)$$

Here, $C_{jk} = \left\langle \frac{D\tilde{w}_j D\tilde{w}_k}{\xi} - a^2 \tilde{w}_j \tilde{w}_k \right\rangle$, $D_{jk} = \left\langle a^2 R_D \tilde{w}_j \tilde{\theta}_k [1 + \lambda G(z)] \right\rangle$, $E_{jk} = \left\langle -\tilde{\theta}_j \tilde{w}_k D\theta_b \right\rangle$, $F_{jk} = \left\langle D\tilde{\theta}_j D\tilde{\theta}_k - \eta a^2 \tilde{\theta}_j \tilde{\theta}_k \right\rangle$, $G_{jk} = \left\langle \gamma \tilde{\theta}_j \tilde{\theta}_k \right\rangle$, where $\langle YZ \rangle = \int_0^1 YZ dz$.

The collection of Eq. (18) forms a generalized eigenvalue position and resolved in Matlab using QZ process and EIG function. The critical thermal Rayleigh-Darcy number $R_{D,c}$, the critical wave number a_c and the critical value of the frequency of oscillations $\sigma_{i,c}$ are calculated using the golden search and Newton's methods. The nature of the convective motion is stationary for the taken problem.

V. RESULTS AND DISCUSSION

A numerical investigation has been made to inspect the influences of the uniform internal heat source and changeable gravity force on the arrival of instability in an anisotropic porous matrix. The problem is solved for four types of gravity field digression: (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$ using 6-terms Galerkin method [49]. The conditions for the start of instability is attained in forms of $R_{D,c}$ and a_c for a different variety of Hs , λ , ξ and η . According to Malashetty and Swamy [16], Shivakumara et al. [18], Mahajan and Nandal [19], Yadav [29] and Rionero and Straughan [44], we have considered the values of Hs in the order 10^2 and the value of λ in between 0 to 2. The values of ξ and η are not more than 1.

To prove the precision of the current outcomes, primary test imitations are made in the nonattendance of internal heat source and motion in isotropic porous matrix, i.e. $Hs = 0$, $\xi = \eta = 1$, and outcomes are good agreement with Rionero and Straughan [44] as shown in Table 1. This proves the accuracy of the method used.

Table 1. Contrast of the $R_{D,c}$ and the a_c with λ in the nonappearance of internal heat supply and flow in isotropic porous medium, i.e. $Hs = 0$, $\xi = \eta = 1$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

G(z)	λ	Current Study		Rionero and Straughan	
		$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2
(a)	0.0	39.478	9.872	39.478	9.870
	1.0	77.080	10.208	77.020	10.209
	1.5	132.020	12.313	132.020	12.314
	1.8	189.908	17.198	189.908	17.198
	1.9	212.281	19.475	212.280	19.470
(b)	0.0	39.478	9.872	39.478	9.870
	0.2	41.832	9.872	41.832	9.874
	0.4	44.455	9.885	44.455	9.887
	0.6	47.389	9.916	47.389	9.915
	0.8	50.682	9.960	50.682	9.961
	1.0	54.390	10.036	54.390	10.034
(d)	0.0	39.478	9.872	39.478	9.870
	0.1	42.331	9.872	42.331	9.872
	0.2	45.607	9.885	45.607	9.883
	0.3	49.398	9.904	49.398	9.904
	0.4	53.828	9.941	53.828	9.942
	0.5	59.053	10.005	59.053	10.005

Fig. 1 exhibits the disparity of with for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$ with diverse estimates of Hs . The corresponding a_c is shown in Fig. 2. The outcomes are also listed in Tables 2 and 3.

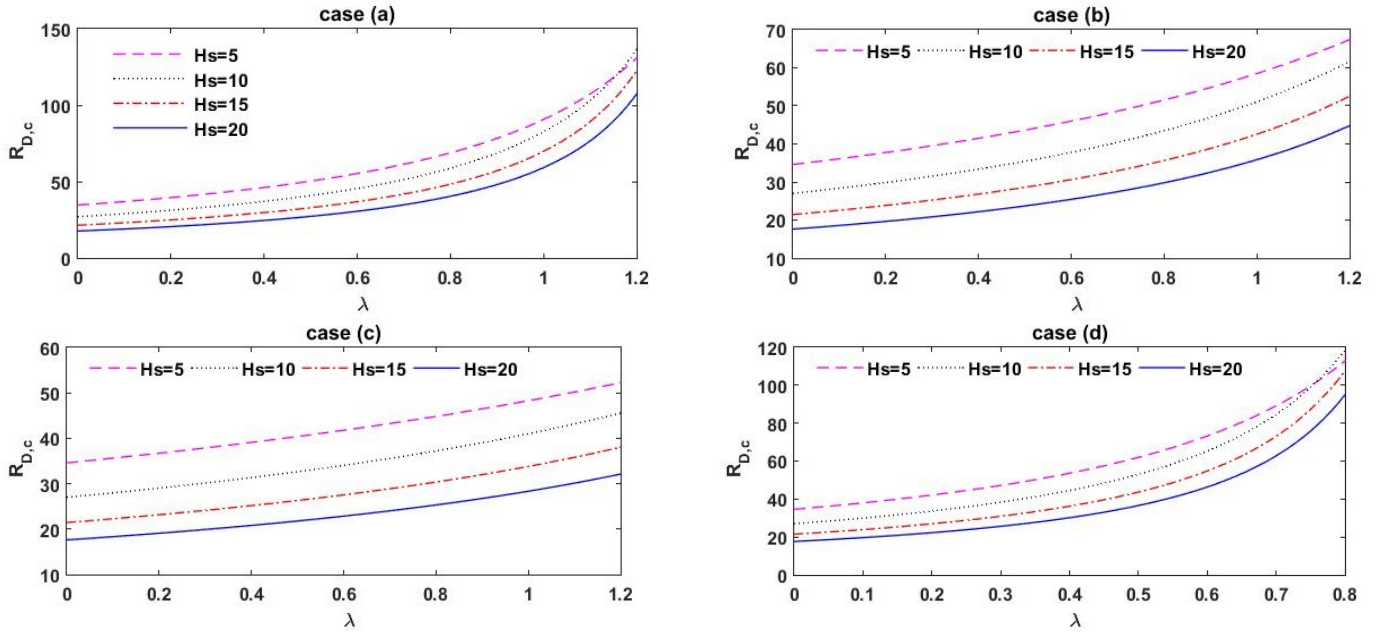


Figure 1. Variation of $R_{D,c}$ with λ for various values of H_s at $\xi = 0.8$ and $\eta = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

Table 2. Estimation of $R_{D,c}$ and a_c for various values of H_s and λ for flow in isotropic porous medium, i.e. $\xi = \eta = 1$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

Hs	λ	For case: (a)		For case: (b)		For case: (c)		For case: (d)	
		$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2
0	0.0	39.478	3.142	39.478	3.142	39.478	3.142	39.478	3.142
	0.2	43.852	3.142	41.832	3.142	40.894	3.142	45.607	3.144
	0.4	49.272	3.145	44.455	3.144	42.398	3.143	53.828	3.153
	0.6	56.143	3.152	47.389	3.149	43.996	3.146	65.280	3.179
	0.8	65.087	3.166	50.682	3.156	45.694	3.150	81.856	3.247
	1.0	77.080	3.195	54.390	3.168	47.500	3.155	106.293	3.420
	1.2	93.660	3.257	58.576	3.185	49.419	3.163	140.370	3.804
5	0.0	34.595	3.421	34.595	3.421	34.595	3.421	34.595	3.421
	0.2	39.549	3.389	37.735	3.386	36.720	3.390	42.099	3.361
	0.4	46.131	3.348	41.473	3.347	39.100	3.357	53.606	3.281
	0.6	55.281	3.297	45.989	3.304	41.781	3.323	73.234	3.170
	0.8	68.809	3.229	51.536	3.256	44.817	3.287	112.789	3.020
	1.0	90.645	3.137	58.484	3.203	48.278	3.250	216.826	3.000
	1.2	130.905	3.012	67.388	3.144	52.247	3.211	538.607	3.480
10	0.0	27.016	3.816	27.016	3.816	27.016	3.816	27.016	3.816
	0.2	31.257	3.781	29.868	3.775	29.029	3.776	33.656	3.747
	0.4	37.062	3.737	33.374	3.727	31.349	3.734	44.522	3.650
	0.6	45.480	3.677	37.782	3.672	34.049	3.688	65.297	3.501
	0.8	58.749	3.594	43.475	3.609	37.225	3.638	118.378	3.280
	1.0	82.561	3.472	51.082	3.535	41.005	3.586	355.952	3.636
	1.2	136.279	3.289	61.691	3.449	45.567	3.529	1315.364	5.54
15	0.0	21.446	4.055	21.446	4.055	21.446	4.055	21.446	4.055
	0.2	24.925	4.022	23.840	4.014	23.165	4.015	26.966	3.988
	0.4	29.739	3.980	26.821	3.967	25.171	3.971	36.233	3.891
	0.6	36.833	3.922	30.630	3.912	27.537	3.923	54.797	3.739
	0.8	48.291	3.839	35.653	3.847	30.367	3.872	107.480	3.516
	1.0	69.738	3.715	42.550	3.770	33.801	3.816	387.470	3.334
	1.2	122.458	3.527	52.533	3.681	38.043	3.756	1792.891	6.288
20	0.0	17.627	4.195	17.627	4.195	17.627	4.195	17.627	4.195
	0.2	20.531	4.163	19.648	4.155	19.091	4.155	22.266	4.129
	0.4	24.572	4.122	22.182	4.108	20.811	4.111	30.155	4.032
	0.6	30.572	4.064	25.446	4.052	22.854	4.062	46.337	3.877
	0.8	40.381	3.982	29.796	3.986	25.319	4.010	94.904	3.647
	1.0	59.137	3.854	35.854	3.908	28.341	3.953	378.011	4.691
	1.2	107.378	3.657	44.792	3.816	32.118	3.891	2047.480	6.853

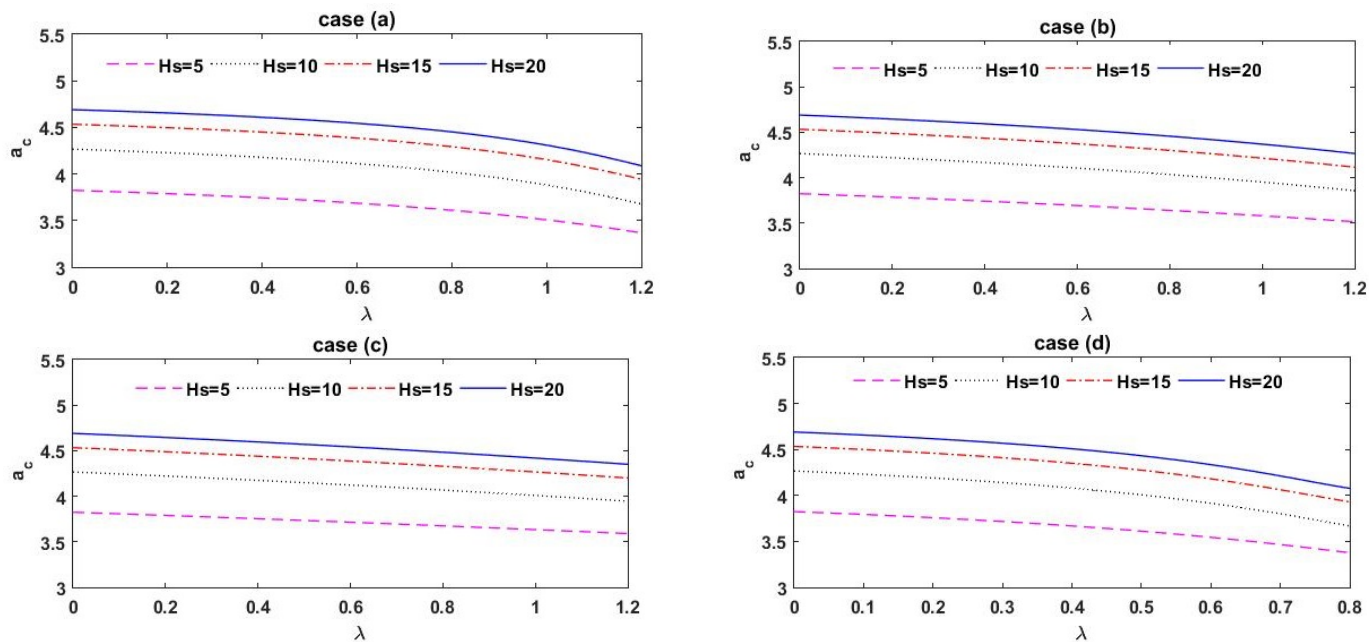


Figure 2. Variation of a_c with λ for various values of H_s at $\xi = 0.8$ and $\eta = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

Table 3. Estimation of $R_{D,c}$ and a_c for various values of H_s and λ at $\xi = 0.8$ and $\eta = 0.7$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

Hs	λ	For case: (a)		For case: (b)		For case: (c)		For case: (d)	
		$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2
0	0.0	36.970	3.632	36.970	3.632	36.970	3.632	36.970	3.632
	0.2	41.065	3.632	39.174	3.632	38.296	3.632	42.709	3.634
	0.4	46.141	3.636	41.630	3.635	39.704	3.634	50.407	3.645
	0.6	52.576	3.643	44.377	3.640	41.200	3.637	61.132	3.675
	0.8	60.951	3.660	47.461	3.648	42.791	3.641	76.653	3.754
	1.0	72.181	3.694	50.934	3.662	44.481	3.647	99.534	3.954
	1.2	87.706	3.765	54.853	3.682	46.278	3.656	131.438	4.398
5	0.0	32.395	3.954	32.395	3.954	32.395	3.954	32.395	3.954
	0.2	37.034	3.917	35.336	3.914	34.385	3.918	39.423	3.886
	0.4	43.199	3.871	38.837	3.869	36.614	3.881	50.200	3.793
	0.6	51.768	3.811	43.066	3.819	39.125	3.841	68.584	3.665
	0.8	64.438	3.733	48.261	3.764	41.969	3.800	105.634	3.491
	1.0	84.891	3.626	54.769	3.702	45.211	3.757	202.849	3.345
	1.2	122.602	3.481	63.109	3.635	48.928	3.712	504.493	3.023
10	0.0	25.297	4.411	25.297	4.411	25.297	4.411	25.297	4.411
	0.2	29.268	4.371	27.968	4.364	27.182	4.366	31.515	4.332
	0.4	34.704	4.320	31.251	4.309	29.355	4.316	41.691	4.219
	0.6	42.588	4.251	35.379	4.246	31.883	4.263	61.149	4.047
	0.8	55.015	4.155	40.711	4.172	34.858	4.206	110.870	3.791
	1.0	77.318	4.013	47.836	4.086	38.399	4.145	333.404	4.203
	1.2	127.637	3.802	57.773	3.987	42.672	4.080	1231.986	6.412
15	0.0	20.081	4.688	20.081	4.688	20.081	4.688	20.081	4.688
	0.2	23.338	4.650	22.323	4.641	21.691	4.641	25.250	4.611
	0.4	27.847	4.601	25.115	4.586	23.569	4.591	33.929	4.498
	0.6	34.491	4.534	28.682	4.522	25.785	4.535	51.315	4.322
	0.8	45.221	4.438	33.386	4.447	28.436	4.476	100.663	4.064
	1.0	65.309	4.294	39.846	4.358	31.652	4.411	362.920	5.011
	1.2	114.691	4.077	49.196	4.255	35.625	4.342	1679.313	7.268
20	0.0	16.504	4.850	16.504	4.850	16.504	4.850	16.504	4.850
	0.2	19.224	4.813	18.398	4.803	17.876	4.803	20.849	4.774
	0.4	23.008	4.765	20.771	4.749	19.486	4.752	28.237	4.661
	0.6	28.628	4.699	23.828	4.685	21.400	4.696	43.393	4.482
	0.8	37.814	4.603	27.901	4.608	23.708	4.635	88.886	4.215
	1.0	55.280	4.455	33.575	4.518	26.539	4.569	354.049	5.422
	1.2	100.568	4.227	41.947	4.411	30.076	4.498	1917.791	7.921

It is found that the gravity variation parameter λ delays on the onset of convection, while an opposite trend is noticed with increasing internal heating parameter H_s . This is because the heat supply of the system increases with rising H_s which eventually directs to decline in the value of $R_{D,c}$. The critical thermal Rayleigh-Darcy number $R_{D,c}$ supplements upon rising gravity variation parameter λ . This is because the gravity variation parameter reduces the strength of gravity force. Consequently, the frustration in the arrangement returns and this leads to holdup the start of

convection. The size of the convection cells decreased with H_s while it augmented with λ .

Furthermore, it is seen that the scheme shows more instability for category (c), while it is maximum stable for category (d). For big estimates of λ ($\lambda \geq 1$), from Tables 2 and 3, it is attractive to note that the consequence of H_s is reverse on $R_{D,c}$, whereas the effect of λ is reverse on a_c .

To see the power of ξ on the stability of the arrangement, $R_{D,c}$ and a_c are sketched in Figs. 3 and 4 as a function of λ for

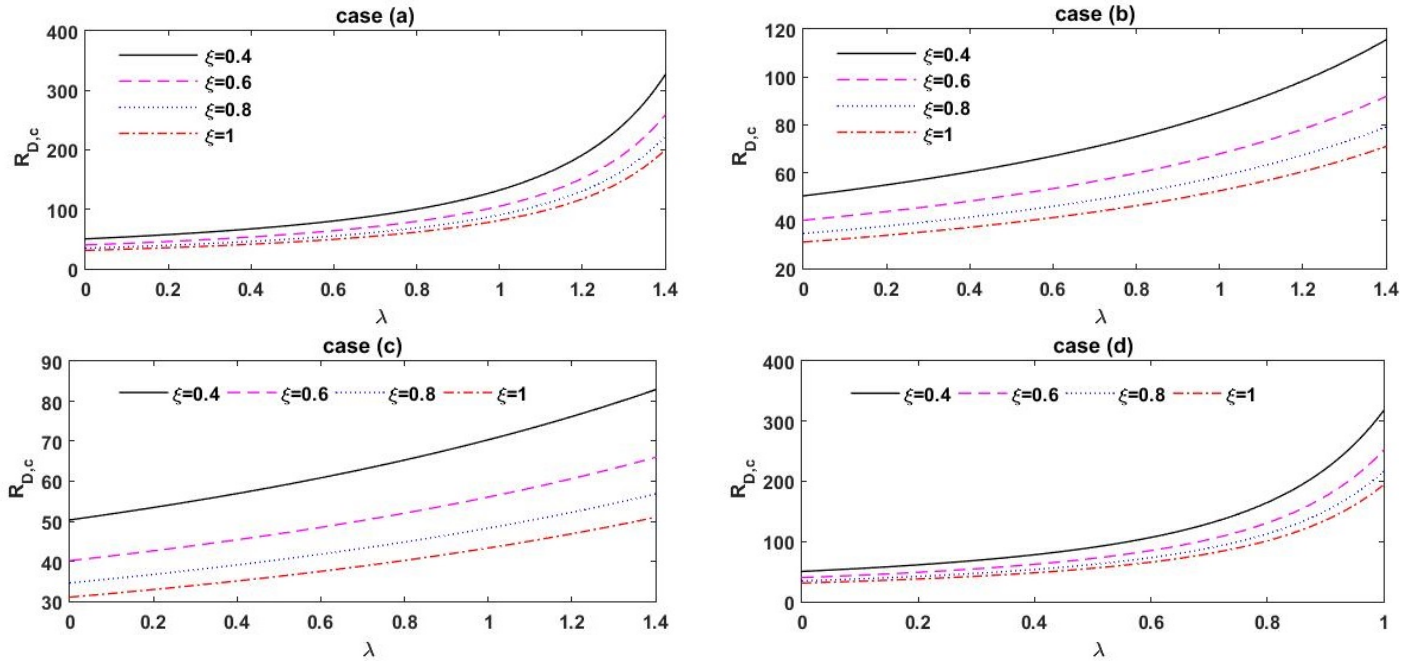


Figure 3. Variation of $R_{D,c}$ with λ for various values of ξ at $H_s = 5$ and $\eta = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

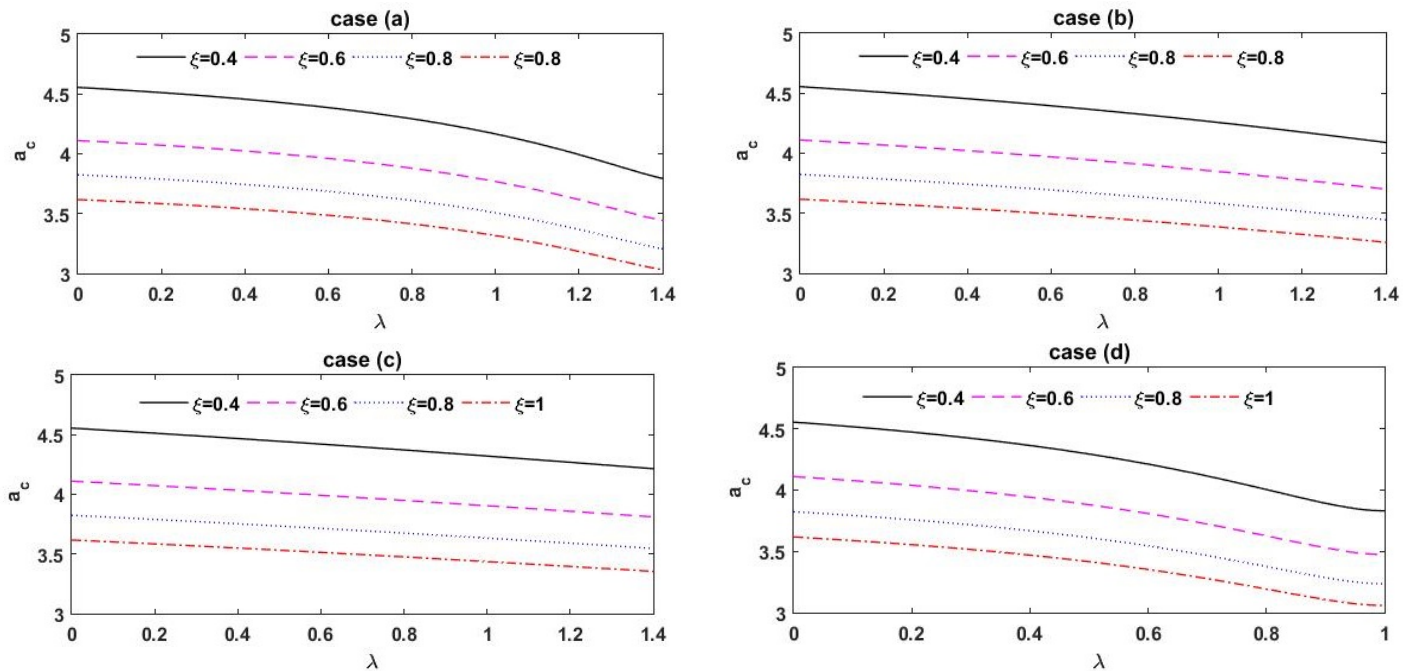


Figure 4. Variation of a_c with λ for various values of ξ at $H_s = 5$ and $\eta = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

diverse values of ξ . The consequences are also summarized in Table 4. We showed that the outcome of rising ξ hurries the beginning of convection. This is because the effect of increasing ξ leads to bigger horizontal permeability which accelerates the activity of the liquid in the horizontal path and thus lesser estimates of $R_{D,c}$ are required for the start of convection with increasing ξ . From Fig. 4, the critical wave number a_c reduces as ξ increased and so its outcome is to enlarge the dimension of convection cells. This happened because the low confrontation to horizontal flow also directs

to an expansion of the horizontal wavelength.

The effect of η on the stability of the scheme is completed in Figs. 5 and 6, and also listed in Table 5.

From these, it is established that $R_{D,c}$ amplifies on amplify in the rate of the thermal anisotropy parameter η , while a_c decreases on increasing η . This shows that the thermal anisotropy parameter η has a stabilizing consequence on the stability of the arrangement. This is for the reason that the horizontal thermal diffusivity enlarges with η .

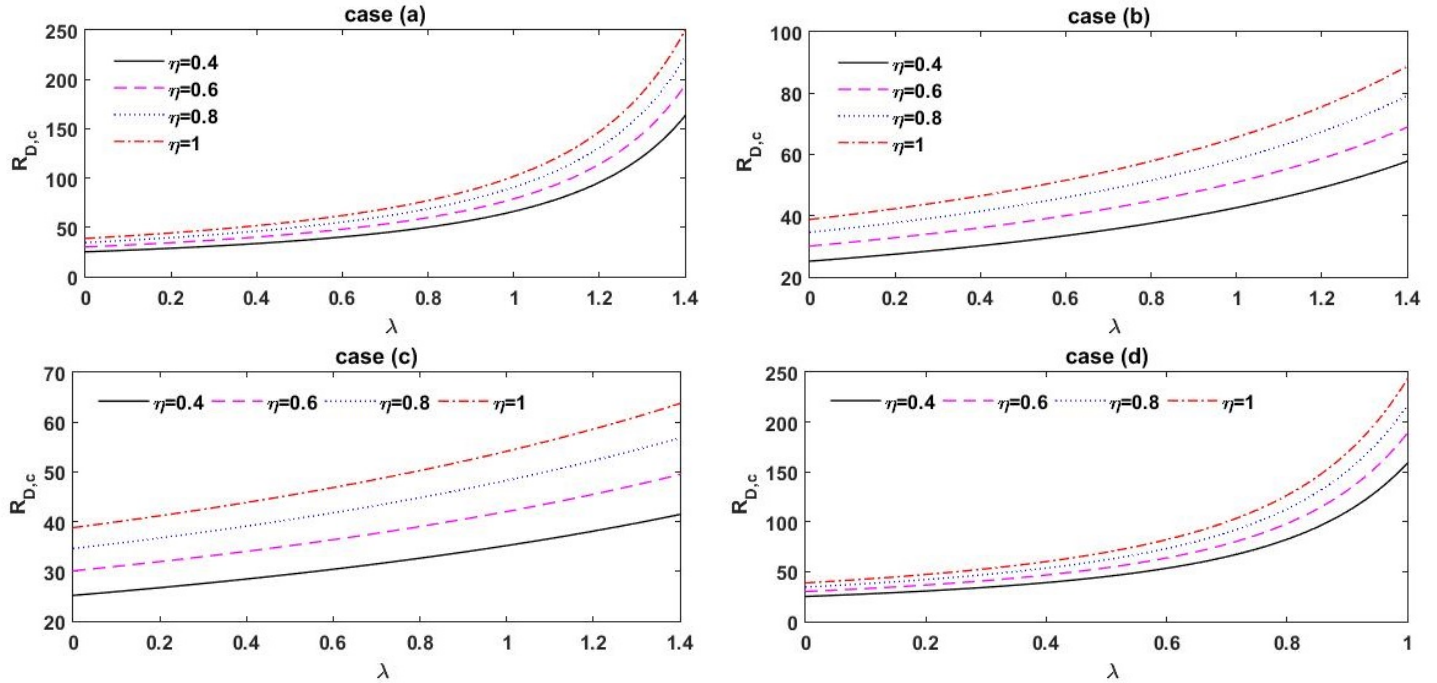


Figure 5. Variation of $R_{D,c}$ with λ for various values of η at $Hs = 5$ and $\xi = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

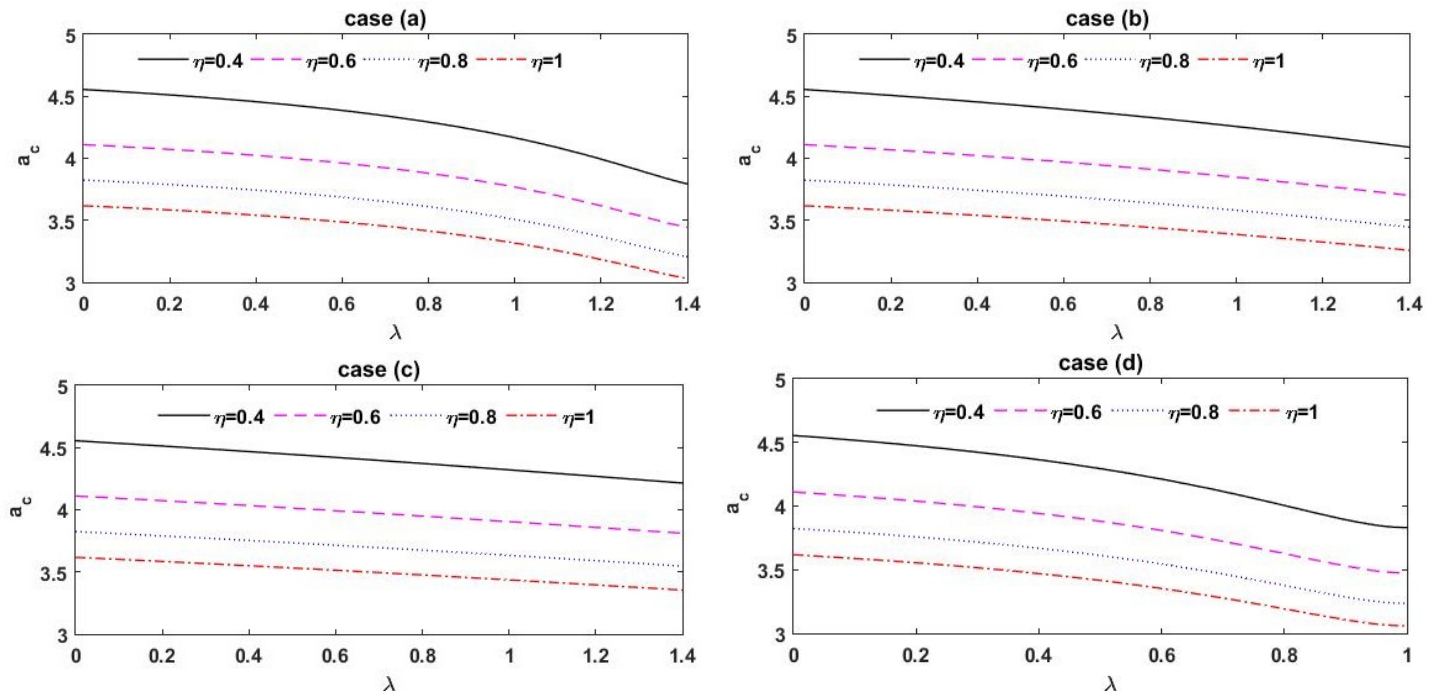


Figure 6. Variation of a_c with λ for various values of η at $Hs = 5$ and $\xi = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

Table 4. Estimation of $R_{D,c}$ and a_c for various values of ξ and λ at $H_s = 5$ and $\eta = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

ξ	λ	For case: (a)		For case: (b)		For case: (c)		For case: (d)	
		$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2
0.4	0.0	50.340	4.555	50.340	4.555	50.340	4.555	50.340	4.555
	0.2	57.565	4.511	54.926	4.508	53.445	4.513	61.293	4.474
	0.4	67.172	4.456	60.389	4.455	56.927	4.468	78.109	4.364
	0.6	80.538	4.386	66.992	4.395	60.849	4.421	106.839	4.212
	0.8	100.320	4.293	75.109	4.330	65.294	4.372	164.867	4.005
	1.0	132.300	4.166	85.285	4.256	70.363	4.321	317.437	3.831
	1.2	191.375	3.993	98.336	4.176	76.178	4.269	789.390	4.623
0.6	0.0	40.144	4.111	40.144	4.111	40.144	4.111	40.144	4.111
	0.2	45.895	4.072	43.791	4.069	42.612	4.073	48.857	4.039
	0.4	53.537	4.024	48.132	4.022	45.376	4.034	62.220	3.942
	0.6	64.162	3.961	53.376	3.970	48.490	3.992	85.019	3.808
	0.8	79.873	3.879	59.819	3.912	52.018	3.949	130.984	3.627
	1.0	105.241	3.768	67.891	3.847	56.038	3.904	251.623	3.475
	1.2	152.027	3.617	78.236	3.777	60.649	3.858	625.788	4.180
0.8	0.0	34.595	3.824	34.595	3.824	34.595	3.824	34.595	3.824
	0.2	39.549	3.789	37.735	3.785	36.720	3.790	42.099	3.758
	0.4	46.131	3.744	41.473	3.742	39.100	3.753	53.606	3.668
	0.6	55.281	3.686	45.989	3.694	41.781	3.715	73.234	3.545
	0.8	68.809	3.610	51.536	3.640	44.817	3.675	112.789	3.376
	1.0	90.645	3.507	58.484	3.581	48.278	3.633	216.565	3.236
	1.2	130.905	3.367	67.388	3.515	52.247	3.591	538.607	3.891
1.0	0.0	31.035	3.617	31.035	3.617	31.035	3.617	31.035	3.617
	0.2	35.480	3.583	33.853	3.581	32.942	3.584	37.769	3.554
	0.4	41.386	3.541	37.208	3.540	35.078	3.550	48.096	3.469
	0.6	49.598	3.486	41.261	3.494	37.484	3.514	65.715	3.352
	0.8	61.740	3.414	46.239	3.443	40.210	3.476	101.229	3.192
	1.0	81.342	3.317	52.477	3.386	43.317	3.436	194.426	3.059
	1.2	117.490	3.184	60.471	3.324	46.880	3.396	483.542	3.679

Table 5. Estimation of $R_{D,c}$ and a_c for various values of η and λ at $H_s = 5$ and $\xi = 0.8$ for categories (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$.

