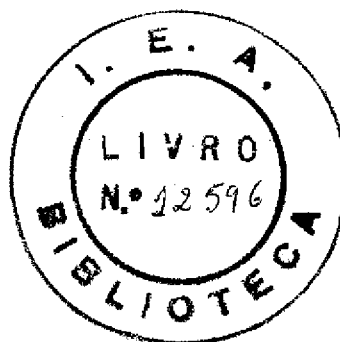


CARLOS BENEDICTO RAMOS PARENTE

DIFRAÇÃO MÚLTIPLA DE NÊUTRONS

EM UM CRISTAL DE ALUMÍNIO



Tese de doutoramento
apresentada ao Insti-
tuto de Física da Uni-
versidade de S. Paulo

São Paulo

Dezembro de 1972

À memória de meu pai

À minha mãe

À Martha e ao Marcelo

ESTE TRABALHO FOI REALIZADO NO DIFRATOMETRO DE NEUTRONS DO GRUPO DE CRISTALOGRAFIA DO INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA (IEA), COM O APOIO FINANCEIRO DA COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR (CNEN). FOI O SEU ORIENTADOR:

PROF. DR. STEPHENSON CATICHA-ELLIS.

AGRADECIMENTOS

Meus agradecimentos ao Prof. Dr. Stephenson Caticha-Ellis pela orientação desta tese. A ele devo também os meus conhecimentos em cristalografia.

Agradeço ao Prof. Dr. Marcello Damy de Souza Santos pelo apoio dado durante a construção do difratometro de nêutrons.

Ao Dr. Silvio Bruni Herdade, que participou do projeto do difratometro, agradeço a orientação recebida e o interesse que sempre demonstrou.

Meus agradecimentos:

Ao Dr. Norris G. Nereson e ao Dr. Robert G. Wenzel, "experts" da IAEA, que contribuíram com seus conhecimentos para a construção do difratometro.

Aos físicos Kouji Harada e Yukio Koishi, pela colaboração em todas as fases de construção do difratometro.

Ao Dr. Giancarlo M. Borgonovi, pela elaboração dos programas de computador de indexação e de integração numérica, dos quais derivamos muitos dos programas utilizados.

Ao Dr. Roberto Fui faro pelos muitos "reprints" de trabalhos cedidos e pelas valiosas discussões sobre eles.

Aos supervisores e operadores do reator, que sempre colaboraram quando solicitados.

Aos bolsistas Adriano Antonio Natale e Arnaldo Adam Wahl pelo esforço e dedicação com que se empenharam nas tarefas ligadas a esta tese.

Aos integrantes da Oficina Mecânica do IEA, representados pelo Eng. Antonio Ribeiro e pelo Sr. Gilberto David, pela construção de

muitas das partes do difratômetro e dos aparelhos utilizados para esta pesquisa.

Ao Sr. Alvaro Seixas e seus colaboradores, pelo excelente serviço fotográfico.

Aos integrantes da Grafica do IEA, representados pelo Sr. Jose Florentino dos Santos, pelos esforços dispendidos na impressão desta tese.

A Sra. Geny C. Bacchmi pelos serviços de datilografia.

Ao Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni, Superintendente do IEA, pelas facilidades oferecidas ao desenvolvimento dos trabalhos e para a edição desta tese.

INDICE

Pág..

<u>CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO</u>	1
<u>CAPITULO II - APARELHAGEM</u>	13
II.1 TM PREÂMBULO	13
11.2 - DESCRIÇÃO GERAL DE UM DIFRATÔMETRO DE NEUTRONS	14
11.3 - O DIFRATÔMETRO DE NEUTRONS DO IEA PARA AMOSTRAS POLICRISTA- I TNA^	19
11.3.1 - o primeiro colimador	19
11.3.2 - A blindagem do feixe direto e a plataforma móvel ...	21
11.3.3 - O segundo colimador	22
11.3.4 - O espectrômetro	23
11.3.5 - O terceiro colimador	23
11.3.6 - A blindagem do detector	24
11.3.7 - O sistema monocromador	26
11.3.8 - O sistema de operação do difratômetro	32
11.4 - O DIFRATÔMETRO DE NEUTRONS DO IEA PARA AMOSTRAS MONOCRISTA- LINAS	41
11.4.1 - Modificações no espectrômetro	44'
11.4.2 - O goniostato para monocristal's	45
<u>CAPITULO III - CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS SOBRE A DIFRAÇÃO MULTIPLA DE NEUTRONS EM CRISTAIS MOSAICOS</u>	51
III.1 ~ CRISTAIS MOSAICOS	51
111.2 - EQUAÇÕES DIFERENCIAIS DAS INTENSIDADES DOS FEIXES. CRISTAL MOSAICO IDEALMENTE IMPERFEITO	53
111.3 - PARÂMETROS QUE ENTRAM NAS EQUAÇÕES DIFERENCIAIS	57
111.3.1 - A refletividade linear	57
III.3.1a- O fator de estrutura	61
III.3.1b- O fator de Debye-Waller	62
111.3.2 - O coeficiente de absorção linear efetivo	64

	<u>Pág.</u>
III.4 - RESOLUÇÃO DO SISTEMA DE EQUAÇÕES DIFERENCIAIS	69
III.4.1 - Solução aproximada: Expansão em série de Taylor	70
III.4.1a- Termo geral da expansão em série de Taylor	75
<u>CAPITULO IV - REALIZAÇÃO EXPERIMENTAL</u>	80
IV.1 - O ARRANJO EXPERIMENTAL	80
IV.2 - OS PRIMEIROS RESULTADOS EXPERIMENTAIS	85
IV.3 - O COLIMADOR ESPECIAL	88
IV.4 - FIGURA DE DIFRAÇÃO MÚLTIPLA DA REFLEXÃO (111) DE UM CRISTAL DE ALUMÍNIO	93
IV.5 - SIMETRIA DO DIAGRAMA DE DIFRAÇÃO MÚLTIPLA. DETERMINAÇÃO DA ORIGEM PARA UM CRISTAL CUBICO CFC	94
IV.6 - RESULTADOS EXPERIMENTAIS FINAIS	99
<u>CAPÍTULO V - RESULTADOS E DISCUSSÕES</u>	109
V.1 - DETERMINAÇÃO DO COMPRIMENTO DE ONDA DOS NÊUTRONS EFETI- VAMENTE ESPALHADOS EM FORMA MÚLTIPLA	109
V.2 - DETERMINAÇÃO DA LARGURA DE MOSAICO NA DIFRAÇÃO MÚLTIPLA DE UM CRISTAL DE ALUMÍNIO	117
<u>CAPÍTULO VI - CONCLUSÕES GERAIS</u>	127
APÊNDICE I - SOLUÇÃO APROXIMADA DAS EQUAÇÕES DIFERENCIAIS DE VARIAÇÃO DE POTÊNCIA	i
APÊNDICE II - CALCULO DOS COMPRIMENTOS DAS PLACAS DO COLIMADORxiii
APÊNDICE III- CÂLCULO DOS COMPRIMENTOS MÉDIOS DOS FEIXESxvii
APÊNDICE IV - PROGRAMAS DE COMPUTADOR UTILIZADOS	xxi
BIBLIOGRAFIA	xxxii

CAPITULO I

INTRODUÇÃO

A existência do fenômeno, que se tornou conhecido como difração múltipla, foi constatado primeiramente por R. WAGNER que, no ano 1920 o apresentou como causador da diminuição da intensidade observada de uma difração de raios-X por uma família de planos de um cristal» É o efeito que foi chamado de «efeito de renningering» Sã mais tarde, em 1937y: M, RENNINGER verificou-se que também poderia haver um aumento da intensidade observada na difração de raios-X por planos de fraco poder reflexivo. Em um dos casos, Renninger analisou a intensidade da reflexão proibida (222) do diamante» Girando o cristal em torno do vector de espalhamento dessa reflexão, ele observou variações muito grandes da intensidade, muito embora ela etewsse ser praticamente nula. Renninger deu a essas variações o nome de «oscilações de intensidade» Ele observou também flutuações de intensidade, tanto positivas como negativas, em reflexões de intensidade normal, no diamante e no sal-gema,

O conceito de espaço recíproco aliado a formulação de EWALD das condições de reflexão, permitem visualizar um cristal como uma rede de pontos nesse espaço, onde cada ponto representa uma família de planos racionais do cristal « Quando um feixe de radiação incide no cristal, para que esse feixe seja difratado é suficiente que um dos pontos da rede esteja sobre a superfície de uma esfera que tem raio igual ao inverso do comprimento de onda do feixe e centro no raio incidente - (que passa pelo centro da esfera) a qual também esta sobre a superfície da esfera. Nesta situação, surgirá um feixe difratado que tem

a direção do raio da esfera que passa por esse ponto em sua superfície. A figura I.la. mostra a reflexão de um feixe incidente por um ponto da rede. Outros pontos da rede podem estar acidental ou propositalmente sobre a superfície da esfera, produzindo outros tantos feixes difratados. Pode-se provocar sistematicamente o aparecimento de reflexões múltiplas girando-se o cristal em torno do vector de espalhamento, vector que une a origem ao ponto 1 que produz a reflexão, a qual de agora em diante chamaremos de primária (o feixe correspondente será chamado de primário). Este giro da rede direta implica no giro da rede recíproca e quando um ponto 2 dela, interceptar a esfera de reflexão, produzir-se-á um segundo feixe difratado. Um feixe deste tipo será chamado de secundário e a reflexão será uma reflexão secundária. Deve-se observar que ela não se diferencia de uma reflexão primária a não ser pelo fato de que normalmente o que se mede, e a intensidade da reflexão primária, que resulta alterada quando uma, ou mais, reflexões secundárias se fazem presentes. Na figura I.la. é apresentada a situação da rede recíproca durante o giro, e a seta no ponto 2 indica que ele está sendo levado a interceptar a superfície da esfera, ocasião em que dará origem a um segundo feixe difratado, Como dissemos, é possível a ocorrência de várias reflexões simultaneamente, mas para efeito de clareza consideramos apenas duas, a primária e a secundária, como na figura I.lb. A alteração da intensidade primária observada ocorre porque o feixe incidente, que antes só fornecia potência para o feixe difratado primário, quando do surgimento da reflexão secundária, deve fornecer potência também para esta, que passa a competir com a reflexão primária. A competição se faz da seguinte forma: o feixe incidente ao percorrer o interior do cristal é difratado numa fração constante por unidade de comprimento percorrido, fração que depende de uma série de parâmetros mas depende também da família de planos considerada. Se são duas reflexões simultâneas, a fração debitada da potência do feixe incidente é maior, por unidade de comprimento, e o feixe vai decrescendo em intensidade mais rapidamente do que se fosse uma só reflexão. A potência total transferida para o feixe primário resulta portanto ser menor no caso de duas reflexões simultâneas,

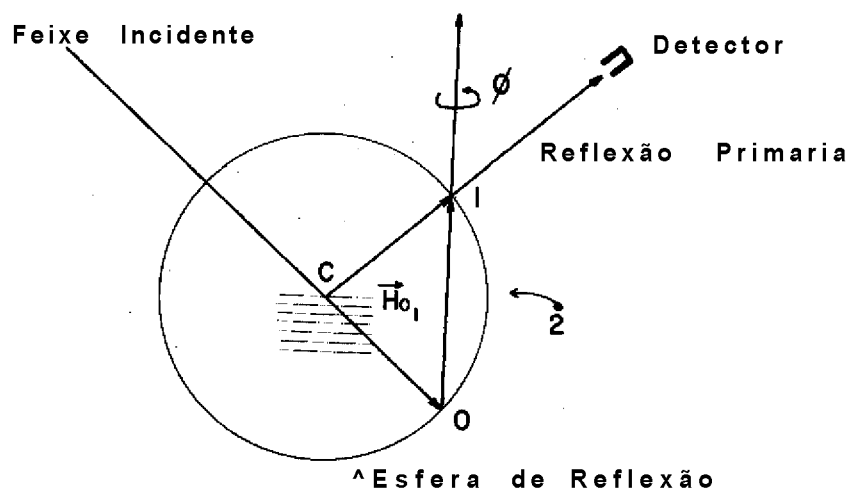


Figura 1.1a - Representação de uma reflexão normal

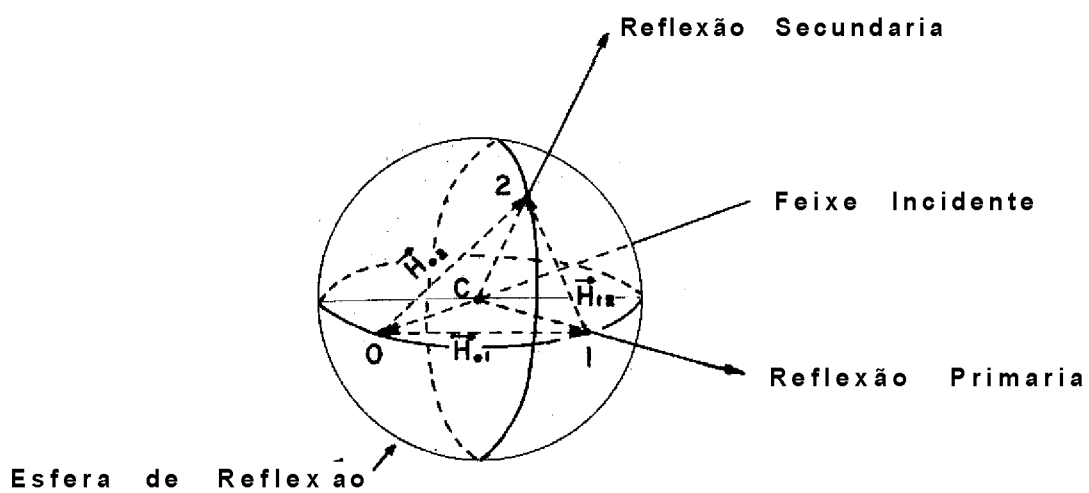


Figura I.1b - Representação de um caso de reflexões múltiplas (3 feixes)

devido ao rápido decréscimo da intensidade do feixe Incidente. Mas não é só isso o que acontece. O feixe primário, por sua vez, ao percorrer o interior do cristal, pode ser difratado na direção do feixe secundário, e na direção do próprio feixe Incidente, sendo que esta última reflexão ocorre independentemente da existência da reflexão do feixe secundário. Vê-se então que o feixe primário também sofre diminuição de sua intensidade pela via direta, isto é, pela difração na direção do feixe secundário. É claro que o feixe secundário, de forma semelhante ao feixe incidente e ao primário, pode ser também difratado, devolvendo potência aos dois. Em resumo, no caso de 3 feixes, os processos existentes podem ser esquematizados da seguinte forma, onde 0 é o feixe incidente, 1 o feixe primário e 2 o feixe secundário,

0	→•!	incidente-primario
0	→v2	incidente-secundario
1	→*1	primario-secundario
2	→•!	secundario-primario
1	→-0	primario-incidente
2	→-0	secundario-incidente

Em um caso geral, de n feixes, são $n(n-1)$ processos, o que dá uma idéia da complexidade que pode resultar quando aumenta o número de planos difratando simultaneamente.-

A análise da intensidade desses feixes resulta não ser trivial pois se tem um sistema acoplado em que cada um dos n feixes esta sendo difratado na direção dos $n-1$ feixes restantes (eventualmente, alguns dos processos podem corresponder a reflexões proibidas, não havendo portanto transferência de energia de um feixe para outro). **R.M.MOON** e **C.G.SHULL** (1964) apresentam as equações que descrevem a variação de potência dos feixes envolvidos em um fenômeno de difração múltipla, quando esses feixes atravessam uma camada dx , a uma profundidade x da superfície de incidência de uma placa plana

cristalina, O sistema de equações formado encontra-se no capítulo III, bem como são apresentadas soluções para esse sistema. A solução apresentada por *Moon & Shull*, para a potência no feixe primário, é uma solução aproximada obtida por expansão em série de *TAYLOR* dessa potência, em torno do ponto $x = 0$, e é válida somente no caso Laue e não no caso Bragg, como é afirmado no trabalho. Essas equações foram rerepresentadas por *s. C4 TICHA-ELLIS* (1969), que encontrou a solução geral exata no caso geral, Laue e Bragg ou uma combinação qualquer de reflexões Laue e Bragg, dando também soluções aproximadas por desenvolvimento em série de *Taylor* e levando em conta a absorção e a polarização. Este trabalho, embora a sua parte experimental seja de raios-X, é válido tanto para raios-X como para nêutrons, No trabalho de *Moon & Shull* a parte experimental é de nêutrons e admite-se que o cristal não absorve a radiação e, obviamente que não ha polarização. Os resultados são parcialmente válidos só para o caso de nêutrons, absorção baixa ou nula, e, como já citado, somente no caso de reflexão Laue.

Evidentemente uma solução desse tipo depende da convergência da série e de se considerar um número suficiente de termos para que a aproximação seja considerada boa. A convergência da série depende dos produtos $\sum_{i,j} Q_{ij} \cdot \mu_i \cdot L$, onde Q_{ij} é a refletividade linear no processo $i \rightarrow j$, μ_i é o coeficiente de absorção linear efetivo do cristal e L é o comprimento percorrido pelo feixe i no cristal. Quando esses produtos obedecem às condições:

$$Q_{ij} \cdot \mu_i \cdot L \ll 1 \quad \text{e} \quad \sum_{i,j} Q_{ij} \cdot \mu_i \cdot L \ll 1 \quad (1,1)$$

a convergência da série é rápida, e bastam poucos termos da série para que a solução seja boa. Nestas condições é que se colocam *Moon & Shull*, impondo que o cristal tenha baixa extinção secundária, o que limita a sua espessura (de um modo geral a uma fração de milímetro) e conseqüentemente limita também a possibilidade de comprimentos muito grandes (exceção feita no caso do feixe ser paralelo ou quase paralelo às faces do cristal), A imposição de que o cristal seja pouco absorvedor, ve

rifica-se normalmente para a maioria dos cristais em difração de nêutrons. Com estas imposições as duas condições de convergência (1.1) se verificam, e expansões em termos de até terceira ordem, ou mesmo segunda ordem em alguns casos, conduzem a boas aproximações no cálculo de intensidade dos feixes. Moon & Shull analisam a intensidade dos picos da reflexão (200) de um cristal de ferro, em diversas condições de espessura e de dimensões da área exposta ao feixe. A espessura máxima de cristal que eles utilizam é de 1,40mm e, neste caso, bem como em outros, em que a espessura é ainda muito grande para se considerar a extinção secundária desprezível, nenhum cálculo de intensidade é feito. Somente no caso em que a espessura é de 0,6mm é que eles fazem uma comparação entre as intensidades calculadas e as intensidades obtidas experimentalmente, nos casos de reflexão e transmissão simétricas. Quando os feixes são muito longos, como aqueles paralelos às faces do cristal, eles introduzem termos de terceira ordem no cálculo, para melhorar a aproximação dos resultados. Catioha-Ellis, no trabalho já citado, analisa os produtos $Q - \mu^2$ e μ^2 no caso de raios-X. Neste caso, diferentemente do que acontece com nêutrons, eles não podem atingir valores muito altos, mesmo que o cristal seja espesso, pelo fato de que os comprimentos dos feixes são limitados pela absorção relativamente alta (quando comparada aos nêutrons) dessa radiação pela natureza dos cristais. Para cristais muito absorvedores, no caso de reflexões simétricas, Catioha-Ellis mostra que $\mu^2 < 1/(2y)$, ou seja, os produtos $Q - \mu^2$ são $< 0,5$, o que não satisfaz integralmente a segunda desigualdade das expressões (K1). Por sua vez, sendo os μ^2 muito pequenos, por força de serem limitados pela absorção, os produtos $Q - \mu^2$ normalmente são da ordem de 0,01 a 0,1, satisfazendo a primeira condição expressa em (1.1), de modo satisfatório. Catioha-Ellis sugere que no caso de cristais muito absorvedores sejam considerados termos de ordens mais altas. Ele dá a aproximação de terceira ordem para o caso em que o feixe secundário é transmitido e o feixe primário é refletido. Torna-se patente nestes dois trabalhos que são necessárias condições especiais para a validade das aproximações feitas, o que nem sempre acontece na prática. Isto é mais verdadeiro ainda no caso da di-

fração múltipla de neutrons, onde cristais com pouco mais de um milímetro de espessura já estão fora das condições de baixa extinção secundária e, portanto, das condições de rápida convergência das series de *Taylor*. Entretanto, do ponto de vista da determinação de estruturas com a difração de neutrons, são justamente os cristais bem finos, mais finos do que os usualmente empregados em raios-X é que devem ser usados. A razão disto foi demonstrada por *G.E. BACON & RD, JD*. t am **MO** trabalho bastante conhecido sobre extinção secundária e cristalografia com neutrons (*Bacon & Lowâe*, 1948). Afirmaram eles que, se um cristal mosaico tem alta absorção para neutrons, a refletividade integrada é proveniente de uma camada bem fina da superfície do cristal, e esta refletividade integrada, no caso de cristais espessos, é igual a $Q/(2p)$, portanto proporcional a F^2 como acontece em um bloco mosaico perfeito (Q , refletividade integrada por unidade de volume de um bloco mosaico perfeito, e proporcional a F , como pode ser verificado na expressão (3.8) do capítulo III.) Quase que invariavelmente, em raios-X se tem este caso, pelo motivo já exposto de que, em geral, a absorção dos cristais é bastante alta para esse tipo de radiação. A medida de intensidade integrada dos picos de difração de neutrons, neste caso, leva à determinação correta do fator de estrutura F , e uma análise similar à empregada com raios-X pode ser usada. Mas são poucos os cristais que podem ser enquadrados na categoria acima: a grande maioria é formada de cristais pouco absorvedores de neutrons, como aliás já mencionamos. Em cristais pouco absorvedores e espessos, a penetração de um feixe de neutrons não está limitada a uma camada fina, como no caso anterior, alcançando um comprimento bem grande dentro da massa cristalina (frequentemente esses feixes são limitados unicamente pelas dimensões do cristal). Nesta situação a refletividade integrada é uma função complicada de Q , y e da largura associada do mosaico n . Se a absorção for igual a zero, a refletividade integrada depende quase que inteiramente de n e, comparativamente, muito pouco de Q . Nestas circunstâncias, a análise estrutural se torna impossível. No caso de um cristal idealmente imperfeito, em um intervalo de variação da razão $Q t./ riYo$ de aproximadamente 2 a 13 (onde $t.$ é

a espessura do cristal, e y_0 (cosseno diretor do feixe em relação à normal as suas faces), a refletividade integrada e praticamente proporcional a $Q^{1/2}$ e portanto a F , sendo o fator de proporcionalidade determinado por n . Este comportamento da refletividade integrada, encontrado anteriormente por *E. FERMI* & *Li MARSHALL* (1947), é comparável ao caso de um cristal perfeito com extinção primária bastante severa, Mas a correspondência, entre as intensidades integradas determinadas experimentalmente e o fator de estrutura, só pode ser estabelecida se n for conhecido. Do exposto resulta que, para um cristal pouco absorvedor e espesso, a análise estrutural é bastante difícil, chegando mesmo a se tornar impossível. Em todo caso, a dependência de F pode ser conseguida, em um cristal pouco absorvedor, com a redução da extinção secundária a um valor muito baixo, de forma que a refletividade integrada seja igual a $Q V$, onde V é o volume difratante do cristal» Essa redução é obtida com a limitação drástica na espessura do cristal. A região da validade da dependência da intensidade integrada de $Q^{1/2}$ pode ser usada na análise estrutural, contudo as expressões existentes foram derivadas para placas cristalinas e estritamente 'deve-se' limitar-se o seu emprego a este caso. Sendo *smatôf* a solução mais adequada e mesmo usar cristais bem finos (quando forem pouco absorvedores) na análise estrutural com nêutrons Foi esta a linha seguida por *Moon* & *Shull** e a teoria deles foi desenvolvida tendo em vista corrigir os efeitos da difração múltipla na intensidade integrada dos picos, procedimento necessário na determinação mais precisa de estruturas. Todavia, nem sempre é este o objetivo, tanto no caso da difração normal como no caso da difração múltipla de nêutrons, o nosso objetivo, por exemplo, era a determinação da largura de mosaico x através da análise de intensidade dos picos de difração múltipla. Neste caso, o que importa é a solução do sistema de equações diferenciais, sem qualquer implicação com a extinção secundária, a qual resultará automaticamente corrigida. Convém notar que essas equações foram deduzidas a partir do modelo do cristal mosaico, proposto por *Darwin*. Sendo assim, elas são válidas exatamente no caso em que há surgimento da extinção secundária e, tanto a solução exata como a aproximada, já a le-

vam em consideração (a extinção primaria não é considerada nas equações, sendo condição essencial que ela seja desprezível), Não existe, portanto, qualquer impedimento ao uso de cristais mais espessos, desde que a solução, a ser empregada na análise de intensidade, seja adequada. Na verdade, a utilização de cristais finos, onde a extinção secundaria é desprezível, constituiu-se na maioria das vezes, em uma impossibilidade técnica. De fato, a espessura, para cristais desse tipo, gira em torno de poucos décimos de milímetro, sendo difícil de se conseguir cortar cristais nessa espessura. Mesmo que se consigam espessuras dessa ordem, a intensidade difratada por uma massa cristalina reduzida, como a desses cristais, será extremamente fraca, o que é agravado pelo fato de que as fontes de nêutrons existentes já são relativamente fracas. Como se isso não bastasse o problema é ainda mais agravado quando se quer obter boa resolução, o que obriga a limitar a divergência angular dos colimadores, como no nosso caso particular.

