

Informe final
Desarrollo de técnicas neutrónicas aplicadas al estudio de la dinámica de la materia condensada
Proyecto 06/C240
Director: Javier Dawidowski
Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche

1. Introducción

La labor realizada, que describiremos en este informe, tiene su eje principal en la utilización de técnicas de dispersión de neutrones para el estudio de la materia condensada. Los esfuerzos principales se centran en el desarrollo de técnicas de interpretación de datos en experimentos de dispersión de neutrones. La motivación fundamental radica en que la disponibilidad actual de fuentes intensas de neutrones, hace que el empleo de técnicas de scattering de neutrones constituya una de las más poderosas herramientas experimentales para la investigación básica y aplicada en diferentes campos de la ciencia. Sin embargo, este gran desarrollo experimental no ha sido acompañado por un correspondiente desarrollo en las herramientas de reducción e interpretación de datos, siendo necesario en la actualidad un serio esfuerzo internacional para remediar esta falta.

Esquemáticamente, la labor se centra en el desarrollo e implementación de una nueva línea experimental, y la creación de software de interpretación de datos asociados a esta técnica, y otras en colaboración con grupos extranjeros. Temáticamente, nos hemos centrado en el estudio de distribuciones de impulsos en la materia, mediante neutrones. Así, podemos resumir la labor en dos grandes líneas de trabajo.

- Estudio de las distribuciones de impulsos en la materia
- Desarrollo de nuevos métodos de análisis de datos de técnicas neutrónicas

Como resultado de las tareas aquí desarrolladas, el Ing. Luis Rodríguez Palomino completó su tesis doctoral en Ciencias de la Ingeniería en el Instituto Balseiro.

2. Desarrollo

En el mencionado contexto, se han realizado tanto tareas experimentales como tareas que hacen al procesamiento e interpretación de la información obtenida mediante diversas técnicas neutrónicas. Las principales actividades

que realizadas en el terreno experimental han sido empleando el Acelerador Lineal de electrones de 25 MeV (LINAC) del Centro Atómico Bariloche (CAB). Dicho acelerador constituye una instalación única en su tipo en América Latina, y es normalmente utilizada como base para la producción de neutrones en forma pulsada. Los trabajos que a continuación se detallan han sido realizados centrandó el interés en las siguientes técnicas neutrónicas.

2.1. Desarrollos en la técnica de transmisión de neutrones

La técnica de transmisión de neutrones se encuentra en operación en nuestro laboratorio desde hace varias décadas y constituye una excelente herramienta para el estudio de diversas propiedades estructurales y dinámicas de la materia condensada. Siendo complementaria de la técnica DINS y de otras técnicas neutrónicas más sofisticadas, la técnica de transmisión es usualmente empleada en nuestro laboratorio para el estudio de numerosas muestras de interés tanto básico como aplicado. Continuando con el desarrollo de esta técnica, hemos realizado las siguientes actividades:

1. Mediciones de sección eficaz total (en el rango térmico de energías neutrónicas) en muestras de mesitileno, tolueno, y mezclas de estas sustancias a temperaturas criogénicas. El interés en el estudio de estos materiales a bajas temperaturas se basa en su potencial uso como elementos constituyentes de nuevas fuentes frías de neutrones. Los resultados obtenidos y el análisis de los mismos pueden verse en la publicación [1]; dichos resultados han sido recientemente aceptados como contribución a una base de datos internacional con referato [2].
2. Hemos aplicado la teoría de errores a fin de minimizar el tiempo de medición necesario para el estudio de una muestra [3]. En este trabajo se muestra cómo distribuir entre las tres configuraciones propias de la técnica de transmisión ($t_{\text{tubo libre}}$, t_{muestra} y $t_{\text{background}}$) el tiempo total asignado a un experimento de modo de obtener una transmisión con una incerteza estadística mínima. La distribución óptima de tiempos obtenida depende de la transmisión de la muestra y de las tasas de conteo de cada una de estas tres configuraciones. También se analizó el caso en el cual la transmisión de la muestra puede ser seleccionada a voluntad, por ejemplo variando su espesor. Para este caso se obtuvo el valor óptimo de la transmisión como función del nivel de background del instrumento. Se muestran diferentes ejemplos de interés y se comparan los resultados obtenidos con aquellos previamente publicados, en los cuales no se considera la contribución debida al background. Se muestra que, siguiendo las recomendaciones del trabajo realizado, una sección eficaz total con una dada incerteza estadística puede ser obtenida en un tiempo de irradiación notoriamente menor al requerido en las configuraciones normalmente empleadas. Dado que el alcance

de este trabajo trasciende el caso particular del LINAC del CAB estos resultados están siendo volcados a una publicación internacional [4].