η	λ	For case: (a)		For case: (b)		For case: (c)		For case: (d)	
		$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2	$R_{D,c}$	a_c^2
0.4	0.0	25.170	4.555	25.170	4.555	25.170	4.555	25.170	4.555
	0.2	28.783	4.511	27.463	4.508	26.723	4.513	30.647	4.474
	0.4	33.586	4.456	30.195	4.455	28.463	4.468	39.055	4.364
	0.6	40.269	4.386	33.496	4.395	30.425	4.421	53.420	4.212
	0.8	50.160	4.293	37.555	4.330	32.647	4.372	82.433	4.005
	1.0	66.150	4.166	42.643	4.256	35.181	4.321	158.718	3.831
	1.2	95.688	3.993	49.168	4.176	38.089	4.269	394.695	4.623
0.6	0.0	30.108	4.111	30.108	4.111	30.108	4.111	30.108	4.111
	0.2	34.422	4.072	32.843	4.069	31.959	4.073	36.643	4.039
	0.4	40.153	4.024	36.099	4.022	34.032	4.034	46.665	3.942
	0.6	48.122	3.961	40.032	3.970	36.367	3.992	63.765	3.808
	0.8	59.905	3.879	44.864	3.912	39.013	3.949	98.238	3.627
	1.0	78.931	3.768	50.918	3.847	42.028	3.904	188.717	3.475
	1.2	114.020	3.617	58.677	3.777	45.487	3.858	469.341	4.180
0.8	0.0	34.595	3.824	34.595	3.824	34.595	3.824	34.595	3.824
	0.2	39.549	3.789	37.735	3.785	36.720	3.790	42.099	3.758
	0.4	46.131	3.744	41.473	3.742	39.100	3.753	53.606	3.668
	0.6	55.281	3.686	45.989	3.694	41.781	3.715	73.234	3.545
	0.8	68.809	3.610	51.536	3.640	44.817	3.675	112.789	3.376
	1.0	90.645	3.507	58.484	3.581	48.278	3.633	216.565	3.236
	1.2	130.905	3.367	67.388	3.515	52.247	3.591	538.607	3.891
1.0	0.0	38.794	3.617	38.794	3.617	38.794	3.617	38.794	3.617
	0.2	44.350	3.583	42.316	3.581	41.177	3.584	47.211	3.554
	0.4	51.733	3.541	46.510	3.540	43.847	3.550	60.120	3.469
	0.6	61.998	3.486	51.576	3.494	46.855	3.514	82.144	3.352
	0.8	77.175	3.414	57.799	3.443	50.263	3.476	126.536	3.192
	1.0	101.678	3.317	65.596	3.386	54.146	3.436	243.032	3.059
	1.2	146.863	3.184	75.588	3.324	58.600	3.396	604.427	3.679

VI. SUMMARY

The influence of the consistent internal heat source and the uneven gravity force on the launch of convective activity in an anisotropic porous layer was presented numerically. The investigation was provided for four types of gravity field digression: (a) $G(z) = -z$, (b) $G(z) = -z^2$, (c) $G(z) = -z^3$, and (d) $G(z) = -(e^z - 1)$. The major conclusions of the current investigation are as follows.

- The system was found to be more stable on increasing η and λ , whereas it was more unstable on increasing ξ and H_s .
- The measurement of the convection cells decreased on raising the internal heating parameter H_s , while it increased with ξ , η and λ .
- For huge values of gravity variation parameter λ ($\lambda \geq 1$), the effect of H_s was opposite on $R_{D,c}$, while the effect of λ was opposite on a_c .
- The system shows more instability for category (c), while it is more stable for category (d).

ACKNOWLEDGMENTS

The author wish to thank the administration of University of Nizwa for continous support during this research.

BIBLIOGRAPHY

- [1] P. Cheng, *Adv. Heat Transfer* **14**, 1 (1979).
- [2] C. Dougherty and K. Pruess, *Int. J. Heat Mass Transfer* **31**, 79 (1988).
- [3] N. Khoshnevis, R. Khosrokhavar, H. M. Nick, D. F. Bruhn, and H. Bruining, *J. Pet. Sci. Eng.* **178**, 616 (2019).
- [4] V. Rakesh and A. K. Datta, *AIChE J.* **59**, 33 (2013).
- [5] D. Holton, S. Myers, G. Carta, A. Hoch, M. Dickinson, and N. Carr, *Eng. Geol.* **211**, 102 (2016).
- [6] A. Barletta, M. Celli, and M. Ouarzazi, *Int. J. Therm. Sci.* **120**, 427 (2017).
- [7] C. Horton and F. Rogers Jr, *J. Appl. Phys.* **16**, 367 (1945).
- [8] D. A. Nield and A. Bejan, *Convection in porous media*, vol. 3 (Springer, 2006).
- [9] G. Castinel and M. Combarous, *CR Acad. Sci. B* **278**, 701 (1974).
- [10] J. Epherre, *Rev. Gen. Thermique* **168**, 949 (1975).
- [11] O. Kvernfold and P. A. Tyvand, *J. Fluid Mech.* **90**, 609 (1979).
- [12] G. Degan, P. Vasseur, and E. Bilgen, *Int. J. Heat Mass Transfer* **38**, 1975 (1995).
- [13] L. Payne, J. Rodrigues, and B. Straughan, *Math. Method. Appl. Sci.* **24**, 427 (2001).
- [14] D. Rees and A. Postelnicu, *Int. J. Heat Mass Transfer* **44**, 4127 (2001).
- [15] S. Govinder, *Transp. Porous Media* **69**, 55 (2007).
- [16] M. S. Malashetty and M. Swamy, *Int. J. Therm. Sci.* **49**, 867 (2010).
- [17] D. Yadav and M. C. Kim, *J. Porous Media* **17**, 1061 (2014).
- [18] I. S. Shivakumara, A. L. Mamatha, and M. Ravisha, *Appl. Math. Comput.* **259**, 838 (2015).
- [19] A. Mahajan and R. Nandal, *Int. J. Heat Mass Transfer* **115**, 235 (2017).
- [20] R. Gasser and M. Kazimi, *J. Heat Transfer* **98**, 49 (1976).
- [21] C. Parthiban and P. R. Patil, *Int. Commun. Heat Mass Transfer* **24**, 1049 (1997).
- [22] A. Nouri-Borujerdi, A. R. Noghrehabadi, and D. A. S. Rees, *Int. J. Therm. Sci.* **47**, 1020 (2008).
- [23] B. Bhadauria, A. Kumar, J. Kumar, N. C. Sacheti, and P. Chandran, *Transp. Porous Media* **90**, 687 (2011).
- [24] L. Storesletten and D. A. S. Rees, *Fluids* **4**, 75 (2019).
- [25] D. Yadav, R. Bhargava, and G. S. Agrawal, *Int. J. Therm. Sci.* **60**, 244 (2012).
- [26] D. Yadav and J. Wang, *Heat Transfer Eng.* **40**, 1363 (2018).
- [27] R. Chand, D. Yadav, and G. Rana, *Int. J. Nanoparticles* **8**, 241 (2015).
- [28] D. Yadav, C. Kim, J. Lee, and H. H. Cho, *Comput. Fluids* **121**, 26 (2015).
- [29] D. Yadav, *J. Appl. Fluid Mech.* **10**, 763 (2017).
- [30] D. Yadav, *Int. J. Appl. Comput. Math.* **3**, 3663 (2017).
- [31] D. Yadav, J. Wang, and J. Lee, *J. Porous Media* **20**, 691 (2017).
- [32] D. Yadav, *J. Therm. Anal. Calorim.* **135**, 1107 (2019).
- [33] A. Mahajan and M. K. Sharma, *Phys. Fluids* **29**, 034101 (2017).
- [34] A. Khalili and I. Shivakumara, *Phys. Fluids* **10**, 315 (1998).
- [35] D. Nield and A. Kuznetsov, *Transp. Porous Media* **99**, 73 (2013).
- [36] C. Hirt, S. Claessens, T. Fecher, M. Kuhn, R. Pail, and M. Rexer, *Geophys. Res. Lett.* **40**, 4279 (2013).
- [37] B. D. Tapley, S. Bettadpur, J. C. Ries, P. F. Thompson, and M. M. Watkins, *Science* **305**, 503 (2004).
- [38] S. M. Alex and P. R. Patil, *Int. Commun. Heat Mass Transfer* **28**, 509 (2001).
- [39] Q. Li, J. Wang, J. Wang, J. Baleta, C. Min and B. Sundén, *Energ. Convers. Manage.* **171**, 1440 (2018).
- [40] P. Kaloni and Z. Qiao, *Int. J. Heat Mass Transfer* **44**, 1585 (2001).
- [41] S. M. Alex and P. R. Patil, *J. Porous Media* **5**, 11 (2002).
- [42] S. M. Alex, P. R. Patil, and K. Venkatakrisnan, *Fluid Dyn. Res.* **29**, 1 (2001).
- [43] S. M. Alex and P. R. Patil, *J. Heat Transfer* **124**, 144 (2002).
- [44] S. Rionero and B. Straughan, *Int. J. Eng. Sci.* **28**, 497 (1990).
- [45] A. Harfash, *Transp. Porous Media* **103**, 361 (2014).
- [46] A. Mahajan and M. K. Sharma, *Appl. Math. Comput.* **339**, 622 (2018).
- [47] R. Chand, G. Rana, and S. Kango, *FME Trans.* **43**, 62 (2015).
- [48] D. Yadav, *Heat Tran. Asian Res.* **49**, 1170 (2020).
- [49] D. Yadav, *Int. Commun. Heat Mass Transfer* **108**, 104274 (2019).
- [50] D. Yadav, *J. Appl. Comput. Mech.* **6**, 699 (2020).
- [51] L. Cordell, *Geophys.* **38**, 684 (1973).

- [52] A. J. Shneiderov, *Trans. Am. Geophys. Union* **24**, 61 (1943).
- [53] L. Shi, Y. Li, and E. Zhang, *J. Appl. Geophys.* **116**, 1 (2015).
- [54] R. McKibbin, *Transp. Porous Media* **1**, 271 (1986).
- [55] I. S. Shivakumara and M. Dhananjaya, *Ain Shams Eng. J.* **6**, 703 (2015).
- [56] S. Chandrasekhar, *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*, (Dover Publication, 2013).
- [57] D. Yadav, *Heat Transfer Asian Res.* (2020) DOI: 10.1002/htj.21767
- [58] D. Yadav and M. Maqhusi, *Asia-Pac. J. Chem. Eng.* (2020) DOI: 10.1002/apj.2514
- [59] D. Yadav, *Rev. Cubana Fis.* **35**, 108 (2018).
- [60] D. Yadav and J. Lee, *J. Appl. Fluid Mech.* **2**, 519 (2016).
- [61] D. Yadav, R. Bhargava, G. S. Agrawal, G. S. Hwang, J. Lee and M. C. Kim, *Asia-Pac. J. Chem. Eng.* **9**, 663 (2014)
- [62] D. Yadav, R. Bhargava, G. S. Agrawal, N. Yadav, J. Lee and M. C. Kim, *Microfluid. Nanofluid.* **16**, 425 (2016).
- [63] G. C. Rana, R. Chand and V. Sharma, *Rev. Cubana Fis.* **33**, 89 (2016).

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



INTERCALATION OF CIPROFLOXACIN IN SMECTITE: FIRST PRINCIPLES AND MOLECULAR DYNAMICS CALCULATIONS

INTERCALACIÓN DE CIPROFLOXACINA EN ESMECTITAS: CÁLCULOS DE PRIMEROS PRINCIPIOS Y DE DINÁMICA MOLECULAR

A. LAM^{a†}, G. ROJAS-LORENZO^b, A. M. FERRARI^c, A. RIVERA^a, C. M. ZICOVICH-WILSON^{d1} AND L. J. ALVAREZ^e

a) Zeolite Engineering Laboratory, Institute of Material Science and Technology (IMRE), University of Havana, Havana, CP. 10400. Cuba

b) Instituto Superior de Tecnologías y Ciencias Aplicadas, Universidad de La Habana, Ave. Salvador Allende y Luaces, Quinta de Los Molinos, Plaza, La Habana 10600. Cuba

c) Dipartimento di Chimica, Università di Torino, Via P. Giuria 5, 10125 Torino, Italy

d) Centro de Investigación en Ciencias-IICBA, Universidad Autónoma del Estado de Morelos, Av. Universidad 1001, Col. Chamilpa, 62209 Cuernavaca, Morelos, México

e) Laboratorio de Simulación, Unidad Cuernavaca, Instituto de Matemáticas, Universidad Nacional Autónoma de México, A.P. 273-3 Admon. 3, Cuernavaca, Morelos, 62251, México

† corresponding author

Recibido 16/10/2019; Aceptado 10/5/2020

Two simulation methods, DFT and Molecular Dynamics (MD), have been used to explore the molecular details of the incorporation of ciprofloxacin (cipro) into a clay model. The electrostatic interactions between the compensating cations of the material and the groups with negative charge density of the drug, besides hydrogen bond interactions, are responsible for the stabilization of the cipro in the clay model. The DM results show a rapid migration of some Li^+ cations near the edges, suggesting a charge reorganization process. It is possible to observe at least two attempts of intercalation of the drug. Only when the drug-clay composite material is in contact with water, it is possible to observe the diffusion of a Li^+ cation and the early stages of the swelling process. The results indicate that the cipro molecule in solution plays an important role favoring the stacking process in this clay.

Se han explorado los detalles moleculares de la incorporación de ciprofloxacin (cipro) en un modelo de arcilla, utilizando dos métodos de simulación: Teoría de los Funcionales de la Densidad (DFT) y Dinámica Molecular (DM). Las interacciones electrostáticas entre los cationes del material y los grupos con densidad de carga negativa del fármaco, junto a las interacciones por puente de hidrógeno, son las responsables de la estabilización del fármaco en la arcilla. Los resultados de DM muestran una rápida migración de algunos cationes Li^+ cerca de los bordes del modelo, sugiriendo un proceso de reorganización de carga. Es posible observar al menos dos intentos de intercalación del fármaco. Solo cuando el material compuesto fármaco-arcilla se pone en contacto con agua, se observa la difusión de un catión Li^+ y los primeros estadios del proceso de hinchazón. Los resultados indican que la molécula de cipro en solución juega un importante papel favoreciendo el proceso de apilamiento en esta arcilla.

PACS: Molecular dynamics methods (métodos de dinámica molecular), 47.11.Mn ; Ab initio calculations of adsorbate structure and reactions (cálculos Ab initio de reacciones y estructura de adsorbatos), 68.43.Bc; porous materials (materiales porosos), 78.55.Mb

I. INTRODUCTION

Clay minerals have been used in a wide range of applications thanks to their chemical and physical properties, which are strongly connected to their structure. From the pharmaceutical point of view, clays and clay minerals have been used as excipients and/or active principles. The high superficial area and the interlayer spaces allow to host drugs, opening the possibility to employ these materials as drug delivery systems [1].

Fluorohectorite belongs to the smectite group of clays. They are 2:1 phyllosilicates that possess a negative net charge. Counter-ions are located between clay lamellar sheets to balance that charge. The swelling property of these clays allows modifications with organic species, yielding materials with potential applications [2–8]. The chemical formula of the synthetic fluorohectorite clay is $M_x(Mg_{6-x}Li + x)F_4Si_8O_{20}$, where M denotes either Li or some other monovalent cations. In this silicate, the fraction of M^{2+}

ions are substituted by Li^+ in trioctahedral sites, resulting in a structural negative charge of $1.2 e^-$ per unit cell [9]. Toxicological studies revealed the safety of Li -Fluorohectorite ($LiFh$) when it is administrated orally to experimentation animals [8, 10]. On the other hand, Ciprofloxacin (1-cyclopropyl-6-fluoro-4-oxo-7-(1-piperazinyl)-1,4-dihydroquinoline-3-carboxylic acid) is one of the most widely used antibiotics, with high antibacterial activity that is orally administrated to patients in its hydrochloride salt form. The incorporation of ciprofloxacin (cipro) into the interlayer space of a $LiFh$ can be found in the literature [5, 10]. Those studies indicated that $LiFh$ is active with temperature. This fact could lead to design a temperature-controlled drug delivery system.

The use of experimental techniques to understand details related to the incorporation and adsorption of organic species, as well as the groups involved, cannot provide full details of the processes, so the use of computational techniques could be a very useful alternative for this purpose [11, 12]. Theoretical reports of host-guest interactions in clays have been mainly

conducted taking into account that guest molecules are already inside the interlayer spaces. Only few simulations about the incorporation processes of molecules inside clays using atomistic simulations have been reported due to the number of particles and the simulation time involved [13,14]. In some cases, mesoscale methods have been used to model these complex processes [12,14]. However, these methods can miss the details of the processes at the nanometric scale.

In this work, different theoretical methods have been combined to get insight into the cipro intercalation process on *LiFh*. First principle calculations were performed to elucidate the *LiFh*-cipro interactions inside the interlayer. The quantum optimized clay-water framework was the starting geometry to create a *LiFh* model that was put in contact with a drug solution. And three different scenarios of clay-drug interactions were studied through Molecular Dynamics simulations.

II. METHODOLOGY

II.1. Periodic quantum calculations

The Lithium Fluorohectorite used in the present simulation was built from the Cambridge Data Base Structure of organic pillared fluorohectorite reported by Breu et al [15]. Different transformations were performed on the unit cell of this starting structure to obtain the *Li-Fh* model, which represents the clay used in a previous work where the charge per cell is around $1.2 e^-$ [5]. Firstly, the organic intercalated molecule was removed from the structure. After that, the clay octahedral sheet was arranged in such a way that 2 M^{2+} were replaced by 2 Li^+ , creating a framework with charge $-2 e$ per unit cell that was compensated with two Li^+ cations, obtaining the chemical formula $Li_2(Mg_4Li_2Si_8O_{20}F_4)$ per unit cell. These Li^+ compensating cations are located in the interlayer region, close to the tetrahedral oxygens that coordinate the new octahedral *Li*. In order to reproduce the interlayer space obtained in the X-ray powder diffraction pattern of the *LiFh*-cipro composite [5], the *c* crystallographic parameter was increased to 18 Å. Within such space, it is possible to arrange one cipro molecule -which was put in its zwitterionic form- or twelve water molecules based in the experimental results [16]. These structures were labeled as *LiFh*-cipro and *LiFh* - 12 H_2O , respectively. They were optimized using periodic quantum calculations implemented in CRYSTAL14 code [17] as it will be explained below. The starting zwitterionic form of cipro, see figure SI1 in Supporting Information, was also obtained from the Cambridge Data Base [18].

Electronic structure calculations were performed employing the PBE0 approach [19]. The considered basis set was a valence double- ξ with polarization (VDZP) one. The same computational conditions have already been validated in previous works when studying zeolite hydrated models [20–22]. The Hamiltonian matrix has been diagonalized in a set of *k*-points in reciprocal space generated according to the Monkhorst-Pack prescription [23] with shrinking factor of 2 for sampling the first Brillouin Zone. This gives rise to 8 *k*-points as all models considered exhibit P1 space symmetry.

The tolerances considered in the computation of mono and bi-electronic integrals for the coulombic and exchange series were those recommended in the code manual: 8, 8, 8, 8, 16 [24]. The exchange-correlation contribution has been numerically integrated employing a pruned grid with 75 points in the radial and a maximum of 434 points in the angular parts around the nuclei (see keyword LGRID in the code manual) [24]. The condition for convergence of the SCF part was that the energy difference between two subsequent cycles must be less than 1×10^{-7} Hartree.

Geometry optimizations were performed with analytic gradients for both atomic positions and lattice parameters, and a pseudo-Newton algorithm (BFGS) for Hessian matrix update [24]. Convergence was tested by considering the default thresholds recommended in the code manual [24]. In order to ensure consistency between the final geometry and the approximations considered for the integral evaluation, the FINALRUN option of the code with value 4 has also been adopted [24].

In addition, for the *LiFh*-cipro system, Grimme D2 correction [25] was considered in order to include the dispersion forces contribution. The geometry optimization at PBE0-D2 level will permit a correct evaluation of the interactions present in the system.

II.2. Molecular dynamics simulations

Three different scenarios of clay-drug interactions were studied through Molecular Dynamics simulations: 1) the clay in contact with the drug solution (*LiFh*-cipro-out), 2) the drug inside the clay, at the center of the interlayer, in contact with an external water solution (*LiFh*-cipro-in) and 3) six drug molecules in the interlayer of the *LiFh* clay crystal (*LiFh*-6cipro). In the first system, the first stages of the drug incorporation process into the clay interlayers were modeled. The second system assumed that the drug was incorporated into the interlayer space and host-guest interactions and possible drug desorption process were evaluated. The third system try to get a deeper understanding of the drug-drug interactions inside the clay crystal, assuming that full incorporation of the cipro has been take place.

The simulation cell used in Molecular Dynamics simulation to model the cipro-clay interactions was built in different steps.

The starting clay structure was the *LiFh* unit cell with 12 water molecules (*LiFh* - 12 H_2O) previously optimized with the periodic quantum calculation. Water molecules were converted to SPC water keeping oxygen atoms in the position of the CRYSTAL14 optimization and adjusting the hydrogen coordinates in order to reproduce the distance and angles of SPC parameterization [26]. After that, the unit cell model was replicated to generate a $5 \times 4 \times 3$ supercell that contains 720 water molecules in the interlayer spaces. This procedure generated a very homogeneous charge system, not allowing a random charge distribution of the layer sites. This clay model includes three interlayer regions where the drug could diffuse and is enough large to favor this process.

To reproduce the interactions of the clay surface with a solution containing a ciprofloxacin molecule and its possible intercalation, the periodicity in the 010 direction was cleaved. The valences of *Si* and *O* were compensated adding *OH* and *H*, respectively, ending the tetrahedral clay edges with *OH* groups. Octahedral ions (Mg^{2+} , Li^+ and F^-) were not balanced. It was assumed that they are very well attached by coulombic interactions between them and to the oxygens of the tetrahedral layers. Recently, Pouvreau et al [27] proposed metal *O*–*H* potentials terms for clay edge surfaces. Although only *Al* and *Mg* were the proposed metals, this strategy should be considered in future simulations involving clay surfaces.

A 30 Å width slab was inserted in the simulation box. The slab region was filled with 1757 water molecules and 1 cipro molecule (mass concentration of 4,66 mg/ml, greater than that experimentally used [5]). These water molecules were randomly located using the watteradd utility of DL.POLY code [28]. Fig. 1 shows the starting geometry of the *LiFh-cipro-out* simulation. The six different interlayer spaces that are in the simulation box (brown rectangle in Figure 1) are labeled as *d_i* (*i*=1 to 6). The cipro molecule is oriented in front of *d₂* interlayer region.

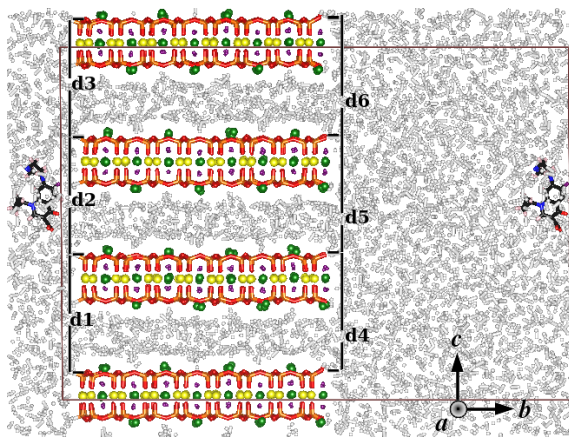


Figure 1. Starting geometry of the *LiFh-cipro-out* MD simulation. The different interlayer distances have been labeled as *d₁*, *d₂*, *d₃*, *d₄*, *d₅* and *d₆*. Orange, red, green, yellow, violet, black, white, and blue balls correspond to *Si*, *O*, *Li*, *Mg*, *F*, *C*, *H* and *N* atoms, respectively. Water molecules are the white sticks. The simulation box is delimited by the brown rectangle.

All the calculations assume that pH was 7. In the experimental results [5], the cipro solutions (pH near 4.5) were put in contact with the *Li*–*Fh* clay during 4h. By the end of the interaction, the pH of the cipro-clay dispersions was around 8, where a true intercalation of the drug at the synthetic clay ($277\text{mg} \pm 10\text{ mg}$ of cipro per gram of clay) was evidenced. In such conditions, an important part of the cipro molecules are in zwitterionic form (i.e., cipro molecules have a positive part related with the protonated amine group and a negative part associated with deprotonated carboxylic group). The *Si* surface edges of *LiFh* should be in the neutral form as $\Xi Si-OH$ to permit the incorporation of the zwitterionic cipro in the clay. Charged edges, $Si-O^-$ or $Si-OH_2^+$, would have a very strong interaction with the charged groups of the drug, not favoring its intercalation.

On the other hand, *LiFh-cipro-in* simulation box was prepared using the box of the *LiFh-cipro-out*. Twenty six water molecules

were replaced at the center of the interlayer by one cipro molecule. These 26 water molecules were added to the solution.

At the same time, *LiFh-6cipro* was built from the DFT calculations of the *LiFh-cipro* system. The unit cell model was replicated to generate a $5 \times 2 \times 1$ supercell. This procedure locates 10 cipro molecules in an interlayer. However, the drug molecules are very close between them that are why we decided to keep only 6 drug molecules in the interlayer, removing 4 drugs from the supercell. In this system periodic boundary conditions in the three directions were applied, simulating the interactions inside the bulk of the crystal. The starting geometries of the *LiFh-cipro-in* and *LiFh-6cipro* MD simulations are presented in Figures SI2 and SI3 of the Supporting Information.

The interactions of the clay atoms were treated with the CLAYFF force field [29] adapted by Marry et al [30]. A small change in the charge of oxygen labeled as *O(os)* that was set to -1.365 in order to ensure the neutrality of the system and the parameters of Li^+ were taken from Koneshan et. al. [31]. While water molecules were described with SPC potential [26], the Universal Force Field potential (UFF) was employed to model the cipro molecule [32] and the charges were determined from PBE0/VDZP calculations. Different force fields, like COMPASS [33,34], MM+ [35] and all-atom OPLS have been used to model cipro molecule [36].

UFF is a force field constructed from simple rules and atomic parameters that is capable of reproducing most structural features across the periodic table with errors less than 0.1 Å in bond distances and 5-10° in angle bend. The choice of the UFF resulted from a compromise between good accuracy and availability of force field parameters for all atom types present in the molecular model. Consider the previous experience of using this force field to simulate polypropylene/organoclay nanocomposites [37]. In addition, it was possible to verify that it is adequate to correctly reproduce the cipro geometry in our simulation.

The intermolecular interactions, i.e., the van der Waals and electrostatic interactions, between the atoms of the clay, ciprofloxacin and water molecules, have been treated with the parameters proposed by the different force fields. All details about potentials, parameters and atomic charges used in the simulations are discussed and presented in Tables SI1, SI2, and SI3 of Supporting Information.

Simulations were performed with DL.POLY classical molecular dynamics program [37].

The simulation sequence developed to model the *LiFh-cipro-in* and *LiFh-cipro-out* systems was the following: first, the clay framework was fixed and only the Li^+ compensating cations, the clay terminal *OH*, the water and cipro molecule were relaxing during 10 ps at 300 K in NVT simulation. After that, a MD simulation relaxing all the atoms during 10 ns in NPT ensemble was carried out, controlling temperature at 300 K during the first 20 ps and fixing pressure at 1 atm. Nosé-Hoover thermostat and barostat were used, each with a 100 fs relaxation time, respectively. In all simulations, periodic

boundary conditions were applied, and the time step was 1 fs.

A strategy of 4 steps was followed for the *LiFh-6cipro* system. First, drug and clay framework were fixed and only Li^+ compensating cations were relaxing during 10 ps at 300K in NVT simulation with the time step equal 1 fs. Step 2 kept the same MD conditions and all the clay was permitted to relax while drug atoms were fixed. In step 3 the whole system clay and drugs is relaxed but it was necessary to reduce the time step to 0.1fs. And finally, in step 4, NPT simulation of 2ns was done, with time step equal to 1fs controlling temperature at 300 K during the first 100 ps. Nosé-Hoover thermostat and barostat were used, each with a 100 fs relaxation time, respectively. Periodic boundary conditions were applied.

Electrostatic interactions of the system were calculated using the Ewald summation method. The cutoff for the Coulomb and Lennard-Jones potentials were set to 10 Å for *LiFh-cipro-in* and *LiFh-cipro-out* systems and for *LiFh-6cipro* system they were set to 8.9 Å. The trajectory of the atoms in the NPT simulations was collected each 1000 steps for dynamics and structural analysis. The six different d-spacings of Figure 1

were determined from the collected trajectory for *LiFh-cipro-in* and *LiFh-cipro-out* systems and the histograms were plotted using the Scott's normal reference rule [38,39].

III. RESULTS AND DISCUSSION

The optimized lattice parameters of the DFT (PBE0/VDZP) and DFT-D2 optimizations (*LiFh-12H₂O* and *LiFh-cipro*) and the three MD simulation systems (*LiFh-cipro-out*, *LiFh-cipro-in* and *LiFh-6cipro*) are documented in Table 1. Also, the previously reported experimental values of the organic pillared fluorohectorite [15], the starting geometry, are presented. Note that cell parameters a , b and γ slightly change compared to the structure reported by Breu et al [15]. There is a good agreement between the cell parameters of the DFT results of the *LiFh-cipro* system, and the Molecular Dynamics of the *LiFh-6cipro* system. Meanwhile the cell parameters of the *LiFh-cipro-out* and *LiFh-cipro-in* systems resemble more the geometry of the *LiFh-12H₂O* obtained by DFT calculations. The largest value of b for the *LiFh-cipro-in* was due to the layer displacement and will be discussed below.

Table 1. *LiFh-12H₂O*, *LiFh-cipro*, *LiFh-cipro-out*, *LiFh-cipro-in* and *LiFh-6cipro* lattice parameters in comparison with experimental results for the organic pillared fluorohectorite [15].

Cell parameters		a	b	c	α	β	γ
DFT	<i>LiFh-12H₂O</i>	5.2648	9.0538	17.308	90.40	77.83	90.46
	<i>LiFh-cipro</i>	5.2728	9.0433	18.189	84.64	98.54	90.11
DFT-D2	<i>LiFh-cipro</i>	5.2128	8.9615	17.558	85.23	99.80	90.03
	<i>LiFh-cipro-out</i>	5.8073	9.0501	19.088	90.44	77.83	90.22
MD	<i>LiFh-cipro-in</i>	5.8071	11.76	19.087	90.446	77.83	90.227
	<i>LiFh-6cipro</i>	5.6198	9.6385	19.386	84.638	98.54	90.107
Brue et al [15]		5.2635	9.1278	13.984	90.00	96.89	90.00

When the drug is intercalated in the clay model, α is the parameter that changes the most, it decreases almost 6°. Meanwhile, β changes significantly in those systems with water, *LiFh-12H₂O*, *LiFh-cipro-out* and *LiFh-cipro-in* (around 19°) leading to a deformation of the clay framework. It is well known that the clay cell parameters could change depending on the clay-guest interactions. The frameworks of these materials are more flexible than other aluminosilicates, like for example zeolites. Specially c and β , the first related with the size and number of the molecules host in the interlayers, the second associated with the deformation of the hexagonal cage due to the host-guest chemical interactions. This fact indicates that different guest-host interactions are established in such a way that they produce different reorientations of the clay structure.

III.1. Quantum calculations: Clay-drug interactions

Fig. 2 shows the geometry of *LiFh-cipro* after the PBE0/VDZP optimization. The drug was placed in such way that the carboxylic group was interacting with one of the Li^+ (Li1) and the fluorine of the quinolone ring with the second Li^+ (Li2), both as compensating cations. These are strong electrostatic interactions. From Fig. 2 it is possible to know the distances between atoms: for example, the Li1 cation is located at 1.75

Å from the O1 of the cipro, while the distances to the different oxygen atoms of the clay (O5, O6 and O4) are 2.07 Å, 2.22 Å and 2.39 Å, respectively. It is important to note that the Li-O distance in the lithium oxide is 2.0 Å. These results demonstrate that the interaction established between the Li1 cation and the O from carboxylic group of the drug is stronger than that of the ionic bond of the oxide and the ionic interaction with the clay. Li2, the other compensating cation, is strongly interacting with F1 (fluorine of the quinolone ring of the cipro). At the same time, Li2 is keeping the coordination with F2, fluorine of the octahedral sheet of the clay. The Li2-F2 and Li2-F1 distances are 1.95 Å and 2.03 Å, respectively. Li2 also keeps coordinated with the six O clay of the hexagonal cage because it is located in the middle of the window; see Figure SI4 in Supporting information which also shows the location of Li1 cation, where it is possible to note that it is placed outside of the hexagonal cage. That is why it is only coordinated with three O of the clay.