Bacon & Lowde introduziram alguns critérios para se determinar se um cristal é do tipo fino ou espesso, absorvedor ou não absorvedor:

$$t_0 < \frac{n}{4Q} \text{ (fino)}; \quad t_0 > \frac{50n}{Q} \text{ (espesso)};$$

$$y > \frac{4Q}{r_i} \text{ (absorv.)}; \quad y < \frac{Q}{50r_i} \text{ (nao-absorv.)}$$

Verificamos com esses critérios que o cristal que usamos, um cristal de alumínio na forma de uma placa com dimensões 3" x 3" x 1", com planos (111) paralelos às suas faces maiores, é intermediário na espessura e é não-absorvedor. Calculamos também qual seria a espessura desse cristal para que ele pudesse ser considerado fino e verificamos que essa espessura deveria ser no máximo 1,3mm. Para estes cálculos usamos pa

ra a largura do mosaico n um valor de $0,153^\circ$; e esse valor foi determinado a partir de uma curva de intensidade da reflexão - (111), obtida no método do cristal girante. Espessuras dessa ordem, $T, 3\text{mm}$, são impraticáveis, especialmente no que se refere ao aspecto intensidade. Para contornarmos todos estes problemas e aproveitarmos da vantagem que se tem ao usar um cristal espesso, resolvemos usar a solução aproximada introduzida por *Moon & Shull* calculada porém com mais termos. A solução exata proposta por *Caticha-Ellis* pode ser aplicada nestes casos, mas a sua aplicação depende de programas de computador que resolvam um sistema de n equações lineares simultâneas para a

~

2

-

determinação das n constantes de integração que aparecem nas n expressões que dão as intensidades como soluções no caso de n feixes. Nos casos complicados, portanto, o resultado é numérico, não se tendo expressões analíticas para a solução do sistema. Pelo menos em princípio é possível obter expressões analíticas para a expansão da intensidade dos feixes em série de *Taylor* desde que não se considere muitos termos, ou seja, que a ordem da expansão não seja muito alta. A utilidade dessas expressões analíticas é discutível entretanto, pois elas se tornam mais e mais complicadas e sua obtenção mais difícil com o aumento da ordem da expansão. Na tentativa de obtenção de ordens mais altas da expansão em série de *Taylor*, conseguimos entrever nos resultados a existência de uma lei de formação desses termos. Conseguimos determinar essa lei de modo a se ter o termo geral da expansão. Esse termo geral não tem existência independente dos termos anteriores. E na verdade o resultado de um processo iterativo no qual cada termo é gerado pelo precedente. De qualquer modo, um termo não tem realmente significado quando considerado isolado já que a expansão é a soma de todos eles. Por outro lado, o fato dos termos serem gerados iterativamente, simplifica o cálculo quando feito em computador: com um comando de iteração, é possível obter a expansão até uma ordem n qualquer. Nós fizemos programas usando esse termo geral e em momento oportuno, no capítulo V, serão apresentados os resultados conseguidos.

Com a possibilidade do cálculo das intensidades

dos feixes como expansões em série de Taylor até uma ordem n qualquer, tornou-se possível analisar os picos de difração múltipla da reflexão (111) do cristal de alumínio já mencionado, objetivando-se com isso o **calcul**o de n a partir da razão entre as intensidades de pico e de base (capítulo V). Assim tornou-se possível o estudo de intensidades difratadas por um cristal de espessura intermediária, não são no caso múltiplo, mas também no caso simples, isto é, quando só existe a reflexão primária.

Deve-se citar o fato de que as expressões analíticas para as expansões, podem ser deduzidas mais facilmente, e com menor probabilidade de erro, quando se usa o processo de geração do termo de ordem n , ao invés de se fazer derivações sucessivas.

Esta, esperamos que assim seja considerada, é uma contribuição original deste trabalho ao cálculo de intensidades difratadas, particularmente no caso de difração múltipla em cristais com espessura considerável.

Outras contribuições originais deste trabalho são:

- A determinação do comprimento de onda representativo do feixe monocromático do difratômetro, por meio da posição angular azimutal dos picos de difração múltipla. O resultado conseguido é mostrado no capítulo V.
- Na parte experimental, para melhoria da resolução, projetamos um tipo de colimador de placas paralelas, com baixa divergência angular tanto na horizontal quanto na vertical» A principal característica deste colimador é que ele tem placas descontínuas, isto é, divididas em secções de forma a se poder intercalar os conjuntos de placas horizontais e verticais. O resultado é que o colimador resulta ser de fácil construção e de comprimento bem menor do que se ele tivesse placas contínuas. Pormenores são dados no capítulo IV.

Quanto a estas duas últimas contribuições, te-

mos ainda a dizer que: a primeira delas **foi**, de certa forma , sugerida em um trabalho que é citado no capítulo V. Tomamos conhecimento desse trabalho no final da determinação do comprimento de onda. Quanto à segunda contribuição, nada vimos que pudesse servir de sugestão. Ressalva-se, contudo, que existe a possibilidade de já terem sido construídos radares que se assemelhem ao desenvolvido por nos.

CAPÍTULO II

APARELHAGEM

11.1 - Preâmbulo

O trabalho de que trata a presente tese foi realizado no difratômetro de nêutrons do Instituto de Energia Atômica. Este difratômetro é o resultado de um programa de cooperação entre a Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) e o Instituto de Energia Atômica (IEA).

Na fase inicial do projeto ficou decidido que se construiria um difratômetro de nêutrons para amostras policristalinas. Suas linhas gerais seriam baseadas em difratômetro do mesmo tipo existente no Laboratório Científico de Los Alamos (LASL). Da parte inicial do projeto participaram o Dr. Norris G. Nereson, da IAEA, o Dr. Silvio Bruni Herdade e o autor, ambos do IEA. Em fase posterior, por ocasião da montagem do braço do espectrômetro e início da operação do aparelho, participaram, além do autor, o Dr. Robert G. Wenzel, da IAEA, o pesquisador Kauji Harada e o bolsista Yukio Koishi, ambos do IEA.

Ainda durante a fase de calibração do difratômetro, decidiu-se que seria necessário introduzir um certo grau de automatização da operação do aparelho. O projeto e a supervisão da construção dos mecanismos necessários foram executados pelo autor deste trabalho. Finalmente, para a realização desta tese, foram introduzidas modificações no difratômetro, sugeridas pelo Prof. S. Catioha-Ellis, as quais tornaram possível

o estudo da difração (particularmente difração múltipla) em monocristais. Estas modificações foram realizadas pelo autor, com a colaboração de Kouji Harada e Yukio Koishi*. Em momento oportuno elas serão citadas»

II.2. - Descrição geral de um difratômetro de neutrons

A figura II.1 mostra o esquema geral de um difratômetro de neutrons. Neste esquema, os neutrons provenientes do núcleo (ou caroço) do reator passam pelo primeiro colimador. O feixe colimado que se forma, contém neutrons com energias que se distribuem dentro do espectro de energia do reator. Um monocristal é colocado na direção desse feixe, de modo que uma das suas famílias de planos cristalinos forme um ângulo θ com essa direção. Nesta situação, origina-se no cristal um feixe difratado, cuja direção é simétrica à anterior, com relação à normal aos planos. Este feixe é constituído de neutrons, com uma só energia, que foram selecionados do espectro de acordo com a relação de Bragg:

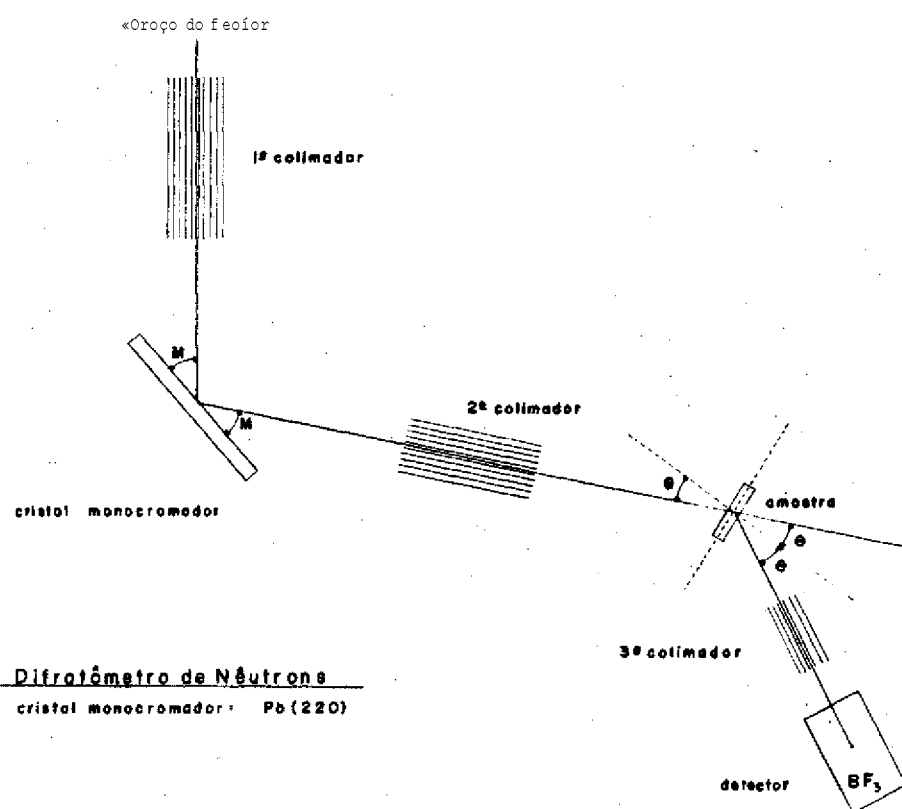
$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2.1)$$

onde λ é o comprimento de onda associado à energia do neutron, d é a distância entre dois planos cristalinos vizinhos e $n = 1, 2, 3, \dots$ é a ordem da reflexão, significando que não somente neutrons com comprimentos de onda λ são separados, mas também os são aquelas com comprimentos de onda $\lambda/2, \lambda/3, \lambda/4, \dots$, etc.

O comprimento de onda λ é dado pela expressão - de (de Broglie):

$$\lambda = \frac{h}{mv}$$

ou, em termos de energia,



Finura II.1 - Disposição esquemática das partes constituintes de um difratômetro de neutrons.

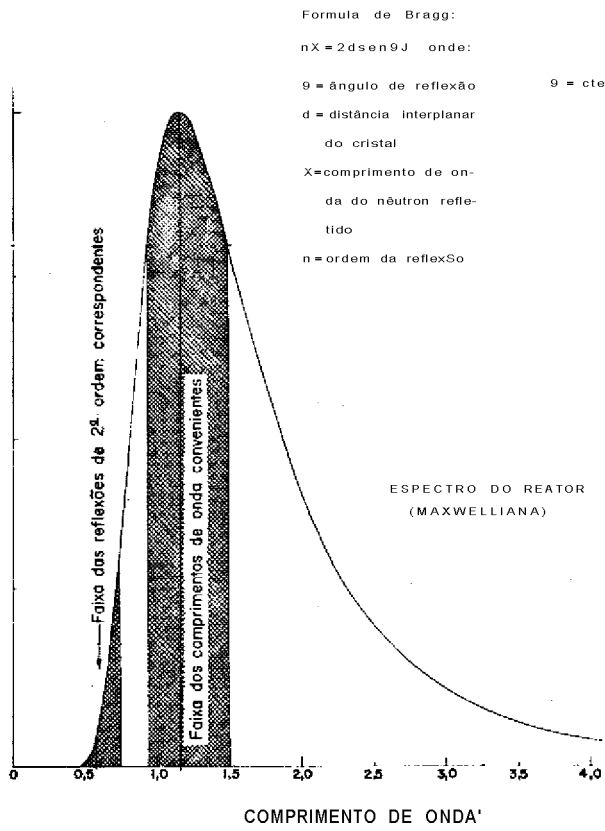
$$X = \frac{h}{2mE}$$

sendo que, nestas expressões, h é a constante de Planck, m é a massa do neutrón, v a sua velocidade e E a sua energia»

O cristal empregado é chamado de cristal monocromador, pois separa neutrões de um só comprimento de onda (monocromáticos) e o ângulo θ é o ângulo de monocromatização.

Os ângulos de difração de uma família de planos bem como o ângulo de monocromatização θ são escolhidos de forma que o comprimento de onda da reflexão de primeira ordem corresponda a uma energia próxima ao máximo do espectro térmico do reator (que tem uma forma praticamente *Maxwelliana*). O intuito é obter boa intensidade do feixe monocromático. A figura **II.2** mostra a faixa de comprimentos de onda que podem ser aproveitados do espectro térmico do reator. Mostra também a faixa dos comprimentos de onda das reflexões de segunda ordem correspondentes. Os feixes monocromáticos que tiverem comprimentos de onda dentro dessa faixa, terão pouca contaminação de neutrões de segunda ordem ou de ordens mais altas. A contaminação, de segunda ordem em particular, poderá ser totalmente desprezível, desde que se adote um comprimento de onda que seja pouco menor do que o valor máximo da distribuição, como se pode verificar com a análise direta da figura **II.2**.

O feixe monocromático obtido atravessa um segundo colimador e incide na amostra. O espalhamento coerente da amostra é analisado por um sistema constituído por um terceiro colimador e um detector de neutrões, montados sobre um braço que gira em torno da amostra e forma um ângulo θ com os planos cristalinos da mesma. Estes planos difratam segundo a mesma relação de Bragg aplicada no caso do monocromador (2.1). De um modo geral, um difratômetro de neutrões assemelha-se a um difratômetro de raios-X, a não ser pelo fato que no



ESCOLHA DO MONOCRISTAL

e=ie

	Aluminio a = 4,041 Å		Chumbo a = 4,941 Å		Cobre a = 3,608 Å	
hkl	λ (Å)	E(eV)	λ (Å)	E(eV)	λ (Å)	E(eV)
111	1,442	0,039	1,763	0,026	1,287	0,049
200	1,249	0,052	1,527	0,034	1,115	0,065
220	0,883	0,104	1,080	0,070	0,788	0,131

Espectro de nêutrons térmicos do reator. Determinação do intervalo dos comprimentos de onda mais convenientes.

difratômetro de neutrons 5 indispensável a existência de um monocromador, o que não acontece com o de raios-X, onde no espectro existem linhas características bem intensas e próximas, de tal forma que em muitos casos pode ser dispensado o monocromador. 'y No aspecto físico um difratômetro de neutrons é muitas vezes mais pesado e maior do que um difratômetro de raios-X. As amostras para difração de neutrons são também muitas vezes maiores do que as amostras para difração de raios-X, em consequência do fluxo de neutrons na amostra ser cerca de 10³ vezes maior do que o fluxo correspondente, no caso de raios-X.

De todas as diferenças que têm sido apontadas entre a difração de raios-X e a difração de neutrons (Ringo, 1957, Bacon, 1962, Arndt & Willis, 1966), duas delas justificam plenamente o desenvolvimento da difração de neutrons com todas as suas desvantagens quando comparada com a difração de raios-X:

1. O nêutron tem momento magnético. Conseqüentemente, ele se pode analisar a estrutura magnética dos materiais.
2. A amplitude de espalhamento de neutrons dos elementos depende de propriedades do núcleo e não de camadas eletrônicas do átomo. Assim sendo, alguns elementos leves podem espalhar tão intensamente quanto alguns elementos pesados, o que não acontece com os raios-X. Mesmo isótopos de um mesmo elemento podem ter amplitudes de espalhamento bem diferentes, de forma a poderem ser analisados como se fossem elementos diferentes.

Justifica-se, portanto, a construção de difratômetros de neutrons, mesmo considerando-se que são aparelhos mais caros do que os de raios-X e que necessitam de fontes de radiação especiais, como o são os reatores nucleares.

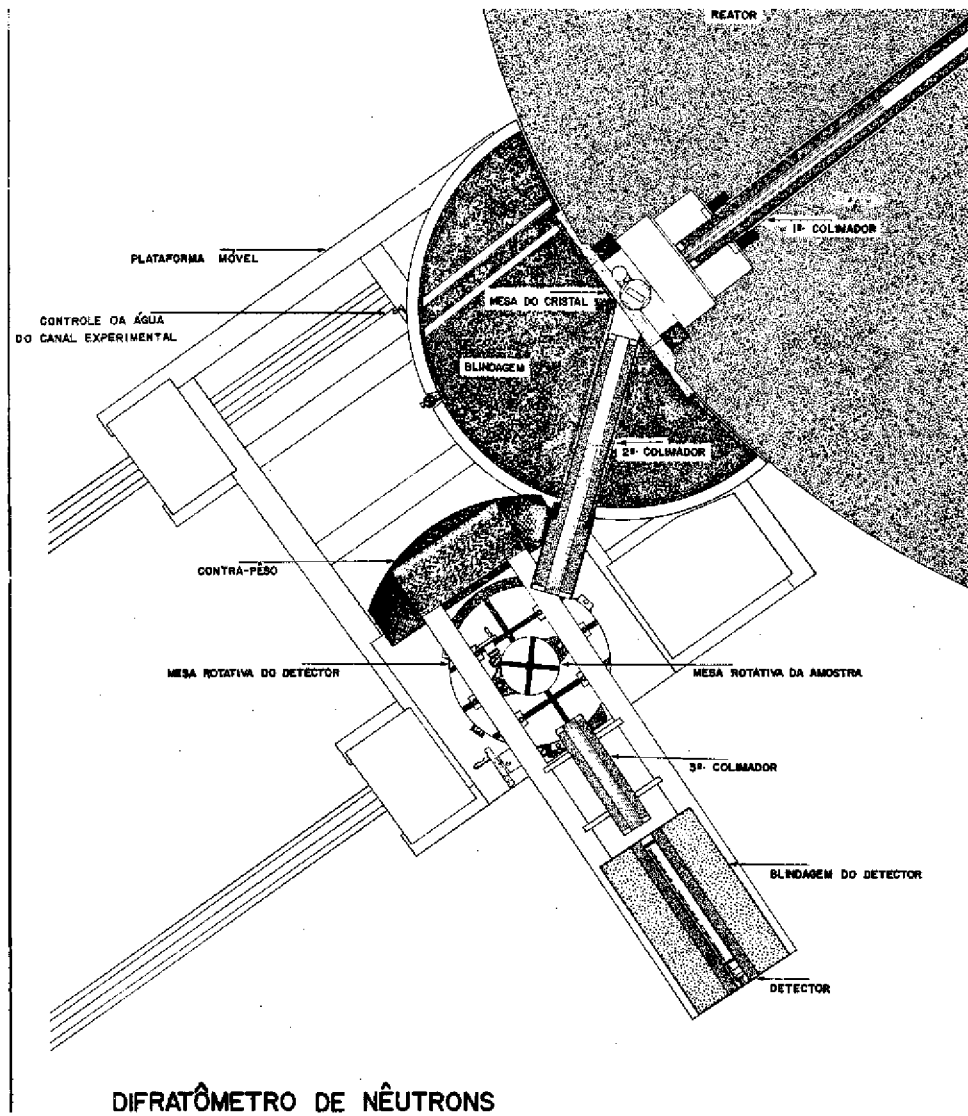
II. 3 - O difratometro de nêutrons do IEA para amostras policristalinas.

No que se segue será feita uma apresentação do difratometro de nêutrons instalado junto ao reator IEAR-1 do Instituto de Energia Atômica (Souza Santos & Toledo, 1958; Pen teado F9 & Souza Santos, 1961). Em uma primeira apresentação serão descritas algumas partes principais do aparelho na sua versão para estudos de amostras policristalinas „ Do Ttem II.4 em diante, serão indicadas todas as modificações introduzidas, que o transformaram em difratometro adequado ao estudo de monf cristais» As modificações especificamente ligadas à realiza ção da experiência relatada nesta tese, encontram-se descritas no Ttem IV. 1

A figura 11,3 i uma vista de cima do difratome tro mostrando suas partes principais» Este desenho, feito an tes de terminado o projeto do difratometro, difere em poucos aspectos do que se constituiu na primeira versão do instrumen to, isto ê, difratometro de nêutrons para amostras policrista linas.

II. 3.1 - O primeiro colimador

O primeiro colimador, colocado dentro do canal experimental nº 6 do reator, í do tipo Sol ler, com placas ver ticais removíveis, permitindo a variação da divergência angular do feixe» O corpo do colimador i formado por dois tubos de a lumTnio: um de 3" de diâmetro externo, com 121cm de comprimen to, parede de 1/8", fechado na extremidade livre que fica bem próxima ao núcleo do reator, A outra extremidade ê soldada a um tubo maior de 5;«3/4" de diâmetro externo, com 155cm de com primento, parede de 1/4", e que contém uma caixa de latão de mesmo comprimento, de secção quadrada, paredes de 1/4", com ca nal etas f resadas nas suas faces hori zontai s internas , com sepa_ ração de 1/4". Nessas canaletas são colocadas 7 placas de bron



INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
 DIVISÃO DE FÍSICA NUCLEAR

Figura II»3 - Vista superior do difratômetro de neutrons mostrando suas partes principais. Desenho feito durante a fase de projeto do instrumento.

ze fosforoso de 100cm de comprimento, 0,020" de espessura e 2,»1/4"de largura» O feixe formado tem, na saída do colimador secção de 2"x2". Nada foi colocado dentro do tubo de 3", mas no tubo de 5 3/4" existe concreto de barita de alta densidade, no qual está imersa a caixa de latão, centrada de forma a se constituir num prolongamento do tubo de 3". Com todas as pla_ cas colocadas, a divergência angular horizontal, calculada com relação ao raio central a um canal do colimador, Ó de 20'. Com a retirada alternada de 4 placas, tem-se divergência de 42'«, Com a placa central essa divergência é de 1° 27'. Com todas as placas retiradas a divergência é de 2° 55', igual a divergên_ cia angular vertical do colimador. A saída do colimador esta o mais próxima possível do cristal monocromador, mas ainda as_ sim permite que, entre ela e o monocromador, possa ser desc_i_ da a porta de chumbo do canal experimental, operação que se torna necessária caso se queira mudar o monocromador.