3. Respecto al desarrollo experimental de la técnica de transmisión, se ha finalizado exitosamente la construcción de un nuevo banco de detectores de menor tamaño que el del actualmente en operación. Este avance permite reducir la incerteza en la posición de detección, y con ello la incerteza en la energía del neutrón detectado. A tal fin se han utilizado detectores de neutrones de ^3He de $ijff$ de diámetro. Por su parte, tal como se muestra en la referencia [3], actualmente continúa siendo necesario reducir la contribución al contaje debida a los neutrones de fondo. Este nuevo banco contribuye a lograr este objetivo ya que reduce el volumen activo de detección que se encuentra fuera del haz incidente.

2.2. Desarrollos en la técnica de dispersión inelástica profunda de neutrones (DINS)

La técnica DINS constituye una de las herramientas principales que permiten obtener experimentalmente las distribuciones de velocidades de los átomos que componen una muestra. Gran parte de las tareas que realizadas han tenido como objetivo principal el desarrollo de esta técnica. La técnica DINS consiste básicamente en detectar los neutrones dispersados por una muestra a un determinado ángulo, filtrando los neutrones emergentes con un material que posee una resonancia nuclear en energías del orden del eV. La diferencia entre los espectros tomados con filtro y sin filtro en el haz dispersado brinda un análisis en energía final que permite acceder a la distribución de momentos de partícula independiente. Se finalizó la puesta a punto y caracterización de diversos aspectos de un espectrómetro dedicado a la técnica DINS. Dicho espectrómetro emplea un banco de detectores recientemente puesto en funcionamiento en nuestro Laboratorio. En este marco, y continuando con el desarrollo de dicha técnica, se realizaron las siguientes tareas en el terreno experimental tendientes a optimizar y caracterizar la técnica

1. Hemos realizado y caracterizado mejoras que permiten reducir notablemente la contribución debida a neutrones de fondo en experimentos de DINS. Estas mejoras consistieron en blindar la parte trasera del banco de detectores (esto es la parte de los detectores que no mira hacia la muestra) con láminas cilíndricas que hemos construido con parafina fundida mezclada con carburo de boro (fuerte absorbente de neutrones). El espesor de dicho blindaje, aproximadamente 5 mm, fue definido de modo de atenuar el fondo sin incrementar innecesariamente el material existente en forma próxima a los detectores. Este blindaje permitió reducir aproximadamente a la mitad el ruido de fondo, y

con ello aproximadamente a la mitad el tiempo de irradiación necesario para la obtención de un espectro de DINS con una dada incerteza estadística. Dado que la utilidad del material desarrollado trasciende el marco de presente trabajo (siendo útil como blindaje neutrónico en una gran diversidad de instrumentos), la caracterización detallada del mismo han dado origen a una publicación internacional con referato [5].