The stabilization of the drug inside the clay is also associated to the hydrogen bonds involved in the system. These can be classified in three types: the drug-clay H-bonds, the intermolecular drug-drug H-bonds and intramolecular drug H-bonds. Considering the H-bond distances up to 2.6 Å, there are 7 of the first type, 2 of the second and 15 of the third. It is worth noting that an important intermolecular

H-bond was established between the ketone oxygen (O3) and the hydrogen of the amine group H1 (see Fig. 2) at a distance of 1.52 Å. In a previous work a variation in the wavenumber of the band assigned to the C=O ketone, was observed through infrared spectroscopy [5] and was explained based on the drug-clay interaction. Our results suggest a new possible interaction, where the ketone group is involved in an intermolecular hydrogen bond interaction. It indicates that the guest confinement inside the interlayer space of the clay is another important factor to be taken into account.

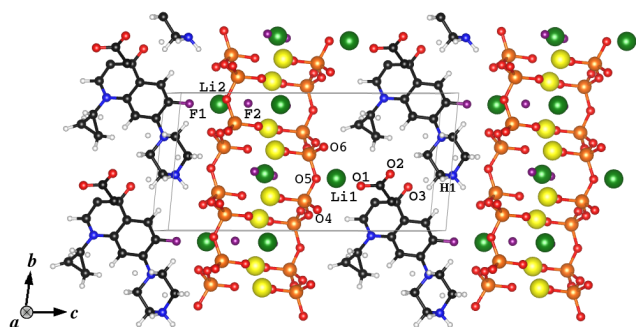


Figure 2. Optimized geometry of the PBE0/VDZP calculations of cipro molecule inside *LiFh* model. The simulation cell is inside the gray rectangle. Orange, red, green, yellow, violet, black, white, and blue balls correspond to Si, O, Li, Mg, F, C, H and N atoms, respectively.

III.2. The role of dispersion forces

When London type interactions (dispersion) are taking into account in DFT optimization a new final geometry is obtained. The drug is confined in a narrower interlayer space (c decreases by 0.6 Å) favoring the formation of two new clay-cipro H-bonds, while reinforcing a significant number of H-bonds interactions by shortening the O clay-H drug distances. This reduction of the d -spacing also decreases the Li^+ -O and Li^+ -F distances associated with the electrostatic interactions. Energetically, the inclusion of dispersion interactions stabilizes the system in 179 kcal mol⁻¹. This stabilization is not only due to the contribution of the dispersion forces, since in the new scenario there is a significant increase in the contributions of the Coulombic and the H-bond interactions to the total energy of the system. Dispersion interactions play an important role in reproducing the interaction of the host-guest clay interactions and should be taken into account in the DFT calculations of these systems.

Table SI4 records the most outstanding distances, hydrogen bonds and the energy values reported by PBE0 and PBE0-D2 calculations.

III.3. Molecular Dynamics Simulations

III.3.1. *LiFh*-cipro-out

A movie with the trajectory of the 10 ns simulation of the interaction between *LiFh* model and ciprofloxacin solution can be found in the video presented in

https://www.youtube.com/watch?v=Kic_Fvpl3S4. As can be seen in different moments, the cipro molecule approaches the clay and interacts with the surface. Different kinds of interaction were identified. Fig. 3 shows different moments of the simulation that will be discussed below.

It is important to note that during the first steps of the simulation a rapid migration of Li^+ compensating cation is observed. At the beginning, Li^+ cations moved to the center of the hexagonal cavity, as was observed in Li2 of the quantum calculations (see Figure SI4). A significant migration took place in those Li^+ closest to the surface that define d_4 , d_5 and d_6 interlayer distances, see Fig. 1. And was not observed at the other clay side (d_1 - d_3) where M^{2+} octahedral cations were in the edge sites. These Li^+ compensating cations were accommodated in the octahedral sheets between the clay and water molecules of the solution. This fact could indicate a charge reorganization process in the clay framework when it is put in contact with a solution. And it could be the starting point of a possible cation exchange process between Li^+ and the cipro. Two main reasons induced dipole along clay layer b -axis: the border effects and asymmetric cleaving. And these facts, instead of the possible force field limitations, permit the Li^+ interlayer migration.

During the simulation, cipro molecules diffuse in the solution. At 3.3 ns they began to intercalate at the interlayer region, as can be seen in Fig. 3a. This process took place during 0.2 ns until the drug came back to the water solution. It is important to note that the amine group of ciprofloxacin (with $q = +1e$) is the region of the drug that leads the intercalation process. Another short attempt of intercalation took place at 6 ns. As can be seen in Fig. 3b at 3.98 ns, and also in Figure SI5 of Supporting Information, even when the drug does not intercalate, the clay sheets that define d_4 , increase their separation due to the effect of drug interaction. This phenomenon can be observed for the layers during the simulations, and it should carry to the incorporation of the host molecule.

Also, an interaction between the oxygen atoms of the drug and the surface octahedral cations of the clay takes place at 8 ns, in particular with the Mg^{2+} , and in some cases with the opposite surface that was enriched with Li^+ migrated compensating cations (see Fig. 3c).

Fig. 4 shows the behavior of the d -spacings when the drug solution is put in contact with the clay model during the first 10 ns.

The interlayer spaces are mainly between 18-19 Å. However, d_3 and d_6 are between 20-21 Å. Note that during all the simulation, three water layers stayed inside the interlayer spaces. And even when the clay model was in contact with a solution with high water content it was not observed any displacement of clay layers that could indicate a swelling process. The short simulated time does not allow for the observation of all processes occurring in drug intercalation. Based on that, it is expected that only first stages of the intercalation could be modeled, and they would be associated with the interaction between the clay surface and the drug.

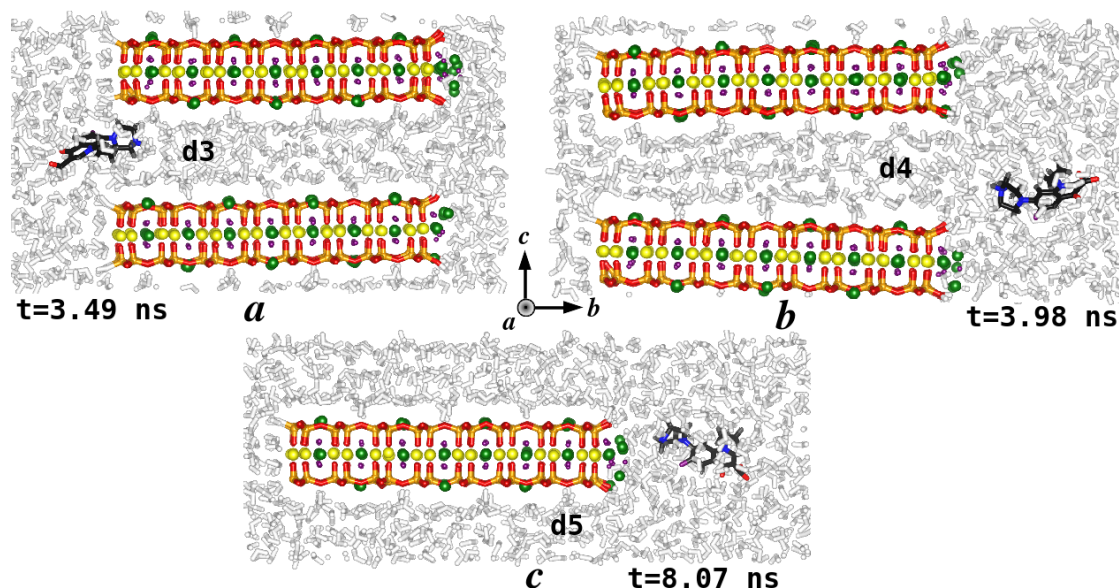


Figure 3. Different snapshots of the MD simulation. Orange, red, green, yellow, violet, black, white, and blue balls correspond to Si, O, Li, Mg, F, C, H and N atoms, respectively.

III.3.2. *LiFh-cipro-in*

The interaction of the ciprofloxacin hosted in the center of the interlayer of *LiFh* during the first 10 ns can be observed in the video presented in <https://youtu.be/UjbVv6Z1C4c>. Until the 53 ps, the cipro molecule interacted strongly with the clay interlayer, specially, the oxygens of the carboxylic group and the lithium compensating cation (Li^+). Figure SI6 of Supporting Information shows the rdf of Li^+ and the O and F of clay and drug and also the rdf H-O_{clay}. The average distance Li^+ -O1 is 2.22 Å, while the Li^+ -O2 is 2.67 Å. The charges of these two oxygens are shown in Table SI1. These strong interactions almost anchored the drug to the clay layer, which limits the possibility that it may adopt other configurations. The Li^+ -O1 distance only change from 1.99 to 3.27 Å and the Li^+ -O2 distance from 2.04 to 4.53 Å. In spite of this fact, during the simulation, the drug molecule tried to change its conformation, favoring that the fluorine atom of the drug can interact with two Li^+ cations of the next layer. From the 117 ps, the average distances between the two Li^+ neighbors to the F are 5.46 Å and 6.77 Å. As can be seen in the movie, during the simulation the drug could adopt other conformations inside the interlayer space favoring other interactions such as the $F-Li^+$, that could approach to distances lower than 5 Å, see rdf in Figure SI6 of Supporting Information.

Also in this system, as in the *LiFh-cipro-out*, a significant migration took place in those Li^+ closest to the edge that define d4, d5 and d6 interlayer distances. However, an important fact that was not previous observed in the *LiFh-cipro-out* system, is the diffusion of one compensating cation through the interlayer space and to/from the outer water. Around the 4.85 ns, a Li^+ compensating cation left its position at the hexagonal cavity of d3, see Figure SI7a in the Supporting Information. In the period between the 4.96 ns and 5.26 ns, it diffused in the outsider solution (Figure SI7b). Then, it returns to the center of the interlayer space and at the 5.38 ns oscillated

near its original position for 0.5 ns. During the movement of the clay layers that take place after the 7.24 ns, the Li^+ cation was in the center of the interlayer, Figure SI7c. Finally, at 9.53 ns, it anchored into a hexagonal cavity in the middle of the interlayer, and remained there until the end of the simulation (Figure SI7d). A video with the movement of the Li^+ can be consulted in <https://youtu.be/2IL3ib4stm8>. In the video, the water molecules were hidden to improve the visualization.

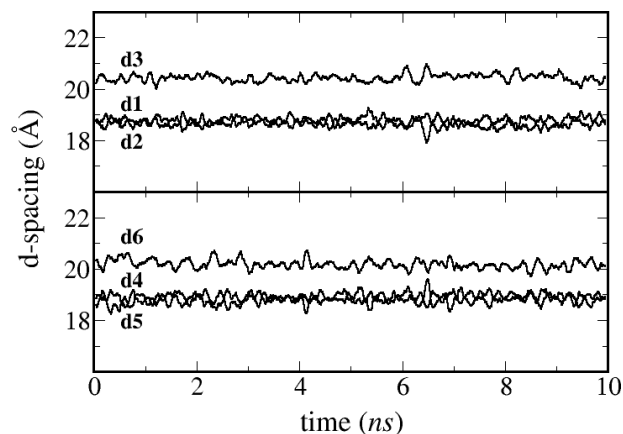


Figure 4. The d-spacings in the *LiFh-cipro-out* system during simulation period.

Other authors have discussed about the mobility of the Li^+ compensating cation. Mignon et al [40] performed a periodic simulation of the hydrated clay, observing that the Li^+ cation remains adsorbed in the surface layer of montmorillonite. This result could justify the fact that most of the Li^+ cations in our simulation were adsorbed in the hexagonal cavity of the tetrahedral layer. On the other hand, Salles et al [41] suggested that during the hydration process in montmorillonite, the small alkali cations (Li^+ or Na^+) could leave the hexagonal site. This motion is favored by the increase in the interlayer distance. In this case, water molecules play an important role modifying the interaction equilibrium between the surface

and the cation and thus induce an increase of the distance cation-surface and allow the cation to reach the interlayer space and be more coordinated by its hydration shell [41]. More recently, Salles et al determined that the Li^+ diffusion coefficient in montmorillonite increases from 5×10^{-25} to $1.4 \times 10^{-9} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ with the increase of the amount of adsorbed water in the interlayer [42]. This effect was mainly attributed to both the increase in the interlayer space opening and the high hydration of the compensating cations even at low Relative Humidity (RH). The author proposed that at RH values close to 80 % that correspond to d-spacing around 16 Å, it should be expected that the cations detach from the layer surface and do not interact anymore with it [42]. All the d-spacings during the simulation are bigger than 16 Å.

Up to 7 ns, the high water content of the outer solution had not any effect in the d-spacings of the clay, see Fig. 5. However, from 7.24 ns, different movements produce a displacement of the layers and a noticeable variation of the d-spacing. First, the d4 decreases its size while the d6 opens, allowing an addition of extra water layer (WL). It is possible to note almost 4WL in d6, see Fig. 6a. The d1 also increases its size while the d3 narrows. Then, around 7.33 ns, the system rotates and with this movement the intermediate layer defined by the d1 and d4 only hosted 2WL, note the decrease in the d1 and d4 d-spacing in the small rectangles of Fig. 5 and also the representation in Fig. 6b. After that, a displacement of the layers begins, where d1 and d4 remain constants with 2WL while d2, d3, d5 and d6 increase their sizes, specially d3 and d6, see Fig. 6c. At the end of the simulation the displacement of the layers has decreased, where d1 and d4 decreased their initial value and only host 2WL, while the other interlayers increased their size mainly due to the displacement of the layers, see Fig. 6d. The behavior previously described could indicate a first stage of the swelling process due to the effect of the high-water content of the outer solution.

The histogram obtained from the analysis of d-spacings during the simulations of the *LiFh-cipro-out* and *LiFh-cipro-in* is shown in Fig. 7, and it could be qualitatively compared with the experimental diffraction patterns for the *LiFh-cipro* composite [5]. In that previous work, the 001 reflection (basal reflection) observed with a d-value of 1.7 nm was interpreted as a fingerprint of clay stacks with intercalated cipro, while reflections with d-values equal to 2.1 nm and 2.4 nm were assigned to the possible existence of different conformations of cipro molecules inside the interlayer space or to the presence of water layers in addition to the drug molecule. In our simulation the most intense peak observed for a d-spacing around of 1.9 nm is associated to the clays stacks, with the drug or with three water layers. The peak at approximately 2.0 nm, is associated to the increase of the d-value in d3 and d6 interlayer. Such regions are those that most frequently interact with the drug in *LiFh-cipro-out*, and in some cases could host it. As can be seen, a signal appears with a d-spacing of 1.6 nm in the *LiFh-cipro-in* which is associated to the 2WL of the d1 and d4. For this system the signal is extended until the 3nm due to the effect of the displacements of the layers.

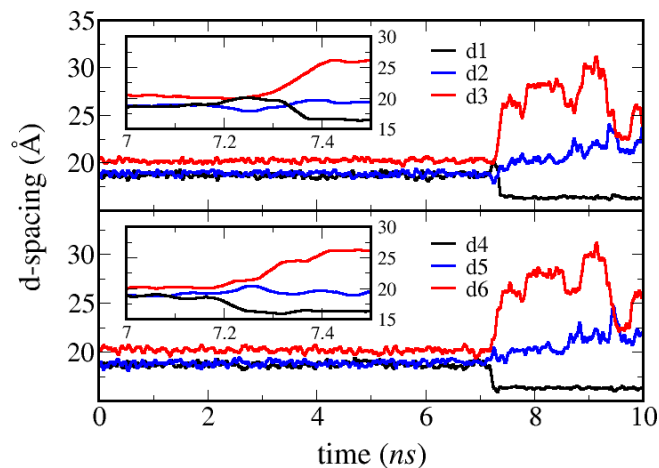


Figure 5. d-spacing in the *LiFh-cipro-in* system during simulation period. In the insets, a zoom is shown into the period between 7 and 7.5 ns.

During all simulation in the *LiFh-cipro-in* system the cipro molecule was in the interlayer of the clay and was not observed any drug desorption process, indicating a strong clay-drug interaction.

III.3.3. *LiFh-6cipro* system

The drug-drug interactions inside the clay can be determined by analyzing the simulation of 6 cipro molecules arranged in the interlayer region of the *LiFh* model used. Fig. 8 shows the radial distribution function (rdf) of the Li^+ with the oxygen atoms of the clay and the oxygens and fluorine atoms of the drug. The results are in good agreement with those previously obtained in the *LiFh-cipro-in* system and by DFT calculations. The intense peaks observed for the Li^+ -O's of the drug suggest a strong interactions, especially with the O1, one of the oxygens of the carboxylic group. The Li^+ are closer to the O of the drug than to the O of the clay. However, due to the orientations of the molecules and the confinement effect in the interlayer space, the F atoms of the cipro molecules are more hindered to interact with the Li^+ that is why the intensity of the signal is lower.

The radial distribution function of the Hydrogens of the amine group (H1) with the oxygens of the clay and with the oxygens and fluorine of the neighbor drugs are presented in Fig. 9. The analysis of this rdf gives information about the possible intermolecular hydrogen bonds, the involved atoms and the distances of these interactions. The O₂ atoms (the second oxygen of the carboxylic group) and the O₃ atoms (ketone oxygen) are the oxygens of the drug that are closest to the H1 atoms of the next molecule. These distances and their intensities suggest that strong H-bonds interactions are established in the system. Also, the O1 atoms can interact with the H1 atoms at distances associated with H-bonds, but they have a wider signal, suggesting longer interval of dH1-O1 in the system. It is important to remark, that the O1 atoms are mainly interacting with the Li^+ cations of the clay. The signals of the H1-Oclay and H1-F pairs appear at bigger distances and are less intense, suggesting that these interactions are not favored.

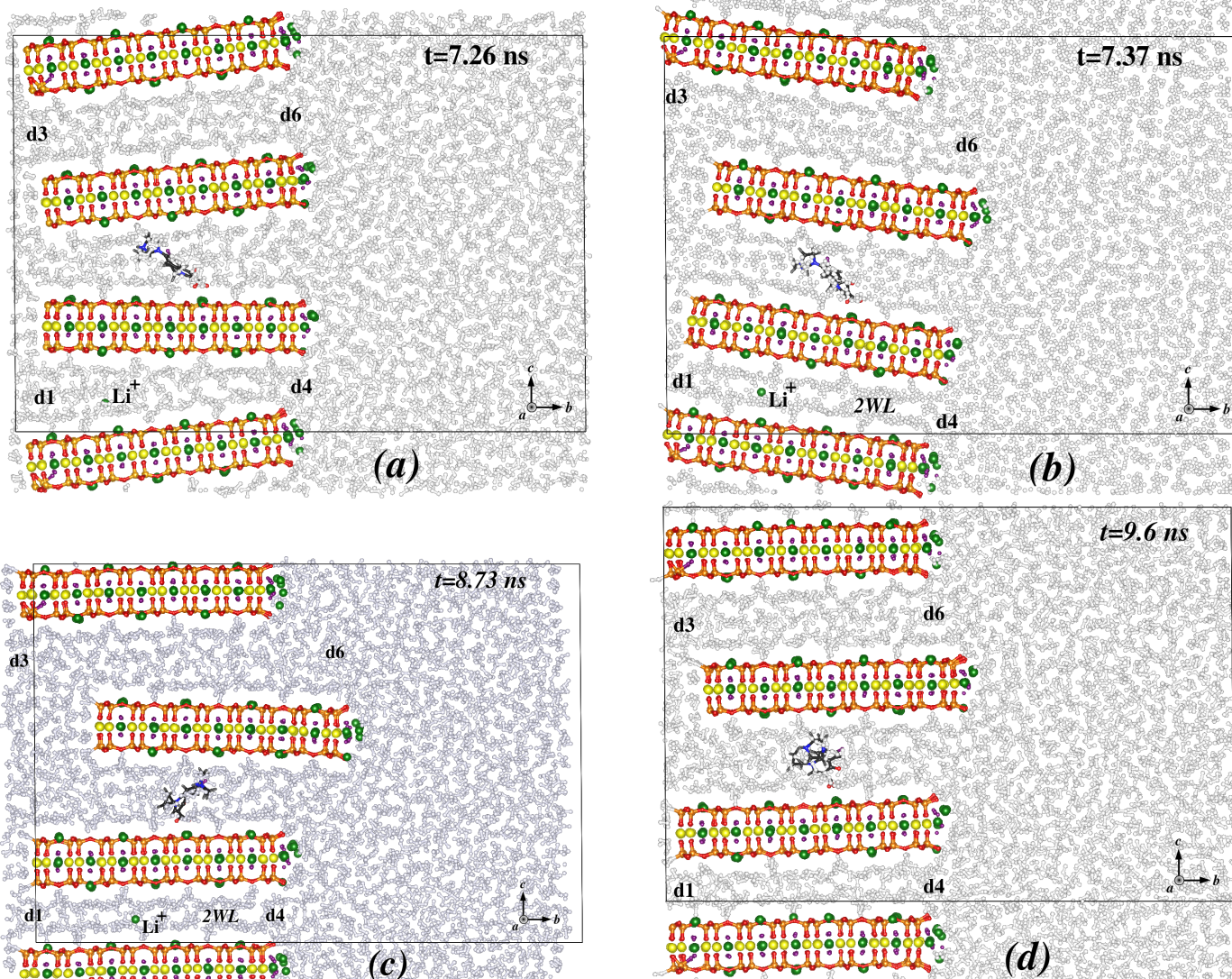


Figure 6. Different snapshots of the *LiFh-cipro-in* simulation. Orange, red, green, yellow, violet, black, white, and blue balls correspond to *Si*, *O*, *Li*, *Mg*, *F*, *C*, *H* and *N* atoms, respectively.

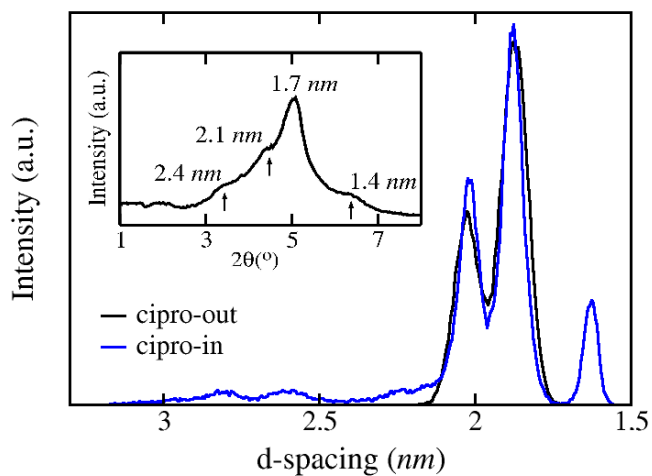


Figure 7. Histogram of the d-spacings of the *LiFh-cipro-out* (black line) and *LiFh-cipro-in* (blue line). In the inset the DRX pattern of *LiFh-cipro* [5] is shown.

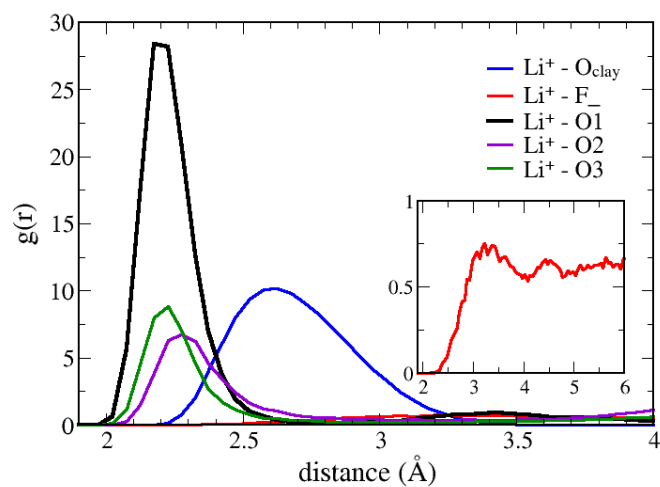


Figure 8. Radial distribution function of the Li^+ and the oxygens of the clay and the oxygens and fluorine of the cipro molecules.

Figure S18 of the Supporting information shows the radial distribution function of the hydrogen atoms of the cipro molecule (H) with the oxygens of the clay and with the oxygens and fluorine of the neighbor drugs. Due to the geometry of the cipro molecule, this rdf includes information about the intramolecular interactions. Specifically, the first peaks of the H-F and H - O3 signals are associated with this kind of interaction. On the other hand, O1 and O2 atoms interact with H atoms at distances bigger than the recorded for Li^+ cations and H1 atoms.

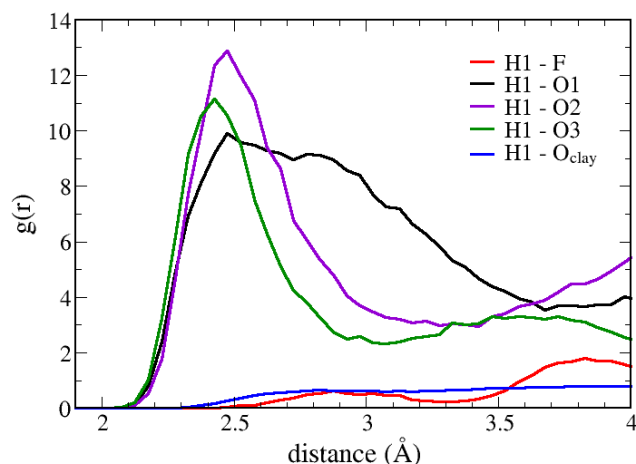


Figure 9. Radial distribution function of the Hydrogens of the amine groups and the oxygens of the clay and the oxygens and fluorine of the cipro molecules.

Finally, Fig. 10 shows some of the possible interactions that could be found if a high amount of cipro molecules are incorporated into the interlayers of the *LiFh* clay. These are the interactions resulting three neighbor molecules confined at the same interlayer at the end of the simulation.

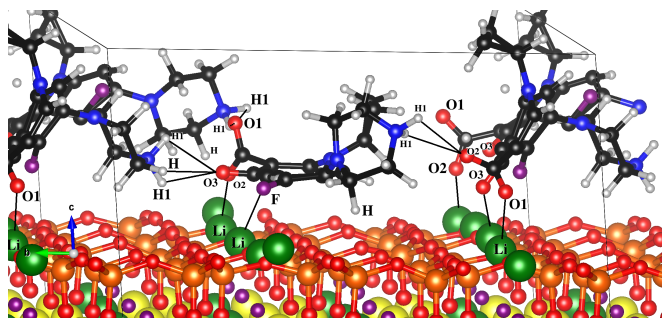


Figure 10. Interactions present in the *LiFh-6cipro* system at the end of the simulation. Only three neighbor molecules in the same interlayer are shown. The others three molecules are hidden to improve the visualization. Orange, red, green, yellow, violet, black, white, and blue balls correspond to Si, O, Li, Mg, F, C, H and N atoms, respectively. In the Figure, two cipro molecules appears twice considering periodic boundary conditions.

IV. CONCLUSIONS

A useful combination of theoretical calculations has been used in order to shed lights on the nature of the *LiFh-cipro* interactions. First principle and Molecular

Dynamics calculations suggest that important electrostatic interactions are present when the cipro molecules are inside the *LiFh* framework. These are established mainly by the Li^+ cations of the clay, and the oxygen and fluorine atoms of the cipro molecule. Moreover, due to the confinement effect of the guest molecules, a high number of intermolecular and intramolecular hydrogen bonds between the drug molecules are observed inside the clay interlayer. These facts contribute to the stabilization of the drug. Dispersion contributions play an important role and should be taken into account in this kind of system. Their inclusion decreases the d-spacing, emerging and reinforcing the H-bonds and electrostatic interactions and permitting important energy stabilization.

Molecular dynamics calculations show a rapid migration of the Li^+ compensating cations located near the surface of the octahedral sheets, suggesting a charge reorganization process. Even when it is not possible to observe the full incorporation of the cipro inside the interlayer space due to the short scale of simulation time compared with the experimental one at least two attempts were identified. The simulation also shows different kinds of interactions between the drug and the clay in the first stages. Three water layers were located in the interlayer spaces of the *LiFh-cipro-out* system. And even when a solution with a high content of water was put in contact with the clay no signal of the swelling process was observed. However, once the drug is intercalated in the clay interlayer (*LiFh-cipro-in* system), the interaction of the outer water produces the displacement of the clay layers, suggesting that first stage of the swelling process is taking place. Also, the diffusion of one Li^+ compensating cation through the interlayer region and in the external solution is observed. The histogram obtained from the analysis of the d-spacings during the simulations of the *LiFh-cipro-out* and *LiFh-cipro-in* sheds lights on the possible conformations and arrangements of the cipro molecule and the water molecules in the clay interlayer and is in good agreement with the DRX pattern of the *LiFh-cipro* [5]. In the composite *LiFh-cipro*, the drug molecule is well anchored, and any indication of drug desorption process was not observed.

ACKNOWLEDGEMENTS

A.L. would like to honor and validate Professor Zicovich-Wilson's invaluable contribution to this paper. Sadly, Dr. Zicovich-Wilson passed away during the preparation of the manuscript. A.L. thank Mexican CONACyT for funding through project CB-178853 and SECITI-CLAF 2014 research scholarship. Thanks are due to DGTIC, UNAM for generous allocation of supercomputing time under grants SC16-1-IG-82 and LANCAD-UNAM-DGTIC-010 on Miztli supercomputer. Professor J. O. Fossum is acknowledged for facilitating the inclusion of our work in the Scientific Research Abstracts of 16 IZCC. Professor E. Altshuler and M. Lam are thanked for the revision of the manuscript. The authors also thank the University of Havana and the 16 IZCC organizing committee for financial support.

SUPPORTING INFORMATION

Supporting Information includes the Figures and the Table cited in the manuscript, the detailed information of the potentials and parameters used in the simulations, and the final geometries of all simulations reported in the manuscript.

Further videos related to the article can be found at:

- Video of the *LiFh-cipro-out*: <https://www.youtube.com/watch?v=Kic.Fvpl3S4>
- Video of *LiFh_cipro_in*: <https://youtu.be/UjbVv6Z1C4c>
- Video of *LiFh_cipro_in_zoom*, to see the interaction drug-clay: <https://youtu.be/ENd3cU9R9uw>
- Video of *Li* diffusion in: <https://youtu.be/2IL3ib4stm8>

BIBLIOGRAPHY

- [1] M. Hanif, F. Jabbar, S. Sharif, G. Abbas, A. Farooq, and M. Aziz, *Clay Miner.* **51**, 469 (2016).
- [2] I. Calabrese, G. Cavallaro, C. Scialabba, M. Licciardi, M. Merli, L. Sciascia, and M. Liveri, *Int. J. of Pharm.* **457**, 224 (2013).
- [3] A. Hamilton, G. Hutcheon, M. Roberts, and E. Gaskell, *Appl. Clay Sci.* **87**, 129 (2013).
- [4] D. Hernández, L. Lazo, L. Valdes, L. C. Ménorval, Z. Rozynek, and A. Rivera, *Appl. Clay Sci.* **161**, 395 (2018).
- [5] A. Rivera et al., *Appl. Clay Sci.* **124-125**, 150 (2016).
- [6] L. Valdés, D. Hernández, L. De Ménorval, I. Pérez, E. Altshuler, J. Fossum, and A. Rivera, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **225**, 767 (2016).
- [7] L. Valdés, S. A. Martín, D. Hernández, L. Lazo, L. C. Ménorval, and A. Rivera, *Rev. Cubana Fis.* **34**, 35 (2017).
- [8] L. Valdés, I. Pérez, L. Ménorval, E. Altshuler, J. Fossum, and A. Rivera, *PLoS One* **12**, e0187879 (2017).
- [9] P. D. Kaviratna, T. J. Pinnavaia, and P. A. Schroeder, *J. Phys. Chem. Solids* **57**, 1897 (1996).
- [10] E. C. dos Santos et al., *RSC Adv.* **7**, 26537 (2017).
- [11] A. Seppälä, E. Puhakka, and M. Olin, *Clay Miner.* **51**, 197 (2016).
- [12] J. Suter, R. Anderson, C. Greenwell, and P. Coveney, *J. Mater. Chem.* **19**, 2482 (2009).
- [13] T. V. Shapley, M. Molinari, R. Zhu, and S. C. Parker, *J. Phys. Chem. C* **117**, 24975 (2013).
- [14] J. L. Suter, D. Groen, and P. V. Coveney, *Adv. Mater.* **27**, 966 (2015).
- [15] J. Breu, W. Seidl, and J. Senker, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **630**, 80 (2004).
- [16] T. J. Tambach, P. G. Bolhuis, E. J. M. Hensen, and B. Smit, *Langmuir* **22**, 1223 (2006).
- [17] R. Dovesi et al., *Int. J. Quantum Chem.* **114**, 1287 (2014).
- [18] I. Turel and G. Amalija, *Anal. Sci.* **19**, 329 (2003).
- [19] C. Adamo and V. Barone, *J. Chem. Phys.* **110**, 6158 (1999).
- [20] K. Valdiviés-Cruz, A. Lam, and C. M. Zicovich-Wilson, *J. Phys. Chem. A* **118**, 5779 (2014).
- [21] K. Valdiviés-Cruz, A. Lam, and C. Zicovich-Wilson, *J. Phys. Chem. C* **121**, 2652 (2017).
- [22] K. Valdiviés-Cruz, A. Lam, and C. M. Zicovich-Wilson, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17**, 23657 (2015).
- [23] H. J. Monkhorst and J. D. Pack, *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
- [24] R. Dovesi et al., *CRYSTAL 14 User's Manual* edited by Univ. of Turin, Turin, Italy, (2014).
- [25] S. Grimme, *J. Comput. Chem.* **27**, 1787 (2006).
- [26] H. Berendsen, J. P. M. Postma, W. van Gunsteren, and J. Hermans, *Interaction models for water in relation to protein hydration*. In *Intermolecular Forces*, (Pullman, B., Ed.; D. Reidel: Amsterdam, 1981) pp. 331.
- [27] M. Pouvreau, J. A. Greathouse, R. T. Cygan, and A. G. Kalinichev, *J. Phys. Chem. C* **121**, 14757 (2017).
- [28] I. Todorov, W. Smith, K. Trachenko, and M. Dove, *J. Mater. Chem.* **16**, 1911 (2006).
- [29] R. T. Cygan, J.-J. Liang, and A. G. Kalinichev, *J. Phys. Chem. B* **108**, 1255 (2004).
- [30] V. Marry, E. Dubois, N. Malikova, S. Durand-Vidal, S. Longeville, and J. Breu, *Environ. Sci. Technol.* **45**, 2850 (2011).
- [31] S. Koneshan, J. C. Rasaiah, R. M. Lynden-Bell, and S. H. Lee, *J. Phys. Chem. B* **102**, 4193 (1998).
- [32] A. K. Rappe, C. J. Casewit, K. S. Colwell, W. A. Goddard, and W. M. Skiff, *J. Am. Chem. Soc.* **114**, 10024 (1992).
- [33] L. Aristilde and G. Sposito, *Environ. Toxicol. Chem.* **27**, 2304 (2008).
- [34] L. Aristilde and G. Sposito, *Environ. Toxicol. Chem.* **29**, 90 (2010).
- [35] I. Turel, P. Živec, A. Pevec, S. Tempelaar, and G. Psomas, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2008**, 3718 (2008).
- [36] O. Cramariuc, T. Rog, M. Javanainen, L. Monticelli, A. V. Polishchuk, and I. Vattulainen, *Biochim. Biophys. Acta, Biomembr.* **1818**, 2563 (2012).
- [37] R. Toth, A. Coslanich, M. Ferrone, M. Fermeglia, S. Pricl, S. Miertus, and E. Chiellini, *Polymer* **45**, 8075 (2004).
- [38] D. W. Scott, *Biometrika* **66**, 605 (1979).
- [39] D. W. Scott, *Wiley Interdisciplinary Rev. Comput. Stat.* **2**, 497 (2010).
- [40] P. Mignon, P. Ugliengo, M. Sodupe, and E. Hernandez, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12**, 688 (2010).
- [41] F. Salles, *et. al.*, *J. Phys. Chem. C* **112**, 14001 (2008).
- [42] F. Salles, *et. al.*, *J. Phys. Chem. C* **119**, 10370 (2015).