II. 3.2 - A blindagem do feixe direto e a -plataforma movei

Com exceção do primeiro colimador e do sistema monocromador, todo o conjunto está apoiado sobre uma platafor_ ma que se desloca sobre trilhos presos ao piso do reator, pe_ f_ mitindo o livre acesso ao monocromador e ao primeiro colimador. Os trilhos têm um comprimento de aproximadamente 5 metros, o que possibilita o afastamento do conjunto de modo a se poder _ retirar o primeiro colimador» Colocada em frente ao tubo de radiação, e apoiada na plataforma móvel, encontra-se a blinda_ gem do feixe direto» Esta blindagem tem a forma de um meio ci_ lindro de 160cm de diâmetro e é toda construída em chapa de a_ ço de 1/2" de espessura» Na altura da saída do canal experi_ mental, a blindagem é atravessada por um tubo de 5" de diâme_ tro Interno no qual esta inserido o segundo colimador. Mais 4 tubos, com diâmetros bem menores do que o do segundo colimador, atravessam a blindagem: 3 desses tubos permitem o controle da agua de enchimento do canal experimental. Dentro dos tubos e_ xistem eixos que servem para o acionamento dos registros de ã_ gua e que são ligados a estes através de pares de juntas uni_

versais, as quais eliminam qualquer problema resultante da falta de alinhamento entre os eixos e os registros. No 4º tubo, há também um eixo que, no mesmo sistema de juntas universais, permite acionar o mecanismo que levanta e abaixa a porta de chumbo do canal experimental. A blindagem do feixe direto, essencialmente blindagem da radiação gama e dos nêutrons rápidos provenientes do caroço do reator, foi conseguida enchendo-se o tanque de blindagem com sucata resultante do processo de fabricação de chapas metálicas perfuradas: são pequenos discos de ferro ou de aço inoxidável, com poucos milímetros de diâmetro e de espessura. Bem na direção do feixe direto e dentro do tanque, foram colocadas várias placas de aço inoxidável com cerca de 20cm x 25cm e com 1" de espessura. A espessura total resultou ser da ordem de 30cm. Finalmente, sobre todo esse material de blindagem, foram despejados 400 litros de Óleo mineral (Óleo de motor) já usado. A blindagem assim constituída revelou-se bastante eficiente, eliminando praticamente toda a radiação gama, bem como a radiação de nêutrons térmicos e rápidos, que atravessam o monocromador ou são espalhados incoerentemente por ele.

O peso do conjunto completo, isto é, incluindo o espectrômetro, é da ordem de 15 toneladas.

II.3.3. - O segundo colimador

O segundo colimador é do mesmo tipo do primeiro colimador, sendo idêntico a ele em muitos aspectos. O corpo deste colimador é constituído por 2 tubos de alumínio de diâmetros diferentes, soldados entre si. Um dos tubos tem 5" de diâmetro externo, 71cm de comprimento e parede de 1/8", e se constitui na parte que é encaixada no tubo de 5" existente na blindagem do feixe direto. O outro tubo tem diâmetro externo de 5.3/4", comprimento de 35cm, parede de 1/4". O diâmetro maior desta parte do colimador, que fica para fora da blindagem do feixe direto, serve para impedir a passagem de radiação entre

o corpo do colimador e a parte interna do tubo onde ele está em caixado. Dentro do corpo do segundo colimador, imersa em concreto de barita, há uma caixa de latão, que o atravessa pelo centro em toda a sua extensão, idêntica à caixa existente no primeiro colimador, tendo, porém, 73cm de comprimento. As placas são também em número de 7, de bronze fosforoso com dimensões idênticas as placas do primeiro colimador, excetuando-se o comprimento que é de 73cm. O feixe monocromático que sai deste colimador também tem seção de 2"x2" bem na saída, e divergências angulares horizontais de 27' com todas as placas, 57' com 4 placas retiradas, 1° 57' com uma placa central. Com todas as placas retiradas, a divergência angular é igual a 2° 44', que é o mesmo valor da divergência angular vertical.

II. 3. 4 - O espectrometro

É chamado de espectrômetro o conjunto que, girando em torno da amostra, possibilita a detecção das intensidades difratadas por ela. Ele é constituído pelo detector de nêutrons e sua blindagem juntamente com o terceiro colimador, Q pela mesa de amostras que pode girar independentemente do detector. Os movimentos giratórios são executados por mesas de fresa da marca TROÍKE. Uma delas é uma mesa pequena com 9" de diâmetro, precisão angular de 60 segundos de arco e é a que serve para girar a amostra no que, Internacionalmente, se convencionou em chamar de giro ω . A outra, bem maior, com 25" de diâmetro e precisão angular de 30 segundos de arco, suporta duas vigas de aço com formato I, com 6" de altura. As vigas têm - sobre elas o terceiro colimador, o detector e sua blindagem e um contrapeso para contrabalançar o conjunto.

As outras partes do espectrômetro são descritas nos 2 itens seguintes.

II.3.5 - O terceiro colimador

O terceiro colimador é de concepção diferente dos dois primeiros. Na verdade, existem 2 colimadores com divergências angulares horizontais diferentes e que podem ser trocados conforme se queira uma divergência ou outra. Os dois colimadores têm o corpo de ferro com mesmas dimensões e no formato de uma caixa com 6"x4" e 11 3/4" de comprimento. Cada uma destas caixas é formada por duas placas laterais de 6"x1 3/4" x 1" que são presas a duas outras de 2"x11 3/4"x1". No canal de secção retangular com dimensões 4"x2", formado pelas placas, são colocadas as lâminas do colimador devidamente separadas por espaçadores também de ferro. As lâminas dos colimadores são todas iguais: são de bronze fosforoso com uma camada de cádmio de alguns milésimos de polegada, depositada eletroliticamente em ambas as faces. As dimensões destas lâminas são 4"x11 3/4" com 1/32" de espessura. Na realidade a espessura varia um pouco em torno de 1/32", devido à variação da camada de cádmio depositada. Em um colimador, são usados espaçadores com 1" de largura, 11 3/4" de comprimento e espessura pouco menor do que 1/4". A espessura dos espaçadores é tal que o colimador resultante tem 7 placas que, juntamente com os espaçadores, são apertadas pelos parafusos de armação do corpo do colimador. A secção da abertura deste colimador é de 2"x2", e a sua divergência angular horizontal é 11'. O outro colimador tem 12 placas, separadas por espaçadores de aproximadamente 1/8" de espessura, largura e comprimento iguais aos anteriores. A divergência angular horizontal neste caso é 36°. A divergência angular vertical, nos dois colimadores é de 9 40'. Apoiada sobre os braços do espectrómetro há uma base de ferro que serve de suporte para o terceiro colimador. Quando colocado sobre esta base, o terceiro colimador fica encostado na entrada da blindagem do detector,

II.3.6» - A blindagem do detector

A blindagem do detector, colocada nas extremidades maiores dos braços do espectrómetro, tem a função de diminuir ou, se possível, eliminar a radiação de fundo que pode

ria ser detectada pelo sistema. Esta blindagem é constituída essencialmente de duas partes: a blindagem para neutrons rápidos e a blindagem para neutrons térmicos.

A blindagem para neutrons rápidos é constituída de uma mistura de parafina e borax, em proporções aproximadamente iguais. Os neutrons rápidos que atingem esta mistura, são moderados pelo átomos de hidrogênio da parafina e podem ser absorvidos pelo átomos de boro do borax. Na primeira versão do difratômetro, o recipiente que continha a mistura era um tambor de óleo (com capacidade para 200 litros), com, aproximadamente, 87cm de comprimento e 58cm de diâmetro. Atravessando o tambor na sua parte central e no sentido de seu eixo, havia um tubo de ferro com cerca de 7" de diâmetro interno. Neste tubo era inserida a blindagem para neutrons térmicos. Este tambor foi posteriormente substituído por um cilindro menor, conforme mencionado no item II.4.

A blindagem para neutrons térmicos é um cilindro de ferro com diâmetro externo de cerca de 7" e com 35" de comprimento. Na direção central é atravessado por outro tubo com cerca de 2" de diâmetro interno, onde é colocado o detector de neutrons. Internamente o cilindro contém carbeto de boro (B^4C), normalmente usado como abrasivo, mas que, devido a alta concentração de átomos de boro na molécula, serve como excelente absorvedor de neutrons térmicos.

O detector, encaixado no tubo central da blindagem de neutrons térmicos, é do tipo BF₃ com janela frontal de cerâmica pouco absorvedora. Ele tem 2" de diâmetro externo e 14" de comprimento. Envolvendo o detector foi colocada uma folha fina de cádmio com cerca de 0,4mm de espessura. Finalmente, atrás do detector foi colocado um tampão de ferro com 11*1/4" de comprimento e perto de 2" de diâmetro, tendo um furo central para a passagem do cabo de alta tensão. Esse tampão - blinda a parte de trás do detector.

A blindagem (completa) do detector, mostrou-se

bastante eficiente» A radiação de fundo foi medida e verificou-se que era da ordem de 1 nêutron cada 2 minutos. A medida foi feita com o detector fora da posição de zero e com o feixe monocromático bloqueado com 10cm de parafina e bórax e com uma lâmina de cádmio com cerca de 1mm de espessura,

O conjunto formado pela blindagem do detector * o terceiro colimador, a sua base e as vigas em I dos braços do espectrômetro, foi equilibrado com a colocação de um contrapeso no lado oposto» Este contrapeso é constituído por uma placa de aço sobre a qual foram colocados tijolos de chumbo, comumente usados em blindagens de radiação gama, e está preso às vigas em I, nos prolongamentos que foram deixados para esse fim.

O conjunto foi cuidadosamente equilibrado, tendo-se em vista impedir qualquer tensão sobre a parte roável da mesa de fresa que pudesse causar desvios no seu eixo de rotação.

II.3.7 - O sistema monocromador

Parte essencial e importante de um difratômetro de neutrons, o sistema monocromador é normalmente constituído do cristal monocromador e de um sistema goniométrico para sua orientação.

Em difratômetros de neutrons com ângulo de monocromatização variável, o monocromador é normalmente colocado no centro de blindagens cilíndricas, as quais se encontram a uma certa distância da parede do reator. O acesso ao monocromador, neste caso, pode ser feito por cima ou lateralmente. No difratômetro de neutrons do IEA, que tem ângulo de monocromatização fixo, a blindagem foi colocada bem junto à parede do reator e o monocromador na saída do canal experimental, como pode ser observado na figura II.3. Nesta posição, o acesso se tornou difícil e tivemos que pensar em um sistema que pudesse ser

controlado à distancia. Sendo assim, projetamos um sistema ao qual demos o nome de mesa de ajuste do cristal monocromador.

Entre usar cabos metálicos flexíveis, motores reversíveis ou sincro-transmissores e sincro-receptores de movimento circular (comumente conhecidos por "seisyns"), optamos por estes últimos, que são, de fato, os melhores quando se quer ter precisão. Escolhemos 3 movimentos para serem controlados remotamente. Outros ajustes deveriam ser feitos antecipadamente, por ocasião da colocação do cristal na posição adequada. É necessário que o cristal já esteja orientado conhecendo-se a proximadamente a posição em que ele deve ficar, para se obter o feixe monocromático. Aliás este é o procedimento habitual para se ajustar monocromadores, sendo mesmo indispensável que a orientação de um monocromador tenha sido feita anteriormente para se determinar se ele é adequado, ou não, a geometria dos feixes do difratômetro. Os movimentos escolhidos para serem controlados remotamente foram os que convencionamos chamar de:

1o rotação - movimento que se realiza em torno de um eixo vertical. Tem uma amplitude de praticamente 360° nos dois sentidos, só sendo limitada pela existência dos fios de ligação dos "seisyns" dos dois outros movimentos. Na figura II.4 este movimento é indicado pelas setas escuras na base do cilindro. Com a rotação o cristal pode ser colocado de modo que os planos escolhidos formem o ângulo de Bragg M com o segundo colimador.

2o balanceio - movimento de rotação parcial que se realiza em torno de um eixo horizontal. A posição ideal para este eixo é aquela em que ele fica paralelo aos planos de monocromatização e corta as retas centrais ao primeiro e ao segundo colimador exatamente no ponto de intersecção das duas. A posição real do eixo do balanceio depende do ajuste prévio do monocromador. Na figura II.4 o balanceio é indicado pelas setas curvas escuras no interior do cilindro, próximos à base inferior do mesmo. A função deste movimento é ajustar os planos de forma que a reflexão se realize em um plano horizontal» A

amplitude máxima do movimento e da ordem de 7° nos sentidos indicados pelas setas.

3. deslissamento - movimento de translação da mesa onde o cristal esta apoiado. É apenas um movimento que desloca o cristal com relação ao feixe direto para coloca-lo em posição de maior intensidade difratada. Duas escolhas são possíveis para este movimento: ele pode ser perpendicular ao eixo de rotação do balanceio ou ser paralelo a esse eixo. O primeiro tipo é empregado quando o monocromador esta sendo usado em reflexão (no caso de Bragg), e o segundo tipo quando o monocromador esta sendo usado em transmissão (caso de Laue). O deslissamento nas suas duas opções esta indicado na figura II.4 pelos dois pares de setas escuras próximas à base superior do cilindro. O deslocamento total, em qualquer dos casos, é de 20mm.

Os outros movimentos possíveis são movimentos de ajuste da base do conjunto e o movimento de ajuste da altura da mesa do cristal. O ajuste da base é feito por 3 parafusos que dão os movimentos indicados pelos 3 pares de setas claras próximas a base curva da saída do canal experimental. Estes movimentos tem poucos milímetros de curso e servem não só para nivelar o conjunto mas também para centra-lo com relação ao ponto de intersecção das retas centrais aos dois colimadores. O movimento de ajuste da altura, indicado pelas duas setas verticais no interior do cilindro, permite colocar o cristal monocromador na altura correta.

Por fim, o cilindro que aparece na figura, e que foi tantas vezes mencionado na descrição dos movimentos, serve para dar uma idéia da restrição do espaço destinado ao cristal, quando este esta sendo ajustado. O diâmetro da base desse cilindro tem cerca de 15cm, não sendo importante a altura pois não existem problemas com relação a ela. Deve-se mencionar que a exiguidade de espaço surge, unicamente, do fato de que o cristal não deve avançar sobre o espaço destinado à porta de chumbo do canal experimental, caso contrario não se poderia fecha-

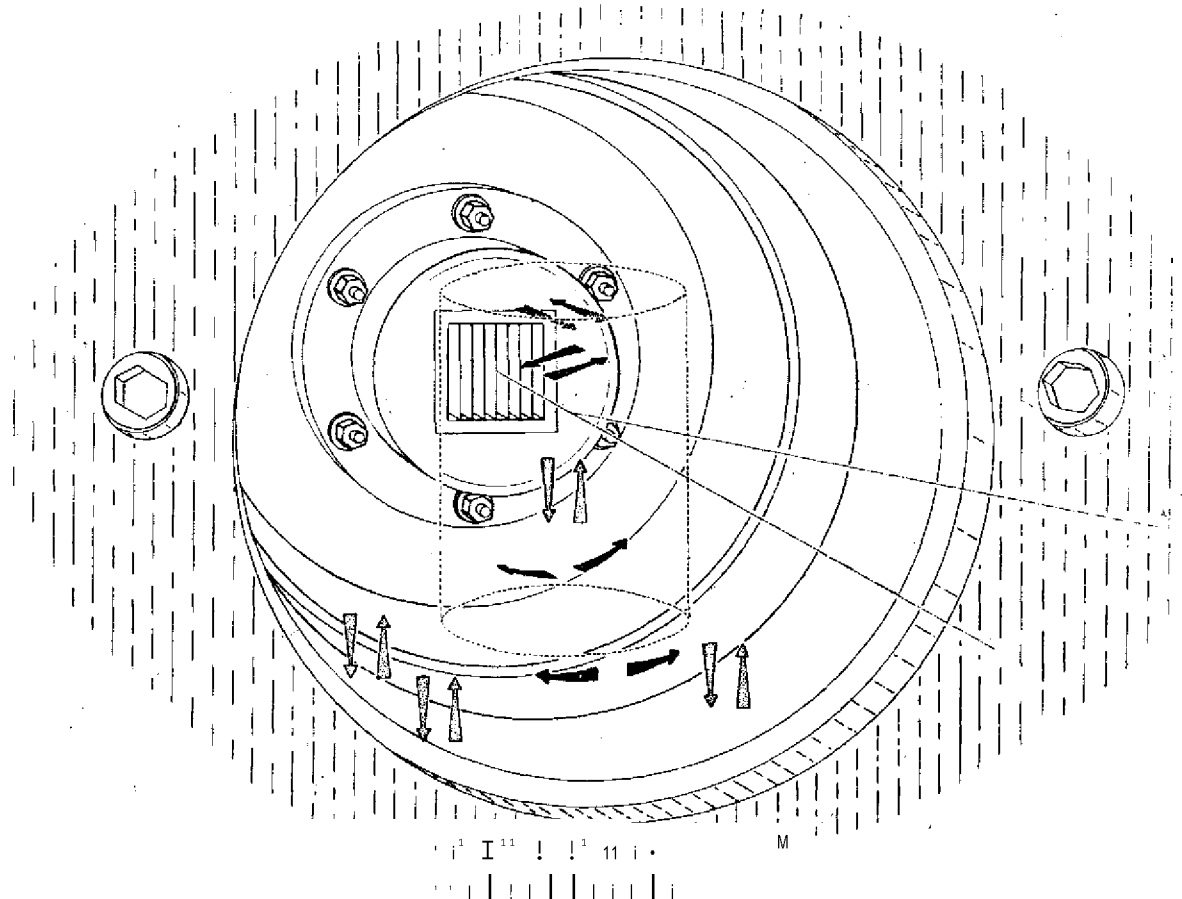


Figura II.4 - Desenho mostrando os movimentos possíveis da mesa de ajuste do monocromador. As setas escuras indicam os movimentos controlados remotamente e as setas claras os movimentos feitos no local.

-tau

A figura II.5a mostra a mesa de ajuste durante a fase de construção, enquanto que a figura 11o5b mostra a mesa terminada, durante a fase de ensaios.

O sistema monocromador foi completado com a escolha do cristal monocromador e dos planos de monocromatização» Essa escolha teve duas etapas. Na primeira etapa verificamos quais os cristais e quais os planos desses cristais que poderiam ser usados para se obter nêutrons com comprimentos de onda próximos ao valor do máximo da distribuição de nêutrons típicos do reator, que para nós é cerca de 18. Na tabela, que se encontra na figura II.2, onde o ângulo de monocromatização, foi tomado igual a 18° , têm-se os valores dos comprimentos de onda que se obteria para o feixe monocromático, usando-se alguns dos planos de maior intensidade de reflexão de cristais de alumínio, cobre e chumbo. Numa segunda etapa verificamos qual, entre os cristais que possuíamos, tinha largura na meia altura da distribuição mosaico, ou simplesmente largura de mosaico, mais adequada à geometria dos colimadores de forma que pudessemos ter boa luminosidade e boa resolução (Caglioti,1962). O estudo dos monocromadores foi feito no espectrómetro de cristal do IEA (Wenzel et al, 1967) e, entre vários cristais de alumínio, cobre, chumbo e germânio, decidimos que o melhor monocromador para o sistema seria o cristal de chumbo, com seus planos (220) monocromatizando nêutrons por transmissão. A largura de mosaico desse cristal é da ordem de $18'$, para esses planos.

Uma vez determinado qual o monocromador a ser usado, e tendo sido estabelecida a orientação desses planos no cristal, fixamos o mesmo na mesa de ajuste do monocromador de forma a já ficar aproximadamente orientado para a obtenção do feixe monocromático. Na figura II.6, tem-se uma fotografia da mesa de ajuste com o cristal monocromador montado. Com o detector na posição zero, após algumas tentativas com os movimentos de controle remoto, obtivemos o feixe monocromático. Em se

Figura II.5a - Mesa de ajuste do monocromador, durante a fase de construção.

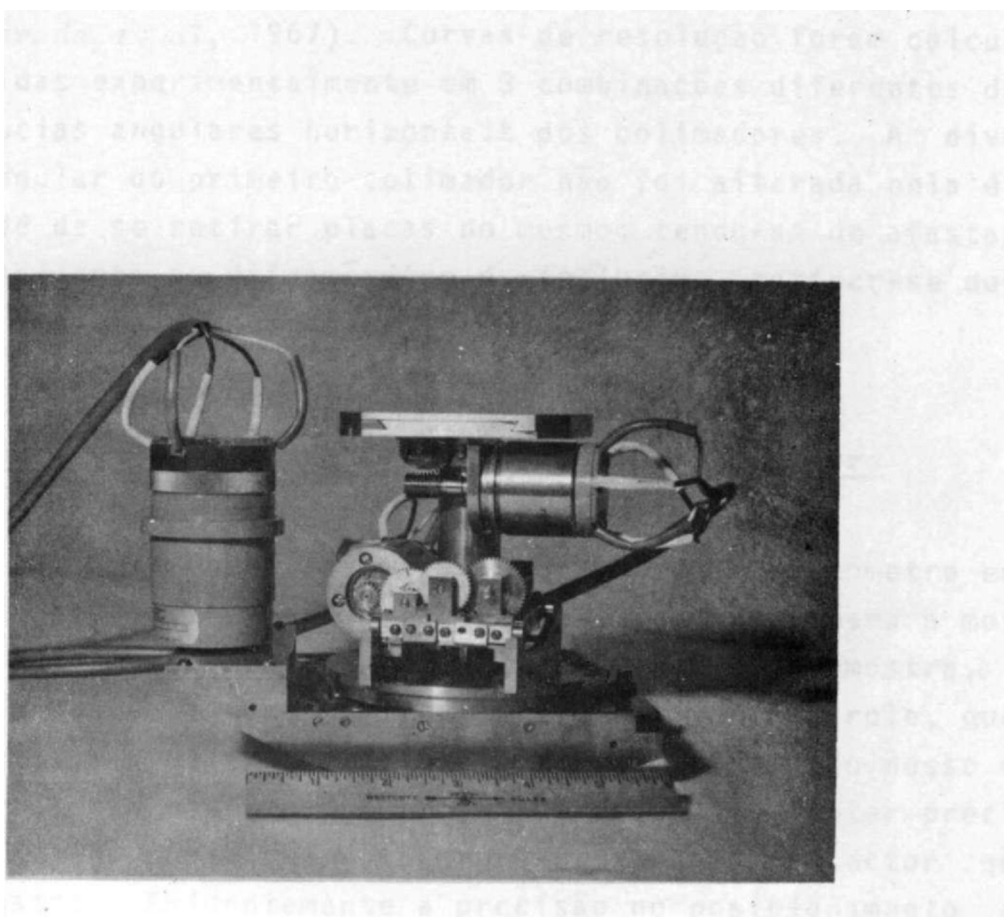


Figura II.5b - Mesa de ajuste do monocromador, durante a fase de ensaios.

guida, fizemos uma otimização da posição do monocromador (*Parente, 1967*)»

Uma vez obtido o feixe monocromático,, passamos a calibração do difratômetro Para esse fim usamos uma amostra de níquel em pó compactado da qual obtivemos a figura de difração mostrada na figura II.7. Com a posição angular dos picos que aparecem nessa figura e por um processo bem simples obtivemos a reta de calibração do difratômetro da figura (*Parente et al, 1967*) • Esta reta permitiu estabelecer com maior precisão qual o comprimento de onda do feixe monocromático e permitiu também corrigir a posição do zero do espectrómetro bem como estabelecer o ângulo de monocromatização real» Estes parâmetros são conhecidos previamente, mas seus valores corretos - dependem da calibração feita»

Finalmente, foi feito um estudo da resolução do difratômetro usando-se da mesma amostra de níquel pol icri stal i no (*Harada et al, 1967*), Curvas de resolução foram calculadas e obtidas experimentalmente em 3 combinações diferentes das divergências angulares horizontais dos colimadores» A divergência angular do primeiro colimador não foi alterada pela dificuldade de se retirar placas do mesmo, tendo-se de afastar todo o conjunto do difratômetro e, inclusive, retirar-se de posição o sistema monocromador.