2. Se ha caracterizado en forma detallada la eficiencia en función de la energía del espectrómetro de DINS recientemente puesto en operación. A tal fin se ha utilizado la calibración recientemente efectuada del espectro de neutrones incidentes [6, 7, 8, 9], la cual ha sido extendida a mayores energías y verificada con detectores de neutrones de ^3He de mayor eficiencia. Basándose en dicho espectro incidente, se han empleado muestras de plomo de diferentes dimensiones como calibrador.
3. En lo que respecta al tratamiento de los espectros obtenidos mediante la técnica DINS hemos aplicado la metodología que se muestra en la referencia [10] a las diferentes muestras de interés (polietileno, grafito, mezclas de agua liviana y agua pesada). Esta metodología es de fundamental importancia ya que ha permitido corregir los espectros obtenidos por los efectos de scattering múltiple y atenuación existentes en la muestra, accediendo así a la contribución al contaje debida exclusivamente a procesos de scattering simple. Tal como se muestra en [10], sólo después de haber caracterizado el instrumento y de haber realizado estas correcciones es posible obtener información confiable del sistema dispersor. A fin de verificar la metodología de análisis de datos, y el correcto funcionamiento y caracterización del espectrómetro implementado hemos realizado experimentos de DINS con muestras de diferentes tamaños de los materiales antes mencionados. Estos sistemas dispersores fueron previamente estudiados mediante técnicas neutrónicas independientes y bien establecidas (transmisión y difracción de neutrones entre otras). Luego de las mencionadas caracterizaciones y correcciones hemos obtenido resultados que muestran un muy buen acuerdo con los predichos por los modelos empleados.
4. Los logros mencionados en los puntos anteriores han sido de fundamental importancia ya que, una vez optimizado y caracterizado el espectrómetro de DINS y validado el método de análisis de los datos experimentales, hemos dejado en operación en nuestro país un instrumento de gran utilidad para el estudio de la dinámica de la materia condensada. Es de notar que, previo a la realización de este trabajo, el único instrumento de DINS se encontraba en funcionamiento en la instalación ISIS del Rutherford Appleton Laboratory, Inglaterra, donde durante más de diez años se concentró prácticamente toda

la actividad experimental relacionada con esta técnica. En este contexto vale destacar que en numerosos trabajos realizados en la mencionada instalación se han reportado resultados que, luego de utilizar un formalismo aproximado para el procesamiento de los datos, fueron atribuidos al supuesto descubrimiento de nuevos fenómenos físicos (secciones eficaces neutrónicas anómalas). Esto ha dado origen a una situación controversial en el marco de la cual hemos publicado diversos trabajos [11, 12, 13, 14, 15, 16, 17]. En este contexto el espectrómetro de DINS que hemos puesto en operación constituye una herramienta de gran utilidad que ha permitido consolidar un grupo de investigación independiente en este campo. De hecho dicho espectrómetro ha sido recientemente utilizado a fin de analizar experimentalmente la existencia de las mencionadas secciones eficaces neutrónicas anómalas. Concretamente, a tal fin, durante 2008 hemos realizado experimentos de DINS en diferentes mezclas de agua liviana y agua pesada (como así también en dichos elementos puros) y hemos obtenido como resultado secciones eficaces neutrónicas de tales sistemas en perfecto acuerdo con los valores tabulados, confirmando así la ausencia de las anomalías antes mencionadas. Tal como puede verse en la referencia [18] estos resultados han tenido un alto impacto. Estos resultados constituyen una clara evidencia experimental de que el método aproximado usualmente empleado por los usuarios de ISIS para el tratamiento de los datos conduce a resultados erróneos, dando sustento experimental adicional a la relevancia de las críticas que en diversos trabajos previos hemos realizado a la metodología usualmente empleada para el tratamiento de los datos de DINS. A la luz de los resultados recientemente publicados en [18] se hace aún más evidente la imperiosa necesidad de analizar la validez de numerosos trabajos publicados durante la última década empleando la técnica DINS.

5. Se ha caracterizado la sensibilidad y resolución de la técnica DINS para su empleo en espectroscopía de masas no destructiva para el caso particular de la detección de hidrógeno. El límite de detección actual empleando el LINAC del CAB es aproximadamente 200 ppm de contenido en peso de H en aleaciones metálicas a base de zirconio. Este límite de detección requiere dos semanas de irradiación. Respecto a la resolución ha sido posible la determinación de hidrógeno en forma discriminada de la de otros elementos. Esta caracterización ha sido basada en los resultados obtenidos con diferentes mezclas de agua liviana y agua pesada. Se prevé extender esta aplicación a núcleos de mayor masa que la del hidrógeno (deuterio, carbono y zirconio, entre otros).
6. Luego de haber probado en el intenso campo de radiación producido por el LINAC diferentes componentes electrónicos disponibles en

nuestro Laboratorio, durante 2008 hemos efectuado la importación de diversos componentes electrónicos necesarios para el desarrollo de la técnica DINS (detectores de mayor eficiencia, fuentes de alta tensión, preamplificadores, amplificadores, discriminadores, unidades de coincidencias, generadores de compuestas temporales, etc.). Asimismo estos elementos, actualmente disponibles en nuestro laboratorio, permitirán la construcción de un segundo banco de detectores que será ubicado simultáneamente en otro ángulo de scattering.