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



SYMMETRY ASPECTS OF FISSION FRAGMENT MASS DISTRIBUTION IN $^{238}\text{U}(^{18}\text{O},f)$ REACTION

ASPECTOS DE SIMETRÍA DE LA DISTRIBUCIÓN MASIVA DEL FRAGMENTO DE FISIÓN EN $^{238}\text{U}(^{18}\text{O},f)$ REACCIÓN

R. GUPTA[†]Department of Physics, Swami Swatantranand Memorial College, India; rajivguptamirage@gmail.com[†][†] corresponding author

Recibido 25/1/2020; Aceptado 5/6/2020

Fine structure dips in the fission fragment mass distribution in $^{238}\text{U}(^{18}\text{O},f)$ reaction arise mainly due to breakdown of the spin-isospin symmetry. The average proton-neutron interaction for each decay mode is calculated by using double differences of binding energies. It is shown that its decreasing trend at $N=82$ has direct relevance with the breakdown of spin-isospin symmetry. The maxima in the $p-n$ interaction correspond to partial restoration of spin-isospin symmetry and therefore, help in limiting the number of neutrons evaporated in each decay channel. Also, calculations based on the asymmetric two-center shell model explain not only the observed mass distribution nicely but suggests a possible value of extending these experiments beyond their present mass limits.

Las protuberancias en la estructura fina observada en la distribución de masa para la reacción $^{238}\text{U}(^{18}\text{O},f)$ obedece, principalmente, a la ruptura de simetría spin-isospin. La interacción promedio entre el protón y el neutrón para cada modo de decaimiento se calcula utilizando diferencias dobles de las energías de enlace. Se demuestra que la tendencia decreciente con $N = 82$ tiene un vínculo directo con la ruptura de la simetría spin-isospin. Los máximos en la interacción $p-n$ corresponden a la restauración parcial de la simetría spin-isospin, lo cual contribuye a limitar el número de neutrones evaporados en cada canal de decaimiento. Adicionalmente, los cálculos basados en el modelo de dos centros explican elegantemente no solo la distribución de masa sino también sugieren un posible valor para extender estos experimentos más allá de los límites de masa actuales.

PACS: Shell model (modelo de capas), 21.60.Cs; compound nucleus (núcleos compuestos), 25.70.Gh; fission process (procesos de fisión), 24.75.+i; nuclear reactions (reacciones nucleares), 24.10.-i

I. INTRODUCTION

In the reaction of $100\text{ MeV }^{18}\text{O}$ beam bombarded on the ^{238}U target recently, the cross-section for making the fused system is measured and this fused system is found to disintegrate with fragment mass distribution centered around zero mass asymmetry [1]. The measured excitation energy is about 60 % of the Coulomb barrier height. The observed spectrum shows fine structure dips corresponding to mass numbers $A=112$ and 124 plus their complementary fragment masses. The authors in Ref. [1] claim that these dips refer to the closed shell nuclei.

This signature of the fission fragment mass distribution has opened up a new era for understanding the shell closure at large $\frac{N}{Z}$ ratios. Here, N and Z refers to neutron number and proton number, respectively. So far the confirmation of shell closure and magic numbers were evidenced usually by using one of the following experimental approaches:

- (i) Study of masses and separation energies;
- (ii) Determination of energies of the first excited state ($E2$) of even-even nuclei;
- (iii) The reduced transition probability $B(E2; 0^+ \rightarrow 2^+)$ value along an isotopic chain of proton-magic nuclei, provides a sensitive signature of shell evolution.

In this paper, one show that the observed dips in the mass distribution arise mainly due to breakdown of the spin-isospin symmetry. In addition to the empirical estimates, asymmetric two-center shell model (ATCSM) [2–4] based calculations have also been performed to justify the observed mass distribution.

II. INTERACTION ENERGY BETWEEN N - P PAIRS

Firstly, we try to understand the observed structure in the fission fragment mass distribution by using the interaction energy between n - p pairs. Experimental binding energies $B(Z, N)$ [5] generally represents the sum of all these nucleonic interactions. For even-even nuclei, the average p - n interaction of last nucleons can be extracted from the double differences of binding energies [6,7] and is written as [8,9],

$$\delta V_{pn}(Z, N) = \frac{1}{4} \left[[B(Z, N) - B(Z, N - 2)] - [B(Z - 2, N) - B(Z - 2, N - 2)] \right] \quad (1)$$

Here, a given $\delta V_{pn}(Z, N)$ value for even-even nuclei refers to the interaction of the $(Z-1)$ and Z th protons with the $(N-1)$ and N th neutrons.

Here, $\delta V_{pn}(Z, N)$ interactions for all the observed even-even isotopes (as shown in figure 2 of Ref. [1]), namely, $^{90-96}\text{Sr}$, $^{96-102}\text{Zr}$, $^{98-108}\text{Mo}$, $^{104-112}\text{Ru}$, $^{108-116}\text{Pd}$, $^{114-122}\text{Cd}$, $^{116-128}\text{Sn}$,

124–134Te, 130–138Xe, 136–144Ba, 142–148Ce, 146–152Nd and 150–158Sm have been calculated and are plotted as a function of neutron number N in figure 1. A remarkable outcome of this plot is that for nuclei lying between $52 \leq Z \leq 56$ with $N=82$, a sharp dip occurs in each of these isotones. These sharp minima in semi-magic nuclei refer to weak strength of their $\delta V_{pn}(Z, N)$ interaction and arise mainly due to breakdown of the spin-isospin symmetry as discussed below.

Recently, Cakirli et al. [10] have proposed an intuitive method to understand the variation of δV_{pn} interaction from the orbital overlap of protons and neutrons. Following their procedure, one has analyzed the strength of p - n interaction by using the ordering of single particle levels. Single particle levels of protons and neutrons for $^{138}_{56}\text{Ba}$ have also been shown specifically in table 1 by using the Wood-Saxon potential. In this table, the highest filled shells and the lowest empty shells are also listed, together with the energy gap between filled and unfilled shells. The spacing between shells are measured from the shell closest to the Fermi surface. In this table, the results for $^{208}_{82}\text{Pb}$ nucleus are also shown for comparison. It is quite evident from table 1 that in case of $^{208}_{82}\text{Pb}$, both types of nucleons (proton and neutron) occupy low j orbitals. The overlapping between these orbitals is significantly large and hence gives a strong δV_{pn} value as suggested in Ref. [10]. Whereas in case of $^{138}_{56}\text{Ba}$, the protons in high j orbitals overlap poorly with the neutrons in low j orbits and therefore, results in smaller p - n interaction.

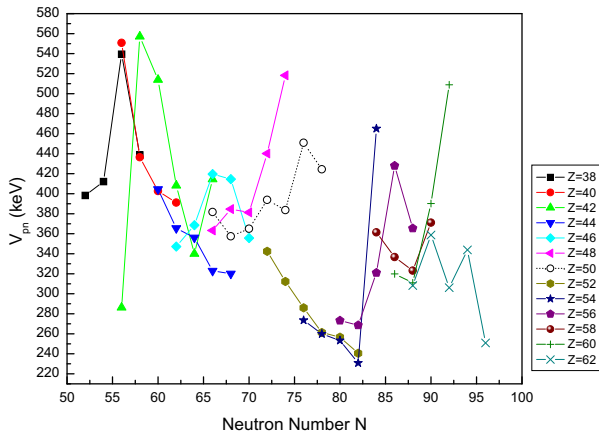


Figure 1. The proton-neutron interaction $\delta V_{pn}(Z, N)$ vs. the neutron number N .

Table 1. The ordering of single particle levels. Here, the energies are measured in MeV

Nucleus	Filled shells	Gap	Empty shells
$^{138}_{56}\text{Ba}$	$g_{7/2} d_{5/2}$	0.8(p)	$g_{7/2} d_{3/2} s_{1/2}$
$^{138}_{56}\text{Ba}$	$s_{1/2} d_{3/2} h_{11/2}$	4.7(n)	$f_{7/2} p_{3/2} h_{9/2} p_{1/2} f_{5/2}$
$^{208}_{82}\text{Pb}$	$g_{7/2} d_{5/2} h_{11/2} d_{3/2} s_{1/2}$	3.1(p)	$h_{9/2} f_{7/2} i_{13/2} f_{5/2}$
$^{208}_{82}\text{Pb}$	$i_{13/2} f_{5/2} p_{1/2}$	3.4(n)	$g_{9/2} i_{11/2} j_{15/2} d_{5/2} g_{7/2}$

Further, it is also noticed from this Table that in case of $^{138}_{56}\text{Ba}$, the neutron gap between filled and unfilled shells is sufficiently large (~ 4.7 MeV) as compare to that of proton gap (~ 0.8 MeV). Whereas in case of $^{208}_{82}\text{Pb}$, nearly same shell gaps emerge for both the nucleons. For the doubly closed shells

with $T_0 (= \frac{N-Z}{2}) \neq 0$ as in the case of $^{208}_{82}\text{Pb}$, the higher-lying proton and neutron hole configurations give rise to an isospin doublet with $T = T_0 \pm \frac{1}{2}$. The separation energy is given, to a first approximation, by [11]

$$\begin{aligned} \delta E &= E(T = T_0 + \frac{1}{2}) - E(T = T_0 - \frac{1}{2}) \\ &= \frac{T_0 + \frac{1}{2}}{A} < l j | V_1(r) | l j > \end{aligned} \quad (2)$$

in terms of the radial matrix element of the isovector potential $V_1(r)$. An additional effect may arise from the isovector part of the spin-orbit coupling in the nuclear potential. The empirical evidence of the separation between isospin doublets for single particle configuration is found to imply a strength of the isovector potential. It is quite large in case of $^{208}_{82}\text{Pb}$. On the other hand in case of $^{138}_{56}\text{Ba}$, the state that is obtained by transforming one of the $2T_0$ excess neutrons into a proton has less pairing gap. Therefore, implies a weak strength of the isovector potential.

III. RESULTS AND DISCUSSION

Both these factors i.e., (i) a poor overlaps of proton and neutron orbitals and (ii) small gap between filled and unfilled shells of protons fully support the minimum strength of δV_{pn} in three isotones (^{52}Te , ^{54}Xe and ^{56}Ba) as shown in figure 1.

Recently, Van Isacker et al. [8] have established that the large value of δV_{pn} for $N=Z$ nuclei fulfills spin-isospin symmetry. One conclude from the above observations that a large overlap between the orbitals and nearly same shell gaps in both the nucleons ensure to restore the spin-isospin symmetry partially. This symmetry is badly broken if these orbitals overlap poorly and their shell gaps are quite different as remarked in the case of three isotones in figure 1. Thus the breakdown of spin-isospin symmetry leads to reduced mass yields of the fragments $^{134}_{52}\text{Te}$, $^{136}_{54}\text{Xe}$ and $^{138}_{56}\text{Ba}$. Accordingly, the production of their complementary fragments ($A \sim 112$) are also less.

It is worthwhile to mention here that the maxima in figure 1 refers to partial restoration of spin-isospin symmetry. The major advantage of this symmetry is that one can estimate the number of neutrons emitted in each channel as follows $^{256}_{100}\text{Fm} \rightarrow ^{A_1}_{Z_1}\text{X} + ^{A_2}_{Z_2}\text{Y} + p_0^1 n$, with $Z_1 + Z_2 = 100$. Here, X and Y refer to fission fragment and its complementary partner corresponding to maxima. From this analysis it is found that $8 \leq p \leq 10$, which is in good agreement with the observed neutron emission limit [1].

In order to understand the dip in the spectrum corresponding to $^{124}_{50}\text{Sn}$, the ratio of excitation energies of the first 4^+ and the first 2^+ excited states of the observed fission fragments has been plotted in figure 2. This ratio is an appropriate measure of collectivity in nuclei. It is evident that the collectivity ceases sharply for nuclei $^{134}_{52}\text{Te}$, $^{136}_{54}\text{Xe}$ and $^{138}_{56}\text{Ba}$. This implies that these isotones have been driven towards the spherical shape by neutron magicity. Similarly, the observed isotopes corresponding to $Z=50$ have nearly constant ratio and its value is less than 2. Also, a shallow minimum is

observed in figure 1 at $^{124}_{50}\text{Sn}$. These observations reveal that in the composite system, the partner having closed shell configuration cannot be easily deformed, only the complementary partner has to attain larger deformation for moving toward the scission configuration. Hence, in the fission fragment mass distribution, the yield corresponding to these mass channels is reduced significantly.

In order to explain the complete structure in mass distribution, calculations has been carried out by using the ATCSM in which isospin effects are included. Since the observed fission occurs below the Coulomb barrier, therefore, the average number of neutrons emitted per fission is taken to be nearly 2. So, one has considered the fission of $^{254}_{100}\text{Fm}$ instead of $^{256}_{100}\text{Fm}$ [12].

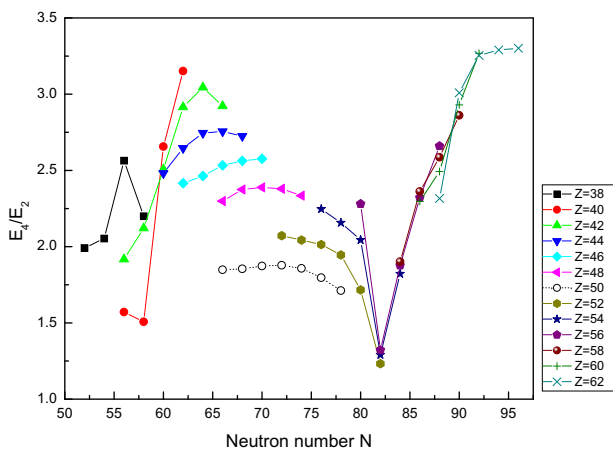


Figure 2. The ratio $\frac{E_4}{E_2}$ vs. the neutron number N .

Using the coordinates of relative separation R , the deformations β_i ($i=1,2$), the neck parameter ϵ , the mass asymmetry $\eta = \frac{A_1 - A_2}{A_1 + A_2}$, and the charge asymmetry $\eta_Z = \frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2}$, the collective Hamiltonian of the fragmentation theory [13] is written as

$$H = T(R, \beta_i, \eta, \eta_Z; \dot{R}, \dot{\beta}_i, \dot{\eta}, \dot{\eta}_Z) + V(R, \beta_i, \eta, \eta_Z), \quad (3)$$

where the collective potential V is calculated by using the Strutinsky method from the ATCSM [14] and the appropriate liquid drop model (LDM) [15]. It is given by

$$V(\eta) = V_{LDM} + \delta u + \delta p, \quad (4)$$

where δu and δp are the shell and the pairing contributions, respectively. For $R < R_1 + R_2$, the adiabatic potentials are obtained by carrying out three dimensional minimization in shape parameters β_i and ϵ and, for $R=R_1 + R_2$, the potential can be expressed simply as

$$V(\eta) |_{R_1+R_2} = -B_1(A_1, Z_1) - B_2(A_2, Z_2) + E_C. \quad (5)$$

The three dimensional (β_i and ϵ) calculations of the ATCSM potential (equation (3)) for every set of R , η and η_Z involve lot of computational volume. This severe problem has been overcome with suitable simplifications as discussed below.

Since, the fission fragment mass and charge distributions are decided during saddle to scission configuration and are

related to scission configuration (i.e., $R_1 + R_2$), therefore, the charges Z_1 and Z_2 of the fission fragments are fixed by minimizing the sum of the experimental binding energies, B_i ($i = 1, 2$) (taken in terms of mass excess from Ref. [5]) and the Coulomb energy $E_C = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R_1 + R_2}$ as discussed in equation (5). In these calculations, mass asymmetry η has been varied in step of two-nucleon transfer (i.e., $\Delta\eta = \frac{2}{A}$).

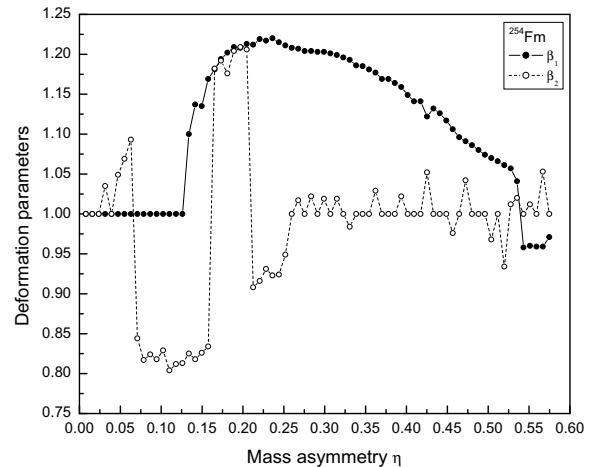


Figure 3. The asymptotic deformation parameters as a function of η . The deformation parameters are taken from [16].

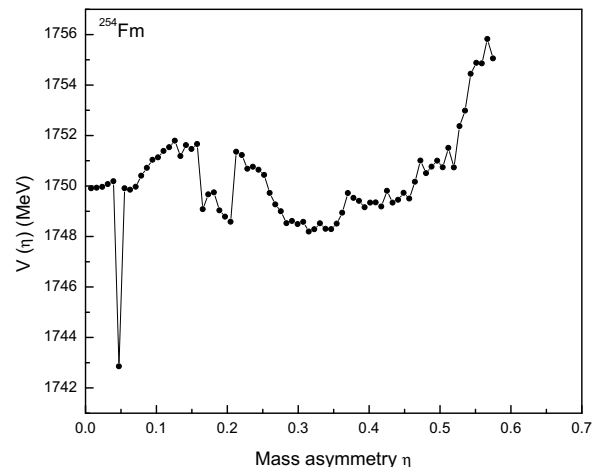


Figure 4. The ATCSM potential, $V(\eta)$ vs. η .

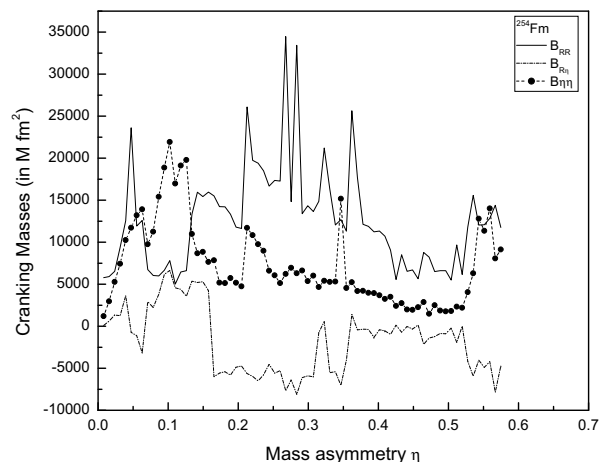


Figure 5. The cranking masses vs. η .

Thus knowing the fission fragments at the scission configuration, one has taken their deformation parameters β_i ($i=1,2$) from Seeger [16] and are shown in figure 3 vs. the mass asymmetry. Finally, ϵ is fixed by minimizing potential energy in equation (4) at $R_1 + R_2=12.6fm$. This minimized potential $V(\eta)$ vs. the mass asymmetry is shown in figure 4.

The mass parameters B_{ij} (i and $j=\eta$ and R) for the kinetic energy term are consistently calculated by using the ATCSM states in the cranking formula based on the BCS formalism (see Refs. [17] and [18]) and are shown in figure 5. Here, following the work of Greiner and Collaborators [19, 20], it is shown in this plot (figure 5) that the cranking coupling masses $B_{R\eta}$ (dash-dotted curve) are very small such that $B_{R\eta} \ll \sqrt{B_{RR}B_{\eta\eta}}$ hold good. Also, this inequality is confirmed explicitly from the plots of masses B_{RR} , $B_{\eta\eta}$ and $B_{R\eta}$ (see Ref. [21]). Furthermore, an experimental support for this assumption is also given in Ref. [22]. Also, it has been shown by Gupta and co-workers [23, 24] that the coupling effects of relative motion (R) to mass asymmetry (η) coordinates in the potential are very small for fission charge distributions and α -particle transfer resonances. In view of these results, R and η degrees of freedom have been treated in a decoupled mode [25].

Finally, for the dynamical mass fragmentation process, we quantize the motion in the mass asymmetry coordinate η . Considering that the η motion is fast compared to the R motion, R can be taken as a time-independent parameter and the stationary Schrodinger equation in η can be written as using the Pauli-Padolsky prescription [17],

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\sqrt{B_{\eta\eta}}} \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\frac{1}{\sqrt{B_{\eta\eta}}} \frac{\partial}{\partial \eta} \right) + V(\eta) \right] \psi^\nu(\eta) = E_{\eta^\nu} \psi^\nu(\eta). \quad (6)$$

We have chosen the value of constant R at a point just near the scission configuration. Here, the quantum number $\nu=0,1,2,\dots$ counts the vibrational states ψ^ν in the potential.

Knowing the potential and the cranking masses, respectively, from figure 4 and figure 5 (dotted line with points) equation (6) is numerically solved. Then, $|\psi(\eta)|^2$ gives the probability of finding the mass fragmentation η at $R_1 + R_2 (=12.6fm)$ and with fixed η_z on the decay path, which on normalization gives the mass distribution yield

$$Y = |\psi(\eta)|^2 \sqrt{B_{\eta\eta}} \frac{4}{A}. \quad (7)$$

Here, the normalization is numerically checked. This yield is directly comparable with experiments. If only the ground state contributes then $\nu=0$. However, if the system is excited or we allow the effects of interaction with other degrees of freedom, the higher values of ν would contribute. The possible consequences of such excitations are also included through the simple Boltzmann-like occupation of excited state

$$|\psi(\eta)|^2 = \frac{\sum_\nu |\psi^\nu|^2 \exp\left(-\frac{E_\nu}{\Theta}\right)}{\sum_\nu \exp\left(-\frac{E_\nu}{\Theta}\right)} \quad (8)$$

It should be noted that Θ is the nuclear temperature (in MeV) and is related to the excitation energy E^* by the following statistical expression [26]

$$\Theta = \sqrt{\frac{10E^*}{A}}. \quad (9)$$

Here, the level density parameter is taken as $\frac{A}{10}$. However, it should be noted that the level density parameters containing phenomenological parameterizations based on the modified Fermi gas, superfluid models and realistic microscopic calculations of single-particle level scheme with energy, spin, parity and shell correction dependencies may further improve the results [27–29]

The normalized yield as a function of mass number A on a semilogarithmic scale is shown in figure 6 by solid curve with points. In this plot dotted curve refers to the yield by using the ATCSM potential (figure 4) with average mass parameter ($B_{\eta\eta} = 0.7 \times 10^4 Mfm^2$). It is obvious from this plot that the solid curve with points reproduces the dips at fission fragments $^{112}Ru + ^{142}Ba$ and $^{126}Sn + ^{128}Sn$ and are in close resemblance with the observed data [1].

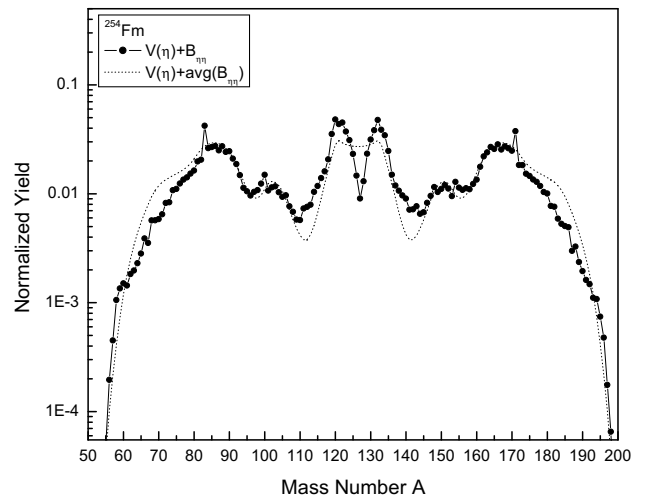


Figure 6. The normalized yield as a function of A for the fissioning nucleus ^{254}Fm by using the ATCSM potential and cranking masses (solid line with points). The dotted line refers to yield with the ATCSM potential and average mass.

It is worthwhile to mention here that in the present work, one has taken two neutron evaporation on the average. Experimentally it has been observed that on the average ~ 8 neutrons are evaporated in each decay mode. In this curve, the probability of formation of doubly magic fission fragment ^{132}Sn is quite large, which arises due to restoration of the isospin symmetry. Besides this, some more peaks at remaining shell closure are also seen. This apparently calls for further experiments with refined measurements in the region of mass asymmetry $\eta > 0.4$. If instead of the cranking masses, we use the average mass parameter (dotted curve), the dip corresponding to fission fragment combination $^{126}Sn + ^{128}Sn$ disappears. Thus the shell effects both in potential and mass parameter play a dominant role in explaining the dips and other structure in the observed data.

IV. CONCLUSION

Through empirical as well as theoretical estimates, one thus conclude that the spin-isospin symmetry plays a dominant role in explaining the fine structure effects in fission fragment mass distribution. A weak strength of p - n interaction has direct relevance with the breakdown of spin-isospin symmetry. Restoration of the spin-isospin symmetry at the maxima in p - n interaction gives an estimation of number of neutrons evaporated in each decay mode. Here, ATCSM calculations not only reproduce the observed trend nicely but also suggest some new fragments to pop up from the fissioning nucleus ^{254}Fm . These symmetry aspects of fission fragment mass distribution studies are of great significance and therefore, more systematic and refined measurements of the data for larger mass asymmetry ($\eta > 0.4$) will be of much importance.

ACKNOWLEDGEMENTS

Financial support from the Department of science and Technology, Government of India, is highly acknowledged.

BIBLIOGRAPHY

- [1] L. S. Danu et al., Phys. Rev. C **81**, 014311 (2010).
- [2] R. Gupta, S. S. Malik and A.K.Jain, in Proceedings of VI International Symposium on Nuclear and Related Techniques XII Workshop on Nuclear Physics WONP-NURT, La Habana, Cuba, 09-12 Feb., 2009, pp.1CD-ROM (InSTEC-CEADEN, Cuba, 2009).
- [3] R. Gupta and S. S. Malik, Eur. Phys. J. A **45**, 239 (2010).
- [4] R. Gupta and S. S. Malik, J. Phys.: Conf. Ser. **312**, 092028 (2011).
- [5] G. Audi, A. H. Wapstra and G. Thibault, Nucl. Phys. A **729**, 337 (2003).
- [6] J. -Y. Zhang, R. F. Casten and D. S. Brenner, Phys. Lett. B **227**, 1 (1989).
- [7] D. S. Brenner, C. Wesselborg, R. F. Casten, D. D. Warner, J.-Y. Zhang, Phys. Lett. B **243**, 1 (1990).
- [8] P. Van Isacker, D. D. Warner and D. S. Brenner, Phys. Rev. Lett. **74**, 4607 (1995).
- [9] R. B. Cakirli, EPJ Web Conf. **66**, 01019 (2014).
- [10] R. B. Cakirli, D. S. Brenner, R. F. Casten and E. A. Millman, Phys. Rev. Lett. **94**, 092501 (2005).
- [11] A. Bohr and B. R. Mottelson, Nuclear Structure, Volume 1 (World Scientific Publishing Co., Singapore, 1998).
- [12] P. Singh, H. Kaur and S. S. Malik, Eur. Phys. J. A **50**, 68 (2014).
- [13] R. Aroumougame, N. Malhotra, S. S. Malik and R. K. Gupta, Phys. Rev. C **35**, 994 (1987).
- [14] J. Maruhn and W. Greiner, Z. Phys. A **251**, 431 (1972).
- [15] W. D. Myers and W.J. Swiatecki, Ark. Fys. **36**, 343 (1967).
- [16] P. A. Seeger and W. M. Howard, Nucl. Phys. A **238**, 491 (1974).
- [17] J. A. Maruhn, W. Greiner and W. Scheid, in Heavy Ion Collisions, Vol. 2 Chap. 6, edited by R. Bock (North Holland, Amsterdam, 1980).
- [18] D. R. Inglis, Phys. Rev. **96**, 1059 (1954); S.T. Balyaev, Kgl. Dansk. Vidensk. Sels. Mat.-Fys. Medd. **31**, No.11 (1959).
- [19] J. A. Maruhn and W. Greiner, Phys. Rev. Lett. **32**, 548 (1974).
- [20] R. K. Gupta, W. Scheid and W. Greiner, Phys. Rev. Lett. **35**, 353 (1975).
- [21] O. Zohni, J. A. Maruhn, W. Scheid and W. Greiner, Z. Phys. A **275**, 235 (1975).
- [22] F. Caitucoli et al., Radiat. Eff. **92**, 333 (1986).
- [23] D. R. Saroha and R.K. Gupta, J. Phys. G: Nucl. Phys. **12**, 1265 (1986).
- [24] S. S. Malik, N. Malhotra, D. R. Saroha and R. K. Gupta, International Centre for Theoretical Physics, Trieste, Italy, Report No. IC/86/128 (1986)
- [25] S. S. Malik and R. K. Gupta, Phys. Rev. C **39**, 1992 (1989).
- [26] K. J. Le Couteur and D.W. Lang, Nucl. Phys. **13**, 32 (1959).
- [27] R. Capote et al., Nucl. Data Sheets **110**, 3107 (2009).
- [28] T. von Egidy and D. Bucurescu, Phys. Rev. C **72**, 044311 (2005).
- [29] R. A. Senkov and M. Horoi, Phys. Rev. C **82**, 024304 (2010).

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



EL JUEGO Y LOS JUGUETES EN EL PROCESO DE ENSEÑANZA-APRENDIZAJE: LA HÉLICE MÁGICA DESDE LA PERSPECTIVA DE LA FÍSICA

PLAYING AND TOYS IN THE TEACHING-LEARNING PROCESS: THE MAGICAL HELIX FROM THE PHYSICS PERSPECTIVE

R. SERRA^{a†}, A. MORENO^a, J.J. LLOVERA^a, M. MURAMATSU^b, D. MAGALHÃES^c

a) Departamento de Física, Universidad Tecnológica de La Habana José Antonio Echeverría, Cuba; serra@electronica.cujae.edu.cu

b) Instituto de Física, Universidad de Sao Paulo, Brasil

c) Instituto Científico y Tecnológico, Universidad de Brasil, Brasil.