II.3.8 - O sistema de operação do difratometro

Como sistema de operação do difratometro entendemos o conjunto de servo-mecanismos que servem para a movimentação e posicionamento angular do detector e da amostra. Inclui-se neste sistema o circuito elétrico de controle, que dá um certo grau de automatização aos movimentos. No nosso difratômetro, este sistema foi projetado visando-se obter precisão muito boa no posicionamento angular, tanto do detector quanto da amostra. Evidentemente a precisão no posicionamento angular depende quase que inteiramente da parte mecânica do siste-

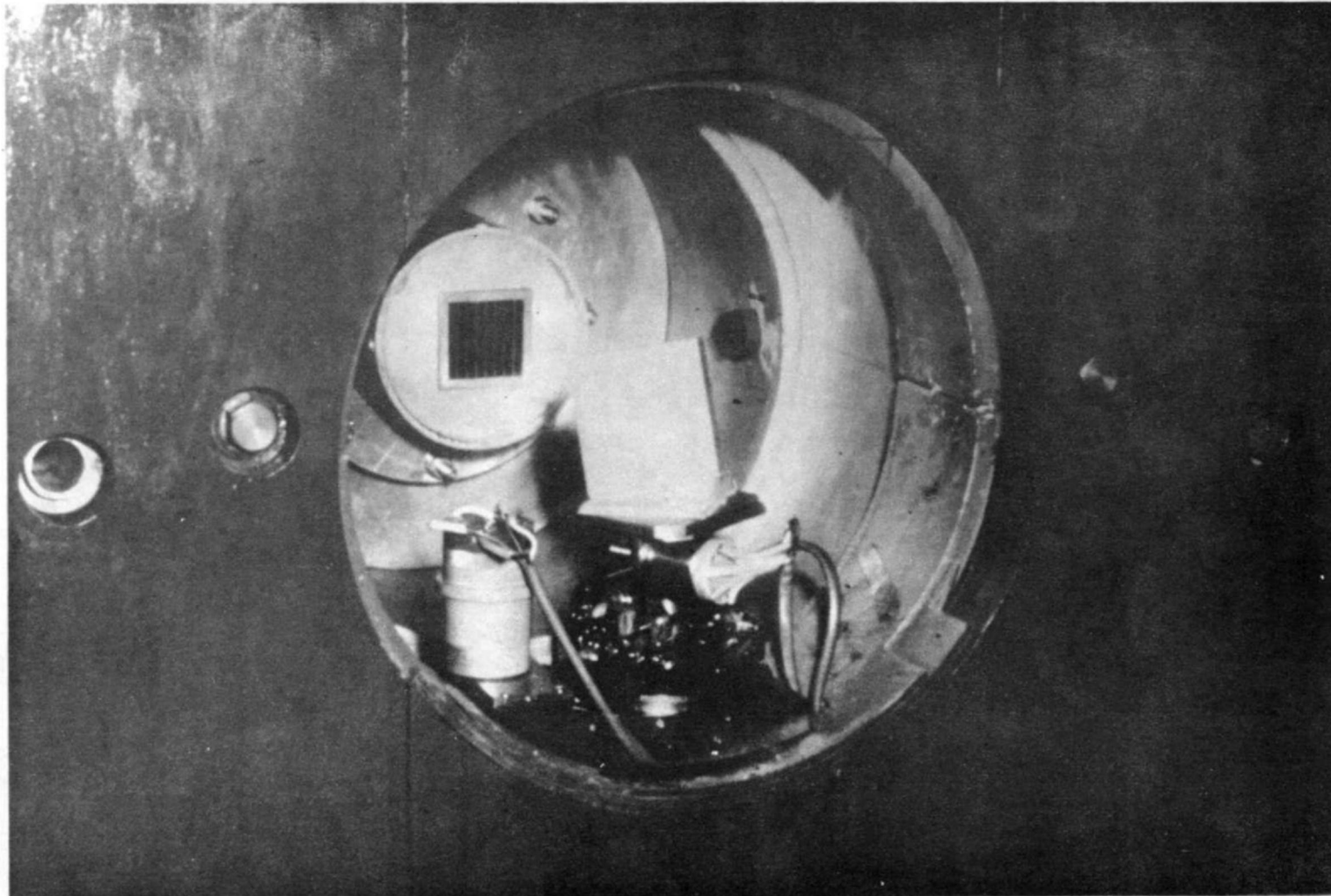


Figura II.6 - Fotografia da mesa de ajuste com o cristal monocromador, instalada no canal experimental nº 6 do reator IEAR - 1.

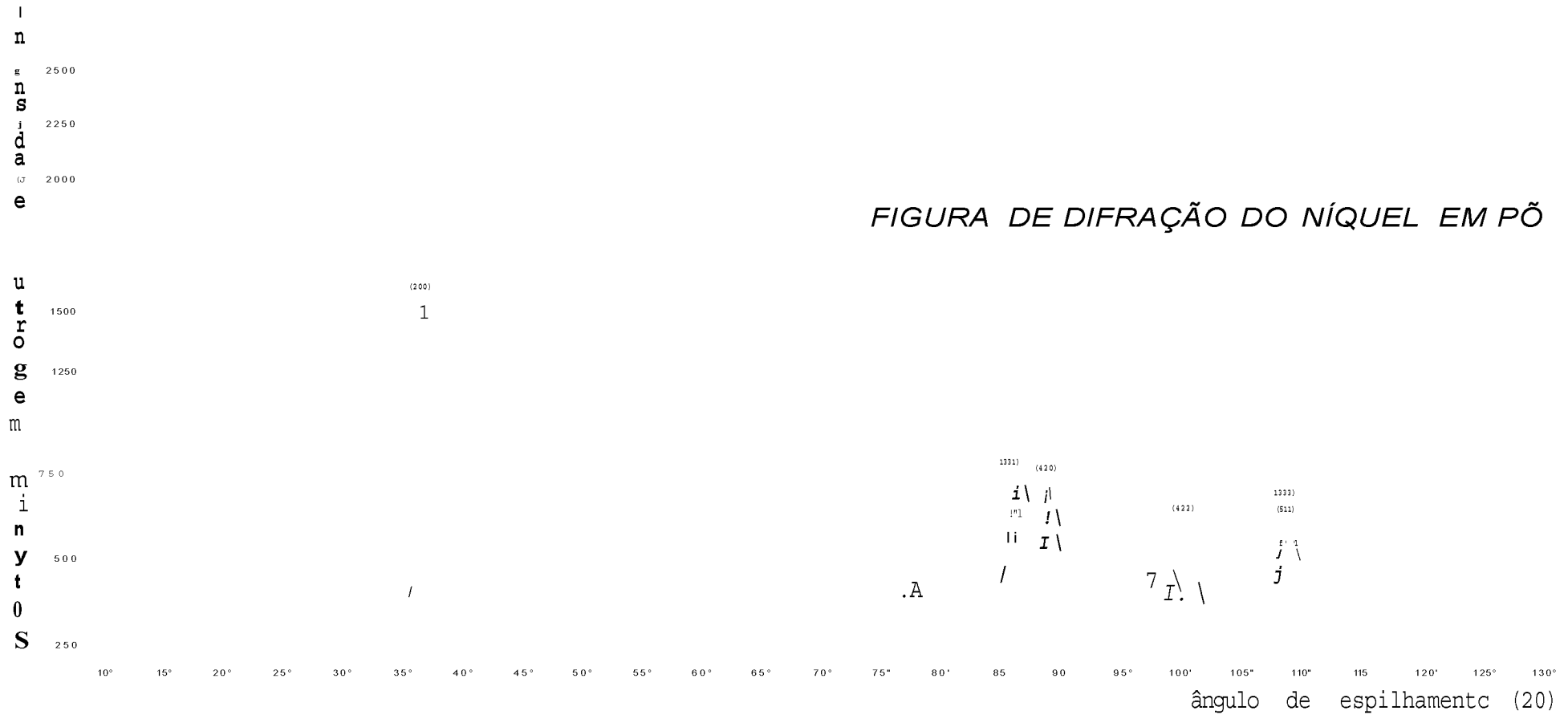


Figura II.7 - Figura de difração de uma amostra padrão de níquel policristalino, obtida no difratômetro de nêutrons do IEA.

ma o Sendo assim, procuramos usar componentes de boa qualidade, sendo que, aqueles que não puderam ser adquiridos prontos, foram projetados e construídos com bastante cuidado.

A fotografia da figura II.8 mostra a parte mecânica do sistema de operação do difratômetro. Esta parte é constituída, essencialmente, de dois grupos motrizes praticamente idênticos, servindo um deles para a movimentação e posicionamento do detector e, numa relação angular de 2:1, da amostra: é a rotação 2ω , e o outro grupo motriz movimenta e posiciona somente a amostra: é a rotação ω . Cada um desses grupos tem 2 motores do tipo síncrono reversível com engrenagens de redução de rotação já incorporadas. Um dos motores é usado na movimentação lenta, quando se quer fazer uma medida de varredura ou no posicionamento de acordo com passos angulares estabelecidos previamente. Este motor, que chamaremos de motor lento, está acoplado ao motor de movimentação rápida e, através deste, com todo o sistema restante o acoplamento não é rígido: é feito através de uma unidade de embreagem e freio, os quais são acionados por solenóides existentes na própria unidade. A função desta unidade é muito importante, sendo ela quem permite que se obtenha boa precisão no posicionamento angular do detector ou da amostra. O funcionamento é o seguinte: quando o motor lento é ligado, o mesmo relê que providencia a sua ligação liga também a embreagem, ao mesmo tempo que desliga o freio, e o motor pode movimentar todo o mecanismo. Quando o sistema chegou na posição angular desejada, o relê, que é de dupla-ação, desliga o motor e a embreagem, mas aciona o freio. Neste instante todo o movimento do mecanismo é freado na posição correta (tendo sido desacoplado, o motor pode prosseguir girando por efeito de inércia, até perder toda a sua energia de rotação), A freagem é bastante violenta, parando quase que instantaneamente, todas as engrenagens do sistema. É a violência desse freamento que impede o seu emprego em velocidades mais altas, o que poderia danificar tanto a unidade quanto os outros componentes do sistema. Chama-se a atenção para o fato de que o freamento é muito mais violento na movimentação 2ω , onde as massas em rotação são muito maiores do que no caso da movi-

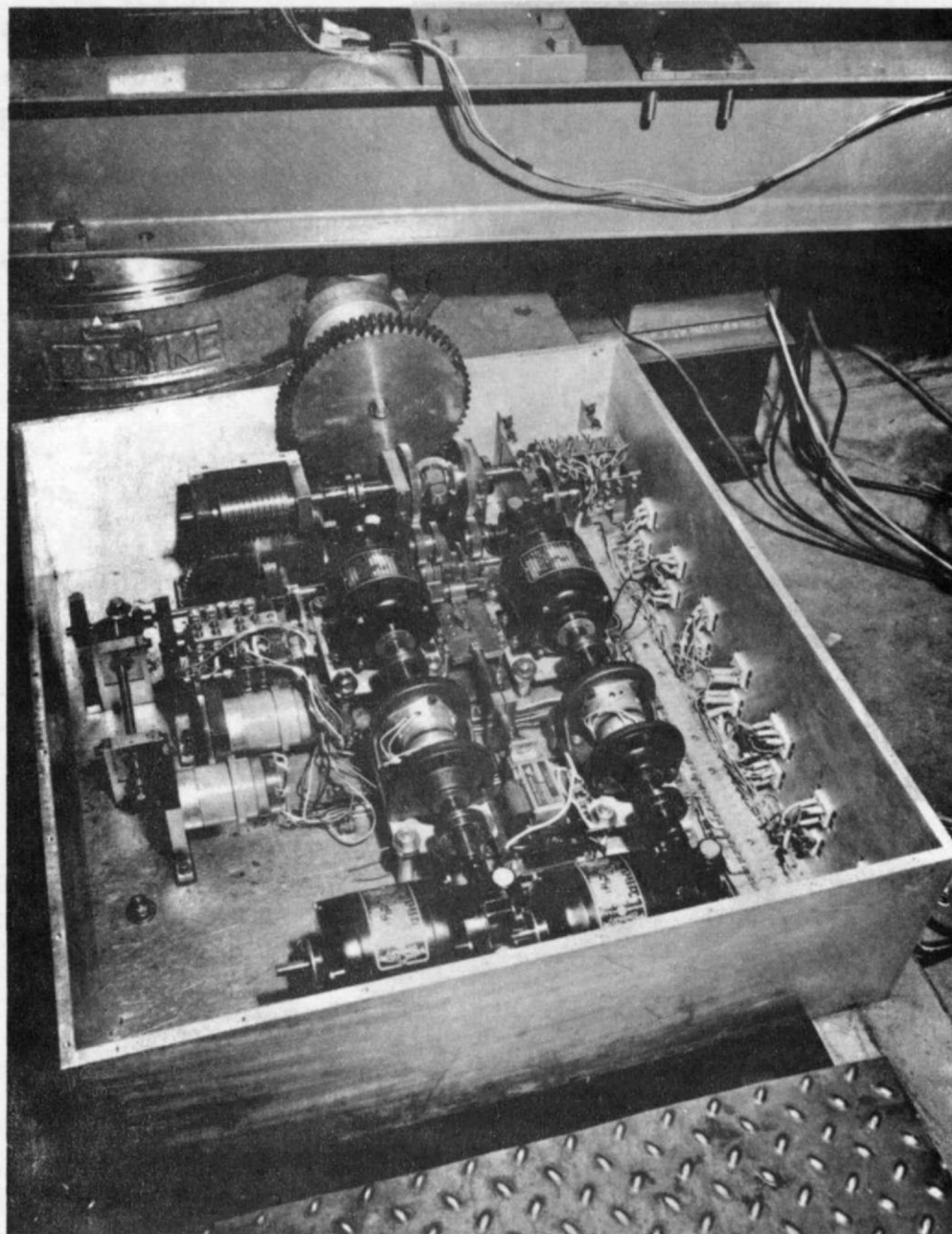


Figura II.8 - Parte mecânica do sistema de operação do difratômetro de neutrons do IEA.

mentação w.

O outro motor, de movimentação rápida, ou, como o chamamos, motor rápido, e usado para levar o sistema até uma certa posição angular, ou para voltar à origem da escala de ângulos. Evidentemente ele pode também ser usado em uma varredura rápida e, no caso do grupo motriz da amostra, no posicionamento angular por passos. Portanto, esse motor rápido tem duas funções: a primeira é transmitir o movimento gerado pelo motor lento e a segunda, especifica dele, movimentar mais rapidamente o sistema.

As velocidades angulares dos movimentos resultantes, tanto para o detector quanto para a amostra, estão reunidas na tabela seguinte. Nesta tabela aparecem ainda os valores da velocidade angular da amostra quando é acionado um câmbio de velocidade que foi projetado posteriormente e colocado no sistema. O acionamento do câmbio é efetuado por um solenóide de tração controlado pelo sistema elétrico.

TABELA nº 1

Velocidades Angulares do Sistema
de Operação do Difratorômetro.

Velocidade	Amostra	Amostra (câmbio)	Detector
lenta	0,312°/min	1,250°/min	0,625°/min
rápida	1,79°/min	7,18°/min	3 ⁵² °/min

O posicionamento angular, da amostra e do detector, é efetuado em passos angulares fixos. O controle desse posicionamento é realizado pelo que chamamos de unidade de comando do posicionamento angular. É esta unidade que estabele-

ce a ligação entre os sistemas mecânico e elétrico, enviando ao circuito elétrico a informação de que mais um passo angular se completou após o acionamento do sistema. A informação é transmitida em uma forma bem simples: uma chave elétrica se abre na unidade de comando quando o sistema mecânico chegou a posição angular correta. A abertura da chave interrompe **um** circuito elétrico de alimentação de um relé, do tipo a que já nos referimos na descrição do funcionamento das unidades de embreagem e freio do sistema. Na realidade, é o mesmo relé que aciona o motor, a embreagem e o freio. A simplicidade da função executada pela unidade de comando não dá a medida da sua importância dentro do sistema: é ela que, aliada à unidade de embreagem e freio, possibilita o posicionamento do sistema com uma precisão excepcionalmente boa. Por este motivo, procuramos projetar a unidade com bastante cuidado e encontramos uma forma original de diminuir mais ainda o erro no posicionamento» O princípio de funcionamento é bem simples: existem camos na forma de rebaiços nas bordas de discos metálicos, que giram conforme o sistema é acionado (V»figura 11,9). Chaves de acionamento rápido, comumente chamadas de micro-interruptores ("microswitenes"), com rodas nas alavancas de acionamento, são usadas como interruptores do circuito elétrico. Essas rodas permanecem encostadas nas bordas dos discos de tal forma que, fora dos rebaiços, a chave fecha o circuito correspondente aquele camo, e dentro do rebaiço, o circuito é aberto» Para conseguir maior precisão no posicionamento apoiamos as rodas dos micro-interruptores sobre pares de discos de camos que giram encostados uns nos outros» Tomemos um dos pares de discos e o micro-interruptor correspondente: a roda do micro-interruptor apoia-se metade em um disco e metade no outro. Um deles é o disco principal, que dá realmente o posicionamento angular» Na figura 11,9 o disco principal está indicado com A» Este disco pode ter um ou mais rebaiços, de modo que a volta ou a fração de volta que ele dá, corresponde a um passo angular determinado. O disco secundário B, gira com velocidade angular 4 vezes maior do que a velocidade do disco principal» O que acontece é que, mesmo que a roda do micro-interruptor esteja sobre o rebaiço do disco A, a chave só será acionada quando o rebaiço no

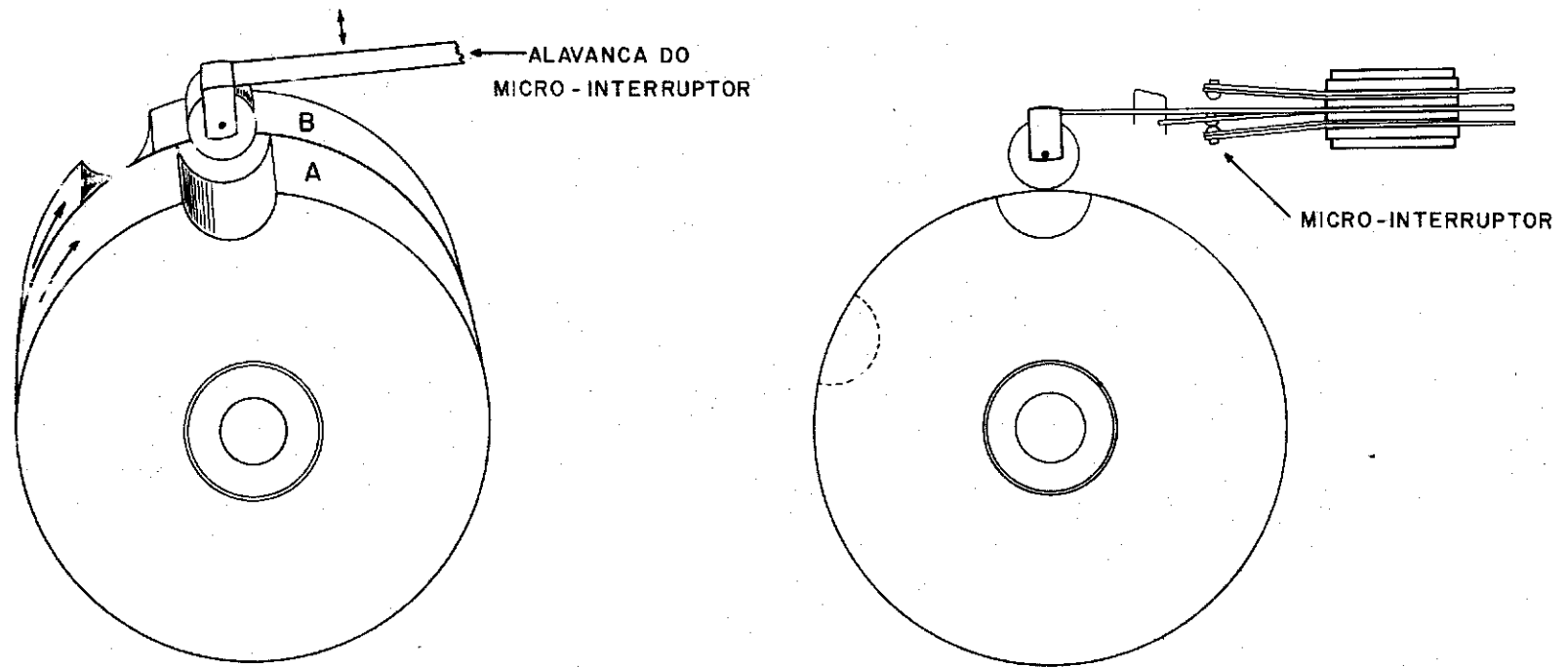


Figura II.9 - Princípio de funcionamento dos camos da unidade de comando do posicionamento angular.

disco B alcançar o do disco A, isto é, quando eles coincidirem. Isto faz com que, para todos os efeitos, o acionamento do micro-interruptor se dê sempre no mesmo lugar, independentemente das condições de ajuste do mecanismo. Nos testes que fizemos, verificamos que sempre que se dava um acréscimo angular, a posição indicada nos nônio das escalas graduadas existentes nas mesas de fresa, eram perfeitamente corretas, correspondendo exatamente ao valor esperado. Desta forma, as precisões nos posicionamentos do detector e da amostra dependem exclusivamente das precisões angulares das mesas de fresa, citadas no item - II.3.4.