2.2.1. Distribuciones de impulsos estudiadas con otra técnica experimental

Investigamos la distribución de momentos en el para-Hidrógeno líquido a 16.5 K. El interés básico de esta investigación consiste en que tratándose de un sistema con fuertes interacciones cuánticas de intercambio, es de esperar un notable apartamiento respecto del Gaussiano predicho por un cálculo clásico basado en las distribuciones de Maxwell-Boltzmann. Este comportamiento, que se conoce de manera acabada en el Helio, no está bien cuantificado en el caso del hidrógeno líquido, y de ahí su interés.

El trabajo fue realizado en colaboración con el Prof. Francisco Javier Bermejo del Instituto de Estructura de la Materia del CSIC (España) y el Prof. Manfred Ristig de la Universidad de Colonia (Alemania), mediante la realización de un experimento en el espectrómetro MARI del Rutherford Appleton Laboratory (RAL) (Gran Bretaña) [19]. Este espectrómetro permite trabajar con un haz de neutrones incidente pulsado monocromático (450 meV en este caso) de alto flujo. Varios conjuntos de detectores cubren un amplio rango angular, y las energías son determinadas por tiempo de vuelo. Así es posible estudiar la ley de scattering del sistema dispersor en un amplio rango de transferencias de energía e impulso. La energía seleccionada, nos sitúa en el régimen de tiempos cortos de colisión aunque debajo del umbral de 516 meV correspondiente a las vibraciones intramoleculares, lo que simplifica el análisis. Cabe destacar que esta situación no es posible con la técnica DINS, donde el haz incidente es policromático.

Los estados estudiados correspondieron a diferentes densidades a una temperatura de 16.5 K. Para el análisis de los datos fue preciso hacer una detallada corrección por scattering múltiple y atenuación, desarrollada por nosotros previamente [20, 21, 22].

Para el análisis posterior de forma de picos, desarrollamos un código de ajuste interactivo, basado en las bibliotecas MINPACK y SLATEC. La función de forma de pico utilizada, convolucionada con la resolución experimental es la función de ajuste. Los parámetros resultantes dan la energía cinética media, y el gradiente del potencial interpartícula, lo que permite comparar los resultados con potenciales validados independientemente por otros cálculos. Los resultados de energías cinéticas obtenidos muestran discrepancias espe-

radas respecto de los cálculos clásicos y se comparan favorablemente con la teoría de Correlated Density Matrix (CDM), y la técnica de simulación numérica Path Integral Monte Carlo (PIMC) que incluyen explícitamente los efectos cuánticos

El complejo análisis de este experimento involucró numerosos desarrollos de software originales, que serán aplicados en el futuro en experimentos de este tipo.

Referencias

- [1] “Total cross section of solid mesitylene, toluene and a mixture of them at thermal neutron energies”, L.A. Rodríguez Palomino, F. O. Cantargi, J. J. Blostein, J. Dawidowski, J. R. Granada, Nuclear Instruments and Methods B 267, 175 (2009).
- [2] “Experimental neutron data: Total cross section of solid mesitylene toluene and a mixture of them at thermal neutron energies”, L.A. Rodríguez Palomino, F. Cantargi, J.J. Blostein, J. Dawidowski, J.R. Granada, Nuclear Data Section, IAEA, EXFOR 31662 (aceptado 2008).
- [3] “Optimización de experimentos de transmisión de neutrones”, J.J. Blostein, Informe Técnico CNEA-CAB 420 067 07, Centro Atómico Bariloche, 2007.
- [4] “Optimization of neutron transmission experiments”, J.J. Blostein, en realización para su envío a Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.
- [5] “Enhanced plastic neutron shielding for thermal and epithermal neutrons” L.A. Rodríguez Palomino, J.J. Blostein, J. Dawidowski, G.J. Cuello, Journal of Instrumentation 1, P06005 (2008).
- [6] “Caracterización del haz incidente de neutrones utilizado en experimentos de dispersión inelástica profunda de neutrones”, J.J. Blostein, L.A. Rodríguez Palomino, J. Dawidowski, Informe Técnico CNEA-CAB 42006807, Centro Atómico Bariloche, 2007.
- [7] Nuevo espectrómetro de dispersión inelástica profunda de neutrones para el estudio de la materia condensada, J.J. Blostein, L.A. Rodríguez Palomino, J. Dawidowski, 93a Reunión Nacional de la Asociación Física Argentina y XI de la Sociedad Uruguaya de Física, Buenos Aires, 15 al 19 de Septiembre de 2008.
- [8] Estudio de la dinámica de átomos livianos usando la técnica de dispersión inelástica profunda de neutrones implementada en el Centro Atómico Bariloche, L.A. Rodríguez Palomino, J.J. Blostein, J. Dawidowski, 93a