† autor para la correspondencia

Recibido 13/3/2020; Aceptado 30/5/2020

PACS: Learning theory and science teaching (enseñanza de la teoría y la ciencia), 01.40-d; Education (educación), 01.40.Ha; Physics of toys (física de los juguetes), 01.50.Wg.

La sociedad ha evolucionado y esto también incluye a la educación. Las metodologías tradicionales conductistas ya no generan al nivel requerido el necesario deseo de aprender sin aburrimiento y desmotivación, por lo que son necesarias nuevas y mejores estrategias para llevar a cabo el proceso de enseñanza-aprendizaje. Hoy es necesario convertir este proceso en un modelo de encuentro con el saber un poco más dinámico y participativo y una de las formas de lograrlo es a través del empleo de juegos educativos en el aula. La mayoría de las experiencias que se reportan en este sentido carecen de una fundamentación pedagógica adecuada y se refieren en lo fundamental para los primeros niveles de enseñanza, destacándose que los juguetes y los juegos por su versatilidad pueden ser utilizados en este tipo de propuestas, siempre que se tenga en cuenta que es lo que se quiere transmitir [1].

Existen reportadas muy pocas experiencias de utilizar los juegos para impartir un tema específico de las ciencias y de la física en particular [2-4].

Las ideas básicas preliminares de nuestra propuesta fueron presentadas en [5]. Como aporte de este trabajo se analiza con mayor profundidad la importancia y la fundamentación pedagógica y psicológica del juego para la enseñanza-aprendizaje de la física, utilizando como ejemplo la explicación física del funcionamiento de la hélice mágica, contenido importante de la asignatura Física I (Mecánica) y de otros temas de la física en carreras de ingeniería, como es el caso de justificar el movimiento de la hélice por combinación de movimientos armónicos, así como se definen las principales ventajas del uso de juguetes como medios de enseñanza de la física.

La fundamentación pedagógica y psicológica del juego como herramienta didáctica se basa en el enfoque epistemológico histórico cultural de L. S. Vygotsky y seguidores [6]. Para ello se ha tenido en cuenta la influencia del juego en el incremento de la motivación de los estudiantes por el conocimiento y el

aprendizaje, en lo que Vygotsky reconoce el carácter integral del psiquismo humano y analiza la unidad entre las esferas cognoscitiva y afectiva. Si se parte de que la motivación es un impulso en la actuación del sujeto y que motivar quiere decir crear interés, estimular el deseo, llamar la atención, despertar la curiosidad, contagiar con entusiasmo y suscitar el gusto como impulso activador, se concluye que aprender física con juguetes es propiciador de la unidad entre lo afectivo y lo cognitivo. En [7-9] se muestran diferentes propuestas motivadoras desarrolladas por los autores para la enseñanza de la física en ingeniería.

Otros elementos del enfoque histórico cultural que han servido de base en esta propuesta son:

- La importancia de la actividad conjunta, a la cooperación entre los alumnos y entre estos y el profesor. En estos casos se fomenta: el desarrollo de cualidades de su personalidad, formas de relación en las situaciones grupales, intereses relacionados con el estudio y un clima emocional favorable muy eficaz para el aprendizaje.
- El proceso de aprendizaje es el centro a partir del cual se proyecta el proceso pedagógico.
- En la construcción más favorable del aprendizaje se involucra al estudiante, utilizando los resortes de su personalidad en relación con los que aporta el grupo de clase.
- El profesor debe desplegar el proceso de redescubrimiento y reconstrucción del conocimiento por parte del estudiante, apoyándose en sus funciones informativa, afectiva y reguladora que permita un ambiente de cooperación, de colaboración, de actividad conjunta dentro del aula.

Con este trabajo se pretende conocer y comprender la función y el valor del juego para el aprendizaje y su utilización como herramienta para promover un aprendizaje más interactivo, motivador e interesante. Este modelo permite introducir y discutir conceptos básicos de física usando como recursos didácticos juguetes. Es importante precisar que aunque las actividades se desarrollan en un ambiente lúdico, no debe faltar el rigor en las correspondientes explicaciones de la física subyacente a los fenómenos estudiados.

Entre las principales ventajas del uso de juguetes como medios de enseñanza de la física se puede señalar las siguientes:

1. Permiten captar la atención de los estudiantes.
2. Permiten cuestionarse el funcionamiento de las cosas.
3. Estimulan el razonamiento, aplicándolo a objetos y situaciones no convencionales, con lo cual se puede demostrar que los conocimientos de física pueden aplicarse a todo lo que nos rodea.
4. Permiten introducir nuevos conceptos en clase.
5. Son más baratos y accesible que el equipamiento tradicional de laboratorio.
6. Aumentan la motivación del estudiante al reconocer un juguete u objeto cotidiano donde pueden aplicar sus conocimientos de física.
7. Posibilitan un aprendizaje más significativo ya que los estudiantes relacionan lo que aprenden con elementos de su vida cotidiana.

La hélice mágica consiste en dos varillas, una lisa y la otra más gruesa con ranuras que constituye el cuerpo de la hélice mágica (Fig. 1).

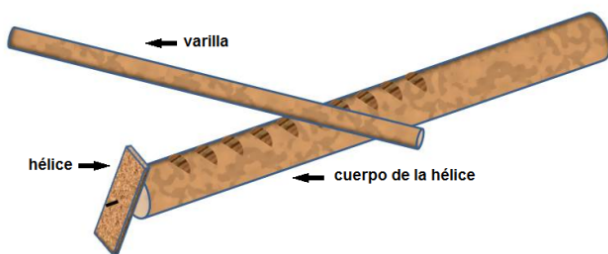


Figura 1. La hélice mágica y sus partes.

Cuando el profesor frota la varilla en la parte ondulada del cuerpo de la hélice, se produce un movimiento oscilatorio que hace girar la hélice. Si se mantiene el movimiento de vaivén se logra que la hélice gire continuamente (Fig. 2).

Si no se conoce la "magia" no girará la hélice. Esta magia consiste en presionar el cuerpo de la hélice con uno de los dedos de la mano que mueve la varilla. En la Fig. 3 se muestran el diagrama de fuerzas el cuerpo de la hélice, donde F_1 es ejercida por la varilla y F_2 por el dedo.

Al friccionar la varilla sobre el cuerpo de la hélice (F_1), se produce un movimiento oscilatorio influenciado por la periodicidad de las ranuras. Si con la mano que mueve la varilla se ejerce una fuerza (F_2) en uno de los bordes del cuerpo, se introduce una componente oscilante de fase diferente en otra dirección, lo que origina un movimiento rotatorio del eje de la hélice. En dependencia del sentido en que se aplique el dedo, la hélice girará en un sentido u otro.



Figura 2. El profesor hace girar la hélice.

Cada una de estas fuerzas provocan movimientos oscilatorios que en una primera aproximación se pueden asumir como armónicos simples. En la dirección x estará una de las componentes de F_2 y en la dirección y estará una combinación de F_1 y la componente de F_2 en esa dirección.

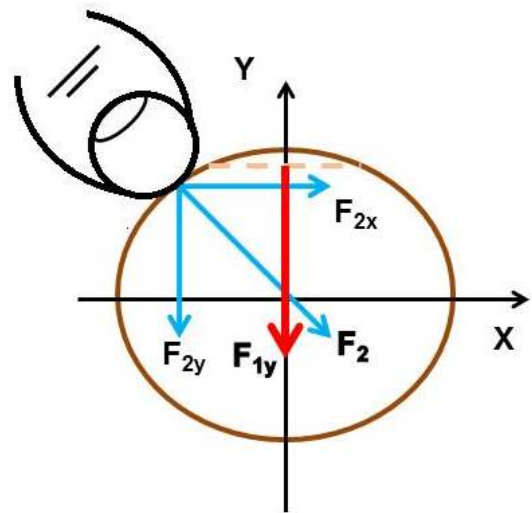


Figura 3. Fuerzas sobre el cuerpo de la hélice.

El movimiento resultante de la varilla se describe por:

$$\begin{cases} x(t) = x_{20} \sin(\omega t - \varphi), \\ y(t) = y_{10} \sin(\omega t) + y_{20} \sin(\omega t - \varphi) \\ \Rightarrow y(t) = y_0 \sin(\omega t - \varphi_y), \\ \Delta\varphi = \varphi_y - \varphi. \end{cases} \quad (1)$$

Se puede encontrar y_0 y φ_y :

$$\begin{cases} \cos \varphi_y = \frac{y_{10} - y_{20} \cos \varphi}{y_0}, \\ \sin \varphi_y = -\frac{y_{20} \sin \varphi}{y_0}, \\ y_0 = \sqrt{y_{10}^2 - 2y_{10}y_{20} \cos \varphi + y_{20}^2}. \end{cases} \quad (2)$$

Bajo determinadas condiciones de la dirección en la cual se aplica la F_2 y la frecuencia con que se realiza el movimiento de la mano se puede lograr que:

$$\left. \begin{aligned} x(t) &= y_0 \sin \omega t \\ y(t) &= y_0 \sin \omega t \end{aligned} \right\} x(t)^2 + y(t)^2 = y_0^2 \quad (3)$$

Este movimiento circular del eje y la fricción del mismo sobre el orificio de la hélice provocan la rotación de la misma.

Se ha mostrado la fundamentación físico-matemática del movimiento de la hélice mágica, lo que permite introducir y discutir conceptos básicos de física usando como recursos didácticos juguetes. Además se presenta la fundamentación e importancia pedagógica y psicológica del juego para la enseñanza de la física y su uso como herramienta para promover un modelo de aprendizaje más interactivo, motivador e interesante.

BIBLIOGRAFÍA

[1] N. Sánchez, Los juegos y juguetes como herramienta educativa, [ref. de 12 de julio 2018]. (web:

- <http://www.educar.org/articulos/eljuegocomo.asp>)
- [2] J.L. Martínez. Comprender y aprender Física a través de los juguetes. XXV Concurso de Experiencias Educativas, Madrid, España. (2004).
- [3] M. Melo, R. Hernández, *Innovación Educativa* **14**, 66 2014.
- [4] C. Torres. El Juego como Estrategia de Aprendizaje en el Aula. p.46. (2014) [ref. 12/julio/2018]. (web: http://www.saber.ula.ve/db/ssaber/Edocs/pubelectronicas/agoratrujillo/Agora10/carmen_torres.pdf)
- [5] R. Serra, A. Moreno, J. Llovera, M. Muramatsu, D. Magalhaes, *Aprender Física Jugando*, 19 Convención Científica de Ingeniería y Arquitectura, Cuba, 2018.
- [6] R. Serra. "La utilización del holograma como medio de enseñanza y de educación social en Cuba a través del vínculo Investigación–Docencia– Extensión Universitaria". Tesis doctoral, CUJAE, Cuba, 2004.
- [7] R. Serra, J. Lemus y otros, *Rev. Bras. Ensino Fis.* **32**, 3502 (2010)
- [8] R. Serra, A. Moreno, M. Muramatsu, D. Magalhaes, *Rev. Bras. Ensino Fis.* **36**, 1701 (2014)
- [9] R. Serra, J. Lemus, *Rev. Cubana Fis.* **34**, 32 (2017)

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



ALGUNAS REFLEXIONES SOBRE EL TRATAMIENTO DE INCERTIDUMBRES EN LABORATORIOS DOCENTES DE FÍSICA

SOME THOUGHTS ON THE TREATMENT OF UNCERTAINTIES IN EDUCATIONAL LABORATORIES OF PHYSICS

J. B. CRUZ-ARENCEBIA[†], J.J. LLOVERA, J. M. LÓPEZ-GUERRA

Departamento de Física, ICB, Universidad Tecnológica de La Habana José Antonio Echeverría, Cuba; juan@automatica.cujae.edu.cu

[†] autor para la correspondencia

Recibido 13/3/2020; Aceptado 7/6/2020

PACS: Physics education (enseñanza de la física), 01.40.-d; laboratory experiments (experimentos de laboratorio), 01.50.Pa; laboratory course design, organization, and evaluation (diseño, organización y evaluación de cursos de laboratorio), 01.50.Qb.

La Oficina Nacional de Normalización de Cuba elaboró en el 2015, la norma NC 1066:2015 [1], donde se propone cómo realizar el tratamiento y el reporte de las incertidumbres en las mediciones a tenor con la recomendación realizada sobre el tema por un comité de expertos de la ISO en el año 1993 y con los documentos “International Vocabulary of Basic and General Terms in Metrology” (VIM) y el “Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement” (GUM), que respectivamente regulan el vocabulario a utilizar y el enfoque estadístico para el tratamiento de las incertidumbres. En este trabajo utilizaremos la terminología de incertidumbres típicas evaluadas tipo A o tipo B, combinada y expandida tal y como se definen en [1].

Se hace necesario incluir el nuevo enfoque del tema de las incertidumbres en las mediciones en el currículo de los estudiantes, tanto en la enseñanza media como en la superior.

Nuestra enseñanza universitaria trabajó con profundidad durante varios años lo concerniente a la Teoría de Errores; publicaciones de la editorial Pueblo y Educación dan fe de estos esfuerzos, sirva de ejemplo [2]. En los últimos años se ha ido introduciendo el tema incertidumbres en nuestras universidades, constituyen ejemplos los esfuerzos de profesores de Física, tanto en la UH [3], como en la Cujae donde, entre otras acciones afines al tema, se ha elaborado un breviario en versión digital, en el cual se puede leer: “...a fin de que al procesar los datos en tus experimentos lo hagas en correspondencia con las normas que hoy están vigentes para esta actividad internacionalmente y en nuestro país” [4].

Apropiarse del lenguaje del VIM, así como las propuestas que se hacen en la GUM es una tarea compleja y requiere que se desarrollen actividades reguladas desde la didáctica. La necesidad del enfoque didáctico del tema en Cuba, a nuestro juicio, se sustenta entre otras razones en las dos siguientes: Generalmente los estudiantes se enfrentan por primera vez a una práctica de laboratorio al ingresar en la universidad y además los laboratorios de Física se imparten desde el primer año de la carrera, en tanto en la mayoría de las especialidades los fundamentos de Estadística se imparten en el segundo año.

El tema de los laboratorios de Física y su relación con el procesamiento de los datos experimentales donde se incluyan las recomendaciones de la ISO es un tema universal y de total actualidad.

Una serie de publicaciones hacen referencia a la necesidad de sustituir la forma tradicional de impartir los laboratorios por modos más acordes con el uso de las nuevas tecnologías, pero donde el tratamiento de las incertidumbres con vistas a lograr un profesional con una mejor percepción de la ciencia, juegue un papel relevante [5–7].

Otro aspecto interesante de las incertidumbres es su interdisciplinariedad, pues las regulaciones de la ISO se extienden a las más diversas ramas de la actividad social [8].

Consideramos que desde la didáctica, la concepción de la enseñanza en los laboratorios, además de caracterizarse por una correcta selección de los experimentos a realizar y una adecuada organización de las clases, debe garantizar que la elaboración de los documentos destinados a orientar a los estudiantes para su autopreparación estén regidos por los siguientes principios:

- Gradar adecuadamente los objetivos dirigidos al procesamiento de la data experimental.
- Concebir experimentos que manifiesten una alta repetitividad de los resultados, pero con suficiente aleatoriedad de modo que se justifique la realización de varias decenas de observaciones.
- Dejar explícito en las orientaciones los objetivos específicos que se persiguen con el procesamiento de datos.
- Concebir en los experimentos seleccionados el desarrollo de habilidades de medición tanto en el uso de instrumentos analógicos como de instrumentos digitales.

La gradación de la enseñanza del procesamiento de datos pudiera hacerse en tres niveles o etapas:

1ra. Concebir experimentos de aceptable aleatoriedad de los resultados donde en poco tiempo puedan realizarse decenas de observaciones, no menos de 30, de modo que se propicie el análisis de una posible fuente de distribución de probabilidades en los resultados. En esta etapa solamente incluir el cálculo de la incertidumbre típica evaluada tipo A. En la organización del laboratorio esto pudiera efectuarse en las dos primeras prácticas.

Desde esta etapa se debe fomentar en los estudiantes el análisis, al menos de forma cualitativa, de posibles fuentes de incertidumbres.

2da. En esta etapa concebir prácticas que posibiliten el cálculo de las incertidumbres típicas evaluadas tipos A y B así como la combinada y la expandida. En el tipo B al menos, incluir la asociada con la resolución del instrumento. Se puede introducir el tema de la propagación de las incertidumbres en casos sencillos y lo relacionado con la compatibilidad de sistemas de medición.

3ra. Introducir métodos gráficos para procesar datos experimentales. Incluir el método de ajuste lineal; especialmente el de los mínimos cuadrados por su utilidad en varios experimentos docentes. Ampliar la propagación de las incertidumbres a casos más complejos.

Como ejemplo se expone una práctica de laboratorio cuyo objetivo fundamental es la comprobación experimental de “La ley de conservación de la cantidad de movimiento lineal en un choque frontal”. El experimento consiste en estudiar el choque frontal de dos deslizadores moviéndose horizontalmente sobre una pista de aire. El deslizador 1 recibe un impulso inicial “siempre en condiciones semejantes” en tanto el deslizador 2 está inicialmente en reposo. Se miden directamente la velocidad inicial del deslizador 1, v_{1ik} y las correspondientes velocidades finales de ambos deslizadores v_{1fk} y v_{2fk} en cada una de las 30 veces que se repite el experimento ($k = 30$).

Las masas m_1 y m_2 se miden una sola vez. Cada cantidad se reporta con cuatro cifras significativas.

Cada uno de los 30 valores de las cantidades de movimiento inicial p_{ik} y final p_{fk} , se calculan como:

$$p_{ik} = m_1 v_{1ik}, \quad p_{fk} = m_2 v_{2fk} \pm m_1 v_{1fk}, \quad (1)$$

Evidentemente el signo (-) responde al caso en que el deslizador 1 experimente retroceso después del choque. La data de una corrida experimental se muestra en la Tabla 1.

Los valores p_i y p_f se reportan como:

$$p_i = \bar{p}_i + U_{pi}, \quad p_f = \bar{p}_f + U_{pf}. \quad (2)$$

Donde \bar{p}_i , U_{pi} y \bar{p}_f , U_{pf} se corresponden con los valores medios y las incertidumbres expandidas para la cantidad de movimiento inicial y final respectivamente.

Idealmente se espera que $p_i = p_f$, pero al considerar las incertidumbres, solo se puede aspirar a la compatibilidad de las mediciones, compatibilidad que se satisface si se cumple que:

$$|\bar{p}_i - \bar{p}_f| \leq U. \quad (3)$$

Donde U es la incertidumbre propagada a la diferencia $p_i - p_f$ y se calcula como:

$$U = \sqrt{U_{pi}^2 + U_{pf}^2}. \quad (4)$$

Tabla 1. Resultados experimentales

$m_1 = 132.9 \text{ g}$		$m_2 = 243.7 \text{ g}$	
$p_{ik} \text{ (g}\cdot\text{cm/s)}$	$p_{fk} \text{ (g}\cdot\text{cm/s)}$	$p_{ik} \text{ (g}\cdot\text{cm/s)}$	$p_{fk} \text{ (g}\cdot\text{cm/s)}$
9601	9670	9743	9696
9829	9592	9545	9477
9675	9661	9746	9666
9659	9593	9820	9910
9451	9577	9586	9590
9694	9580	9611	9545
9520	9479	9310	9400
9684	9526	9688	9483
9346	9378	9918	9746
9623	9538	9760	9700
9948	9887	9585	9517
9793	9775	9488	9282
9855	9746	9698	9579
9552	9178	9412	9844
9683	9476	9687	9332

Realizando los respectivos histogramas para los valores de p_{ik} y p_{fk} con intervalos de 100 unidades y tomando los valores correspondientes a la media de cada intervalo se obtienen los gráficos de la Fig. 1.

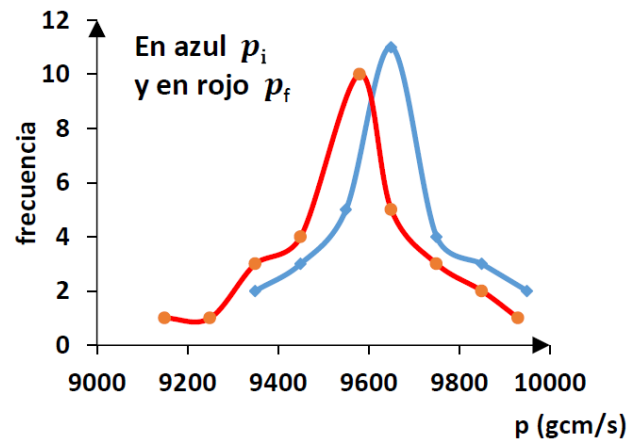


Figura 1. Funciones de distribución que se obtienen con los respectivos valores medios por cada intervalo de p_{ik} y p_{fk} .

En el gráfico anterior pueden apreciarse dos resultados fundamentales, uno de estos consiste en que las observaciones se distribuyen en una forma semejante a la función de distribución normal y además que ambas funciones de distribución se solapan razonablemente.

Para la incertidumbre típica evaluada tipo A y la propagada a la diferencia $p_i - p_f$, con nivel de significación de 95% se obtiene:

$$\begin{aligned} \bar{p}_i &= 9650 \text{ g} \frac{\text{cm}}{\text{s}} \pm 57 \text{ g} \frac{\text{cm}}{\text{s}}, & \bar{p}_f &= 9581 \text{ g} \frac{\text{cm}}{\text{s}} \pm 63 \text{ g} \frac{\text{cm}}{\text{s}}, \\ |\bar{p}_i - \bar{p}_f| &= 69 \text{ g} \frac{\text{cm}}{\text{s}}, & U &= 85 \text{ g} \frac{\text{cm}}{\text{s}}. \end{aligned}$$

Estos resultados evidencian que las incertidumbres no superan el 1 % de los valores medios correspondientes. Para una práctica de laboratorio docente es un muy buen resultado.

Se cumple el criterio de compatibilidad entre de p_i y p_f . Se concluye que se verifica experimentalmente la "Ley de conservación de la cantidad de movimiento lineal" en este choque.

Los autores consideran que un proceder semejante se puede aplicar en prácticas similares, por ejemplo, para comprobar experimentalmente las reglas de Kirchhoff de la corriente eléctrica.

BIBLIOGRAFÍA

- [1] NC 1066: 2015 "Guía para la expresión de incertidumbre de medición", Oficina Nacional de Normalización, La Habana, 2015.
- [2] O. Cartaya, "Introducción al Laboratorio de Física. Fundamentos de la Teoría de Errores", (Editorial Pueblo y Educación, La Habana, 1986).
- [3] H. Borroto, M. Becquer y O. Calzadilla, *Lat. Am. J. Phys. Educ.* **11**, 3, (2017).
- [4] J.J. Llovera, J. Ortega Breto, A. Moreno Yeras y J.B. Cruz Arencibia "Introducción al Laboratorio De Física Fundamentos Del Cálculo De Incertidumbres" (<ftp://ftp.quimica.cujae.edu.cu/Clases/F%C3%ADsica%20General/F%C3%ADsica%20General%20I/TODO%20SOBRE%20EL%20LABORATORIO/>, 2018).
- [5] A. Buffler, S. Allie, F. Lubben y B. Campbell, "A new Research-Based Curriculum for Teaching Measurement In the First Year Physics Laboratory", *Proceedings of the International Physics Education Conference*, 5-8 July 2004, Durban, South Africa ISBN 1-86888-359
- [6] A. Buffler y F. Lubben, B. Ibrahim, *Int. J. Sci. Educ.* **31**, 1137, (2009).
- [7] E. M. Smith y N.G. Holmes "Seeing the real world: Comparing learning from verification labs and traditional or enhanced lecture demonstrations" *arXiv preprint arXiv:1712.03174* (2017).
- [8] A. M. van der Bles, S. van der Linden, A. L. J. Freeman, J. Mitchell, A. B. Galvao, L. Zaval, y D. J. Spiegelhalter, *R. Soc. Open Sci.* **6**, 181870, (2019) (royalsocietypublishing.org/journal/rsos).

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



EXPLORING THE REASONS BEHIND THE CIRCULAR SHAPE OF DRUMS

EXPLORANDO LAS RAZONES DETRÁS DE LA FORMA CIRCULAR DE LOS TAMBORES

P. NISHANTH^a, K.M. UDAYANANDAN^{b†}

a) School of Pure and Applied Physics, Kannur University, Payyanur Campus, Payyanur, Kerala - 670 327, India.

b) Former HoD, Department of Physics, Nehru Arts and Science College, Kanhangad, Kerala - 671 314, India; udayanandan@gmail.com.

† corresponding author

Recibido 12/4/2020; Aceptado 13/5/2020

Many of the drums played all over the world are circular in shape. There are many practical reasons for the instrument makers to choose a circular shape for the drums. Apart from practical side, there are some scientific bases for the circular shape of drums. This paper investigates the physics behind the circular shape of the drums.

La mayoría de los tambores utilizados alrededor del mundo tienen forma circular. Hay muchas razones prácticas para seleccionar esta forma. Además de las razones prácticas, hay razones científicas de la forma circular de los tambores. Este artículo investiga la física detrás de esta forma circular.

PACS: Vibrations of membranes and plates (vibraciones de membranas y platos), 43.40.Dx; Music and musical instruments (música e instrumentos musicales), 43.75.-z; Drums (tambores), 43.75.Hi.

I. INTRODUCTION

Musical instruments are an integral part of any visual or audio performance. Among these instruments, drums are used for producing either music or rhythm [1, 2]. Most of the drums are made with wood and animal skin. It is seen that almost all drum heads made with animal skin are circular in shape. The Fig. 1 shows an ensemble of chenda, a temple musical instrument played in Kerala (popularly known as God's own country), a small state in the southern part of India [3].



Figure 1. An ensemble of chenda played in Kerala, India.

The reason for the circular shape of drums is an interesting research problem which has to be addressed by the tools of Physics. With common reasoning ability one simple reason is

that the shaping of the wood and skin could be easily done with minimum labor for making a circular form. Another possible argument regarding the practical side of instrument making is that, to stretch membrane uniformly on drum head and to adjust uniform tension on the membrane, the circular shape is the best one. The question of identification of shape of drums from their eigenvalue spectrum was put forward by Kac [4]. Kac and others studied the problem mathematically by considering two drums with same set of eigenfrequency spectrum and tried to prove that the drums have the same shape [5, 6]. Later investigations [7] found that same set of eigenvalues can happen for drums with different complex shapes also. But, for simple shaped drums like circular, many information of the geometry of the drum head can be identified from its eigenfrequency spectrum [8, 9]. Both western and Indian drums have circular shapes and our paper evaluates some of the physics behind the circular shape.

II. EIGENFREQUENCY SPECTRUM OF SOME DIFFERENT SHAPED DRUMS

To differentiate and identify the characteristics of membranes, we consider the modes of vibrations of rectangular, equilateral triangular and circular membranes. Let us represent the frequency of vibration of different modes as f_{nm} where n, m are the number of half waves in normal modes of vibration of membranes in x and y direction respectively. The frequencies of different modes of vibration of drums may be different but their frequency ratio remains the same. Hence the frequency ratios of all three membranes are found for first 10 modes by dividing frequency of each mode by the frequency of the first or fundamental mode.

Rectangular membrane: For a rectangular membrane, the frequencies of vibration of different modes f_{nm} are given

by [10]:

$$f_{nm} = \frac{v}{2} \sqrt{\frac{n^2}{a^2} + \frac{m^2}{b^2}}, \quad (1)$$

where a, b are sides of the membrane and v is the velocity of sound through the membrane. We calculated the frequencies and the frequency ratio of modes of rectangular membrane and the results obtained are given in Table 1. For the calculation, the sides are chosen to be $a = 0.08\text{m}$ and $b = 0.1\text{m}$. Since v is taken as constant for all membranes and we are more interested in the frequency ratio, the value of f_{nm}/v is tabulated.

Table 1. The frequency ratio of the rectangular membrane.

Mode of vibration	Frequency/ v (f_{nm}/v)	Frequency ratio
1.1	8.0039	1
1.2	11.7924	1.4733
2.1	13.4629	1.6820
2.2	16.0078	2
1.3	16.2500	2.0302
3.1	19.4052	2.4244
2.3	19.5256	2.4395
1.4	20.9538	2.6179
3.2	21.2500	2.6549
2.4	23.5849	2.9466

Equilateral membrane: The frequency of vibration of an equilateral triangular membrane is given by [11]:

$$f_{nm} = \frac{v}{a} \sqrt{n^2 + m^2 + nm}. \quad (2)$$

For an equilateral triangular membrane all sides are equal. For calculations the sides are assigned the value $a = 0.08\text{m}$. The frequency ratio is given in Table 2.

Table 2. The frequency ratio of the equilateral membrane.

Mode of vibration	Frequency/ v (f_{nm}/v)	Frequency ratio
1.1	21.6506	1
1.2	33.0718	1.5275
2.1	33.0718	1.5275
2.2	43.3012	2
1.3	45.0693	2.0816
3.1	45.0693	2.0816
2.3	54.4862	2.5166
3.2	54.4862	2.5166
1.4	57.2821	2.6457
4.1	57.2821	2.6457

Circular membrane: The frequency of vibration of a circular membrane is given by [12]:

$$f_{nm} = \frac{x_{nm}v}{2\pi a}. \quad (3)$$

Here x_{nm} are the roots of Bessel function of order n . Here n and m represents the number of half waves of modes of vibration in θ and r direction since polar coordinate is used for circular membrane problem. The radius of the membrane is chosen as $a = 0.08\text{m}$ for calculation. The obtained values are given in Table 3.

Table 3. The frequency ratio of the circular membrane.

Mode of vibration	Frequency/ v (f_{nm}/v)	Frequency ratio
0.1	4.7866	1
1.1	7.6267	1.5933
2.1	10.2221	2.1355
0.2	10.9874	2.2954
3.1	12.6994	2.6531
1.2	13.9641	2.9173
4.1	15.1041	3.1554
2.2	16.7539	3.5001
0.3	17.2247	3.5985
3.2	19.4287	4.0589

From the Table 1, 2 and 3 the ratio of frequencies of different membrane gives some important insights. They are:

- It is found that the tenth mode of rectangular membrane produces 2.9466 times fundamental frequency and for equilateral triangular membrane same mode produces a frequency 2.6457 times the fundamental frequency. But for a circular membrane, the tenth mode produces 4.0589 times the fundamental frequency. This shows that with same number of modes circular membrane can produce wide range of frequency than other membranes. So a player must have to excite less number of modes to obtain higher frequencies compared other shaped membranes. This reduces the strain of the player if one uses the circular shaped drum.
- It is also seen that the frequency set of all membranes is different. The pitch, tone color and amplitude are interrelated and all depends on fundamental frequency, intensity of sound and overtone structure [13]. Hence the tone color of the sound produced by the drums of these membranes will be heard differently.

III. ISOPERIMETRIC THEOREM AND ITS EFFECTS

In two dimension, out of many shapes with same perimeter, circle has the largest area and this is called isoperimetric theorem [14]. For a drum, if the shape of the membrane is circular then the area of vibration will be more than other shapes. This increase the sound intensity or amplitude. Isoperimetric theorem has deeper effects on the sound produced by drum which was found by Lord Rayleigh [15]. He studied about membranes of different shapes such as rectangle, equilateral triangle, circle and many more of same area and found that the pitch or fundamental frequency of the deepest tone is smallest for circle. In their paper Z. Lu and J. M. Rowlett [16] found mathematically that a listener could identify the corners of a drum. This indicates that the sound produced by a circular membrane and other shaped membranes with different number of corners such as rectangle or triangle will be heard differently. The isoperimetric theorem and other works [4, 17] suggest following ideas. Circular shaped drums:

- Produce more sound compared to other drums
- Produce low pitched sounds or bass sound
- Can maintain the particular tone quality or timbre.

IV. SYMMETRY AND SHAPE OF THE DRUM

In our daily life we find many natural objects with beautiful symmetry such as flowers, leaves and the physics behind the symmetry of objects is a vast and promising field of research [18]. If some transformation such as rotation or reflection is performed on an object with any shape and if the shape remains unaffected, then the object with that particular shape is said to be symmetric. For a 2D shape, a line of symmetry is a line passing through the centre which divides it into identical halves. As the symmetry of the object increases the number of lines will also increase. For the rectangle there are two lines of symmetry, for the equilateral triangle it is three and for the square the number is four and so on. For circular shape there is infinite number of lines of symmetry and hence it is the most symmetrical shape in 2D [19]. From Group theory, the group formed by circular shape have infinite number of rotation and reflection symmetry [20]. The symmetry and degeneracy are interrelated. The circular drum has large number of degenerate modes represented by sine and cosine solutions of the circular membrane problem. In real circular drums, the tampering of the circular symmetry of the rim, application of varying tension on the membrane and the change in the thickness of the membrane creates a shift in frequency of the degenerate modes and the beats produced can be removed by the player [21]. So the circular symmetry creates the following effect:

- The same sound is produced by the drum played from any side of the circular head.