Ao projetarmos a unidade de comando do posicionamento angular, escolhemos, como passos angulares, $0,2^\circ$ e $0,1^\circ$. Posteriormente acrescentamos mais dois: $0,05^\circ$ e $0,025^\circ$. Estes dois últimos passos são obtidos diretamente dos discos secundários, usados no caso dos passos $0,1^\circ$ e $0,2^\circ$, os quais foram feitos mais largos e com novos camos, de forma a não interferirem com a ação dos antigos. A precisão destes passos menores resultou tão boa, que neste caso, também o posicionamento correto depende exclusivamente das mesas de fresa. O número de passos angulares possíveis, e os seus valores, são iguais tanto para o detector quanto para a amostra.

O sistema mecânico envia para um painel a informação de sua posição angular, por meio de dois pares de "selsyns", um para o detector e outro para a amostra. Cada volta dos "selsyns" corresponde a $0,1^\circ$ e no painel, além de um ponteiro para indicar frações de volta, existem contadores de voltas que indicam a posição angular, incluídas as frações de $0,1^\circ$. Assim a posição $37,125^\circ$ (por exemplo) é lida como $37,1^\circ$ no contador de voltas, mais $0,025^\circ$ na escala do ponteiro.

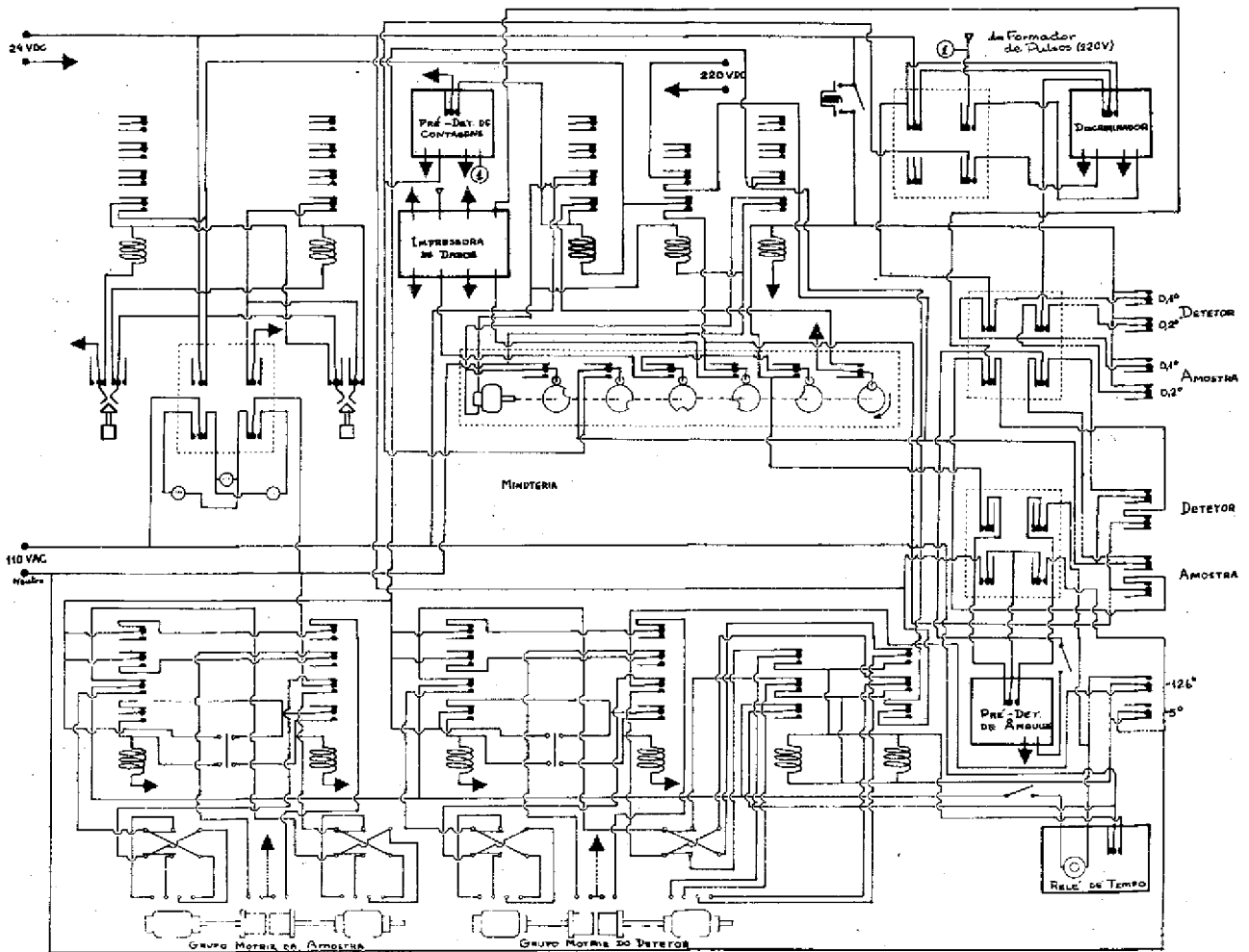
Para completar o sistema de operação do difratômetro, projetamos um circuito elétrico que é mostrado na figura 11.100. Este circuito não chegou a ser montado pois foi projetado para ser usado com registradores de contagens eletro-inecânicos, doados pela IAEA, que foram logo trocados por regis-

tradüres eletrônicos muitas vezes mais rápidos do que os eletro-mecânicos (que sã contam atí um máximo de 1^o pulsos por segundo)» Um circuito baseado no da figura 11.10, porem mais simples, foi construído e tem funcionado ate hoje.

A fotografia na figura 11.11, mostra o difratômetro de neutrons na sua primeira versão.

II.4 - O difratometro de neutrons do IEA para amostras monocristalinas

O emprego de amostras policristalinas em difratometria de neutrons, está ligado, na maioria das vezes, ao fato de que não se consegue monocristais com dimensões suficientes para poderem ser usados. É claro que, em muitos casos, pode ser conveniente usar substâncias policristalinas, onde os grãos individuais podem ser considerados como incluídos na categoria dos cristais pequenos, resultando em cálculos de intensidade bem mais simples do que os cálculos necessários aos cristais grandes. Entretanto, o fato de que a intensidade difratada está distribuída em um cone, de largura angular 4θ , onde θ é o ângulo de Bragg da reflexão, e que o detector intercepta apenas uma parte muito pequena desse cone, torna as intensidades detectadas muito baixas. Deve-se considerar também que apenas uma pequena fração dos grãos é que estão orientados de modo a difratarem, ao passo que todos eles contribuem para o espalhamento incoerente, diminuindo a razão entre a intensidade de pico e a intensidade de fundo. Este problema é mais grave quando os materiais em estudo contem elementos nos quais o espalhamento incoerente é muito mais intenso do que o coerente (Ringo, 1957). Em amostras monocristalinas a intensidade de pico é normalmente muito maior do que a intensidade de fundo, pois resulta da contribuição do cristal inteiro» O emprego dos métodos? difratometria em policristais ou difratometria em monocristais, vai depender dos objetivos da medida experimental e dos fatores acima mencionados. Quando os objetivos da medida



11.10 - Circuito elétrico do sistema de operação do difratômetro de nêutrons
 (foi substituído por outro adequado ao sistema eletrônico de contagem).

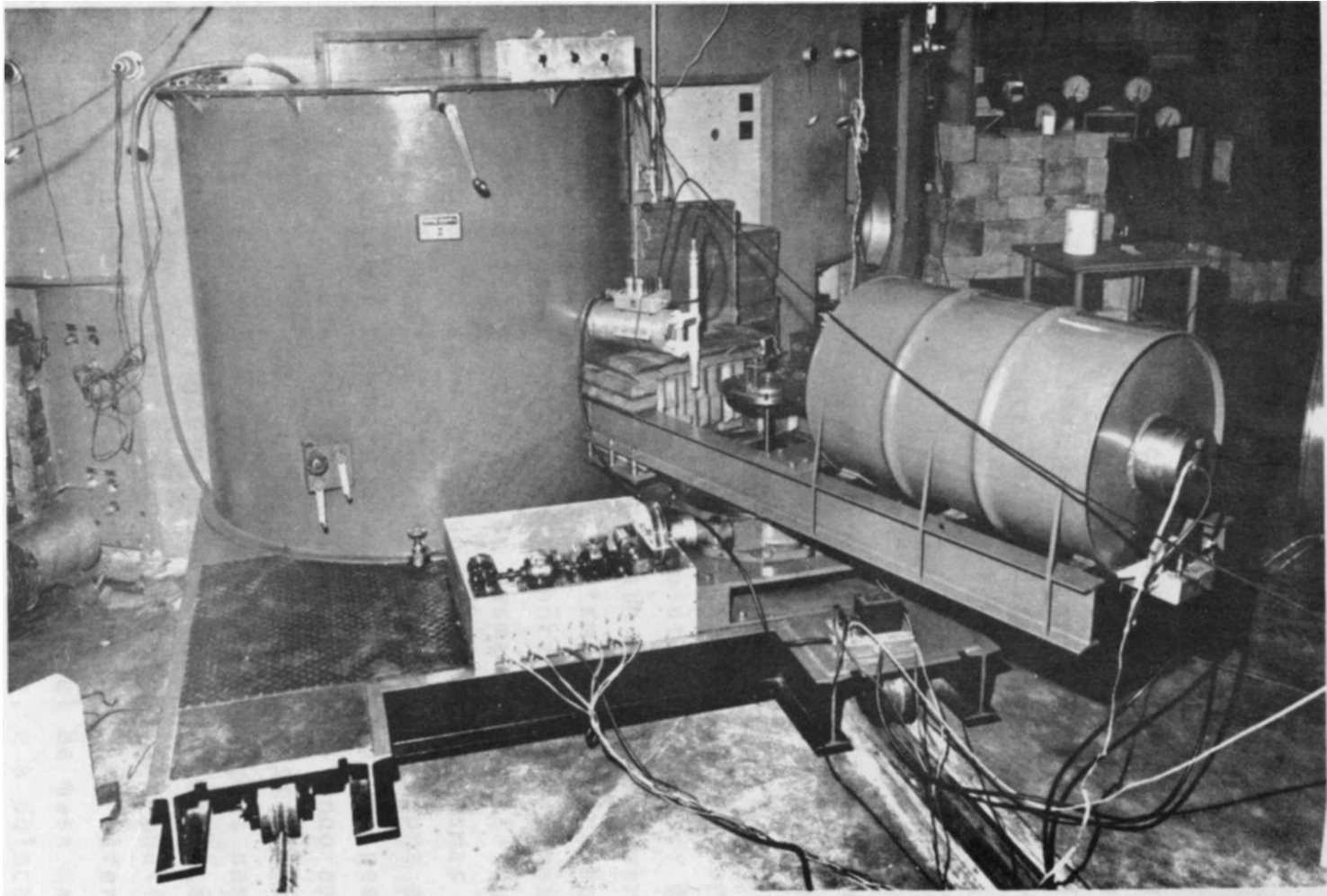


Figura II.11 - O difratômetro de nêutrons do IEA para estudo de amostras policristalinas.

permitem (ou exigem), e se tem cristais suficientemente grandes, e mais interessante usar monocristais em vez de policristais. Por este motivo, introduzimos modificações no difratômetro de niutrons de modo que ele pudesse ser usado com monocristais. Contudo, continua sendo possível o estudo de policristais.

II.4.1 - Modificações no espectrometro

A modificação essencial, introduzida no espectrômetro, foi a instalação de um goniostato para monocristais, em substituição à mesa de amostra anterior. Todavia, ele pode ser retirado e novamente instalada a mesa de amostra. Este goniostato será descrito, em suas linhas gerais, no item seguinte. *

Outra modificação consistiu na diminuição da blindagem do detector. Na realidade, houve somente substituição da blindagem para niutrons rápidos, isto é, em lugar do tambor de óleo foi colocado um outro cilindro menor, feito com folha de alumínio e tendo as seguintes dimensões: 40 cm de diâmetro externo, 60 cm de comprimento e 7" no diâmetro interno - do tubo central, como no caso do tambor. Dentro do cilindro também foi colocada parafina com bórax. Embora mais leve, esta nova blindagem mostrou-se da mesma eficiência que a anterior, sendo a radiação de fundo, medida nas mesmas condições anteriores (Ttem II.3.6), da ordem de 18 niutrons em 28 minutos (0,6 niutrons por minuto). A diminuição do peso dá blindagem diminuiu o contrapeso necessário, resultando em um conjunto muito mais leve que o anterior. Esta substituição tornou-se necessária depois que introduzimos modificações nas mesas de fresa do conjunto, ligadas essencialmente à correção da falta de coaxialidade entre os eixos z e w (6). As modificações foram as seguintes: substituição de um colar de esferas, que fora colocado entre a base e a parte móvel da mesa maior, por um anel feito de chapa de bronze fosforoso, e a colocação de uma bucha de bronze no centro da mesa maior, por onde passa o eixo

do goniostato.. A substituição do colar de esferas, pelo anel de bronze, aumentou em muito o torque necessário para a movimentação 26, e, o que nos levou à alteração da blindagem do detector para diminuir o peso sobre a mesa. Mesmo assim, o problema continuou existindo e tivemos de alterar a disposição dos motores, colocando os de maior redução para efetuarem a movimentação rápida do sistema mecânico (Ttem II.3.8). No que se refere à precisão, os eixos de rotação 20 e w (0) tornaram-se quase que perfeitamente coaxiais. As medidas, a alturas diferentes do eixo do goniostato, mostraram que a excentricidade de movimentos nessas posições era de, no máximo, 0,02 mm, resultado muito bom em um sistema realmente pesado como o nosso. Este resultado foi conseguido após 3 tentativas de melhoria de precisão, durante as quais todo o conjunto do espectrómetro foi quase que totalmente desmontado.

II.4.2 - O goniostato para monocristais

O goniostato que substituiu a mesa de amostras do difratômetro, foi inteiramente construído nas oficinas do IEA. É um tipo especial de goniostato, com 5 círculos, ou seja, 5 eixos de rotação. Sua construção baseou-se em desenho original do Prof. i?A. Young* do "Georgia Institute of Technology", e sofreu algumas modificações introduzidas pelo Prof. **S.Caticha-Ellis**.

Os 5 eixos do goniostato são designados: ϕ , ψ , X, ω , e E. Os dois primeiros são os mesmos eixos ϕ e ω do difratômetro. Os outros são eixos do próprio goniostato. Com exceção de ψ , todos os outros eixos são normalmente encontrados em goniostatos, chamados também de difratômetros de quatro círculos, e a descrição dos seus movimentos pode ser encontrada na literatura (Arnãt & Willis, 1966 ; Woolfson, 1970). O eixo Z permite o giro do cristal em torno do vetor de espalhamento, ou seja, permite a variação do ângulo azimutal do cristal. Quando o goniostato está bem posicionado, com o círculo Z contido em um plano que passa pela bissetriz do ângulo formado pelo

feixe monocromático e o terceiro colimador, o eixo Z está na sua posição correta.

O goniostato tem como características mais importantes além do eixo E, boa precisão de funcionamento (que foi sendo melhorada com o decorrer da realização da experiência); tamanho suficientemente grande para conter cristais adequados à difração de nêutrons (o diâmetro da parte livre dentro do círculo x e da ordem de 22,5cm), e boa rigidez estrutural, de modo a não sofrer modificações de posição durante o uso, especialmente quando o cristal é muito pesado. Para a movimentação do eixo ϕ foi colocado um "selsyn" de modo a ser possível o controle à distância. No eixo x também foi colocado um "sej[syn]", mas no uso que fizemos até agora do goniostato somente utilizamos o eixo ϕ que, como veremos no item IV.1, foi colocado em posição coincidente com o eixo ϕ na realização do trabalho desta tese. Um sistema de controle do eixo ϕ foi construído e está descrito no mesmo item.

A fotografia da figura 11.12 mostra o goniostato instalado no difratômetro. A fotografia da figura 11.13 mostra o difratômetro, após as modificações feitas.

O sistema eletrônico de detecção é formado de 2 monocanais de detecção de nêutrons comandados por um programador eletrônico. Um dos monocanais está ligado ao detector e o outro a um monitor do feixe. Eles são, em unhas gerais, constituídos de pré-amplificadores, amplificadores, analisadores de um canal, registradores eletrônicos ("scalers") e indicadores de nível ("ratemeters"), além de fontes de alta-tensão para a polarização dos detectores. Cada um dos canais está ligado, através dos indicadores de nível, a uma pena de um registrador duplo, que traça as curvas de intensidade detectadas pelo detector e pelo monitor. As contagens obtidas, durante um certo tempo, podem ser registradas por uma impressora ("printer") de alta velocidade de impressão. O controle dos ciclos de contagens pode ser feito manualmente, ou então, automaticamente, através do programador eletrônico, como descrito no item IV.4.

A figura 11.14 mostra uma fotografia do painel de controle do difratometro, que inclui, além do sistema eletrônico descrito, o circuito elétrico do sistema de comando, citado no Ttem II. 3.8,



Figura II.12 - O goniostato de 5 eixos instalado no difratômetro de nêutrons do IEA.

Figura 11.13 - O difratómetro de neutrons do IEA, após modificações que tomaram possível o estudo de monocristais.

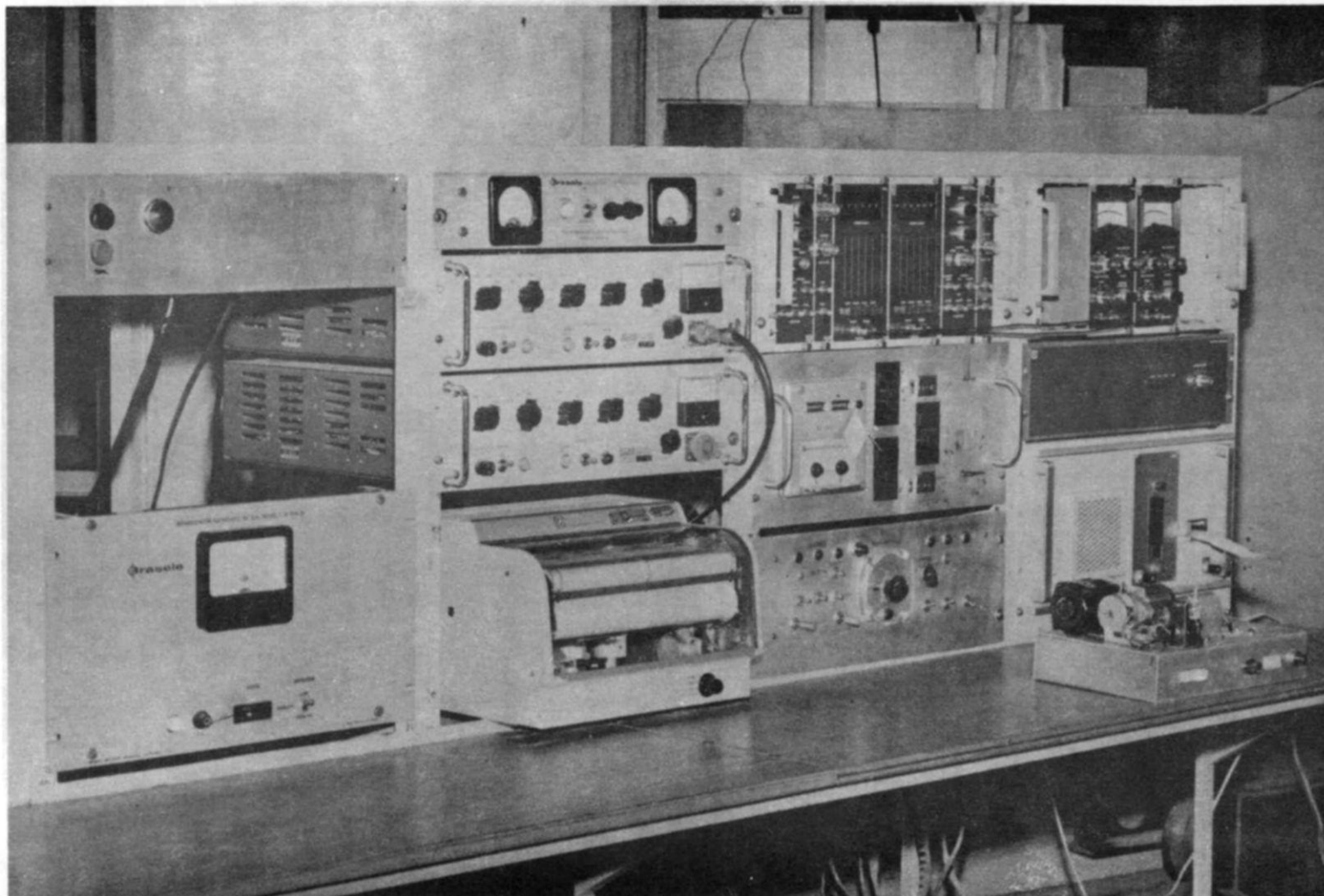


Figura II.14 - O painel de controle do difratômetro de nêutrons do IEA.

CAPITULO III

CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS SOBRE A DIFRAÇÃO MÚLTIPLA DE NÊUTRONS EM CRISTAIS MOSAICOS

III.1 - Cristais mosaicos

Um cristal, cuja estrutura seja perfeitamente uniforme e regular em toda a sua extensão, é chamado "cristal perfeito". Entretanto, um cristal real muitas vezes tem uma estrutura que está longe de ser perfeita. Quando muito, em regiões bem pequenas, a estrutura tem a regularidade proclamada pela teoria. E essas regiões estão ligadas a outras regiões também perfeitas através de fronteiras que são distorções e deslocamentos na estrutura. Um cristal real deste tipo é chamado de "cristais mosaicos" e as regiões perfeitas são chamadas "blocos mosaicos". Se nos blocos mosaicos considerarmos uma família de planos cristalinos, as normais a essa família, nos diversos blocos, estarão distribuídas em torno de uma direção média, que é a direção das normais da maioria dos blocos.

Em um cristal perfeito a intensidade difratada pode ser analisada a partir de um elemento de volume δV , do cristal, muito pequeno, tão pequeno que apenas uma fração diminuta da energia incidente pode ser refletida por ele. Para o elemento δV a reflexão integrada no caso do método do cristal girante e detector fixo é $Q \delta V$ (Baon & Lowde, 1948) (a constante Q será definida mais adiante).