Reunión Nacional de la Asociación Física Argentina y XI de la Sociedad Uruguaya de Física, Buenos Aires, 15 al 19 de Septiembre de 2008.

- [9] Estudio de la interacción de neutrones con mezclas de agua liviana y agua pesada mediante la técnica de dispersión inelástica profunda de neutrones, J. Dawidowski, J.J. Blostein, L.A. Rodríguez Palomino, XXI Jornadas de Investigación y III de Posgrado de la Universidad Nacional de Cuyo, Mendoza, 1 al 3 de octubre de 2008.*
- [10] “Multiple scattering and attenuation corrections in Deep Inelastic Neutron Scattering experiments”, J. Dawidowski, J.J. Blostein and J.R. Granada, *Journal of Instrumentation* **1**, P06002 (2006).
- [11] “On the analysis of deep inelastic neutron scattering experiments for light nuclei”, J.J. Blostein, J. Dawidowski, J.R. Granada, *Physica B* **304**, 357 (2001).
- [12] “Analysis of peak areas in deep inelastic neutron scattering on a H₂O/D₂O mixture”, J.J. Blostein, J. Dawidowski y J.R. Granada, *Physica B* **334**, 257 (2003).
- [13] “Final energy distributions in Deep Inelastic Neutron Scattering experiments”, J.J. Blostein, J. Dawidowski y J.R. Granada, *Nucl. Instr. Meth. B* **217**, 333 (2004).
- [14] “Formalism for obtaining nuclear momentum distributions by the Deep Inelastic Neutron Scattering technique”, J.J. Blostein, J. Dawidowski y J.R. Granada, *Phys. Rev. B* **71**, 054105 (2005).
- [15] “Search for anomalous effects on H₂O/D₂O mixtures by neutron total cross section measurements”, J.J. Blostein, J. Dawidowski, S.A. Ibáñez y J.R. Granada, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 105302, (2003).
- [16] “Blostein, Dawidowski, and Granada Reply”, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 249602 (2004).
- [17] “Critique on the measurement of neutron cross-sections by the Deep Inelastic Neutron Scattering technique”, J.J. Blostein, J. Dawidowski, J.R. Granada, 2006; <http://arxiv.org/abs/physics/0601221>
- [18] “Measurements of the neutron cross sections of hydrogen and deuterium in H₂O/D₂O mixtures using the deep inelastic neutron scattering technique”, J.J. Blostein, L.A. Rodríguez Palomino, J. Dawidowski, *Physical Review Letters*, **102**, 097401 (2009).
- [19] “Density dependence of the momentum distributions in liquid parahydrogen”, J. Dawidowski, F. J. Bermejo, M. L. Ristig, C. Cabrillo, S. M. Bennington, *Phys. Rev. B* **73**, 144203 (2006).

- [20] “Efficient procedure for the evaluation of multiple scattering and multiphonon corrections in inelastic neutron-scattering experiments”. J. Dawidowski, F. J. Bermejo, y J. R. Granada, *Phys. Rev. B* **58**, 706 (1998).
- [21] “The physics of Liquid para-Hydrogen”, Thomas Lindenau, Manfred L. Ristig Klaus A. Gernoth, Javier Dawidowski, Francisco J. Bermejo, *International Journal of Modern Physics B*, **20** 5035 (2006).
- [22] “The physics of liquid Para-Hydrogen”, Thomas Lindenau, Manfred L. Ristig, Klaus A. Gernoth, Javier Dawidowski, Francisco J. Bermejo, arXiv:cond-mat/0602397 v1 16 Feb 2006.