V. CONCLUSIONS

The paper discussed some features of physics behind the circular shape for the drums. The practical easiness in construction is one aspect to choose the circular shape for the drums. The circular shape gives the drum most low pitch or bass sound compared with other shapes. The particular symmetry helps in tuning of the drum and even distribution of the tension on the membrane.

BIBLIOGRAPHY

- [1] G. Sathej and R. Adhikari, *J. Acoust. Soc. Am.* **125**, 831 (2009).
- [2] D. Benson, *Music: A mathematical offering*, 1st Ed. (Cambridge University Press, Cambridge, 2006), pp. 112-120.
- [3] L. S. Rajagopalan, A. Purushothaman and A. Harindranath, *Temple Musical Instruments of Kerala*, 1st Ed. (Sangeet Natak Akademi and D. K. Printworld, 2010).
- [4] M. Kac, *Am. Math. Mon.* **73**, 1 (1966). doi:10.1080/00029890.1966.11970915
- [5] M. H. Protter, *SIAM Rev.* **29**, 185 (1987). doi:10.1080/00029890.1966.11970915
- [6] Y. Okada, A. Shudo, S. Tasaki, and T. Harayama, *J. Phys. A: Math. Gen.* **38**, L163 (2005). doi:10.1088/0305-4470/38/9/102
- [7] C. Gordon, D. L. Webb and S. Wolpert, *Bull. Am. Math. Soc.* **27**, 134 (1992). doi:10.1090/s0273-0979-1992-00289-6
- [8] S. Kesavan, *Resonance* **3**, 26 (1998). doi:10.1007/bf02836078
- [9] S. Kesavan, *Resonance* **3**, 49 (1998). doi:10.1007/bf02841422
- [10] M. Ghosh and D. Bhattacharya, *A Textbook of Oscillations, Waves and Acoustics*, 5th Ed. (S. Chand and Company, 2004), pp. 162-165.
- [11] B. R. Seth, *Proceedings of the Indian Academy of Sciences-Section A*, Springer India, **12**, 487 (1940). doi:10.1007/bf03172447
- [12] P. Hagedorn and A. DasGupta, *Vibrations and waves in continuous mechanical systems*, 1st Ed. (Wiley, 2007), pp. 190-197.
- [13] H. Fletcher, *J. Acoust. Soc. Am.* **6**, 59 (1934). doi:10.1121/1.1915704
- [14] J. A. Adam, *Mathematics in Nature: Modeling Patterns in the Natural World*, 1st Ed. (Princeton University Press, 2006), pp. 245-246.
- [15] J. W. S. Rayleigh, *The theory of sound*, 2nd Ed. Vol. 1 (Dover Publication, 1945), pp. 344-345.
- [16] Z. Lu and J. M. Rowlett, *Bull. London Math. Soc.* **48**, 85 (2015). doi:10.1112/blms/bdv094
- [17] G. Polya, *Mathematics and plausible reasoning: Induction and analogy in mathematics*, 1st Ed. (Princeton University Press, 1954), pp. 168-189.
- [18] J. Schwichtenberg, *Physics from Symmetry*, 1st Ed. (Springer, 2015), pp. 173-244.
- [19] I. Stewart, *Symmetry: A very short introduction*, 1st Ed. (Oxford University Press, 2013).
- [20] I. Stewart, *Why Beauty Is Truth: The History of Symmetry*, (Basic Books, 2007), pp. 217-218.
- [21] T. Rossing, *Springer handbook of acoustics*, (Springer Science and Business Media, 2007), pp. 642-646.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



CARLOS TRALLERO-GINER: DESDE CUBA, HACIA LATINOAMÉRICA

CARLOS TRALLERO-GINER: FROM CUBA, TO LATIN AMERICA

M. SÁNCHEZ-COLINA^a, L. TALIAHVILI^b Y A. PENTÓN-MADRIGAL^{a†}

a) Facultad de Física, Universidad de La Habana, San Lázaro y L, CP 10400, Habana Cuba; arbelio@fisica.uh.cu

b) Centro de Investigaciones Espaciales (CINESPA), Escuela de Física, Universidad de Costa Rica, 2060 San José, Costa Rica.

† autor para la correspondencia

Recibido 10/5/2020; Aceptado 10/6/2020

I. ANTECEDENTES

El Prof. Dr. Cs. Carlos Trallero Giner es uno de los físicos cubanos más reconocido a nivel internacional. Resulta muy difícil resumir su amplia labor científica y profesional. Baste decir que trabajó durante 40 años como profesor de la Facultad de Física de la Universidad de la Habana (FF-UH), donde fue jefe del departamento de Física Teórica, vicedecano docente, decano y presidente de la comisión Nacional de la carrera de Física. Como investigador, cuenta en su haber con más de 250 artículos científicos publicados y un amplio reconocimiento a nivel internacional por sus trabajos en el campo de la física teórica de la materia condensada. Entre las numerosas distinciones que recibió por sus resultados académicos destacan la orden "Carlos J. Finlay", la medalla 280 aniversario de la Universidad de La Habana y el premio nacional de Física "Manuel F. Gran". A nivel internacional, ha sido distinguido como investigador visitante de instituciones como el Centro de Física Teórica de Trieste, el Instituto Físico Técnico "Ioffe" de San Petersburgo, y el Instituto Max-Planck en Stuttgart Alemania. También fue becario de la prestigiosa Fundación Alexander von Humboldt de Alemania, así como asociado de la American Physical Society (APS) por sus esfuerzos innovadores en propiciar relaciones de trabajo cooperativas entre las comunidades cubana y estadounidense de la física de la materia condensada, así como por promover el conocimiento de la dispersión Raman y los modos polares en las nanoestructuras.

II. CENTRO LATINOAMERICANO DE FÍSICA (CLAF), UN NUEVO RETO

A partir de su elección como director del CLAF en el año 2012, el doctor Trallero mantuvo su estatus de profesor de los programas de doctorado y maestría de la FF-UH y miembro del Tribunal Permanente de Doctorado en Física de Cuba. Sus vínculos con el CLAF databan de muchos años antes, cuando fungió como representante (consejero) de Cuba ante este organismo en dos periodos diferentes.

El CLAF, desde su creación en 1962, ha contribuido de manera importante a la formación de los recursos humanos en Física en muchos países de Latinoamérica - Caribe (LAC).

También ha sido una fuente de apoyo invaluable -y, sobre todo, constante- en la financiación de becas de doctorado y de escuelas y eventos científicos.



Figura 1. Prof. Dr. Cs. Carlos Trallero Giner, director del CLAF en el período 2012-2019 (foto cortesía Karla Richmond-Borbón / Universidad de Costa Rica).

Como director del CLAF, doctor Trallero extendió su experiencia a esa institución, llevando a cabo una intensa labor para reordenarla y darle una mayor visibilidad dentro de la amplia y diversa comunidad de físicos en LAC. Igualmente, luchó para sensibilizar a los gobiernos que, en muchas ocasiones, no siempre aprovechan las potencialidades del CLAF como organismo de la UNESCO para desarrollar o fomentar acciones integradoras entre nuestros países, relacionadas con el desarrollo de la ciencia, particularmente la física.

III. FORTALECIMIENTO INSTITUCIONAL

La atención y profundización de los vínculos del CLAF con otras organizaciones latinoamericanas para el fomento de la ciencia y la educación permitieron crear condiciones para el fortalecimiento de la institución, cuando en el 2012, debido

a la delicada situación financiera del CLAF, peligró en cierta medida su gestión.

Estas acciones derivaron en el mantenimiento y creación de nuevos convenios que permitieron la movilidad de investigadores y la formación de un número importante de estudiantes en fase de maestría y doctorado. Ejemplos de estos convenios son los firmados con el Consejo Nacional de Desarrollo Científico y Tecnológico (CNPq) y el Programa Latinoamericano de Física (PLAF) del Brasil, con el Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACYT) y la Secretaría de Ciencia, Tecnología e Innovación (SECITI) de México, el Instituto Venezolano de Investigaciones Científicas (IVIC) de Venezuela, etc.

En esta misma dirección se gestionaron convenios con organizaciones o instituciones fuera del área latinoamericana. Como denominador común de estas instituciones se destaca su pertinencia y excelencia en la investigación científica. Acuerdos con el Centro Internacional de Física Teórica (ICTP) en Italia y la Sociedad Max Planck (Instituto de Sistemas Complejos e Instituto para la Historia de la Ciencia) en Alemania, permitieron insertar estudiantes latinoamericanos en importantes centros de investigación de Europa.

IV. OTRAS ACCIONES

Punto focal de las acciones del CLAF bajo el mandato del Dr. Cs. C. Trallero ha sido también el de intentar reducir las asimetrías en el campo del desarrollo de la física y áreas afines en nuestra región geográfica. La solución a esta problemática no se enfocó exclusivamente a las relaciones Norte-Sur, sino que potenció las relaciones Sur-Sur, las cuales han demostrado ser una vía apropiada para reducir las diferencias de desarrollo de los países menos favorecidos.

Se debe reconocer igualmente la estrategia de la dirección del CLAF para orientar los fondos hacia la formación de recursos humanos en áreas estratégicas, así como para la cooperación científico/tecnológica latinoamericana en áreas de impacto social como la salud, la energía, la alimentación, la mitigación del cambio climático, etc. Poder orientar en creciente proporción los fondos CLAF hacia temas de investigación científica emergentes ha sido una línea de trabajo bien definida de la institución, aunque esta depende mucho de la voluntad política de los gobiernos a partir de un mayor reconocimiento del CLAF como organización integradora y asesora de políticas científicas.

En el período se potencializan programas de cooperación científica. Por ejemplo, la creación de grupos de trabajo (UNIDADES) adscritos al CLAF propició un nuevo espacio en áreas específicas para contribuir al desarrollo científico de nuestros países sobre la base de la coordinación, permitiendo un ahorro y optimización de recursos. La primera UNIDAD creada fue el "Worldwide LHC Computing Grid - Latinoamérica" (GRID), convenio firmado con la Organización Europea para la Investigación Nuclear (CERN) donde el CLAF representa a varios países de nuestra región. Este convenio permitirá a LAC participar en la

infraestructura GRID europea y crear las bases para la coordinación de investigaciones científicas entre Europa y científicos latinoamericanos. Destacar que este acuerdo cubre diferentes ramas de la física, química, medio ambiente, salud, biología e Ingeniería, entre otras.

La UNIDAD ANDES se crea con el fin de apoyar y propiciar la construcción del primer y único laboratorio subterráneo del Hemisferio Sur, cuyos miembros son Chile, Argentina, Brasil y México. La UNIDAD Energías Renovables (UER-CLAF) coordinada por varias instituciones mexicanas tiene como misión, entre otras, el fomento de la capacidad científica y técnica de los investigadores de la región en esta área del específica.

El apoyo del CLAF a las Olimpiadas de Física (OLUF) organizadas por Cuba, como estímulo a la integración entre los países de LAC, es otro claro ejemplo de cómo esta institución puede ser un factor catalizador y vehículo de las políticas educativas para LAC.

Se reactiva el contacto con la UNESCO/Paris y su sede en Uruguay, lo que ha propiciado la participación del CLAF en diversas reuniones de la UNESCO.

Se reactivaron las relaciones con el Gobierno de Bolivia y fue aceptada la entrada de Panamá como nuevo miembro del CLAF.



Figura 2. Prof. Dr. Cs. Carlos Trallero Giner (derecha) director del CLAF y Dr. Henning Jensen Pennington (izquierda), ExRector de la Universidad de Costa Rica durante ceremonia de fundación del CLAF – CA (foto cortesía Karla Richmond Borbón / Universidad de Costa Rica).

Otro logro importante de la gestión del doctor Trallero ha sido la fundación, a finales del 2019, de la subse de CLAF para Centro América (CLAF-CA) en la Universidad de Costa Rica, con el apoyo de la Rectoría, Vicerrectoría de Investigación y la Escuela de Física de dicha institución. La misión del CLAF-CA es fomentar y facilitar el estudio y desarrollo de la física, áreas afines y multidisciplinarias relacionadas en los países de Centro América. También promover, fortalecer y ampliar las colaboraciones e intercambio entre instituciones y grupos de investigación en los países de Latinoamérica y otros; así como la asistencia en la formación de recursos humanos y la adquisición de recursos financieros necesarios, mediante la celebración de convenios y otros instrumentos pertinentes, con el apoyo del CLAF como organismo de

la UNESCO. Con el CLAF-CA y su dinámica adicional, se espera un aporte considerable a las metas del CLAF Centro.

Es difícil visualizar plenamente la trayectoria exitosa del doctor Trallero sólo sobre la base de los logros, ya que estos eclipsan otros elementos asociados como son sus aportes, desafíos y virtudes. Para lograr una mayor integración e intercambio científico entre la comunidad científica de Latinoamérica, el Caribe e internacional, el Dr. Cs. Carlos Trallero Giner amplió las políticas y acciones, y, de esta forma también, las estrategias del CLAF, enfrentado y resolviendo varios desafíos en el camino, con una disponibilidad plena. Ello nos deja experiencias importantes para enfrentar los

retos relacionados con el estado de la Física en América Latina y el Caribe.

Todo el trabajo realizado en los dos últimos períodos cobra mayor relevancia cuando este es realizado por un número muy reducido de personas que lo acompañaron, pero con un grado de compromiso histórico incuestionable con el CLAF.

La dirección del CLAF por el doctor Trallero ha dejado una impronta en la historia de esta institución. La Facultad de Física de la Universidad de La Habana se siente orgullosa de que un miembro de nuestro claustro haya podido desempeñar tan loable tarea.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



FÍSICA CUBANA EN EL COSMOS: A 40 AÑOS DEL VUELO ESPACIAL CONJUNTO

CUBAN PHYSICS IN THE COSMOS: 40 YEARS AFTER THE JOINT SPATIAL FLIGHT

V. MÁRQUEZ ÁLVAREZ[†]

Facultad de Física, Universidad de La Habana, San Lázaro y L, CP 10400, Habana Cuba; victor.marquez@estudiantes.fisica.uh.cu

[†] autor para la correspondencia

Recibido 20/5/2020; Aceptado 15/6/2020

Durante el vuelo espacial conjunto soviético-cubano en septiembre de 1980, se llevaron a cabo varios experimentos diseñados en conjunto por científicos cubanos y soviéticos. En el presente trabajo se aborda el contexto histórico alrededor de dicho vuelo y se brinda una descripción de los experimentos en él realizados. Como algunos de estos experimentos se encuentran en el terreno de la Física, e incluso fueron realizados por físicos cubanos aún en activo, aquí se ofrece una descripción más detallada de los mismos.

Several experiments jointly designed by Cuban and Soviet scientists were performed during the Soviet-Cuban space flight that took place on September, 1980. Here, the historical context surrounding the flight is presented, and a description of the experiments performed during the flight is provided. Some of them belonged to the field of Physics, and were designed by Cuban physicists that are still active; those experiments will be described here in more detail.

PACS: Instruments, spaceborne and space research (instrumentos, en el espacio e investigación espacial), 07.87.+v; Microgravity environments for crystal growth (ambientes de microgravedad para el crecimiento de cristales), 81.10.Mx

I. INTRODUCCIÓN HISTÓRICA

El 4 de octubre de 1957 la Unión Soviética puso en órbita el primer satélite artificial de la Tierra *Sputnik I*. Con esta hazaña de la ciencia y la técnica soviéticas, se proclamó al mundo el inicio a la era cósmica. Apenas 4 años más tarde, el 12 de abril de 1961, el piloto soviético Yuri Gagarin volaba al cosmos y daba una vuelta al globo terráqueo en una hora y cuarenta y ocho minutos [1]. De esta forma, el ser humano daba su primer paso en la exploración del espacio cósmico.

Desde los comienzos de los vuelos espaciales tripulados los cosmonautas han realizado investigaciones y experimentos durante su permanencia en el cosmos. La Unión Soviética, precursora en esta esfera, se trazó como objetivo ampliar el potencial de sus investigaciones creando un programa de colaboración conjunta entre los países integrantes del entonces campo socialista. En abril de 1967, estos esfuerzos se concretaron en un complejo programa de investigaciones en el campo de la exploración y uso del espacio cósmico con fines pacíficos, que posteriormente pasó a nombrarse Programa Intercosmos [1].

El Programa Intercosmos comprendía varios grupos de trabajo, integrados por científicos de los países participantes, que se dedicaban al estudio de la física, la meteorología, las comunicaciones, la biología y la medicina cósmicas, así como la teledetección por medios aerocósmicos. En nuestro país se creó en 1966 el órgano nacional de coordinación, inicialmente adscrito al Ministerio de Comunicaciones y posteriormente, en 1974, a la Academia de Ciencias de Cuba, que años después pasó a llamarse Comisión Intercosmos.

En 1976, la URSS propuso la participación de ciudadanos de los países integrantes del Programa en los vuelos pilotados

utilizando naves y estaciones cósmicas soviéticas. Cuba suscribió el protocolo de los acuerdos para el vuelo conjunto y creó los mecanismos para la organización del vuelo donde habría de participar un cosmonauta cubano.



Figura 1. A la izquierda, el logotipo del Programa Intercosmos. A la derecha, el logotipo cubano de Intercosmos (Imagen tomada de [1]).

En este sentido, luego de un proceso de selección, fueron escogidos como aspirantes a cosmonautas para realizar el vuelo conjunto los pilotos José Armando López Falcón y Arnaldo Tamayo Méndez. El entrenamiento, con una duración de dos años, tuvo lugar en el Centro de Preparación de Cosmonautas “Yuri Gagarin”, dentro de la llamada Ciudad Estelar, ubicada en las afueras de la ciudad de Moscú.

El 18 de septiembre de 1980 Cuba se convirtió en el 9no país del mundo en enviar un hijo suyo al cosmos. Este día, a las 22:11, hora de Moscú, la nave *Soyuz 38* era lanzada al espacio, tripulada por el comandante soviético Yuri Romanenko y por el cosmonauta investigador Arnaldo Tamayo Méndez,

ciudadano de la República de Cuba [1].

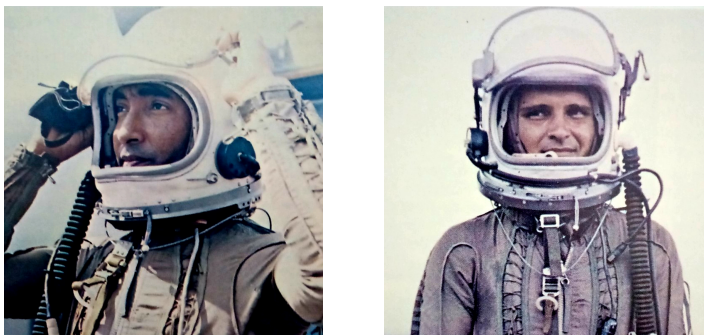


Figura 2. Los pilotos cubanos seleccionados como aspirantes a cosmonautas: Arnaldo Tamayo Méndez (izquierda) y José Armando López Falcón (derecha) (Imágenes tomadas de [1]).

El día 19 se produjo el acoplamiento de la nave *Soyuz 38* con el complejo orbital *Saliut 6-Soyuz 37*, donde les dieron la bienvenida los colegas Leonid Popov y Valeri Riumin, quienes se encontraban en el complejo orbital desde el 9 de abril de 1980.



Figura 3. Encuentro en el cosmos. De izquierda a derecha: Valeri Riumin, Arnaldo Tamayo, Yuri Romanenko y Leonid Popov en la estación orbital *Saliut 6-Soyuz 37-Soyuz 38* (Imagen tomada de [1]).

Durante una semana, se cumplió exitosamente el programa de trabajo previsto para el vuelo, dentro del cual una parte esencial constituyó la realización de varios experimentos diseñados por científicos cubanos. El día 26 de septiembre de 1980 la tripulación de la nave *Soyuz 38* regresó a Tierra luego de una misión exitosa.

Luego de su regreso a Moscú, el cosmonauta cubano Arnaldo Tamayo fue condecorado con la Orden Lenin, el título de Héroe de la Unión Soviética y la medalla Estrella de Oro. De regreso a Cuba, Tamayo y Romanenko fueron recibidos cálidamente por el pueblo cubano, y recibieron ambos el título de Héroe de la República de Cuba [1].

II. LOS EXPERIMENTOS

Uno de los objetivos principales que se persigue en la realización de vuelos espaciales es efectuar investigaciones

en el espacio ultraterrestre. Son numerosas las áreas del conocimiento humano en las que los desarrollos tecnológicos de la ciencia espacial han sido utilizados. Por solo nombrar algunas, podemos mencionar el estudio de procesos físicos y químicos fundamentales, la biología y la medicina, las investigaciones del entorno de la Tierra y la astronomía atmosférica [2]. En este trabajo haremos énfasis en la primera de las categorías mencionadas.

Las condiciones de microgravedad existentes dentro de las estaciones espaciales permiten el estudio de procesos físicos y químicos sin la presencia de fenómenos que en la Tierra tienden a enmascararlos. Por ejemplo, en el caso del comportamiento de los fluidos se muestran como dominantes fenómenos que en las condiciones terrestres no lo son, tales como la adhesión y la cohesión, y se manifiestan con fuerza efectos causados por la difusión y la tensión superficial. A su vez, en su interior la presión hidrostática es prácticamente constante, lo que provoca que el empuje de Arquímedes y la convección térmica desaparezcan casi completamente. La ausencia de turbulencia por convección ha permitido la obtención de monocristales sumamente uniformes en el espacio. Luego de años de investigación y estudios de factibilidad, actualmente se encuentra en etapa de desarrollo una planta destinada a la fabricación industrial de materiales monocristalinos en la Estación Espacial Internacional [3].

Para preparar los experimentos que se realizaron durante el vuelo conjunto soviético-cubano, la Comisión Intercosmos convocó a cerca de doscientos especialistas e investigadores pertenecientes a la Academia de Ciencias de Cuba, los ministerios de Educación Superior, Salud Pública, de las Fuerzas Armadas, del Azúcar y el INDER [1].

Es de destacar el logro que significó para la comunidad científica cubana el encargarse, junto a los colaboradores soviéticos, del diseño y montaje de los experimentos que fueron realizados en el vuelo conjunto. En palabras de José Altshuler, presidente de la Comisión cubana de Intercosmos en la época del vuelo: "En ese momento, Cuba recogía los primeros frutos de la extraordinaria reforma educacional y el tremendo esfuerzo desplegado en la formación de especialistas altamente calificados en diferentes ramas de la ciencia, los cuales a pesar de no tener ninguna experiencia previa en el tema del cosmos, fueron capaces de preparar en breve plazo un conjunto de investigaciones, caracterizadas por su originalidad y elevado rigor científico" [4].

Como es de suponer, son los cosmonautas los encargados de garantizar la correcta ejecución de los experimentos que se realizan durante las misiones espaciales tripuladas. Como parte de su entrenamiento, los cosmonautas estudian teórica y prácticamente los experimentos previstos a realizarse durante el vuelo. El cosmonauta investigador debe conocer cada experimento, sus principios e interrelaciones, qué es lo que espera obtener cada científico y cuáles son los fenómenos que más le interesan.



Figura 4. Los candidatos cubanos a cosmonauta visitan el Instituto de Investigación Técnica Fundamental, adscrito a la Academia de Ciencias de Cuba, el 16 de marzo de 1978, para familiarizarse con algunos de los experimentos que habían comenzado a prepararse para ser ejecutados en el espacio (Fotografía cortesía de José Altshuler).



Figura 5. Trabajadores y dirigentes científicos a cargo de los experimentos propuestos por Cuba para el vuelo espacial del cosmonauta cubano, a la entrada del aeropuerto "José Martí", el 25 de marzo de 1979. En el momento de tomar la foto, varios de ellos estaban a punto de partir hacia la URSS para establecer las coordinaciones necesarias con la parte soviética (Fotografía cortesía de José Altshuler).

Los experimentos realizados durante el vuelo conjunto soviético-cubano pueden clasificarse en 4 categorías: médico-biológicos, psicométricos, referentes a la exploración terrestre y físico-técnicos [5]. A continuación se brindará una pequeña descripción de los que se encuentran en las 3 primeras categorías. En la siguiente sección, se brindará una descripción detallada de aquellos que se encuentran en la última de las categorías mencionadas.

II.1. Médico-Biológicos

Córtex: Investigación electrofisiológica del estado funcional del sistema nervioso central, bajo la influencia de las condiciones existentes en un vuelo cósmico.

Soporte: Estudio de los cambios en la morfología y la estructura de la función de apoyo del hombre, causados por la ingravidez. Determinación de las posibilidades

de evitar las alteraciones de la función de apoyo del cosmonauta, con ayuda de soportes especiales.

Circulación sanguínea: Estudio del estado funcional del sistema cardiovascular, bajo la influencia de las condiciones existentes en un vuelo cósmico.

Antropometría: Estudio de la influencia de las condiciones existentes en un vuelo cósmico sobre algunos indicadores antropométricos.

Hatuey: Estudio de la influencia de la ingravidez sobre el carácter y la velocidad de la división mitótica y meiótica de las células de levadura, y determinación de la frecuencia en que se originan las recombinaciones genéticas en dichas células.

Multiplicador: Investigación de la influencia de la ingravidez sobre la dinámica de crecimiento de levaduras.

Balance: Influencia del vuelo cósmico sobre el balance hidromineral en el hombre de las regiones tropicales.

Inmunidad: Estudio del estado del sistema inmunitario y de los cambios en el metabolismo mineral del organismo en las condiciones de un vuelo cósmico.

Stress: Estudio de las características de los mecanismos hormonales y metabólicos de adaptación a las acciones de tensión causadas por el vuelo cósmico.

Visión: Estudio de la influencia de las condiciones de un vuelo cósmico sobre el analizador visual.

II.2. Psicométricos

Percepción: Investigación de la dinámica de la senso-percepción en el proceso de adaptación del hombre a las condiciones de ingravidez.

Coordinación: Investigación de la influencia de la ingravidez sobre los movimientos coordinados del hombre.

Cuestionario: Estudio de la influencia de las condiciones de vida sobre la efectividad del trabajo del cosmonauta y su estado psíquico.

Descanso: Organización de los descansos y utilización del tiempo libre a bordo de la nave cósmica, con el objetivo de brindar ayuda a los tripulantes.

II.3. Referentes a la exploración en la Tierra

Trópico III: Levantamiento topográfico del territorio de la República de Cuba, su plataforma y el océano mundial, desde la estación cósmica *Saliut 6* con la cámara MKF-6, para el estudio de los recursos naturales desde el cosmos.

Biosfera-C: Investigación instrumental y visual del medio desde la estación orbital, y otros experimentos referentes al estudio de las propiedades espectrales de reflexión de objetos naturales y económicos de Cuba, de regiones de su plataforma y del océano mundial, así como sus variaciones temporales y espaciales. [1]

En el Anexo 1 pueden observarse imágenes de los equipos utilizados para algunos de estos experimentos.

III. EXPERIMENTOS FÍSICO-TÉCNICOS

Estos experimentos tienen un significado especial para la Física cubana, especialmente aquella vinculada a la Universidad de La Habana. Varios de los autores de estos experimentos son actualmente profesores de su claustro.

Para cada uno de los experimentos, se presentarán los objetivos que se perseguían, se realizará una descripción del montaje y el proceso experimental y se presentarán las conclusiones que se derivaron de cada uno de ellos.

III.1. Experimento Caribe

Diseñado por los investigadores del Laboratorio de Electrónica del Estado Sólido de la entonces Facultad de Física-Matemática de La Universidad de La Habana, junto a colaboradores soviéticos, este experimento fue concebido como continuación de los experimentos de obtención de cristales y aleaciones bajo condiciones de microgravedad realizados previamente en el laboratorio espacial *Skylab* y en el complejo orbital *Soyuz-Apollo* [5]. Comprendió dos subexperimentos independientes, el Caribe K-1 y el Caribe C-1 o SK-1, que pueden ser caracterizados de la siguiente forma:

III.1.1. Caribe K-1: Crecimiento de una aleación de Ge-In.

Previo a la fecha del vuelo, ya se habían realizado experimentos con el objetivo de estudiar la cristalización de aleaciones semiconductoras sin los efectos derivados de la gravedad —la convección, por ejemplo—. Con los resultados obtenidos se daban recomendaciones a la industria electrónica para perfeccionar los mecanismos de producción de semiconductores [6].

Este experimento tenía como objetivos estudiar el grado de perfección de un cristal de Ge-In crecido en el espacio, compararlo con un cristal obtenido por un procedimiento análogo en Tierra y analizar cómo la microgravedad afecta la distribución de impurezas durante la recrystalización [5].

La técnica experimental utilizada fue la recrystalización, donde una porción de un lingote preelaborado de Ge-In es fundida y luego recrystalizada. La porción restante, llamada semilla, se mantiene en estado sólido para servir de guía en la estructura de la red atómica que la parte líquida asumirá cuando recrystalice.

Con este objetivo, inicialmente se prepararon dos lingotes de germanio dopado con indio, agregándolo con una concentración de 10^{20} átomos/cm³. Los extremos de cada lingote fueron fijados con una técnica innovadora para la época, donde se utilizaron piezas especiales de grafito y un resorte de cuarzo para encerrar toda la muestra en una ampollita de este último material sellada a un vacío de 10^{-5}

torr. Cada ampollita a su vez se introdujo en una cápsula de acero inoxidable para garantizar su protección.

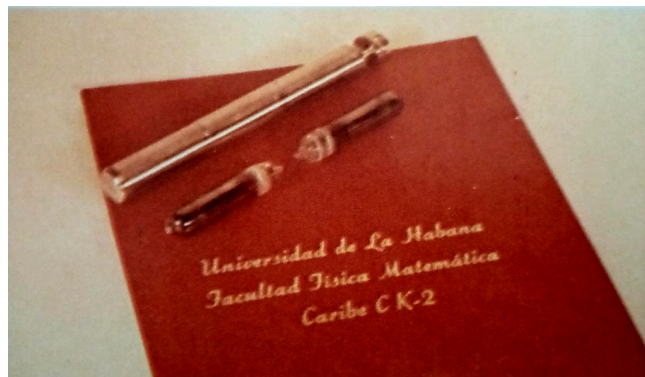


Figura 6. Fotografía de las ampollitas del experimento Caribe K-1 (Imagen tomada de [1]).

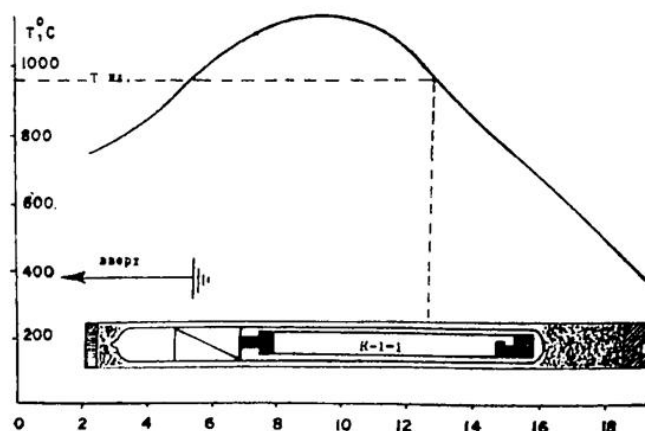


Figura 7. Perfil de temperatura del horno *Kristal* y esquema de la ampollita colocada en el mismo, durante la tercera hora del experimento. El eje de las abscisas denota Posición expresada en *cm*. La flecha muestra la dirección del desplazamiento inicial de la ampollita respecto al perfil del horno. La intersección de la línea discontinua con el eje de la Posición y la Temperatura muestran la porción del cristal que resultaría fundida y la temperatura de fusión de la muestra, respectivamente (Imagen tomada de [6]).

Para el experimento fue utilizado el horno *Kristal*, que formaba parte del equipamiento permanente del complejo orbital. Al comienzo, la ampollita se coloca dentro de este y comienza el calentamiento partiendo de la temperatura ambiente con una velocidad de $9^{\circ}\text{C}/\text{min}$. A su vez, con la ayuda de un motor de paso, la muestra se desplaza respecto al horno con una velocidad de $0,188$ mm/min. Al cabo de las 2 horas se alcanza una temperatura máxima de 1100°C . El perfil de temperatura y su posición respecto a la ampollita en este instante se muestran en la Figura 7. Durante una hora se mantienen la temperatura constante y la ampollita inmóvil para garantizar la homogenización del fundido; y una vez concluida, durante las próximas 6 horas, la muestra se desplaza en el sentido contrario al inicial con la velocidad ya señalada y la temperatura decrece a una tasa de $3,6^{\circ}\text{C}/\text{min}$ [6].

Como se observa en la Figura 7, los 14 mm del lingote que se encuentran en su extrema derecha permanecen en

estado sólido. Esta es la porción que actúa como semilla en el experimento.