Quando um feixe de nêutrons (ou raios-X) incide

em um volume cristalino extenso, no ângulo de Bragg, este feixe é atenuado por absorção, por espalhamento de diversos tipos e, inclusive, pelo fato de que uma parte dele está sendo espalhado coerentemente indo formar o feixe refletido. Desta forma, mesmo que não se considere a absorção e os outros espalhamentos, o espalhamento de Bragg será tão menos intenso quanto mais profunda for a camada em que ele se origina no cristal, pois a energia incidente nessa camada será menor do que nas camadas mais próximas da superfície de incidência. Desta forma, a expressão QV , que seria aplicada a todo o volume do cristal, quando não se considera a absorção e os outros tipos de espalhamentos, não tem validade, pois a intensidade do feixe incidente diminui apreciavelmente com a sua penetração no cristal. Esta redução na intensidade incidente constitui-se no fenômeno chamado de "extinção". (Em um cristal perfeito, a atenuação da onda que viaja dentro do cristal, na direção da onda incidente pode ser considerada como o resultado da interferência de componentes repetidamente refletidas e finalmente lançadas na mesma direção, mas com fases opostas. A atenuação deste tipo, que é devida a uma estrutura perfeitamente ordenada, e chamada "extinção primária". Tanto para nêutrons como para raios-X, no ângulo de Bragg, esta extinção é tão acentuada que a reflexão efetivamente se dá numa camada da ordem de 10^{-4} cm. *Bragg e Lowde, 1948*). Entretanto, em um cristal mosaico extinção deste tipo é, via de regra, desprezível, a menos que os blocos mosaicos tenham dimensões suficientemente grandes para que a extinção primária dentro deles seja considerável. Contudo, é possível que em um cristal mosaico dois blocos a profundidades diferentes tenham orientações idênticas, de tal forma que o bloco mais próximo da superfície possa tornar a refletir a parte do feixe que foi refletida pelo bloco mais distante. É claro que o caso mais comum é aquele em que os blocos têm orientações próximas mas diferentes, não refletindo o feixe incidente na mesma inclinação. Por outro lado, as reflexões de blocos a diferentes profundidades são incoerentes (só por uma casualidade muito grande seriam coerentes), e a atenuação causada constitui-se numa diminuição de intensidade, ao passo que na extinção primária a atenuação se processa como interferência de ondas,

ou seja, como diminuição, até a anulação, da amplitude das ondas. Pelo primeiro motivo, menor probabilidade de dois blocos estarem identicamente orientados, e pelo segundo motivo, atenuação de intensidades de feixes e não de amplitudes de onda, a extinção assim gerada é muito menos severa do que a extinção primária, \j\ espessura na qual vale a expressão QV é centenas de vezes maior do que no cristal perfeito7) Extinção causada por blocos mosaicos é chamada "extinção secundária", Naturalmente um cristal mosaico, que tenha blocos com dimensões suficientemente grandes, pode ter extinção primária dentro deles, além da extinção secundária» Um cristal deste tipo é de análise bastante difícil, não se podendo separar facilmente um tipo de extinção do outro» Evidentemente, para que um cristal mosaico não tenha extinção primária considerável nos seus blocos, é suficiente que esses blocos tenham dimensões bem menores do que a distância de penetração na qual a extinção primária é fatal. Um cristal mosaico com esta propriedade é chamado de "idealmente imperfeito", Os cristais reais, teriam, segundo CR.

Ring-2 (1957), blocos mosaicos com dimensões lineares de 10^{-10} a 10^{-8} A, o que está de acordo com CE. Bacon (1962) e I.R.Jones (1963) que acham que elas são da ordem de 5000 A. Zachariasen (1968), usando de uma teoria particular, determinou o raio médio dos blocos mosaicos de uma amostra de quartzo como sendo $0,47 \times 10^{-8}$ cm e de uma amostra de hambergita, $1,98 \times 10^{-8}$ cm. Os cristais idealmente imperfeitos devem ter blocos mosaicos com dimensões da ordem de 10^{-4} a 10^{-5} cm (Cullity, 1967). Portanto, os cristais reais, de um modo geral, podem ser considerados idealmente imperfeitos, (desde que sejam cristais mosaicos),

111,2 - Equações diferenciais das intensidades dos feixes.

Cristal mosaico idealmente imperfeito•,

Vamos considerar um cristal mosaico do tipo idealmente imperfeito definido no item anterior. Se a forma desse cristal é a de uma placa plana, as seguintes equações diferenciais descrevem a variação das potências dos vários feixes envolvidos num fenômeno de difração múltipla, conforme eles a

travessam uma camada cristalina de espessura dx, a uma profundidade x da superfície de incidência:

$$dP_o / dx = - \sum_j P_j \left(\frac{1}{l_j} + \mu \right) + \sum_j P_j \left(\frac{1}{l_j} + \mu \right) \cos^2 \theta_j$$

$$4 \pi \sin^2 \theta \sum_j Q_{ij} P_j = - \sum_j P_j \left(\frac{1}{l_j} + \mu \right) + \sum_j P_j \left(\frac{1}{l_j} + \mu \right) \cos^2 \theta_j \quad (3.2)$$

$$i \frac{dP_i}{dx} = - \sum_j P_j \left(\frac{1}{l_j} + \mu \right) + \sum_j P_j \left(\frac{1}{l_j} + \mu \right) \cos^2 \theta_j + \sum_j Q_{ij} P_j - \sum_j Q_{ji} P_i \quad (3.3)$$

As equações (3.1)^(3.2) e (3.3) constituem-se numa extensão das equações para a difração simples em um cristal mosaico, apresentadas por W.H. Zachariasen (1945). Estas equações apareceram pela primeira vez no trabalho sobre difração múltipla de nêutrons de R.M. Moon e C.G. Shull (1964). A equação (3.1) aplica-se ao feixe incidente, a equação (3.2) ao feixe difratado primário e a equação (3.3) a um feixe difratado secundário de índice i. Nas equações (3.2) e (3.3), o sinal positivo aplica-se ao caso em que os feixes são transmitidos através da placa cristalina, isto é, atravessam a placa e saem na face oposta à face de incidência. O sinal negativo aplica-se ao caso em que os feixes são refletidos, ou seja, saem na própria face de incidência. P_0 , P_1 e P_i são, respectivamente, as potências dos feixes incidentes, primário e secundário de índice i e y_0, y_1, y_i os valores absolutos dos cossenos diretores com relação à normal à face de incidência do cristal, dos mesmos feixes e na ordem citada. Nos coeficientes dos termos das equações, μ é o coeficiente de absorção linear efetivo do cristal e os Q_{ij} são os coeficientes de reflexão linear. Ambos

serão melhor definidos mais adiante. As somatórias que aparecem nas 3 equações são somatórias sobre todos os feixes secundários, sendo que na equação (3.3) elas excluem o feixe secundário que a equação representa, aliás como é indicado nas próprias somatórias.

Na aplicação das equações a um caso real, vamos admitir que se tem as seguintes hipóteses referentes ao cristal e às condições experimentais (Moon & Shull, 1964; Catioha-Ellis, 1969):

1. A distribuição das normais a uma mesma família de planos dos blocos mosaicos do cristal e uma função aproximadamente gaussiana e isotrópica e, portanto, pode ser expressa por:

$$W(A) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} n} \exp(-A^2/2 n^2) \quad (3.5)$$

onde A é o desvio angular das normais com relação à direção média da distribuição e n é o desvio padrão dessa distribuição e é dado pela expressão:

$$n = B / \sqrt{2\pi} \sqrt{I}$$

sendo B a largura na meia altura da distribuição, n é chamado também de largura de mosaico.

2. n é muito maior do que a largura na meia altura (s) da curva da intensidade refletida por qualquer dos blocos mosaicos do cristal
3. O feixe de neutrons incidente no cristal é aproximadamente monocromático e é bem colimado de modo que sua divergência angular seja bem menor do que n. Entretanto

to, deve ser bem maior do que s ,

4. A área da secção transversal do feixe incidente deve ser bem menor do que a área da face de incidência do cristal.

A distribuição gaussiana da primeira hipótese e normalmente admitida para os cristais mosaicos e na maioria dos casos ela se aplica bem a curvas de intensidade medidas no processo do cristal girante. A isotropia dessa distribuição ~ pode ser mais facilmente questionada. Entretanto, na falta de melhor modelo, a primeira hipótese é integralmente admitida (Cathia-Ellis, 1969).

A segunda hipótese depende exclusivamente do cristal utilizado. Os cristais metálicos, por exemplo, em particular aqueles usados como monocromadores de nêutrons, têm largura de mosaico variando de alguns minutos a algumas dezenas - de minutos de arco, ao passo que, para nêutrons, a largura s e da ordem de uns poucos segundos de arco (Bacon, 1962). A menos que se utilize um cristal perfeito, ou quase perfeito, a segunda hipótese será sem dúvida satisfeita.

A terceira hipótese, que diz respeito às condições experimentais, é a mais difícil de ser satisfeita integralmente. Sem dúvida o feixe "monocromático" de um difratômetro de nêutrons contém nêutrons cujas energias variam muito pouco em torno de uma energia predominante. O alargamento em energia dos nêutrons no feixe monocromático depende da geometria dos colimadores e do mosaico do cristal monocromador que deve ser adequado a essa geometria, conforme citamos no item II.3.7. Em um difratômetro de nêutrons onde a geometria do feixe monocromático não seja muito pobre, este feixe será, sem duvidas "aproximadamente monocromático". Entretanto» em difratometria de nêutrons, a obtenção de um feixe monocromático bem colimado envolve problemas de intensidade tão sérios que conseguir que a divergência angular desse feixe seja bem menor do que a largura n do cristal em estudo e praticamente impossível, o máximo que

se consegue i tornar a divergência angular do feixe poucas vezes menor, isto se o n do cristal não for muito pequeno.. Sendo assim, a divergência angular do colimador é bem maior do que a largura s.

Finalmente, a quarta hipótese também não se verifica facilmente, devido exatamente ao fato do feixe monocromático ser pouco intenso em difratotnetria de niutrons, como citamos no item 11 „ 2. Esta pouca intensidade e agravada quando da redução da divergência angular do feixe monocromático, como é requerido pela terceira hipótese» Portanto, não e possível tornar a secção do feixe muito pequena com relação â face de incidência do cristal. Desta forma, como citamos no capítulo I, os feixes são geralmente limitados pelas dimensões físicas do cristal, não se podendo calcular o comprimento deles como - sendo $T/YÍ$, tornando-se necessário determinar comprimentos médios, como mostredo no apêndice III,

III.3 - Parâmetros que entram nas equações diferenciais

III.3.1 - A refletividade linear

As constantes Q_{ij} que aparecem nas equações diferenciais são constantes de acoplamento responsáveis pela transferência de potência do feixe i para o feixe j, que acontece dentro da camada dx do cristal. Essas constantes são chamadas de coeficientes de refletividade linear, no sentido de que são elas que, quando multiplicadas pelo caminho (d_i^{\wedge}) percorrido pelo feixe i dentro da camada dx, dão a fração da potência do feixe i que e transferida para o feixe j ,, dentro dessa camada. O nome refletividade provem do fato que a intensidade integrada I_{\parallel} de uma reflexão está ligada a intensidade incidente I_0 e ao volume do cristal $6V$, pela refletividade Q , ou seja, $T_{\parallel} = I_0 \cdot Q \cdot V$;: W, H° Zachariasen (194.5J. obteve uma expressão para o que ele chama de poder refletor de uma camada de espessura dx de um cristal, de tal modo que essa camada contem

muitos blocos mosaicos, em numero suficiente para que já se possa admitir que a distribuição da orientação desses blocos é a mesma distribuição $W(\mathbf{A})$ do cristal todo. Admitindo ainda que a espessura de cada um dos blocos é tão pequena que a absorção efetiva pode ser desprezada, o poder refletor de um bloco é dado pela razão entre a potência difratada P_d e a potência incidente P_i , como função do desvio médio da orientação do feixe sobre os planos difratantes do bloco:

$$R = \frac{P_d}{P_i} \approx \left(\frac{\theta - \theta_0}{\Delta\theta} \right)^2$$

onde θ_0 é o ângulo de Bragg para a reflexão considerada e θ é o ângulo de incidência do feixe sobre os planos do bloco. Considerando um ângulo de incidência médio, tem-se:

$$R = \frac{A^2}{A_0^2} \left(\frac{\theta - \theta_0}{\Delta\theta} \right)^2$$

onde $A = \theta - \theta_0$ e $\Delta\theta$ é o ângulo de incidência médio sobre os blocos.

O poder refletor de uma camada simples de blocos mosaicos é, portanto:

$$R(\mathbf{A}) = A^2 \int W(\mathbf{A}) d\mathbf{A}$$

Pelas duas hipóteses iniciais formuladas no item 111.2, $W(\mathbf{A})$ além de ser uma distribuição gaussiana dada por (3.5) tem largura na meia altura bem maior do que a largura $\Delta\theta$. Por outro lado, sendo $\Delta\theta$ diferente de zero somente num intervalo angular bem estreito em torno de θ_0 , $\theta - \theta_0 = 0$, é possível considerar $W(\mathbf{A})$ como constante nesse intervalo, e igual

a $W(6_{\theta} - 8)$, de tal modo que resulta, para o poder refletor de uma camada simples:

$$W(6_{\theta} - 0) R^{\circ} \tag{3,6}$$

onde R_n é o poder refletor integrado de um bloco do mosaico. Se os blocos tem espessura média t_0 a camada dx contém dx/t_0 camadas simples, nas quais o poder refletor e dado por (3.6) , Portanto, o poder refletor da camada dx e dado por:

$$dx = W(9_{\theta} - 0) R_n \frac{9 dx}{\circ}$$

Se t_0 é bastante pequeno para que a extinção primaria seja desprezível dentro dos blocos mosaicos, resulta finalmente, para a refletividade linear:

$$\mathbb{R} = Q W(9_{\theta} - 0) \tag{3.7}$$

onde a constante Q é a refletividade integrada por unidade de volume de um bloco mosaico perfeito. No método do cristal girante, essa refletividade para neutrons tem a forma seguinte: (Bacon, 1948):

$$Q = \frac{X^3 N_c F^2}{\text{sen}2\theta g} \tag{3,8}$$

onde X é o comprimento de onda do feixe monocromático, N_c é o reciproco do volume da cela unitária, F é o fator de estrutura do cristal e θ , como dissemos, o ângulo de Bragg da reflexão que está sendo considerada.

Admitindo-se que a distribuição do mosaico é sempre a mesma qualquer que seja a reflexão considerada, o va~

lor de Q depende dessa reflexão, pois Q depende do ângulo de Bragg θ , e de F que é função exponencial dos Índices de Miller dos planos que produzem a reflexão. Assim Q aparece nas equações diferenciais com dois Índices relativos aos feixes a que ele se refere. Tem-se então:

$$\rho_{ij} = \rho_{ij} \cdot (\cdot B - \cdot) \quad (3.7a)$$

$$Q = \frac{X^3 N^2}{\text{sen } 2\theta} F^2 \quad (3.8a)$$

Por outro lado, a expressão (3,8) da refletividade integrada do bloco é apenas válida no caso em que o giro é feito em torno de um eixo de rotação normal ao plano de incidência. Em difração múltipla, a rotação de um determinado plano secundário, é feita em torno de um eixo arbitrário e o ângulo θ dessa rotação, é relacionado com o ângulo $\theta - \theta$ através da seguinte expressão:

$$\theta - \theta = x \frac{\text{sen } \psi \cos \phi \cos x}{\text{sen } 2\theta}$$

onde f , ϕ e x foram definidos por **Zachariassen (1945)**.

No caso de dois feixes difratados i e j , os ângulos θ , ϕ dependerão dos planos que difratam esse feixe. Pode-se escrever então:

$$\theta - \theta = A_{ij} \cdot e$$

onde

$$A_{ij} = \frac{\text{sen } \theta \cos \phi \cos x}{\text{sen } 2\theta}$$

resultando que, em (3.7a), se tem:

$$\sin^2 \delta e_{hkl} \approx \frac{3,2}{2\pi}$$

$$W(e_i - e_j) \cdot w(A_{i,j,l}) = \frac{\exp(-A_{i,j,l}/2n^2)}{2\pi}$$

O fator de estrutura e o ângulo de Bragg em (3.8b) referem-se a planos cujos índices (hkl) são calculados como a diferença entre os índices dos planos a que se refere o feixe j e os índices dos planos a que se refere o feixe i, ou seja,

$$h = h_j - h_i, \quad k = k_j - k_i, \quad l = l_j - l_i \quad (3.9)$$

Nem F, nem ϕ , dependem do sinal de h, k, l, isto é $F_{hkl} = F_{-h,-k,-l}$ e $\phi_{hkl} = \phi_{-h,-k,-l}$. Sendo assim, normalmente se tem:

$$Q_{hkl} = Q_{-h,-k,-l}$$

II 1.3.1a - O fator de estrutura

O fator de estrutura F_{hkl} que aparece na refletividade Q_{hkl} em (3.8b) e calculado com (Bacon, 1948):

$$F_{hkl} = \sum_{\text{átomos}} b \exp(2\pi i x (h \frac{x}{a} + k \frac{y}{b} + l \frac{z}{c})) \quad (3.10)$$

onde b, amplitude de espalhamento coerente do átomo ligado» esta relacionada com a quantidade determinada experimentalmente

chamada secção de choque de espalhamento coerente σ_c , pela expressão:

$$a \ll 4\pi r_b^2 \quad (3.11)$$

A amplitude de espalhamento b é o equivalente para nêutrons, do fator de espalhamento atômico f , definido para raios-X. Contudo, o elemento espalhador de raios-X é o elétron ou, mais propriamente, as camadas eletrônicas do átomo, enquanto que o elemento espalhador de nêutrons é o núcleo do átomo, com exceção dos materiais magnéticos, onde o espalhamento eletrônico é apreciável. Esta diferença fundamental na essência do espalhamento, leva a diferenças importantes entre os dois fatores. Uma das diferenças, entre as muitas existentes, já foi citada no item II.2 e refere-se à não dependência de b do número atômico. Outra, que diz respeito diretamente a este item, é a não variação de b com o ângulo de Bragg do espalhamento, ou mais propriamente, com $(\sin \theta)/\lambda$, contrariamente ao que acontece com f .

III, 3.1b - O fator de Debye-Waller:

O fator de estrutura F_{hkl} , como formulado no item anterior, expressão (3.10), supõe uma estrutura bem ordenada, com átomos em posições bem definidas, situação que não se altera com o tempo. Mas na realidade, os átomos têm movimentos devidos à temperatura, e as distâncias entre eles variam com o tempo. Então tais átomos não espalharão exatamente em fase e o fator de estrutura será menor do que o calculado pela expressão (3.10). A correção para este efeito de temperatura é conseguida pela redução da amplitude de espalhamento b , de cada átomo, por um fator que é comumente conhecido como fator de Debye-Waller, ou de temperatura. A amplitude de espalhamento, na temperatura absoluta T , do cristal é dada por:

$$b_r = b \exp(-M) \quad (3.12)$$

onde _____

$$x^2$$

Sendo u_s o deslocamento quadrático medio dos átomos, com relação as suas posições medias, em uma direção perpendicular aos planos refletoras de distancia interplanar d .

Varias aproximações são usadas para esta correção de amplitude. Pode-se tomar o mesmo M e isotrópico para todos os átomos, como em (3.12), o que so é aplicável no caso de cristais cúbicos com um so tipo de átomos na cela unitária (*James*, 1967). Uma melhor aproximação consiste em usar valores de M individuais para cada átomo na cela, contudo ainda isotrópicos. Muitos cristais não obedecem, logicamente, a condição de isotropismo. É então melhor descrever o movimento térmico, de cada átomo que seja cristalograficamente diferente na cela unitária, por seis parâmetros. Estes parâmetros podem ser determinados de intensidades difratadas, por um método de ajuste por mínimos quadrados, desde que o número delas seja suficiente.

No caso de cristais cúbicos monoatômicos se tem:

$$N = B \sin^2 \theta \quad (3.13)$$

sendo B dado pela expressão

$$B = \frac{6h}{m_0 k} \quad (3.14)$$

onde m_0 é a massa dos átomos, h e k são as constantes de **Planck** e **Boltzman**, respectivamente, θ é a temperatura de **Debye**, ou

temperatura característica do cristal, e x é a razão entre a temperatura característica e a temperatura absoluta T do cristal, isto é, $x = \theta/T$. A função $\phi(x)$, apresentada por **Debye** é dada por :

$$\phi(x) = \frac{1}{x^3} \int_0^x \frac{\xi^3}{e^\xi - 1} d\xi$$

A expressão (3,14) pode ser calculada conhecendo-se o valor de θ e a temperatura absoluta do cristal, sendo que a função $\phi(x)$ encontra-se tabelada para uma série de valores de x (Int. Tables - V.II), Pode-se também encontrar tabelado o valor de B (Int. Tables - V.III) e mesmo o valor de M (3.13) para diversos valores de B e de $\sin \theta/\lambda$. Entretanto, o valor de B , seja calculado ou seja tabelado, é sempre pouco exato, pois a temperatura de **Debye** é conhecida com pouca precisão. O valor de θ depende muito do método empregado para calculá-lo e do intervalo de temperatura em que foi medido, resultando em diversos valores para um mesmo elemento (Zm,1957). Normalmente adota-se o valor de θ , e conseqüentemente de B , proveniente do intervalo de temperatura no qual se encontra a temperatura do cristal

Finalmente no caso de cristais cúbicos monoatômicos podemos reescrever (3,10) como:

$$F_{hkl} = \frac{1}{N} b_r \exp \left[-2\pi (h^2 a^2 + k^2 b^2 + l^2 c^2)^{1/2} \right] \quad (3.16)$$

átomos

onde b é dado por (3.12),

111,3.2 - O coeficiente de absorção linear efetivo

O parâmetro γ , que aparece em alguns dos coeficientes das equações (3,1) e (3.3), é chamado coeficiente

de absorção linear efetivo.

Suponhamos um cristal orientado de tal forma que ele não esteja em posição de Bragg para nenhuma das suas famílias de planos, Se um feixe monocromático de nêutrons, com pouca divergência angular, atravessar uma camada de espessura t do cristal, durante o seu transcurso dentro da camada muitos nêutrons vão sendo eliminados por absorção nuclear, enquajito outros vão sendo simplesmente desviados da direção do feixe, no chamado espalhamento nuclear, que neste caso não inclui o espalhamento coerente de Bragg.

As intensidades do feixe nas superfícies de entrada e de saída da camada estão relacionadas pela expressão bastante conhecida:

$$I = I_0 \exp(-\mu t) \quad (3.17)$$

onde I_0 é a intensidade incidente e I , a intensidade emergente.

Se não estivéssemos em um caso onde o espalhamento de Bragg não pode acontecer, μ seria a secção de choque macroscópica total do cristal que seria dada por:

$$\mu = N \sigma_{\text{abs}} + N \sigma_{\text{esp}} \quad (3.18)$$

onde σ_{abs} é a secção de choque macroscópica de absorção e é igual a $N \sigma_a$, sendo N o número de átomos por cm^3 do cristal e σ_a a secção de choque microscópica de absorção que é proporcional a $E^{-1/2}$, onde E é a energia do neutrón incidente. σ_{esp} é a soma de todas as secções de choque macroscópicas de espalhamento (Jones, 1963), ou seja, de $I_{\text{coer}}^{\text{el}} -$ coerente elástica, $Z_{\text{inco}}^{\text{el}}$ incoerente elástica, $Z_{\text{coer}}^{\text{inel}}$ - coerente inelástica e $Z_{\text{inco}}^{\text{inel}}$ - incoerente inelástica.

Não considerando $Z_{\text{coer}}^{\text{el}}$, pode-se portanto reescrever

ver (3.18) na forma:

$$\gg \sigma_{abs} \approx \frac{1}{N} \left(\frac{\sigma_{coer}}{\sigma_{inel}} + \frac{\sigma_{meo}}{\sigma_{el}} + \frac{\sigma_{meo}}{\sigma_{inel}} \right) \quad (3.19)$$

σ_{inco} e σ_{inel} são fortemente dependentes da energia do neutrón mas a soma das duas é relativamente constante. Em um intervalo de energia de 0,001 a 1,0 eV, essa soma pode ser aproximada de modo razoável por (Fulfaro, 1970):

$$\frac{\sigma_{meo}}{\sigma_{el}} + \frac{\sigma_{meo}}{\sigma_{inel}} = \frac{\sigma_{inco}}{\sigma_{total}} \ll N \quad (3.20)$$

onde N já foi definido e σ_{inco} é a secção de choque de espalhamento incoerente de um núcleo isolado. Portanto, (3.19) pode ser reescrita:

$$N \left(\frac{\sigma_{coer}}{\sigma_{meo}} + \frac{\sigma_{inel}}{\sigma_{meo}} \right) \ll N \quad (3.21)$$

A aproximação, representada pela expressão (3.20), embora seja apenas razoável, pode ser usada em (3.19), sem introduzir um erro muito grande no valor de σ_{total} . Isto acontece porque, para a maioria dos elementos que formam os cristais comumente usados em difratometria de neutrons, em particular os cristais monocromadores metálicos, o valor de σ_{inco} é muito pequeno, algumas vezes praticamente nulo. Portanto, $\frac{\sigma_{inco}}{\sigma_{total}}$, na expressão (3.19), é um termo que representa sempre uma contribuição muito pequena para σ_{total} , dentro do intervalo citado, principalmente se a compararmos com N , numa região próxima ao extremo inferior do intervalo de energia, ou com $\sigma_{inel} \approx 10^{-2}$ prox[ima] ao extremo superior do intervalo (Jones, 1963).

to de onda do neutron e dado por

$$mv$$

onde v é a velocidade do neutron e h e m já foram definidos. Por outro lado,

$$E = \frac{1}{2} m v^2$$

Com estas duas expressões chega-se a

$$E = \frac{1}{2} m v^2 \quad (3.25)$$

Substituindo-se (3.25) em (3.24) e usando-se a expressão (3.15) tem-se:

$$T = \frac{1}{v} \quad (3.26)$$

Finalmente, substituindo (3.23) em (3.21) resulta para o coeficiente de absorção linear efetivo:

$$\mu = N (a_a + a_i + a_c) \left[1 - \frac{1 - e^{-\mu t}}{\mu t} \right] \quad (3.27)$$

onde t é dado pela expressão (3.26) acima.

A expressão (3.27) é adequada ao caso de um cristal cubico monoatômico. Em casos em que existem átomos de espécies diferentes na cela unitária, a expressão de partida, e equivalente a expressão (3.18), é (Holm, 1955):

$$\mu = \sum_i Z_i N_i (a_{ai} + a_{ei})$$

onde σ_i é a secção de choque microscópica total de espalhamento do átomo i . Neste caso o efeito de temperatura deve ser considerado de outra forma (item III.3.1b), principalmente se a cela unitária não for cúbica. Muitos autores, entretanto, não levam em consideração este fato (*Holm*, 1955; *Wajima et al*, 1960; *Jones*, 1963; *Dietrich & Nielsen*, 1965).

III.4 - Resolução do sistema de equações diferenciais,

A resolução do sistema formado pelas equações (3.1), (3.2), (3.3), pode ser feita em forma analítica, uma vez estabelecidas condições de contorno adequadas. Entretanto, isto se constitui em um trabalho formidável e de realização concreta somente em casos simples e particulares, *w.H.Zachariasen* (1945) apresentou soluções das equações para a reflexão simples, isto é, quando há somente 2 feixes. As soluções foram dadas nos dois casos: reflexão (caso Bragg) e transmissão, (caso Laue), ambas reflexões simétricas (equações 4.24 e 4.25). *CE. Bacon e R.D. Lowde* (1948), baseando-se nas soluções de *Zachariasen*, apresentam uma extensão dessas soluções no caso da difração de neutrons, onde a extinção secundária pode ser bastante intensa. Outros autores, posteriormente, usaram estes resultados, particularmente os de *Bacon & Lowde*, na determinação da intensidade dos feixes (*Holm*, 1955; *Wajima, et al*, 1960; *Jones*, 1963; *Moon & Shull*, 1964). Em alguns trabalhos e considerada também a divergência angular do feixe incidente (*Dietrich & Nielsen*, 1965; *Popovici & Gelberg*, 1966; *Popovici et al* 1968).

Em difração múltipla, quando o sistema de equações é constituído de 3 ou mais equações, a solução exata torna-se muito difícil, especialmente se se quiser expressões analíticas para as intensidades dos feixes. *Moon & Shull* (1964), não fizeram qualquer tentativa para a obtenção da solução exata do sistema. *S.Catioha-Ellis* (1969), além de apresentar a solução exata no caso de dois feixes em reflexão (Bragg), (e-

quação 6), apresenta também o desenvolvimento analítico quando são 3 feixes, sendo o feixe primário refletido e o secundário transmitido, terminando em um sistema de 9 equações a 9 incógnitas (eq. 13) cuja solução fornece as constantes de integração das soluções analíticas (eq.12), encontradas para as intensidades dos feixes. Como sugere **S.Catioha-Ellis**, é necessário o uso de computador para a resolução do sistema que fornece as constantes de integração. No caso de n equações diferenciais, ou seja, de n feixes, são n equações lineares simultâneas nas n constantes de integração. **K.Imakuma** (1972), preparou, em colaboração com o Centro de Processamento de Dados do IEA, um programa que calcula a solução exata no caso de 4 feixes, sendo o feixe primário refletido e os dois secundários: um refletido e o outro transmitido.

Entretanto, o uso do computador impede que as soluções encontradas sejam de fato analíticas, perdendo-se assim a possibilidade de se fazer considerações de cunho analítico nas equações.

III.4. 1 - Solução Aproximada: Expansão em série de Taylor

Se a solução exata do sistema de equações diferenciais é de difícil obtenção no caso múltiplo, soluções aproximadas, na forma de expansões em série de **Taylor**, podem ser obtidas com uma certa facilidade. **Moon & Shull**, no trabalho citado propõem uma expansão em série de Taylor da intensidade do feixe primário P^x em torno do ponto $x = 0$, retendo; termos até segunda ordem. A solução apresentada por eles vale no caso particular em que todos os feixes são transmitidos através do cristal. **S.Catioha-Ellis** (1969) apresenta o mesmo tipo de solução no caso de muitos feixes, sendo o feixe primário - um feixe refletido (eq.16), em um resultado que reproduzimos a seguir. A expansão em série de **Taylor** da intensidade P_j^x em torno do ponto $x=0$, resulta na série:

$$P_x(x) \gg P^{\wedge} 0) + \frac{dP}{dx} x + \frac{d^2 P}{dx^2} x^2 \quad (3.28)$$

$$\frac{d^3 p}{dx^3} x + \frac{d^n P}{dx^n} x^n +$$

As condições de contorno, quando P_j^{\wedge} é um feixe refletido, são:

em $x=0$:

$$P \ll P(0)$$

$$P_x * P_x(0) \neq 0 \quad \text{para feixes transmitidos}$$

$$P_t \ll P_t(0) - 0 \quad \text{para feixes refletidos}$$

$$\dot{P} \neq 0$$

em $x \gg T$ (espessura do cristal):

$$P_x(T) = 0$$

$$P^{\wedge}(T) \neq 0 \quad \text{para todos os feixes refletidos}$$

Aplicando estas condições de contorno em (3.28), onde vamos considerar os termos até o de segunda ordem, obtém-se:

$$P_x(0) * -P^{(1)}(0) T - 4 \sim V^{\wedge(2)}(0) T^2 \quad (3.29)$$

onde chamamos

$$P_r(x) = \frac{dP}{dx} \quad (2) \quad \frac{d^2 P}{dx^2} - Kx$$

e, conseqüentemente,

$$P_r'(0) = \frac{dP}{dx} \Big|_{x=0} \quad (2) \quad P_r''(0) = \frac{d^2 P}{dx^2} \Big|_{x=0} = -3F$$

As derivadas $P_r^{(1)}(x)$ e $P_r^{(2)}(x)$ são obtidas das equações (3.1), (3.2) e (3.3). Chamando, nessas equações,

$$V = \rho_1 l + \rho_2 l_i$$

$$A = u + Q + Q' + T Q$$

onde o índice r refere-se a feixes refletidos, assim como t refere-se a feixes transmitidos.

As derivadas $P_r^{(1)}(x)$ e $P_r^{(2)}(x)$ são portanto:

$$P_r'(x) = -P_0(x) + P_r(x) A_1 - \sum P_r(x) \frac{\partial L}{\partial t} +$$

$$2 P_r(x) \quad (3.30)$$

$$+ \frac{1}{2} P_r \sum_{r_1} r + - 4 2 E_r = \langle r \wedge (A, Q, r_1, l) + Q_{offlrl} \cdot I_0 \rangle +$$

$$1 \quad \sum_{r_1} T_{rl}, \quad \xi_{r \times of} (Q \quad \hat{1}, - P \cdot A \quad r \quad j / E \quad \# \cdot Q \cdot J \cdot A.)$$

$$2 \quad E \cdot Q_{tl} \cdot \xi_{t \wedge ()} (t \quad J + E \cdot r^0 \wedge Q_{rt} \cdot A_r) \quad (3.32)^m$$

onde fizemos:

$$P. = \frac{P_i(o)}{o} \bullet \quad \acute{e} \quad 4.$$

f_j é o comprimento do caminho percorrido (Sor um feixe dentro - do cristal.

A expressão (3.32) é a mesma expressão (16) de *Citicha-Ellis* e pode ser aplicada no caso em que o feixe primário é refletido e os feixes secundários são de qualquer tipo e em qualquer número. No mesmo trabalho a expressão foi usada em dois casos particulares, em que há um só feixe secundário, transmitido em um caso (eq*17), refletido no outro (eq.20), sendo que neste último caso é necessário usar uma expressão equivalente à (3.32) para $P_2 \neq 0$.

Finalmente, *Citicha-Ellis* calculou a aproximação de terceira ordem para o caso em que o feixe primário é refletido e o secundário transmitido (equações 20 e 21). Esta expressão, para a expansão até terceira ordem, encontra-se como exemplo no apêndice I.

III, 4o Ia - Termo geral da expansão em série de Taylor

As aproximações apresentadas no Ttem anterior - supõem que a extinção secundária e a absorção sejam baixas, resultando que se deve ter (**Moon á Shull, 1964**) |:

$$Q_{ij} \quad \hat{i}_i \ll 1 \quad e \quad y_i \ll 1 \quad (3.33)$$

As condições (3.33), que já apareceram como (1.1) no capítulo I, são necessárias no caso de se querer rãpj_ da convergência da série de **Taylor**, possibilitando uma boa aproximação, mesmo que a expansão se faça até termos de segunda ou terceira ordens apenas,

O coeficiente de absorção linear efetivo μ é, em geral, de ordem de 10 cm^{-1} . Em consequência disto, um feixe de nêutrons penetrará muito mais dentro de um cristal espesso, do que um feixe de raios-X o poderia fazer em um cristal do mesmo tipo. Se a espessura do cristal não for reduzida a um valor muito pequeno, a extinção secundária será muito intensa (**Bacon, 1948**). Este problema praticamente não existe com os raios-X, já que os comprimentos dos feixes são, na maior parte das vezes, limitados pela absorção e não pela geometria do cristal (**Catioha-Ellis, 1969**). Quanto as refletividades lineares Q_{ij} , estas dependem da distribuição mosaico dos planos que causam a reflexão bem como da refletividade integrada por unidade de volume desses mesmos planos, quando considerados em um bloco mosaico perfeito. Em um cristal com largura de distribuição mosaico da ordem de uma ou duas dezenas de minutos, valor comum entre cristais metálicos, a refletividade linear, para os planos mais intensos, atinge valores da ordem de 10 cm^{-1} . Com raios-X esses valores tendem a ser maiores do que com nêutrons, considerando-se que o fator de estrutura, do qual depende a refletividade integrada do bloco mosaico, temi geralmen" fte* ^ailon* .mais'calíto^no case? de r^ios*X;^".- , • - ". .;• - ,

Quanto aos comprimentos dos feixes, no caso de uma placa cristalina, eles são dados por $l = T/\gamma$, quando não são limitados pelas outras dimensões da placa (apêndice III). Quase sempre, os comprimentos dos feixes de nêutrons estão ligados às dimensões do cristal, notadamente à espessura, salvo no caso de cristais absorvedores onde $A \ll 1/(2u)$ (Catiaha-Ellis, 1969), não importando as dimensões do cristal. Neste caso o produto $u\lambda \approx 0,5$, o que mostra, de acordo com as equações (3.33), que para cristais absorvedores, a convergência da série não será muito rápida. Com cristais pouco absorvedores, os comprimentos dos feixes dependerão das dimensões do cristal. No caso de raios-X, os comprimentos são, em geral, menores do que com nêutrons.

Quanto aos produtos Q_{hkl} não é difícil que cheguem a valores próximos da unidade e, inclusive, maiores. Não fossem as limitações físicas de alguns cristais, entendendo-se aqui, como limitações físicas, todas as dimensões do cristal e não somente a espessura, e os produtos Q_{hkl} chegariam a valores muito maiores do que 1. Suponhamos, por exemplo, que se tem uma placa cristalina de 1 cm de espessura, sem limitações nas dimensões de suas faces. Suponhamos também que esta placa está difratando nêutrons segundo planos (111) paralelos às faces e que, simultaneamente, está difratando segundo planos secundários de índices (020). O cosseno desse feixe secundário, com relação à normal às faces do cristal, é 0,0787. O comprimento do feixe seria assim:

$$l_2 = \frac{l_1}{\cos \theta} = 12,7 \text{ cm}$$

A refletividade desse plano, com relação ao feixe incidente, no caso de um cristal com largura de mosaico igual a $12'$, é igual a $1\%_{20} = 0,269\%$. Para o feixe primário tem-se: $\lambda_{21} = 0,316 \text{ cm}^{-1}$. Com o comprimento calculado tem-se então:

$$Q_{20} l_2 = 3,42 \quad \text{e} \quad Q_{21}^* l_2 = 4,00$$

Como se vê, $Q \cdot \hat{I}$ pode assumir valores bastante altos, que não verificam as condições (3.33).

O que se vem fazendo, sistematicamente, quando se quer baixa extinção secundária, é usar cristais de pequena espessura. Entretanto, este procedimento implica na obtenção de feixes difratados com pouca intensidade desde que o volume de cristal que difrata é muito pequeno. No nosso caso, em que a resolução foi aumentada, mas com evidente prejuízo da intensidade, o emprego de cristais extremamente finos torna-se impraticável. Para obtermos intensidade aceitável tivemos de optar por cristais do tipo espesso. Obviamente, a série de **Taylor**, quando considerada com termos até segunda ordem, ou mesmo terceira ordem, deixa de ser uma boa aproximação no cálculo das intensidades dos feixes, pois as desigualdades (3.33) não se verificam de modo satisfatório, podendo inclusive acontecer que $Q \cdot \hat{I} > 1$ como no exemplo dado. Em casos não muito drásticos de extinção, **Moon S Shull** e **Cat-icha-Ellia** recomendam o cálculo com expansões com termos até terceira ordem. Certamente expansões que incluem termos com ordens mais altas são melhores ainda. O problema é que esses termos são obtidos por derivações sucessivas de intensidade e, a não ser pela aplicação das condições de contorno que, em alguns casos, anulam alguns termos de intensidade, nenhuma simplificação algébrica considerável pode ser efetuada. Os termos de ordens mais altas vão-se tornando cada vez mais complicados e extensos. Este fato pode ser verificado comparando-se a expressão (17) de **Cat-icha-Ellis**, que é uma expansão de segunda ordem com as suas expressões (21) e (21'), que dão a expansão de terceira ordem correspondente.

A necessidade de se ter expansões de ordens mais altas que pudessem ser usadas no caso de cristais mais espessos levou-nos a tentativa, bem sucedida, da determinação do termo geral da expansão em série de **Taylor** da potência P^x de um feixe de índice i . De fato, quando se faz as derivações sucessivas para a obtenção dos termos de ordens crescentes, é possível entrever que existe uma lei de formação desses termos. A

dedução dessa lei se encontra no apêndice I, e o resultado 5 o que se segue,

A expansão da potência $P|$ de um feixe qualquer

$$P_i(x) = P_i(0) + P_i^{(1)}(0)x + \frac{P_i^{(2)}(0)}{2!}x^2 + \frac{P_i^{(3)}(0)}{3!}x^3 + \dots,$$

$$\frac{1}{n!} \frac{d^n P(x)}{dx^n}$$

onde $P_i^{(n)}(x)$ representa a derivada n -ésima de $P(x)$ com relação a x e $P_i^{(n)}(0)$ é o valor da mesma, para $x=0$. No termo de ordem n , o produto de x^n pela derivada calculada no ponto $x=0$, pode ser escrito na forma:

$$P_i^{(n)}(0) x^n = \frac{1}{k} P^{(n)}(0) X_{k,i} \quad (3,34)$$

onde os coeficientes k_i são obtidos pela formula de recorrencia

$$X_{k,i}^{(n)} = \sum_{j=1}^{n-1} X_{k,j}^{(n-1)} X_{k,i-j}^{(1)} \quad (3,35)$$

Os coeficientes $X_{k,j}$ são dados por

$$X_{k,j}^{(n)} = \sum_{i=1}^{n-1} X_{k,i}^{(n-1)} X_{k,j-i}^{(1)}$$

$$X_{k,j}^{(1)} = s \cdot A \cdot x \quad k \sim j$$

Os $X_{k,j}^{(n)}$ são os coeficientes das equações (3,1), (3,2) e (3,3), Os $Q_{k,j}$ são determinados pela expressão

(3.7a) e os A^j por:

$$A_j = y + Z Q_{jk} \quad (3.36)$$

enquanto que:

$$x_k = y_k$$

onde Y_k é o cosseno diretor do feixe k

Os s_j são os sinais a serem usados nas equações (3.1), (3.2) e (3.3) e são:

$$s_j = + 1 \text{ se } j \text{ é um feixe transmitido}$$

$$s_j = - 1 \text{ se } j \text{ é um feixe refletido}$$

As somatórias em (3.34) e (3.35) são feitas considerando-se todos os feixes, isto é, o feixe incidente, o primário e todos os secundários. Em (3.34), obviamente, devem ser consideradas as condições de contorno, mas deve-se notar que em (3.35), estão incluídos todos os x_k mesmo aqueles que são coeficientes de potências que se tornam nulas quando em (3.35), usado para o termo anterior, toma-se um valor particular para x .

O termo geral, resultando de um processo de formação de caráter iterativo, torna-se adequado ao cálculo em computador. Desta forma, usamo-lo na preparação de alguns programas que possibilitaram o estudo da relação existente entre a variação da intensidade relativa do feixe primário e a largura de mosaico do cristal.

CAPITULO IV

REALIZAÇÃO EXPERIMENTAL

IV.1 - O arranjo experimental

O arranjo experimental em uma experiência de difração múltipla de nêutrons é bem simples: o cristal (amostra) é colocado no goniostato do difratômetro em posição de difratar segundo uma família de planos previamente escolhida. Nesta situação o detector é fixado em uma posição formando o ângulo de espalhamento 2θ , sendo θ calculado segundo a relação de Bragg, conhecendo-se o comprimento de onda do feixe incidente (λ) e a distância entre os planos da família (d). O cristal deve girar em torno do vector de espalhamento, que na rede recíproca é o vector que une a origem ao ponto representativo da família de planos. Na rede direta a direção desse vector coincide com a direção da normal aos planos da família. No difratômetro, fazemos com que essa direção seja a mesma da bissetriz do ângulo formado pelo feixe incidente e o feixe refletido, ou seja, pela linha central ao segundo colimador e a linha central ao terceiro colimador. Durante o giro do cristal, outros planos colocam-se em posição de difratar e a intensidade resultante da reflexão do feixe monocromático, pela família de planos escolhida, varia de acordo com o processo descrito no capítulo I. Essa variação é medida com um detector e registrada mediante um sistema eletrônico.

Em um difratômetro de nêutrons para monocristais normalmente se tem quase todas as condições para se conse-

guir o arranjo experimental acima descrito. Uma das condições[^] entretanto, não é facilmente satisfeita: é a colocação do cristal na posição de difratar de modo que se possa gira-lo em torno do vector de espalhamento. De um modo geral e necessária a existência de um eixo adicional no goniostato. No nosso aparelho esse eixo adicional e um quinto eixo .conforme referên. cia feita no item II.4.2. As equações diferenciais era III.2 - (equações 3.1, 3.2 e 3.3), são validas quando o cristal tem a forma de uma placa de faces paralelas. Sendo assim, todos os cristais que usamos tinham essa forma, e a maioria deles eram orientados com os planos (111) paralelos as suas faces maiores. O desvio angular da orientação desses planos, com relação i normal as faces atingia no máximo 4°, o que possibilitou fixar os cristais nas cabeças goniométricas (tipo normal) de maneira que suas faces ficassem paralelas aos 2 movimentos de transla- ção existentes. Com esta montagem do cristal, tornou-se pos- sível o uso do eixo ϕ do goniostato em lugar do eixo I. A coiji cidincia de eixos \hat{e} feita simplesmente utilizando-se do eixo X, para levar $\$$ a coincidir com Z (v.figura IV.1). Elimina-se assim, a necessidade do uso do eixo Z. Os dois arcos de ajus- te da cabeça goniometrica, que têm amplitudes de movimentos en- tre -25° e +25°, permitiram compensar o desvio na orientação dos planos paralelos às faces e assim obter a reflexão prima- ria. Este tipo de montagem do cristal \hat{e} adequada ao caso da reflexão tipo Bragg. As medidas neste caso são mals convenieji tes do que no caso da reflexão Laue, pois nesta ultima o per- curso dos feixes varia com o angulo azimutal. Nas medidas rea- lizadas usamos sempre a geometria do caso Bragg. No caso Laue pode-se conseguir também a coincidência dos eixos fe $\$$, mas , devido a dificuldade de te conseguir essa coincidência, deve-se utilizar o eixo e, que afinal existe para esse fim. Evitamos o eixo Z por 3 motivos:

1. \hat{e} um eixo com movimento de amplitude 11m1 ta_ da. A limitação surge pelo fato de que o arco estrutural, que permite o movimento x e que sustem o eixo 4>, acaba, em casos extremos, colocando-se de forma a barrar, ao mesmo tempo, o feixe incidente e o feixe primário. Estes pro-

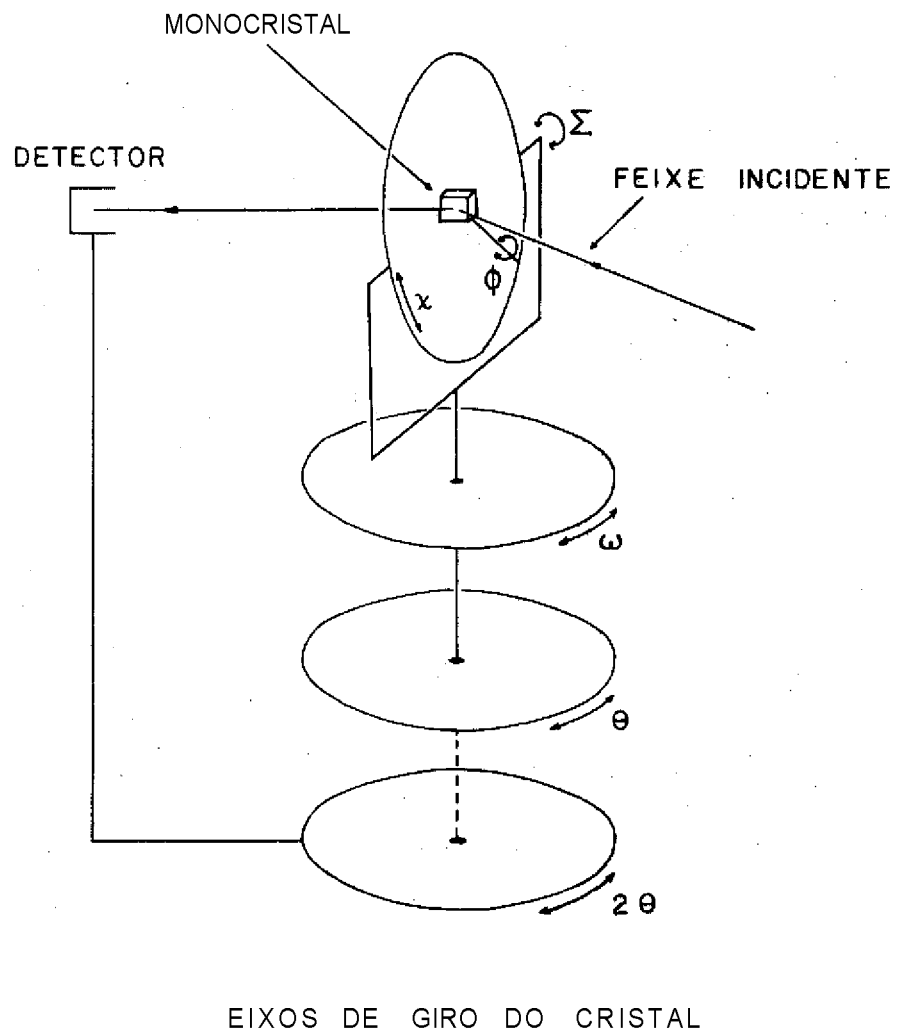


Figura IV.1 - Os movimentos circulares existentes no goniostato para monocristais.

blemas não existem com o eixo ϕ que pode ser girado livremente **para qual** quer lado.