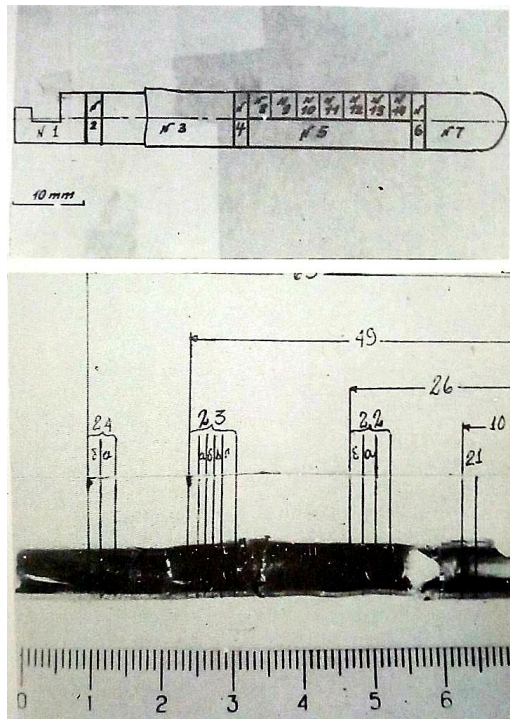


Figura 8. Esquema de corte de las muestras crecidas en el espacio cósmico (arriba) y de las crecidas en Tierra (abajo) (Imagen tomada de [6]).

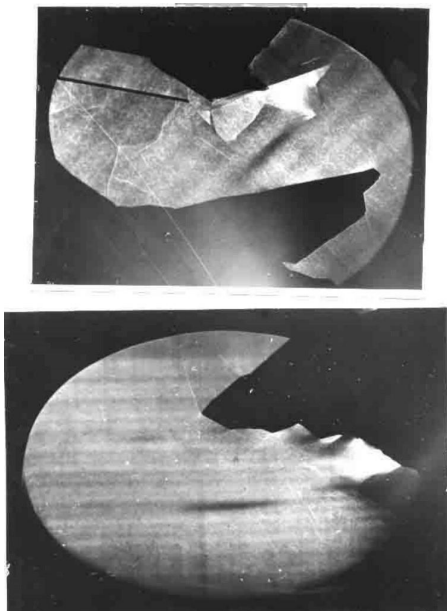


Figura 9. Topografías por Rayos X de la oblea 22 del cristal crecido en Tierra (arriba) y de la oblea 4 del cristal crecido en órbita (abajo) donde se observa que la perfección de la región monocristalina de la muestra crecida en el espacio es mayor que la de la crecida en Tierra (Imagen tomada de [6]).

Fueron realizados dos experimentos análogos: uno en el cosmos y otro en la Tierra. Las muestras que se obtuvieron fueron cortadas como se ilustra en la Figura 8. En la Figura 9 se muestran los topogramas de la oblea 4 del cristal crecido en

órbita y de la oblea 22, su equivalente en el crecido en Tierra. Mediante difracción se obtuvo que la primera de ellas poseía una variación de la monocristalinidad no mayor de $6''$, sin embargo en la zona monocristalina la perfección se mantenía en un alto grado, contrastando con la segunda donde se puede observar que la perfección cristalina era muy inferior a la de aquella. A pesar de esto, ya en la oblea 6 del cristal cósmico se observaba una destrucción de la monocristalinidad casi absoluta [6].

De la literatura de la época era conocido que la sustitución de germanio por indio provoca un aumento en el parámetro de la red. Midiendo este aumento respecto a un cristal de germanio puro se pudo determinar la concentración de indio en la región recristalizada del cristal cósmico.

De este trabajo se obtuvieron las siguientes conclusiones:

1. El cristal crecido en Tierra es menos perfecto, cristalinamente, que el crecido en el espacio.
2. Se observa que el cristal cósmico durante su crecimiento se divide en bloques llegando a tener una desorientación de $6''$ entre los mismos en regiones a pequeña distancia de la semilla. Esta desorientación aumenta con dicha distancia, hasta quedar la estructura cristalina dividida completamente en pequeños bloques.
3. La medición de la variación del parámetro de la red permitió concluir que la concentración de indio era muy pequeña en la semilla, y que aumentaba rápidamente con la distancia a esta en la muestra crecida en órbita, pues los valores de variación obtenidos eran muy superiores a los reportados en la literatura de la época. [6]

III.1.2. Caribe C-1 o SK-1: Crecimiento de homoestructuras epitaxiales de GaAs y heteroestructuras de GaAlAs-GaAs.

Este experimento se realizó con el propósito de obtener homoestructuras epitaxiales de GaAs y heteroestructuras de GaAlAs-GaAs en condiciones de microgravedad, así como tratar de comprobar, por primera vez, la efectividad en tales condiciones de la técnica de la epitaxia líquida a partir de solución de galio a pequeña altura [7].

El experimento se realizó en el horno *Splav* a bordo de la estación orbital *Saliut 6*. En las Figuras 10 y 11 se presentan una fotografía y un esquema, respectivamente, de la ampollita diseñada. En cada una de las zonas 1, 2, 4 y 5 se encuentra un contenedor de grafito. En cada contenedor hay cuatro láminas circulares de GaAs-Te, el sustrato utilizado, formando dos *sandwiches* separados por un pequeño anillo de grafito. En las regiones intermedias de las zonas 1 y 4 se colocó una solución de Ga-Al-Zn, mientras que en las zonas 2 y 5, la solución era de Ga-Zn. De esta forma se lograría el crecimiento de 16 capas en cuatro regímenes de temperatura diferentes. Los contenedores con las muestras se colocaron en una ampollita de cuarzo sellada a un vacío inferior a 10^{-4} torr. Por último, esta se introdujo en un protector metálico de acero inoxidable [8].



Figura 10. Fotografía de la ampolleta del experimento Caribe SK-1 (Imagen tomada de [1]).

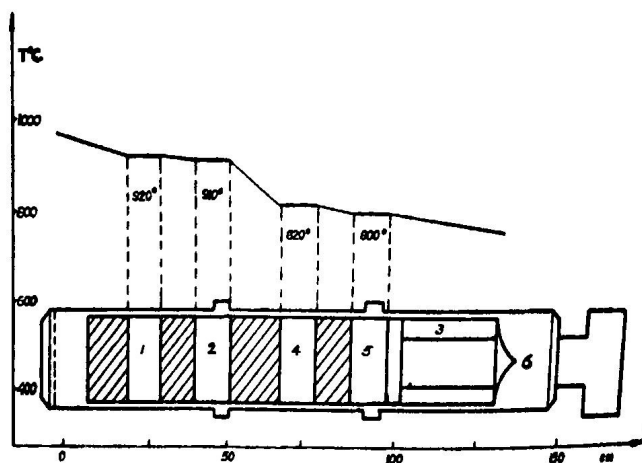


Figura 11. Cápsula diseñada para la homo y heteroepitaxia de GaAlAs-GaAs en condiciones de microgravedad. Zonas 1,2,4 y 5: contenedores de grafito con muestras de GaAs y soluciones de Ga. Zona 3: ampolleta de cuarzo. Zona 6: cilindro metálico. Obsérvese la distribución de temperatura al inicio del crecimiento (Imagen tomada de [7]).

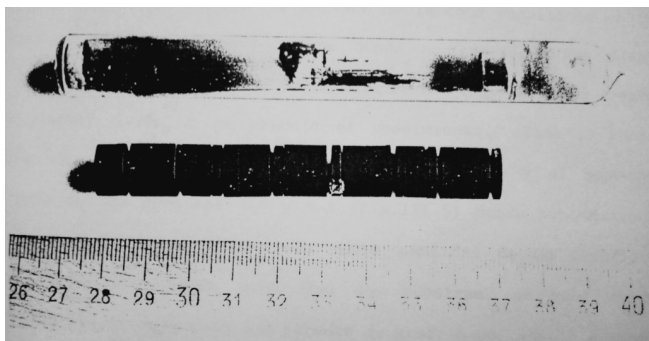


Figura 12. Ámpula de cuarzo, contenedores y separadores de grafito después de realizado el experimento (Imagen tomada de [8]).

El perfil de temperatura mostrado en la Figura 11 corresponde al inicio del experimento. Para lograr la formación de las capas

epitaxiales se realiza un enfriamiento regulado de la ampolleta a $0,75\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$ por espacio de $200\text{ }^{\circ}\text{C}$, seguido por enfriamiento pasivo hasta la temperatura ambiente. Durante este tiempo también ocurre la difusión de Zn en el sustrato n-GaAs. En la Figura 12 se muestra la cápsula después de realizado el experimento.

De este trabajo se obtuvieron las siguientes conclusiones:

1. La comparación de la morfología entre las capas crecidas en condiciones de microgravedad y en Tierra mostró una incompleta homogeneización de la solución crecida en órbita debido a la ausencia de convección y a la relativamente mayor influencia de la tensión superficial durante el crecimiento.
2. El microanálisis de rayos X realizado a la capa de AlGaAs para determinar la distribución de AlAs a lo largo de la capa epitaxial arrojó que la incorporación de aluminio en la interface sustrato-capa variaba en cada punto. Esto confirma la no homogeneidad del fundido. Igualmente, se concluyó que el valor del coeficiente de difusión del aluminio en el galio debe ser menor a $5 \cdot 10^{-5}\text{ cm}^2/\text{s}$.
3. El análisis por fotoluminiscencia mostró que la concentración de impurezas de Zn en las muestras crecidas bajo condiciones de microgravedad aumenta monótonamente desde las muestras de la zona 1 hasta las de la zona 5. Se propuso que esto estaba relacionado con la diferencia de temperaturas iniciales de crecimiento. Además, las muestras de la zona 2 presentaron una concentración de Zn mayor, en casi un orden, respecto a las muestras de la zona correspondiente crecidas en Tierra.
4. A partir de las muestras obtenidas se construyeron diodos. Mediante el estudio de su curva I-V se pudo confirmar la presencia de juntura p-n en las capas crecidas en las zonas 1 y 4. [5,7,8]

III.2. Experimento Azúcar

Como se mostró en los experimentos anteriores, era usual en los vuelos espaciales el estudio del crecimiento de monocristales, principalmente de materiales utilizados en la industria de los semiconductores. El experimento *Azúcar* constituyó la primera experiencia de cristalización de materiales orgánicos en condiciones de ingravedad [5]. Para un país como era Cuba en 1980, con una industria eminentemente azucarera, realizar una investigación de este tipo creaba la oportunidad de perfeccionar los procesos industriales e impulsar la economía del país. Este experimento fue desarrollado por un grupo de especialistas del Instituto Cubano de Investigaciones Azucareras (ICINAZ), en estrecha colaboración con técnicos soviéticos del Instituto de Investigaciones Cósmicas de la URSS (IKI, por sus siglas en ruso) [9].

Esta investigación tenía como propósito determinar los efectos macrocÓpicos de la microgravedad en la cristalización de sacarosa a partir de su solución acuosa [5].

El equipamiento utilizado consta de un banco óptico con una base fija y otra móvil, un cristizador, inyectoros y extractores, diseñados por los técnicos del IKI; monocristales y contenedores de solución acuosa, preparados por los especialistas del ICINAZ; y una cámara fotográfica y un *flash*, que forman parte del equipamiento permanente de la estación espacial. En la base fija se colocan el cristizador y el *flash*, y en la base móvil, la cámara fotográfica de la estación orbital, como se muestra en la Figura 13. El cristizador está formado por dos compartimentos, en cada uno de ellos se colocan dos pequeños monocristales previamente crecidos en Tierra e insertados en agujas para su sujeción. Cada compartimento se rellena con una solución de sacarosa y agua pura [9].

El experimento se desarrolló ininterrumpidamente durante 72 horas y se tomaron fotos de cada uno de los cristales cada 8 horas.

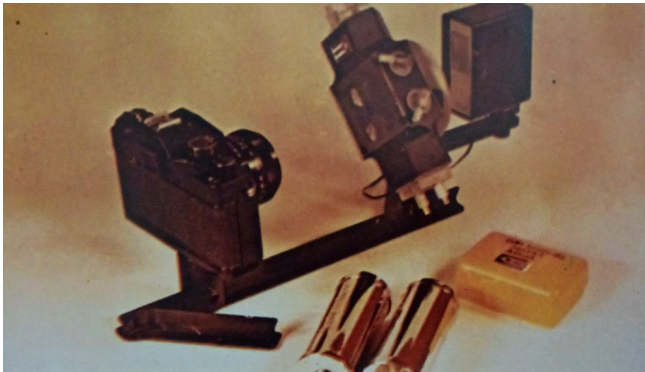


Figura 13. Cristizador, *flash* y cámara fotográfica Praktika EE-2 montados sobre el banco óptico. En el suelo se observan los contenedores de la solución acuosa y la caja donde se guardan los cristales preelaborados (Imagen tomada de [1]).

Como resultado se obtuvo que la tasa de crecimiento de monocristales de sacarosa en el espacio es ocho veces mayor que aquellos crecidos por métodos similares en la Tierra. La explicación de este fenómeno se supuso que estaba relacionada con el mecanismo de incorporación de moléculas de sacarosa a la red cristalina. [5,9]

III.3. Experimento Zona

Este experimento fue propuesto y diseñado igualmente por especialistas del ICINAZ y el IKI. Estaba dirigido a determinar el efecto de la microgravedad en la microtopografía de la superficie de un cristal y en la cinética molecular durante el proceso de cristalización, utilizando la técnica conocida como Fusión Zonal con Gradiente de Temperatura (FZGT) [5].



Figura 14. Cámara fotográfica y cámara de fusión zonal múltiple utilizadas en el experimento Zona (Imagen tomada de [1]).

La FZGT consiste en la traslación de una inclusión líquida a través de un monocristal debido a la acción de cierta diferencia de temperatura aplicada al mismo. Se seleccionó esta técnica porque su descripción matemática se encontraba bien desarrollada en la época, lo que permitía una fácil comparación de experimentos similares realizados en presencia y ausencia de gravedad. Por su parte, la sacarosa fue escogida como sustancia para el experimento porque permitía efectuarlo a bajas temperaturas, poseía velocidades de traslación de la zona líquida relativamente altas lo que permitía el registro fotográfico del proceso y favorecía la aplicación de los resultados al análisis del experimento *Azúcar* [10].

Con el objetivo de realizar el registro fotográfico del proceso, se creó un equipo que recibió el nombre de *Cámara FZ*. Esta consiste en un cilindro de vidrio orgánico con tapas metálicas en cuyo interior se encuentran tres cubetas colocadas entre un calentador de resistencia eléctrica y una superficie de enfriamiento, los cuales proporcionan un gradiente de temperatura de 27 ± 5 °C/cm. Cada cubeta contiene una muestra o *sandwich* formado por dos pastillas monocristalinas de sacarosa entre las cuales se vierte la solución saturada de agua y sacarosa. La *Cámara FZ* es acoplada a un banco óptico junto a una cámara fotográfica y un sistema de iluminación, como se muestra en la Figura 14. Este montaje permite la toma de fotografías de las tres muestras bajo estudio.

Como resultado de este trabajo se obtuvo que la velocidad de cristalización de las capas crecidas en órbita son aproximadamente iguales a las obtenidas en condiciones experimentales análogas en Tierra, lo que muestra la no influencia de los flujos convectivos sobre dicha velocidad en experimentos de FZGT realizados en presencia de gravedad. Por su parte, la caracterización cristalográfica de las muestras crecidas en condiciones análogas reveló que aquellas crecidas bajo microgravedad poseen una mayor perfección cristalina, siendo esto una consecuencia de la ausencia de convección [10]. A partir de este experimento los autores sugirieron que sería posible simular en Tierra el proceso de cristalización en

microgravedad haciendo que la velocidad de cristalización fuese antiparalela a la fuerza de gravedad [5]. Con esta investigación se introdujo en el cosmos la aplicación del método de FZGT en monocristales de sacarosa [1].

III.4. Experimento Holograma

La idea original de este experimento provino de especialistas del Instituto de Investigación Técnica Fundamental (ININTEF), perteneciente a la Academia de Ciencias de Cuba. Posteriormente fue elaborado y equipado por científicos e ingenieros pertenecientes al ININTEF, al Instituto Técnico Militar Cubano (ITM) y al Instituto Físico-Técnico "Ioffe" de la Academia de Ciencias de la URSS.

Estaba compuesto por dos subexperimentos. El primero de ellos, *Holograma-1*, estaba destinado a evaluar el grado de inmunidad al ruido eléctrico de un holograma al ser transmitido a través de imágenes bidimensionales de televisión entre el espacio y la Tierra. El segundo de ellos, *Holograma-2*, tenía como objetivo determinar si era factible que especialistas en Tierra pudieran obtener mediante hologramas imágenes tridimensionales completas para estudiar la evolución de ciertos fenómenos producidos en el espacio.

Aunque *Holograma* se había preparado originalmente como uno de los experimentos que serían realizados durante el vuelo espacial del cosmonauta cubano, tuvo que ser pospuesto por problemas logísticos de transportación. Aún así, el experimento se llevó a cabo en marzo de 1981, durante el próximo vuelo conjunto de Intercosmos, realizado junto al cosmonauta de la República Popular de Mongolia.

Holograma-1 fue un experimento relativamente sencillo que consistió, en primer lugar, en utilizar las cámaras de televisión estándar de la nave para tomar imágenes de hologramas confeccionados previamente y transmitirlos a Tierra donde después de la recepción se comparaban con un duplicado exacto de los hologramas en el espacio. Luego, desde el Centro de Control de Vuelo se transmitía a la nave un holograma formado por luz coherente utilizando el canal de televisión convencional. La imagen recibida en el televisor de la nave era fotografiada para una comparación posterior. Las imágenes transmitidas incluyeron el logotipo cubano de Intercosmos y logotipo soviético URSS-Cuba.

Para llevar a cabo el *Holograma-2*, fue grabada en órbita la disolución de una sal en un líquido utilizando un instrumento holográfico especialmente diseñado para su uso en el espacio. Se tomaron varias series de fotografías sucesivas que hicieron fácil seguir cada detalle del proceso de disolución —que en condiciones de microgravedad ocurrió unas 20 veces más lento que en la Tierra—. Con esto se demostró que la holografía se puede usar para el control y prueba de experimentos en el espacio y, eventualmente, mostrar su utilidad en los procesos de fabricación espacial. [5]

IV. CONCLUSIONES

Los experimentos *Azúcar*, *Zona* y *Holograma* marcaron un hito en la historia de la ciencia espacial, al ser los primeros de su tipo realizados en un laboratorio orbital.

El resultado satisfactorio de la casi totalidad de los experimentos cubanos que se realizaron durante el vuelo, así como la trascendencia que tuvieron en posteriores investigaciones, demostraron la competencia y creatividad de los investigadores cubanos y que su participación en el diseño y montaje de los experimentos, lejos de constituir un acto simbólico, devino en colaboración beneficiosa para todos los participantes y para la ciencia en general.

Es una razón de orgullo para la Física cubana que varios de los físicos y físicas cubanos, aún en activo, fueran autores de dos de los experimentos, *Caribe K-1* y *SK-1*, realizados durante el vuelo espacial conjunto soviético-cubano.

AGRADECIMIENTOS

El autor agradece a José Altshuler por haber facilitado la bibliografía principal utilizada en la confección de este trabajo.

REFERENCIAS

- [1] Vuelo Espacial Conjunto URSS-Cuba. Editorial de Ciencias Sociales. (1981)
- [2] J. Altshuler y K. Serafímov, *La Hora del Espacio*, 1ra Ed. (Editorial Científico-Técnica, La Habana, 1991)
- [3] Satnews Daily. Made In Space to Manufacture Multi-Use Optical Crystals in Microgravity. (1, consultado en mayo de 2020).
- [4] Orfilio Peláez. Legado de un histórico vuelo. (<http://www.granma.cu/granmad/secciones/cienciaytec/cuba/c> consultado en mayo de 2020).
- [5] A. Baracca, J. Renn y H. Wendt, *The History of Physics in Cuba*, 1ra Ed. (Springer, 2014), pp. 295-300
- [6] O. Calzadilla, J. Fuentes, J. Vidal, P. Díaz, R. Romero, C. Arencibia, E. Hernández, L. M. Sorokin, I. I. Shulpina y A. S. Trebugova, *Ciencias Técnicas, Físicas y Matemáticas* 4 18 (1984)
- [7] P. Díaz, E. Vigil, R. Romero, E. Purón, S. de Roux, F. Sánchez, V. M. Andreev, S. G. Konnikov y T. B. Papova, *Ciencias Técnicas, Físicas y Matemáticas* 4 23 (1984)
- [8] E. Vigil, "Estudio y Aplicación del GaAs y sus Soluciones Sólidas con GaP y AlAs para la confección de Diodos Emisores de Luz". Tesis de doctorado, Universidad de La Habana, 1983
- [9] R. Morera, J. Lodos y E. Casanova, *Ciencias Técnicas, Físicas y Matemáticas* 4 3 (1984)
- [10] F. L. Falcón, P. V. Pérez, G. F. Zhukov, *Ciencias Técnicas, Físicas y Matemáticas* 4 11 (1984)

ANEXO

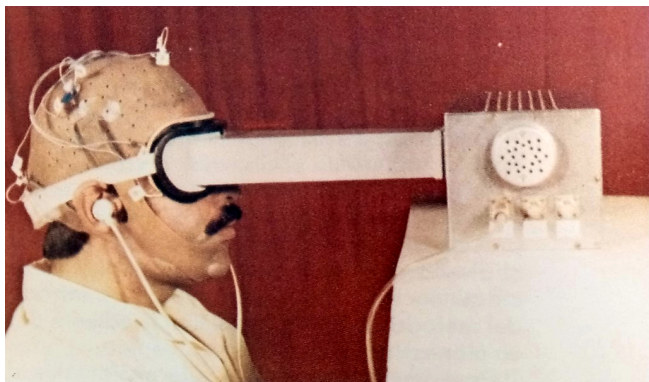


Figura A1. Casco y fonofoto estimulador del equipo empleado en el experimento *Córtex* (Imagen tomada de [1]).

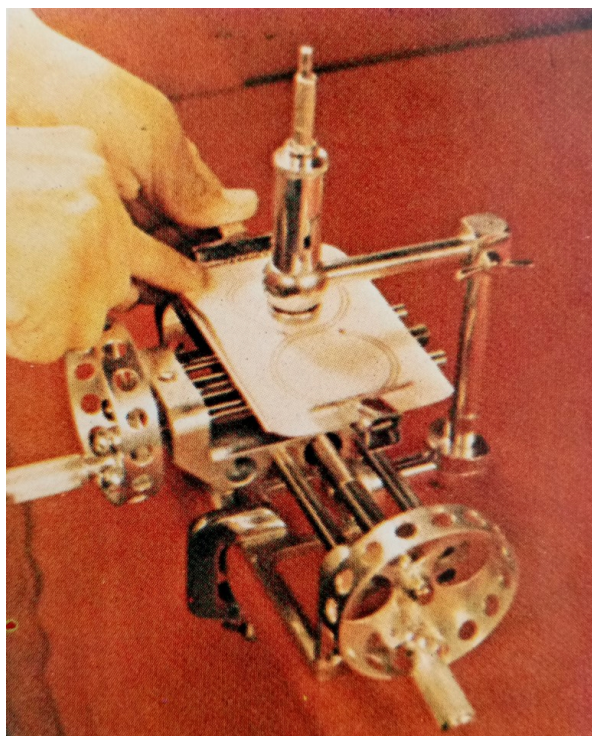


Figura A2. Coordinógrafo del experimento *Coordinación* (Imagen tomada de [1]).

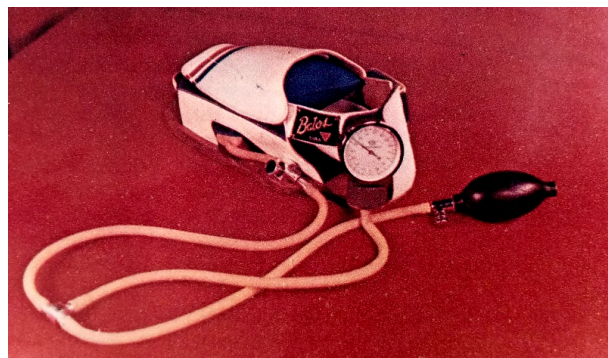


Figura A3. Dispositivo del experimento *Soporte*: Sandalia "Cúpula Sand 501" (Imagen tomada de [1]).

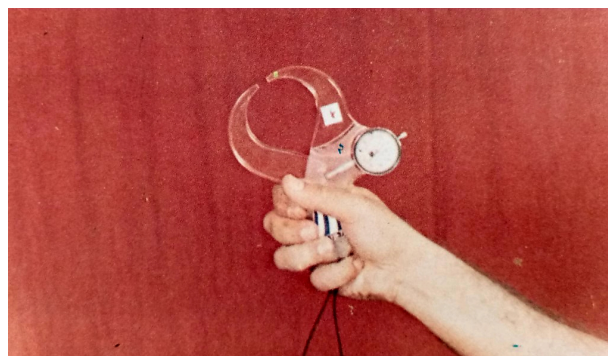


Figura A4. Calibrómetro especial "Cosmos 726" utilizado en el experimento *Antropometría* (Imagen tomada de [1]).



Figura A5. Conjunto de instrumentos del experimento *Percepción* (Imagen tomada de [1]).

MAESTRÍA Y DOCTORADO: LA VIDA MÁS ALLÁ DE LA TESIS

MSC AND PHD: LIFE BEYOND THE THESIS

G. QUINTERO ANGULO^a, J. CERUTTI TORRES^{a†}, V. L. DÍAZ-MELIÁN^a, D. SUÁREZ FONTANELLA^b Y D. ALVEAR TERRERO^b

a) Facultad de Física, Universidad de La Habana, San Lázaro y L, CP 10400, La Habana, Cuba; jcerutti@fisica.uh.cu

b) Instituto de Cibernética, Matemática y Física, 15 y E, CP 10400, La Habana, Cuba.

† autor para la correspondencia

Recibido 16/5/2020; Aceptado 18/5/2020

PACS: Physics careers (carrera de física), 01.85.+f; physics education (enseñanza de la física), 01.40.-d

Hace unos años causó gran revuelo en la comunidad académica internacional la aparición de una serie de estudios de acuerdo a los cuales uno de cada dos estudiantes de posgrado sufre depresión clínica durante la realización de la tesis (un período típicamente de tres a cinco años) [1, 2]. Dado que maestría y doctorado son en la actualidad requisitos indispensables para el desarrollo de una carrera científica, muchas universidades y centros de investigación, así como varias organizaciones de estudiantes de posgrado, han tomado medidas para controlar y revertir la situación descrita más arriba.

A fin de estudiar la ocurrencia de este fenómeno en Cuba, los organizadores del *Segundo Encuentro Cubano de Física para Estudiantes de Posgrado* (La Habana, enero de 2020) nos propusimos la realización de una encuesta, que sin ánimos de convertirse en un estudio sociológico o clínico rigurosos, sí pretende ser un primer acercamiento a este problema en el país. La encuesta fue realizada entre noviembre y diciembre de 2019, y sus resultados discutidos con parte de los encuestados en un Panel dentro del *Encuentro*.

En total fueron encuestadas 45 personas: el 49 % licenciados, el 36 % másters y el 15 % doctores graduados en los últimos diez años. Este número, aunque estadísticamente pequeño, es significativo para nuestra comunidad. Téngase en cuenta que en este momento no hay más de 20 estudiantes de doctorado en Física en todo el país.

La mayoría de los encuestados son graduados de Licenciatura en Física, aunque también se encuestó a graduados de otras carreras que investigan en Física o temas afines. Sus edades se mueven entre los 23 y los 53 años, con una media de 27, y solo 4 personas por encima de los 35. De ellos, el 67 % son hombres y el 33 % mujeres, mientras que un 78 % es blanco, un 13 % negro y un 9 % mestizo.

El principal resultado de la encuesta se muestra en la Tabla. I. Se dio a los encuestados una lista de síntomas de depresión y se pidió que seleccionaran aquellos que, a su juicio, habían sufrido durante sus estudios de posgrado. El 72 % de la muestra afirmó haber sufrido dos o más síntomas. Esto es muy significativo, ya que para el diagnóstico de la depresión clínica basta con experimentar a la vez dos de estos síntomas [3]. Además, según los estudios antes citados, a nivel mundial

el 50 % de los estudiantes de posgrado presenta síntomas de depresión.

Tabla 1. Número de estudiantes que experimentan cada síntoma.

Síntomas	Estudiantes afectados
Cansancio extremo	28 (62 %)
Desmotivación	24 (53 %)
Ansiedad	23 (51 %)
Desconcentración	23 (51 %)
Falta de confianza en sí mismo	19 (42 %)
Problemas para dormir	19 (42 %)
Irritabilidad	14 (31 %)
Falta de apetito	8 (18 %)
Falta de deseo sexual	5 (11 %)

Los síntomas más frecuentes, sufridos por más de la mitad de los encuestados, son: cansancio extremo, desmotivación, ansiedad y desconcentración. Solo una persona declaró no haber experimentado ningún síntoma, mientras que dos (un hombre y una mujer) los han experimentado todos. La media de síntomas por persona resultó ser de 3, siendo mayor para las mujeres (4) que para los hombres (2). Estos resultados son, sin dudas, una llamada de atención con respecto al bienestar de los estudiantes de posgrado en Cuba. A continuación discutiremos el resultado del resto de las preguntas de la encuesta, dirigidas a indagar las causas de la aparición de los síntomas.

El 91 % de los encuestados (41 estudiantes) estuvo de acuerdo en que el tutor es muy importante para la investigación, mientras que el 87 % (39) opina que la personalidad del tutor influye considerablemente en los resultados de la misma. Al pedir que calificaran a sus tutores, el 82 % (37) de los encuestados dio una calificación de 8 o más (sobre 10), mientras que solo 8 personas (el 18 %) dieron una calificación entre 2 y 7. Es de resaltar que la media de síntomas de las 8 personas que calificaron a su tutor por debajo de 7 puntos es de 6, el doble de la media general. Entre ellos se encuentran, además, las dos personas que han sufrido todos los síntomas.

La Tabla II muestra los aspectos tenidos en cuenta a la hora de evaluar al tutor, y resalta la importancia de las relaciones sociales para el buen desarrollo del trabajo científico. Para casi todos los encuestados su tutor es un ejemplo a seguir como científico, pero solo los que dieron buenas calificaciones

encuentran que es un ejemplo a seguir como persona. Nótese que alrededor del 20-25 % de los estudiantes ha evaluado de mal al tutor en alguno de los aspectos: o este no le dedica suficiente tiempo, o no se preocupa por la vida del estudiante más allá de la investigación, o sus prioridades en la vida no coinciden. Aunque a primera vista esto último puede parecer intrascendente, podría ser la clave detrás de una buena/mala comunicación entre estudiante y tutor.

Tabla 2. Evaluación de los tutores.

Su tutor...	Estudiantes
...es accesible	33 (73 %)
...le dedica suficiente tiempo	34 (76 %)
...discute el rumbo de la investigación con usted	33 (73 %)
...le tiene en cuenta al tomar decisiones referentes a su investigación	38 (84 %)
...le ayuda en la toma de decisiones de importancia para su carrera	33 (73 %)
...se preocupa para sus estados de ánimo	36 (80 %)
...le estima	39 (87 %)
...es un ejemplo a seguir como científico	43 (96 %)
...es un ejemplo a seguir como persona	38 (82 %)
...tiene prioridades en la vida afines a las suyas	37 (82 %)

Al indagar acerca de las motivaciones para continuar estudios de posgrado, supimos que el 100 % de los encuestados persigue su superación profesional, pero que un 22 % (10) no tiene *gusto por investigar*. Esto contradice uno de los mitos más arraigados sobre los científicos: que trabajan movidos solamente por la curiosidad. Pero además resultó ser un dato muy interesante, pues 6 de las 10 personas que no les gusta investigar presentan 6 o más síntomas (el doble de la media). Ahora bien, entre todos los encuestados, solo 11 personas presentan 6 o más síntomas: los 6 que no tienen gusto por investigar, 4 que tienen evaluado al tutor por debajo de 7, y 1 estudiante que aunque presenta un elevado número de síntomas, evalúa bien a su tutor y posee gusto por investigar. Sin pretender establecer una relación causal absoluta, parece claro que estas dos cosas (carencia del *gusto por la investigación*, y mala relación con el tutor) están relacionados con el elevado número de síntomas.

Otro dato relevante en cuanto a las motivaciones para continuar estudios es que solo el 39 % (18) incluye entre ellas el aspecto económico. Durante el debate de la encuesta en el *Encuentro* se hizo evidente que esto no es causado por un desinterés en mejorar económicamente, sino porque los encuestados sienten que esa mejoría no es alcanzable mediante la maestría o el doctorado, sino a través de trabajos extra. De hecho, aunque solo el 38 % (17) de los encuestados declaró tener un trabajo extra estable, durante el debate quedó claro que muchos de los estudiantes realizan trabajos extra de manera irregular. Ello, no obstante, no parece afectar el tiempo que se dedica a la realización de la tesis, como muestra la Fig. 1.

Para confeccionar la Fig. 1, se dio a los encuestados la lista de actividades que en ella aparece, y se les pidió que dijeran la cantidad relativa de tiempo que dedican a cada una (círculo interior), así como la cantidad que idealmente les gustaría dedicarles (anillo exterior). Como muestra la figura, en promedio, los encuestados dedican a investigar el tiempo

que desean, no así a su vida social y a sus hobbies, a los que quisieran dedicarle más tiempo a costa de disminuir el empleado en el resto de sus actividades laborales y en su supervivencia económica (trabajos extra, sean estables o no). Esto indica que los encuestados priorizan la investigación a costa de su tiempo de recreación y descanso, y podría estar relacionado con la alta incidencia de síntomas como cansancio extremo y desconcentración.

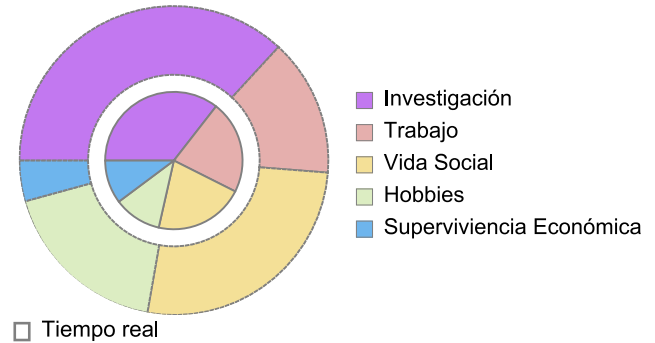


Figura 1. Distribución media del tiempo real vs. el tiempo ideal dedicado a la Investigación, el Trabajo, la Vida Social, los Hobbies y la Supervivencia Económica. En este caso Trabajo hace referencia a las actividades laborales distintas de la investigación, como la docencia en las universidades, los cargos institucionales o en organizaciones de masas, etc.

Por otra parte, el 93 % (42) de los encuestados está satisfecho con su tema de investigación, pero el 42 % (19) no lo está con los resultados científicos que ha obtenido hasta el momento. No fue posible establecer una correlación clara entre la satisfacción con el avance de las investigaciones y la cantidad de síntomas (i.e., la percepción de falta de éxito no es causa principal del estrés), el grado científico (i.e., no es dependiente de la experiencia), o el tiempo que se dedica a investigar (i.e., la solución no es siempre la trivial: "trabajar más"). Esta alta percepción de falta de éxito podría estar relacionada, en cambio, con otros aspectos no abordados directamente por la encuesta como la competitividad del mundo académico y la presión que sufren los estudiantes de posgrado por obtener muchos resultados en tiempos relativamente cortos y por publicar.

En favor de esto último, aunque de manera indirecta, están los resultados relacionados con la dinámica de los grupos de investigación. El 93 % (42) de los encuestados está satisfecho con su grupo de trabajo. Sin embargo, aunque solo 4 personas (9%) creen que es poco lo que le podrían aportar a su grupo de investigación, 12 (26%) consideran que en realidad le aportan poco o nada. Por otro lado, 15 estudiantes (33%) consideran que sus grupos le aportan a ellos poco o muy poco, y 2 consideran que sus grupos no les aportan nada. Esto significa que, aunque casi todos los encuestados pertenecen a un grupo de investigación, en la práctica casi el 40 % realiza sus investigaciones de manera aislada y no cuenta con una red de apoyo profesional que lo ayude a enfrentar las dificultades y frustraciones que tan frecuentes son en nuestro trabajo.

En cuanto a la situación de los estudiantes que se encuentran en instituciones extranjeras, el 96 % de los encuestados considera que ni las diferencias culturales ni la formación académica constituyen una traba para la integración en

ambientes laborales fuera de Cuba. No obstante, el 45 % considera que el idioma sí representa un problema serio. Por ello, el énfasis en la necesidad de dominar el idioma inglés debería ser mayor, así como la importancia que se de a aprender un tercer idioma, principalmente cuando se planea pasar temporadas largas en un país de habla no inglesa.

Los entornos no laborales en los que mueven los encuestados, por el contrario, aparecen como muy favorables a su desarrollo profesional. Solo el 11 % (5) declaró no ser apoyado por su familia para la tesis, mientras que el 27 % (12) no lo es por su pareja. En particular, el valor para la sensación de no apoyo por parte de la familia es llamativamente bajo, lo cual es, sin dudas, muy bueno.

Por último, resultó interesante el análisis de la influencia de ciertos condicionamientos sociales (sexo, raza, procedencia geográfica, orientación sexual, religión, posición política y posición económica) en la carrera científica. Llama la atención que el 71 % (33) de los encuestados siente que al menos uno de estos condicionamientos ha influido en su desarrollo profesional, mientras que el 39 % (18) declara que al menos uno de ellos ha influido negativamente. Es decir, que aunque ninguno de esos aspectos debería influir en el desarrollo del científico, solo el 29 % (13 estudiantes) está en esta situación ideal. Particularmente alta es la cantidad de estudiantes que consideran la influencia de la procedencia geográfica (20 estudiantes consideran que ha influido, 10 negativamente), la posición económica (20 consideran que ha influido, 12 negativamente) y las posiciones ideológicas (9 consideran que ha influido, 7 positivamente). Más preocupante aun es que durante el debate de estos resultados en el *Encuentro* se impuso la idea de que la percepción de que algún condicionamiento *no ha influido* se debe a pertenecer a los grupos más “favorecidos”, con lo que se pierde el sentido de que, de hecho, se está siendo favorecido.

Hasta donde sabemos, este es el primer estudio sobre el bienestar de los estudiantes de posgrado que se lleva a cabo en el país. No obstante, consideramos que es de gran importancia, pues la evidencia recogida indica que los estudiantes de posgrado en Física cubanos sí presentan síntomas de depresión durante el desarrollo de la tesis. Esta situación no debe pasarse por alto y merece que se le estudie

con mayor profundidad, ya que como se mostró a través de las diversas preguntas de la encuesta, el estrés de los estudiantes de posgrado no se debe única ni principalmente a la demandante situación económica del país. Por el contrario, la aparición de síntomas de depresión parece estar más ligada con las relaciones interpersonales y las dinámicas internas de los ambientes académicos que con la situación económica.

A nuestro juicio, debe prestarse especial atención a las motivaciones de los estudiantes para continuar estudios de posgrado y elegir a sus tutores, así como al aprendizaje de idiomas extranjeros y al funcionamiento de los grupos de investigación. Además, es necesario tener presente que los estudiantes perciben discriminaciones, aunque sea en un sentido suave de la palabra, y que las dificultades encontradas por ellos para hacer avanzar sus tesis no siempre se resuelven con un simple “trabaja más”, ya que estas pueden estar determinadas por situaciones ajenas al propio trabajo científico. Por otra parte, es también importante dar a conocer los resultados de esta encuesta a fin de que los estudiantes de posgrado que se encuentran en una situación de alto estrés aprendan a reconocer sus causas y a buscar la ayuda necesaria.

I. AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a todos los que amablemente accedieron a contestar la encuesta, dieron sugerencias, y participaron del debate que ayudó a enriquecer el análisis y comprensión de los resultados.

BIBLIOGRAFÍA

- [1] “Graduate Student Happiness & Well-Being Report, 2014”, University of California, Berkeley, 2014, (ga.berkeley.edu/wellbeingreport).
- [2] K. Levecque, F. Anseel, A. Beuckelaer, J. Heyden, L. Gisle, “Work organization and mental health problems in PhD students”, *Research Policy* [ISSN 0048-7333], **46**, pp.868–879 (2017), (www.sciencedirect.com/science/article/pii/S00487333-17300422).
- [3] www.ICD.who.int

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



RUSSIAN-CUBAN GNSS SERVICE FOR MONITORING AND ANALYSIS OF GEOPHYSICAL PARAMETERS

SERVICIO GNSS RUSO-CUBANO PARA MONITOREAR Y ANALIZAR PARÁMETROS GEOFÍSICOS

D. MARSHALOV^{a†}, O. PONS RODRÍGUEZ^b, YU. BONDARENKO^a, V. SUVORKIN^a, I. BEZRUKOV^a AND S. SERZHANOV^a

a) Institute of Applied Astronomy of the Russian Academy of Sciences, St.-Petersburg, Russia; marshalov@iaaras.ru

b) Institute of Geophysics and Astronomy, Habana, Cuba

† corresponding author

Recibido 8/5/2020; Aceptado 21/5/2020

This article describes the process of creation of the Russian-Cuban global navigation satellite systems (GNSS) service for monitoring and analysis of geophysical parameters based on station with co-located space geodetic instruments. The station will be located at the site of the Institute of Geophysics and Astronomy of the Republic of Cuba in Havana and will be equipped to conduct high-precision GNSS and meteorological observations. The GNSS service will provide time series of station coordinates, Earth orientation parameters, local tectonic plate movements, tropospheric delays, ionosphere and meteorological parameters and will become the basis for further expansion of the Cuban regional geodetic network.

Este artículo describe el proceso de creación del sistema de satélites de navegación global (GNSS, por sus siglas en inglés) ruso-cubano, para monitorear y analizar parámetros geofísicos ubicado en una estación con instrumentos geodésicos espaciales co-localizados. La estación estará localizada en el Instituto de Geofísica y Astronomía de la República de Cuba en La Habana y estará equipada para realizar observaciones de alta precisión GNSS y meteorológicas. El servicio GNSS proveerá series temporales de las coordenadas de la estación, parámetros de orientación de la Tierra, movimientos de placas tectónicas locales, retrasos troposféricos, parámetros de la ionosfera y meteorológicos, y se convertirá en la base para la futura expansión en Cuba de una red geodésica regional.

PACS: Geodetic techniques, *91.10.P-, 91.10.Pp; Geodetic reference systems, 91.10.Ws; Plate tectonics, plate motions, recent, *91.45.dk

I. INTRODUCTION

Currently, stations with co-located space-geodetic instruments (co-located stations) are actively created and developed in the world. A typical co-located station includes different instruments implementing the following space geodesy techniques:

- Very long baseline radio interferometry (VLBI);
- Global navigation satellite systems positioning (GNSS);
- Satellite/Lunar laser ranging (SLR/LRR);
- Doppler Orbitography and Radiopositioning Integrated by Satellite (DORIS).

The co-located station is also equipped with a time and frequency standard, data storage and transmission equipment, a weather station and engineering support facilities. Also, a local geodetic network is being created on the site of the co-located station for high-precision reference of instruments to the fundamental geodetic benchmark.

The time series of observations of a co-located station allows obtaining local geophysical parameters that can be used in the implementation of global reference systems. This will make it possible to analyze changes in sea level and ocean load models and increase the accuracy of the predicted Earth orientation parameters (EOP).

In 2019, the Institute of Applied Astronomy of the Russian Academy of Sciences (IAA) in cooperation with the Institute

of Geophysics and Astronomy of the Republic of Cuba (IGA) began the construction of the Russian-Cuban co-located station in Cuba. The main objective of this project is to improve the accuracy of the Russian network of the co-located stations [1] through a significant improvement in geographical distribution. For the Republic of Cuba, the construction of this station will support the national reference frame at a modern high level of accuracy through joint processing of data from the stations of the Russian and global networks. Modelling of radio-interferometric observations considering the Russian-Cuban co-located station shows that the formal accuracy of Universal Time and EOP estimation can increase more than 2 times [2].

The GNSS service for monitoring and analysis of geophysical parameters will be organized based on the new Russian-Cuban co-located station. In order for the station to become a part of the international GNSS service (IGS), and the results of its observations could be used to solve space geodesy problems, it is necessary to ensure stable, compatible with each other determinations of station coordinates. To achieve these goals, the Russian-Cuban co-located station will be equipped to conduct high-precision GNSS and meteorological observations, as well as to implement all guidelines to the IGS sites [3].

II. STATION EQUIPMENT

The equipment of the Russian-Cuban co-located station can be divided into 7 main components:

1. Topcon CR-G3 GNSS antenna, which is designed to receive signals from global navigation satellite systems (GPS, GLONASS, Galileo).
2. The automatic weather station Vaisala WXT536 measures meteorological parameters such as temperature, relative humidity, wind speed and direction, atmospheric pressure and precipitation.
3. Floor cabinet with installed Supermicro server, Javad Delta-3T GNSS receiver, UPS unit, network switch, optical cross-connect, interface converter, secondary power supply, monitor and input devices. This component is responsible for the collection, storage and transmission of data from measuring instruments.
4. Fiber-optic cable, which is used for high-speed noise-protected data transmission from a GNSS service server to an Internet access point.
5. Hanging cabinet with mounted network switch, optical cross-connect and router receives and transmits data from the local network of GNSS service to the Internet.
6. Floor air conditioner, which is designed to maintain a constant temperature and humidity in the GNSS service room.
7. VoIP-phones and IP-camera, which are designed for communication with GNSS service operator and remote visual control of equipment.

Figure 1. Block diagram of the equipment of the Russian-Cuban co-located station.

To configure and test the equipment, the operating system “Microsoft Windows 10”, all the necessary device drivers and special software for controlling the GNSS receiver “Javad Net Hub” and the weather station “Vaisala Configuration Tool” were installed on the server. Communication between the weather station and the GNSS receiver is implemented via COM-ports using a special script written in the Python programming language. Storage and transfer of data to the IAA server is performed using the “Nexcloud” software.

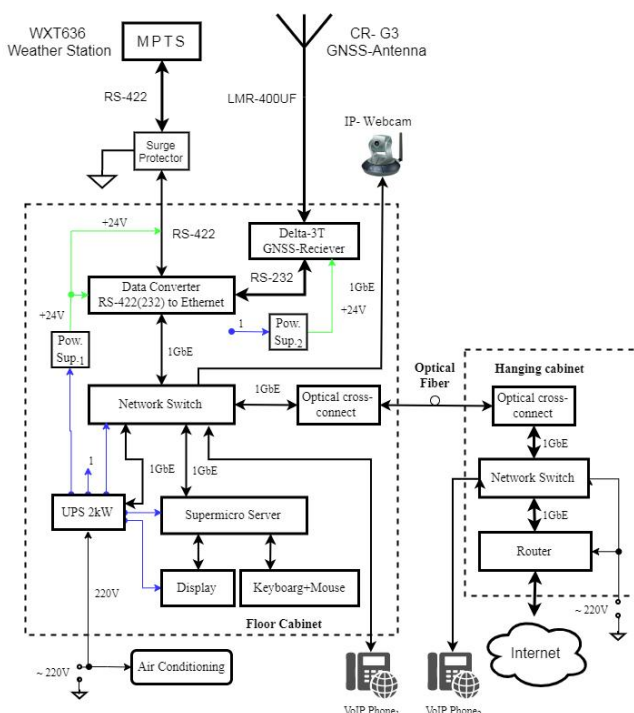


Figure 2. Laboratory assembly of equipment of the Russian-Cuban co-located station (general view).



Figure 3. Laboratory assembly of equipment of the Russian-Cuban co-located station (Floor cabinet).

The block diagram of the equipment of the Russian-Cuban co-located station is shown in Fig. 1, and photos of the equipment assembled in the laboratory are shown in Fig. 2 and Fig. 3.



III. STATION DESIGN

The Russian-Cuban co-located station will be located on the IGA site at Havana, La Lisa Municipality, 212. Fig. 4 shows a satellite image of the IGA site with the administrative building and the building where the GNSS service will be located. The site of the institute is guarded and has a fence around the entire perimeter.

The administrative building is connected to the electricity, water and Internet networks. The equipment for data receiving and transmission is supposed to be installed in a hanging cabinet in the administrative building. The

equipment will be connected to the 220 V (60 Hz) electrical network and to the Internet through optical cross-connect and network controlled switch. A fiber-optic communication line is stretched from the administrative to the GNSS service building in a plastic pipe at a depth of 30-40 cm underground. The optical cable route is plotted in Fig. 4 with a dashed line.



Figure 4. Satellite image of IGA site where the Russian-Cuban co-located station will be placed.

The GNSS service building is a monolithic reinforced concrete rectangular one-story building 3 meters high, 60 m² with a flat roof (Fig. 5). The building is connected to a 220 V (60 Hz) electrical network.



Figure 5. General view of the GNSS service building from the south side.

Fig. 6 shows the layout of the Topcon CR-G3 GNSS antenna and the Vaisala WXT536 weather station. The GNSS antenna is mounted on a platform at the top of the concrete pillar (figure 7), on the roof of the GNSS service building. The anchor point of the platform with coordinates 23.069163 N and -82.459731 E will become the main reference point of the GNSS service, as well as part of the local geodetic network. The antenna is connected by a coaxial cable to the GNSS receiver located in a floor cabinet in the GNSS service room. The automatic weather station is mounted on a metal mast 4.5 meters high, located 20 meters south of the GNSS service building, equipped with a lightning rod and surge protection device and connected by a multi-core signal cable to the interface converter located in a floor cabinet. Cables are laid along walls, roofs and

underground in plastic tubes to protect against UV radiation, rain and mechanical damage.

A floor cabinet with equipment for collecting, storing and transmitting data from measuring instruments is located in the center of the GNSS service room and is connected to an electric socket by a power supply cable laid on the floor in a closed cable channel. The fiber-optic cable of the communication line, as well as signal cables from the weather station and GNSS antenna, are led to the floor cabinet in a closed cable channel. The air conditioner is connected to the vent hole by a sleeve for humid air outlet. The room will also have an IP-camera for remote visual control of equipment and a VoIP-phone for communication with the GNSS service operator.

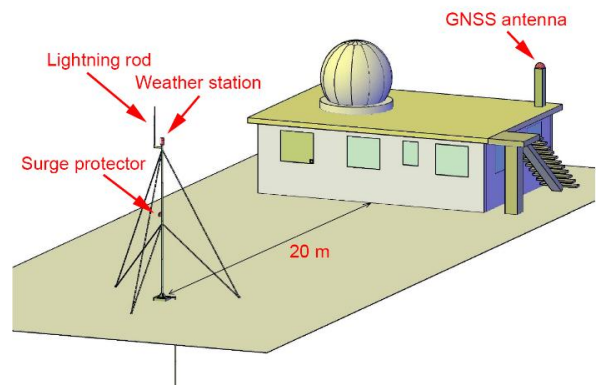


Figure 6. GNSS antenna and weather station layout.



Figure 7. Concrete pillar with a platform for a GNSS antenna mounting.

The installation of several different space-geodetic instruments on the site of the Russian-Cuban co-located station suggests the possibility of their high-precision reference to the fundamental geodetic benchmark. Works on creation of a local geodetic network were carried out to meet this requirement.

IV. PRACTICAL RESULTS

The processing of GNSS observations of the Russian-Cuban co-located station will be carried out by high-precision software developed in IAA. [4]. The physical models and algorithms implemented in this software meet the standards recommended by the International Earth Rotation Service (IERS) [5] and IGS [6]. The standard mode of operation is the processing of GNSS phase and pseudorange measurements of the globally distributed network on a daily intervals. GNSS observations of the Russian network of co-located stations are also included in the processing.

The following parameters are estimated for each day of observation:

1. EOP (polar motion and length of day);
2. Coordinates of stations in terrestrial reference frame;
3. Satellite motion parameters (daily initial coordinates and velocities, Solar radiation pressure model coefficients);
4. Satellites and receivers clock biases;
5. Intersystem (GPS-GLONASS) receiver bias;
6. Local zenith tropospheric delays;
7. Local atmospheric asymmetry gradients;
8. Local total electronic content in ionosphere;
9. Float phase ambiguities.

Thus, a series of parameters is compiled for the whole observation interval, giving practical results:

1. The normal matrices of station positions and EOP for obtaining terrestrial reference frame and tectonic movements;
2. EOP series;
3. Series of zenith tropospheric delays;
4. Series of total electronic content in ionosphere;
5. GLONASS satellites ephemeris.

V. CONCLUSIONS

At the current stage of creation of the Russian-Cuban GNSS service for monitoring and analysis of geophysical parameters, the equipment of the co-located station was assembled, adjusted and laboratory tested. At the IGA site the facilities for installation of the co-located station equipment were prepared and the local geodetic network was implemented. Design documentation for installation and connection of GNSS service equipment was developed at the IAA. Information on construction progress can be found on the IAA official website at <http://iaaras.ru/en/dept/habana/>.

VI. ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (project no. RFMEFI61319X0094, agreement no. 075-15-2019-1717).

BIBLIOGRAPHY

- [1] N. Shuygina, D. Ivanov, A. Ipatov, I. Gayazov, D. Marshalov et al., *Geod. Geodyn.* **10**, 150 (2019).
- [2] D. V. Ivanov, M.-R. Uratsuka, A. V. Ipatov, D. A. Marshalov et al., *Astrophys. Bull.* **73**, 257 (2018).
- [3] Current IGS Site Guidelines. <https://kb.igs.org/hc/en-us/articles/202011433-Current-IGS-Site-Guidelines>, 28/10/2019.
- [4] V. Suvorkin, S. Kurdubov, I. Gayazov in *Journées 2014 "Systèmes de Référence Spatio-Temporels"*, edited by Z. Malkin and N. Capitaine (Pulkovo observatory, St. Petersburg, 2014).
- [5] IERS Conventions, edited by Gérard Petit and Brian Luzum. (Frankfurt am Main: Verlag des Bundesamts für Kartographie und Geodäsie, 2010), pp.179.
- [6] IGS Analysis Center Coordinator. <http://acc.igs.org/>, 18/08/2019.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0, <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0>) license.



CELEBRADOS XV SIMPOSIO Y XIII CONGRESO DE LA SOCIEDAD CUBANA DE FÍSICA



De izquierda a derecha, Dr. Gregory Parsons (presidente Comité de Interacción Internacional AVS), Dra. María Sánchez (presidente SCF), Dr. Arturo Martí (presidente FEIASOFI), Dr. Petra Rudolf (presidente EPS), Dra. Nelia Lopez y Dr. Roberto Mulet vicedecanos de la Facultad de Física de la Universidad de la Habana. (Foto: cortesía de la FF).

Del 9 al 13 de marzo de 2020 se celebró en la Universidad de

la Habana, el XV Simposio y XIII Congreso de la Sociedad Cubana de Física (SCF), siendo una de las últimas actividades académicas organizadas en el país antes de las restricciones impuestas por el avance de la COVID-19. El simposio contó con 174 participantes (165 cubanos), que presentaron 217 trabajos, 52 en forma oral y 165 en forma de carteles. Se dictaron 13 conferencias plenarias sobre temas actuales de la física, cubriendo los campos de interés de las secciones en que está organizada la SCF. Las conferencias fueron impartidas por reconocidos especialistas cubanos y de otros países como: Canadá, Estados Unidos de América, Francia, Holanda, Italia, México y Uruguay. El programa está disponible en: <https://xvsimposiohabana.000webhostapp.com/>.

El simposio fue auspiciado por varias instituciones nacionales como: la Facultad de Física de la Universidad de la Habana, el Instituto Superior de Tecnologías y Ciencias Aplicadas (InSTEC), el Instituto de Matemática, Cibernética y Física (ICIMAF) y el Centro de inmunología Molecular (CIM), también contó con apoyo de tres organismos internacionales: IOP Publishing, el Centro Latinoamericano de Física (CLAF) y la Federación Iberoamericana de Sociedades de Física (FEIASOFI).



Algunos de los participantes en el XIII Congreso de la SCF, realizado el 13 de marzo de 2020.

Aprovechando la presencia del Dr. Arturo Martí presidente de FEIASOFI, la Dr. Petra Rudolf, presidente de la Sociedad Europea de Física (EPS) y el Dr. Gregory Parsons, presidente del Comité de Interacción Internacional de la Sociedad Americana de Vacío (AVS), todos conferencistas invitados al evento, se organizó un reunión donde se discutió la posibilidad de organizar actividades conjuntas como talleres y escuelas temáticas que pueden conducir a crear nuevas conexiones y colaboraciones científicas. Se evaluó la posibilidad de participación en algunos de los programas de la EPS para los miembros de FEIASOFI.

En el Congreso efectuado el viernes 13, se entregó el premio Nacional de Física “Manuel F. Gran” al Dr. Jesús Rubayo Soneira, profesor del InSTEC, por su valioso aporte al desarrollo de la Física en Cuba. Se premiaron también los mejores carteles presentados por jóvenes menores de 35 años, en esta ocasión se otorgaron dos primeros lugares a los Maestros en Ciencia: Juan José Gonzalez Armesto por el trabajo “Expectation Maximization algorithm for the density estimation in quantum trajectories propagation” y Yerila Rodríguez Martínez por el trabajo “Inclusion of copper nanoparticles in metal oxide heterostructures for solar cells”. Se otorgó un segundo lugar a la Lic. Bárbara

Pérez Fernández por el trabajo “In silico media optimization for continuous cultures of mammalian cells”. Se presentó un balance de las principales actividades realizadas por la SCF en el periodo 2014-2019 destacándose la organización desde 2017 de la Olimpiada Latinoamericana del Caribe Universitaria de Física (OLUF) de la que ya se han organizado tres ediciones.

El resumen de actividades fue seguido por un amplio debate sobre la situación que enfrenta la Física en Cuba. Por último se eligió la junta directiva para el periodo 2020-2023 que quedó integrada por, María Sánchez Colina como presidente y Ernesto Altshuler Álvarez como vicepresidente primero, ambos de la Universidad de la Habana (UH). El resto de los vicepresidentes electos fueron: Alexey Cruz de la Universidad de Oriente en Santiago de Cuba, Elizabeth Rodríguez del ICIMAF, Arbelio Pentón de la UH, Rolando Cárdenas de la Universidad Central de la Villas, y Kalet León del Centro de Inmunología Molecular (CIM). El nuevo equipo con muchos deseos de trabajar; expresó su compromiso para que la Sociedad Cubana de Física pueda continuar, desarrollando y haciendo avanzar a la física en Cuba.

M. Sánchez-Colina
Presidenta, SCF

FÍSICOS Y QUÍMICOS CUÁNTICOS SE REÚNEN EN CUBA PARA DAR FORMA A NUEVAS COLABORACIONES INTERNACIONALES

El II taller internacional sobre “Dinámica cuántica multidimensional en nanoestructuras: Desarrollo de métodos y aplicaciones” (MQDNano2) se realizó entre el 17 y el 20 de marzo de 2020, en el Hotel Memories Varadero (Cuba). El objetivo del taller fue coordinar las acciones de varios grupos de investigación de Europa, Norte- y Sudamérica, que proporcionan un amplio espectro de competencias en la modelación computacional y en la optimización de las propiedades físicas y la reactividad de la materia a escala nanométrica. La reunión dió continuidad a la primera edición de estos encuentros, celebrada en Berlín en enero de 2020, y tenía como uno de sus objetivos principales consolidar una red científica en formación en esta temática, que actualmente involucra a veinte universidades e instituciones de investigación de ocho países en América (Argentina, Brasil, Cuba, Estados Unidos) y Europa (Alemania, España, Francia, Reino Unido).

Esta red de investigación se centrará en el desarrollo de métodos novedosos de simulación numérica, más eficientes que los disponibles en la actualidad, que permitan explotar los avances tecnológicos más recientes en ambientes de cómputo de alto rendimiento para el estudio de fenómenos cuánticos en nanoestructuras y en la capacitación de jóvenes académicos que trabajan en especialidades afines (por ejemplo, en física, química, ciencia de materiales y biología). La colaboración propuesta permitirá avanzar en la investigación de nanoestructuras más complejas, la identificación de los candidatos más prometedores para futuras aplicaciones nanotecnológicas en varios campos (como la producción y almacenamiento de energía renovable, la electrónica molecular o el desarrollo de biosensores), así como el empleo de este conocimiento para diseñar dispositivos más eficientes de tamaño molecular.



Algunos participantes en el taller “Dinámica cuántica multidimensional en nanoestructuras: Desarrollo de métodos y aplicaciones” (MQDNano2) celebrado en el Hotel Memories (Varadero, Cuba) 17-20 de marzo, 2020.

El taller se desarrolló en sesiones plenarias, debates y sesiones de carteles, que permitieron configurar la agenda de investigación del consorcio para los próximos cuatro años. Una parte representativa de los miembros de la red asistió físicamente a la reunión, mientras que otros colaboradores participaron de forma remota, utilizando herramientas en línea, como consecuencia de las restricciones de viaje impuestas por las autoridades en sus respectivos países para contener el brote de coronavirus. La preparación de una propuesta de proyecto, presentada con éxito en mayo de 2020 para su financiación a través del programa de Intercambio de Personal de Investigación e Innovación de la Agencia Ejecutiva de Investigación europea (como parte de las acciones Marie Skodowska-Curie), constituyó uno de los resultados más importantes de la reunión en Varadero.

El taller fue organizado localmente por profesores de la

Facultad de Física de la Universidad de La Habana, con el patrocinio del Ministerio Federal de Educación e Investigación de Alemania (BMBF), el Centro Latinoamericano de Física (CLAF), la

Universidad de Potsdam y la Universidad de la Habana.

Ll. Uranga
Facultad de Física
Universidad de la Habana

LOS 80 DE ALFREDO DE LA CAMPA



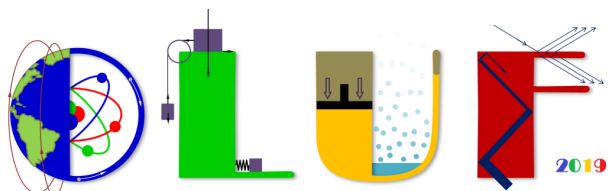
El departamento de Física Aplicada de la Facultad de Física (Universidad de La Habana) celebra los 80 de Campa, el 11 de diciembre de 2019.

Nacido en La Habana en 1939, el profesor Alfredo de la Campa es uno de los físicos cubanos con más años en activo: desde que se incorporó a la docencia directa en la entonces Escuela de Física de la Universidad de La Habana en 1962, no ha dejado de impartir clases hasta el día de hoy. Su labor, sin embargo, ha desbordado con creces la docencia. Tras fructíferas estancias de investigación en materiales magnéticos llevadas a cabo en la Universidad Estatal de Moscú, recibe en 1978 el título de

Candidato a Doctor en Ciencias Físico-Matemáticas (que equivale al actual Doctor en Ciencias Físicas). A partir de esa época, Campa ha constituido una figura imprescindible en las investigaciones sobre magnetismo en la Facultad de Física de la Universidad de La Habana. Entre otras muchas contribuciones a la Física cubana más allá de la docencia y la investigación, vale destacar que en 1979 es nombrado Decano de la Facultad de Física de la Universidad de La Habana. Sus largos años como profesor, investigador y organizador de actividades académicas de toda índole le han valido múltiples reconocimientos, cuya enumeración agotaría el espacio aquí disponible. Pero quizás su más extraordinario logro sea el entusiasmo que hoy, a sus 80 años de vida, muestra el profesor Campa en su actividad docente –especialmente la vinculada al Laboratorio de Mecánica para servicio externo de la Facultad de Física. Su implacable devoción al trabajo pudiera ser perturbadora para algunos de los jóvenes colegas que se han formado como docentes bajo su égida, pero no puede menos que aplaudirse. Y muy aplaudido fue el profesor Campa, cuando el 11 de diciembre de 2019 el Departamento de Física Aplicada, con el apoyo de la dirección de la Facultad de Física, celebró su 80 aniversario... con cake y todo.

E. Altshuler

ALTA CALIDAD EN LA TERCERA EDICIÓN DE OLUF



III Olimpiada Latinoamericana y del Caribe Universitaria de Física

El 26 de abril de 2019 se realizó de manera simultánea en 34 universidades la III Olimpiada Latinoamericana y del Caribe Universitaria de Física. En esta ocasión participaron 208 estudiantes de: Argentina, Brasil, Colombia, Costa Rica, Cuba, El Salvador, Guatemala y México.

Resultaron premiados 36 estudiantes, 1 con medalla de oro, 8 con medallas de plata, 17 de bronce y 10 recibieron menciones honoríficas. Carlos Ernesto Lopetegui González, estudiante del tercer año de Licenciatura en Física en la Universidad de la Habana fue el ganador absoluto de esta edición obteniendo la mayor puntuación entre todos los participantes. Por países, Brasil obtuvo 19 medallas, seguido por Cuba con 6, Argentina con 4, México y Colombia con 3 cada uno y Costa Rica con una.

La Olimpiada es organizada por la Sociedad Cubana de Física y contó con el auspicio del Centro Latinoamericano de Física (CLAF), la Academia de Ciencias de Cuba (ACC), la

Federación Iberoamericana de Sociedades de Física (FEIASOFI) y el ICTP South American Institute for Fundamental Research (ICTP-SAIFR) de Sao Paulo en Brasil.

El comité técnico que preparó los problemas y realizó la calificación final estuvo integrado por Alejandro Cabo Montes de Oca del Instituto de Matemática, Cibernética y Física de la Habana, y los profesores: Edwin Pedrero González, Carlos Rodríguez Castellanos, Héctor Borroto Gutiérrez, Julio César Drake Pérez y Osvaldo de Melo Pereira, todos de la Facultad de Física de la Universidad de la Habana.

Por Cuba participaron estudiantes de la Universidad de la Habana, la Universidad Central de las Villas, la Universidad de Oriente y la Universidad Tecnológica de la Habana José Antonio Echeverría, resultando premiados: Carlos Ernesto Lopetegui González con medalla de oro, Michel Romero Rodríguez con medalla de plata y Martín Ávila González con medalla de Bronce, todos de la Universidad de la Habana. Obtuvieron mención honorífica los estudiantes: Joan Andrés Nieves Cuadrado y Alejandro Díaz Mesa de la Universidad de la Habana y David Rodríguez Fernández de 5to año de Ingeniería Automática en la Universidad Central de Las Villas.

María Sánchez-Colina
Presidenta, SCF
Organizadora, OLUF