2. É" um eixo que não tem a mesma precisão do eixo 4), porque sustenta uma boa parte **da** estrutura do goniostato, quase toda ela construída em aço. **O** peso dessa parte levou ao uso de rolamentos de esferas **como mancais** (buchas de bronze dariam mais estabilidade ao movimento) Contudo, existe a possibilidade de se fazer algumas **modificações** a fim de torna-lo um eixo de movimentação precisa. Para as medidas que não exigem a precisão que atingimos, é **um** eixo perfeitamente utilizável.

3. Finalmente, a montagem dos cristais **na** forma em que foi feita resultou mais compacta e mais firme do que se os colocássemos apoiados sobre uma **das** suas faces menores (a maioria dos cristais tinha a forma **de** uma placa quadrada). Esta montagem implica na utilização **do** eixo ϕ como eixo de giro para a variação do ângulo azimutal.

A movimentação do cristal segundo o eixo ϕ **foi** conseguida colocando-se um sincro-receptor de movimento **circu-**lar (Selsyn) acoplado à engrenagem sem-fim de acionamento **do** eixo. O sincro transmissor correspondente, foi por sua vez **a-**coplado a um motor **sTncrono** com redução de velocidade. Um **mo-**vimento bem lento, cuja velocidade dependia da relação entre **-**engrenagens que acoplavam o motor ao sincro-transmissor e **que** podiam ser substituídas, era transmitido dessa forma ao **eixo** ϕ . À movimentação rápida, para mudança de posição do cristal, **era** conseguida pela substituição do motor síncrono por **um** motor **de** indução comum, sem redução de velocidade.

Uma segunda versão deste sistema foi construída. Nesta segunda versão, foram usados 2 sincro->transmissores, **es-**tando um deles acoplado, por meio de um par de engrenagens, a um motor síncrono com redução, mas com velocidade de rotação **-**razoavelmente alta. Com uma chave de reversão e possível girar

o cristal, nos dois sentidos, com a velocidade de $6^\circ/\text{min}$. O outro sincro-transmissor, na mesma forma que na primeira versão, está acoplado a um motor síncrono com redução, e a variação da velocidade é conseguida pela substituição das engrenagens de & coplamento. No eixo deste sincro-transmissor foi colocado um grupo de camos e um micro-interruptor para a movimentação do cristal em passos angulares. Conforme a posição do micro-interruptor, este é acionado por um so camo, ou por dois camos - separados de 180° , ou por quatro camos separados de 90° . Evidentemente consegue-se assim 3 passos angulares diferentes, - pois o sincro-transmissor gira uma volta completa, ou meia voJ[ta, ou um quarto de volta, respectivamente , Sendo cada volta do sincro-transmissor correspondente a $0,1^\circ$ no ângulo azimutal <|>, tem-se portanto os passos angulares; $0,1^\circ$, $0,05^\circ$ e $0,025^\circ$, Este movimento não é reversível, a menos que.se troque o motor.

A passagem de um sincro-transmissor para outro é feita por uma chave elétrica, pertencente a um circuito de a_limentação dos motores e sincro-transmissores. Quando um dos grupos motor/sincro-transmissor é acoplado ao sincro-receptor, o outro é automaticamente desacoplado. Como segurança, a ali- mentação do circuito so se completa quando o sincro-receptor - se encontra acoplado ao sistema. Para a leitura da posição **ajn** guiar foi colocado ligado ao eixo do sincro-receptor um conta- dor de voltas, que indica os acréscimos no ângulo azimutal em unidades de $0,1^\circ$. Posteriormente, foi colocado um segundo áe_s_ tes contadores para quando o cristal gira em sentido contrario, tendo-se, assim, a indicação do sentido positivo e negativo do ângulo azimutal. Os 2 contadores, bem como o sincro-receptor, podem ser vistos na fotografia da figura 11.12. Foi este sis- tema que realmente permitiu a realização de medidas de muito boa precisão da posição angular dos picos, o que nos levou â determinação do comprimento de onda representativo do feixe mo nocromático, conforme explanação no item V.1 do capítulo seguin te.

O arranjo experimental completou-se com a insta

lação de um segundo colimador. mais apropriado a observação da difração múltipla de nêutrons» Entretanto, muitos resultados experimentais preliminares foram obtidos antes de se definir a necessidade de uma modificação fundamental, no que se refere - ao segundo colimador, Ainda neste capítulo e feita uma des. crição geral desse novo colimador,

IV.2 - Os primeiros resultados experimentais

São poucos os trabalhos que se referem à difração múltipla de nêutrons. Desses trabalhos, alguns apresentam a difração múltipla como causadora de variações de intensidade em espectros de reatores, quando determinados com espectrômetros de cristal. Estes aparelhos tem, em geral, boa resolução, quando comparados com difratômetros, pois usam do feixe direto do reator, o que permite o uso de colimadores com poucos minutos de divergência angular, não existindo problemas serios relacionados com a intensidade dos feixes. Sendo assim, nesses trabalhos, os espectros medidos apresentam picos devidos à difração múltipla, com larguras na meia altura que variam dentro de um intervalo aproximado de $10'$ a 1° , conforme pudemos observar (*Spencer & Smith, 1960; O'Connor & Sosnowski, 1960; Blinowski & Sosnowski, 1960*). Nos trabalhos realizados com difratômetros de nêutrons, por outro lado, as larguras na meia altura dos picos, variam em um intervalo da ordem de $0,5^\circ$ a 4° (*Borgonovi & Caglioti, 1962; Moon & Shull, 1964*). Entretanto, nenhum destes trabalhos informa sobre os tipos de colimadores usados e suas divergências angulares. Nada mais natural que começássemos a parte experimental da difração múltipla de nêutrons, usando os colimadores já existentes no difratômetro. Fizemos - algumas tentativas com cristais de silício, germânio e chumbo. Evidenciou-se, desde o início, que a colimação não era adequada, embora já aparecessem picos, ou melhor, flutuações pouco acentuadas da intensidade. Estas flutuações apresentaram-se - melhor caracterizadas na intensidade das reflexões (111) e (222) de um cristal de chumbo.

Para obtermos melhor resolução, substituímos o segundo colimador tipo Soller, de divergência angular horizontal de 27', por outro do mesmo tipo, porém com 8' de divergência. Este colimador foi construído na forma de uma caixa com prida de latão com paredes de 1/4", de secção quadrada com dimensões externas de 2"x2", de forma a poder ser encaixado dentro do colimador original, uma vez retiradas suas placas. Uma comparação de resultados pode ser feita na figura IV.2 onde estão as curvas de intensidade da reflexão (111) de um cristal de chumbo, obtidas com os dois colimadores mencionados. Aparece também a curva de intensidade da reflexão (222) do mesmo cristal. Observa-se na figura que, mesmo com o colimador de 27* de divergência, os picos já estão delineados a ponto de se poder notar que existe uma repetição dos mesmos, e que estes se apresentam simetricamente colocados, com relação às linhas divisorias espaçadas de 30° (a simetria deste tipo é uma constante na difração múltipla, quando o cristal apresenta simetrias na sua rede). Com o colimador de 8* os picos se tornaram muito melhor definidos, notando-se que existe perfeita correspondência entre eles nas duas curvas. A reflexão (222), embora obtida com o novo colimador, não apresenta boa resolução, quando comparada com a reflexão (111) (este fato repetiu-se mesmo com colimadores melhores e, por esse motivo, raramente medimos reflexões (222) e não usamos nenhuma delas nos cálculos).

Embora a resolução tenha sido bastante melhorada, com o emprego do colimador de 8', esta ainda não poderia ser considerada satisfatória. O colimador foi modificado tendo sido intercalada mais uma série de placas entre as primeiras e a divergência passou a aproximadamente 4'. A resolução, desta feita, não melhorou na mesma proporção anterior, diminuindo pouco relativamente a diminuição da divergência. Nós não temos a curva da reflexão (111) do chumbo com este colimador, mas temos a reflexão (111) do cobre, na figura IV.4 do Ttem seguinte. Uma curva de intensidade do cristal de chumbo, obtida no método do cristal girante, indicou que a largura na meia altura da sua distribuição mosaico é da ordem de 16', enquanto que, o mesmo tipo de curva, para o cristal de cobre, indicou que a

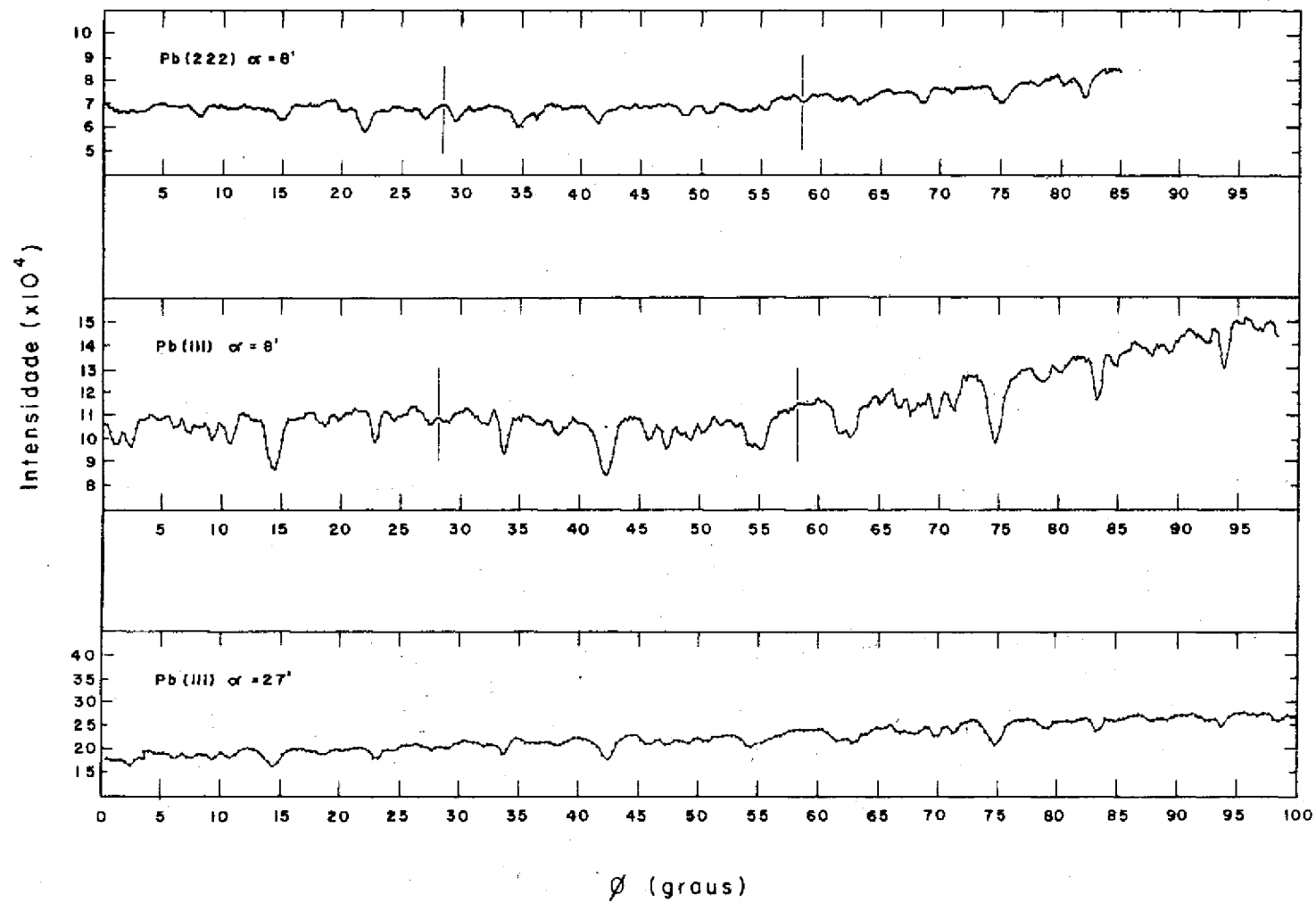


Figura IV.2 - Comparação entre os resultados experimentais obtidos com os colimadores (tipo Sol ler) de 27' e 8' de divergência angular horizontal (a), no caso da reflexão (111) de um cristal de chumbo.

sua distribuição tem largura da ordem de 18'» portanto comparavel com a do cristal de chumbo. É possível, então, uma certa comparação, dos resultados entre a resolução obtida com o colimador de 8" na reflexão (111) do chumbo e a resolução na mesma reflexão do cobre, obtida com o colimador de 4". Os picos mais estreitos, no primeiro caso, tem larguras na meia altura da ordem de 0,8°, enquanto que no segundo caso eles tem larguras da ordem de 0,6°. O incremento na resolução deveria ser bem melhor, considerando-se que o colimador mais fino tem divergência cerca de 4 vezes menor do que as larguras de mosaico dos cristais. Mesmo a separação entre os picos da reflexão do cobre não corresponde ao que se poderia esperar. Certamente, diminuir mais a divergência angular horizontal causaria, quase que exclusivamente, queda na intensidade da reflexão. Restava alterar a divergência angular vertical, que se conservava praticamente a mesma nos 3 colimadores usados, É razoável que, estando o feixe limitado na sua divergência tanto no plano vertical quanto no horizontal|obtêm-se melhores resultados, pois as reflexões secundarias se desenvolvem em planos quaisquer, diferentemente da reflexão primaria cujo plano de incidência é o plano horizontal (em um difratômetro com geometria equatorial como o nosso),

Para a realização deste intento, projetamos um novo colimador, que, como os anteriores, é encaixado dentro do colimador primitivo do difratômetro,

IVo 3 - O colimador especial

No projeto deste novo colimador adotamos o mesmo processo de colocação de placas usado nos colimadores anteriores, Esse processo, embora não seja o melhor pois permite a deformação das placas, resulta em ser mais fácil de executar. O único problema existente é que a colocação de um conjunto de placas horizontais seguido por outro de placas verticais, tornaria o colimador muito comprido, já que, tecnicamente, e muito

difícil fazer com que esses conjuntos ocupem a mesma posição - no corpo do colimador. Usar placas bem curtas implicaria em usar grande quantidade delas separadas por distancias muito pequenas, reduzindo consideravelmente a eficiencia do colimador. A solução que encontramos foi seccionar os conjuntos de placas horizontais e verticais, de tal forma que as partes de um mesmo conjunto pudessem ser separadas e entre elas colocada uma parte do outro conjunto. As placas, de um mesmo tipo, pertencentes a partes diferentes do conjunto, formam uma sã placa, e evidentemente* descontinua. Entretanto, se as dimensões dessas placas menores e as distâncias entre elas forem determinadas com cuidado, elas poderão ser consideradas como formando placas contínuas, com comprimento dado pelos comprimentos das placas menores juntamente com os espaçamentos entre elas. Não haverá, neste caso passagem de radiação de um canal para outro - que não esteja na sua continuação, isto é, não haverá aumento de divergência angular caracterizada como passagem de radiação por canais não consecutivos. Desta forma, consegue-se construir um colimador com divergência limitada, tanto na horizontal quanto na vertical, com comprimento pouco maior do que um colimador Soller de mesma divergência angular horizontal. No colimador que projetamos, os conjuntos de placas foram seccionados em duas partes apenas. O desenho da figura IV.3 dá uma ideia da disposição dessas placas. Ao lado, as placas de um colimador Soller para efeito de comparação. No apêndice II são deduzidas as equações que servem para determinar os comprimentos das placas.

A descrição física do colimador construído e a seguinte: o corpo é constituído de chapas de latão de 1/4" de espessura, com secção quadrada externa 2"x2" e 810mm de comprimento. Nas faces internas da caixa assim formada, foram fresadas 31 canaletas, resultando em 31 placas em cada um dos conjuntos. A distância entre placas é de 0,88mm e os comprimentos das mesmas (indicadas com A,B,C,D na figura IV.3) são :

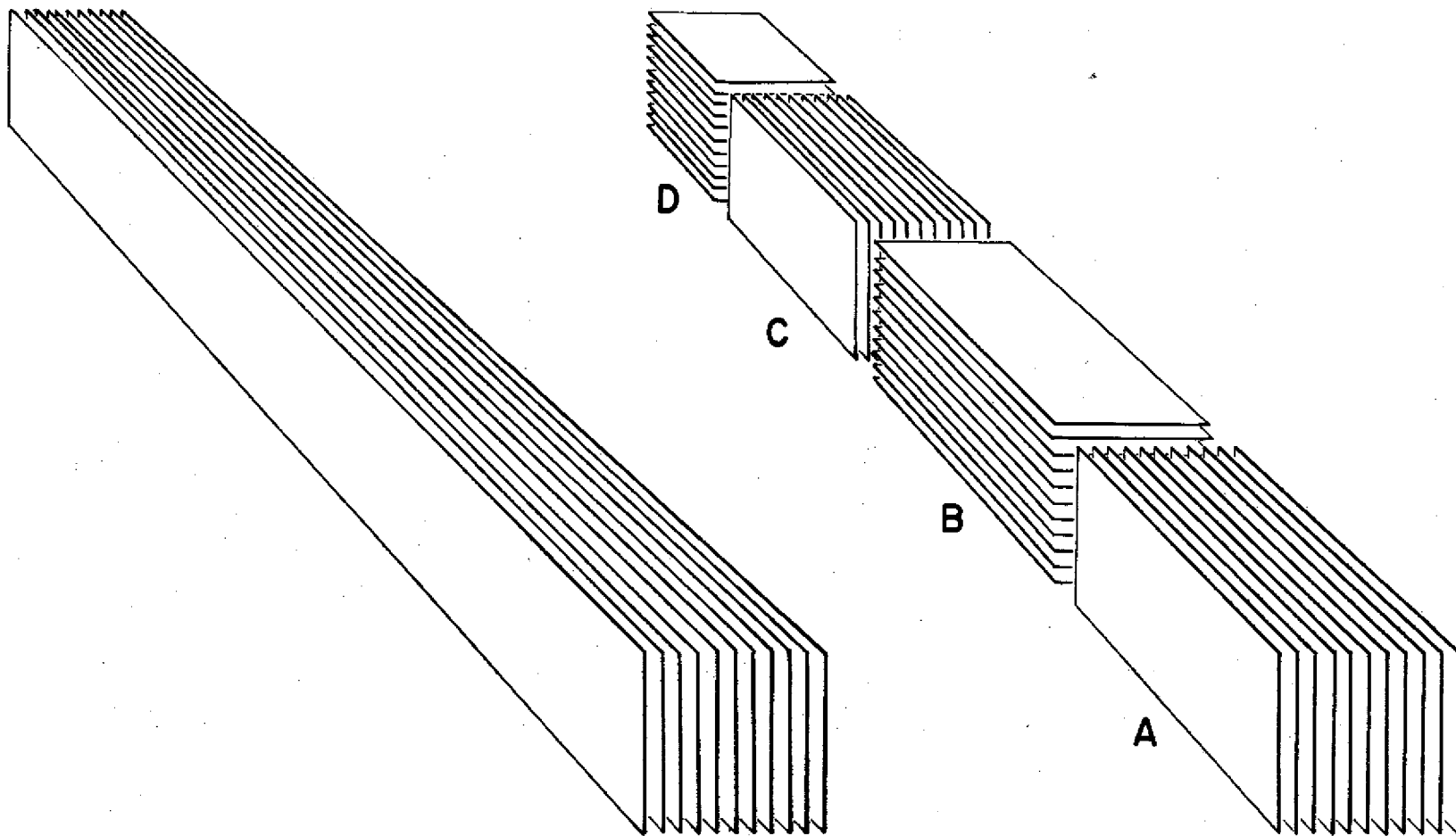


Figura IV.3 - Disposição das placas do colimador especial construído (à direita). A esquerda, disposição das placas de um colimador tipo Soller.

- Placas verticais	A: 330,4mm
	C: 38,1mm
- Placas horizontais	B: 111,1mm
	D: 330,4mm

As divergências angulares, horizontal e vertical, calculadas, são ambas iguais a 6,3'.

O ângulo crítico de reflexão total de nêutrons, calculado considerando-se que as placas são de bronze fosforoso, resultou em 5,4", portanto menor do que a divergência calculada (ver apêndice II).

A espessura das placas de bronze fosforoso é da ordem de 0,5mm. São pouco rígidas e normalmente apresentam-se deformadas por motivo de tensões internas do material. Por esta razão, os canais do colimador não têm largura regular, resultando que a divergência angular, antes calculada em 6,3', reduz-se a cerca de 5" no colimador real.

A figura IV.4 mostra os resultados obtidos com esse colimador na difração múltipla da reflexão (111) de um cristal de cobre em comparação com a mesma reflexão, no mesmo cristal, obtida com o colimador tipo Soller com 4' de divergência angular horizontal (cerca de c° na vertical). A largura na meia altura da distribuição do mosaico desse cristal é, como citado no item anterior, da ordem de 18*.

Com o novo colimador conseguiu-se uma separação muito boa dos picos e bem melhor definição dos mesmos, embora com prejuízo da intensidade. Face a esta melhor resolução, e possível verificar que, dentro de uma mesma figura, há uma variação na largura na meia altura que é devida ao efeito do fator geométrico A^\wedge definido por **Zaãhariasen** (1945). Simplif[^]cadamente, pode-se dizer que os picos serão tanto mais largos, quanto mais rasante for a trajetória do ponto da rede recTpro-

COBRE REFLEXÃO (III)

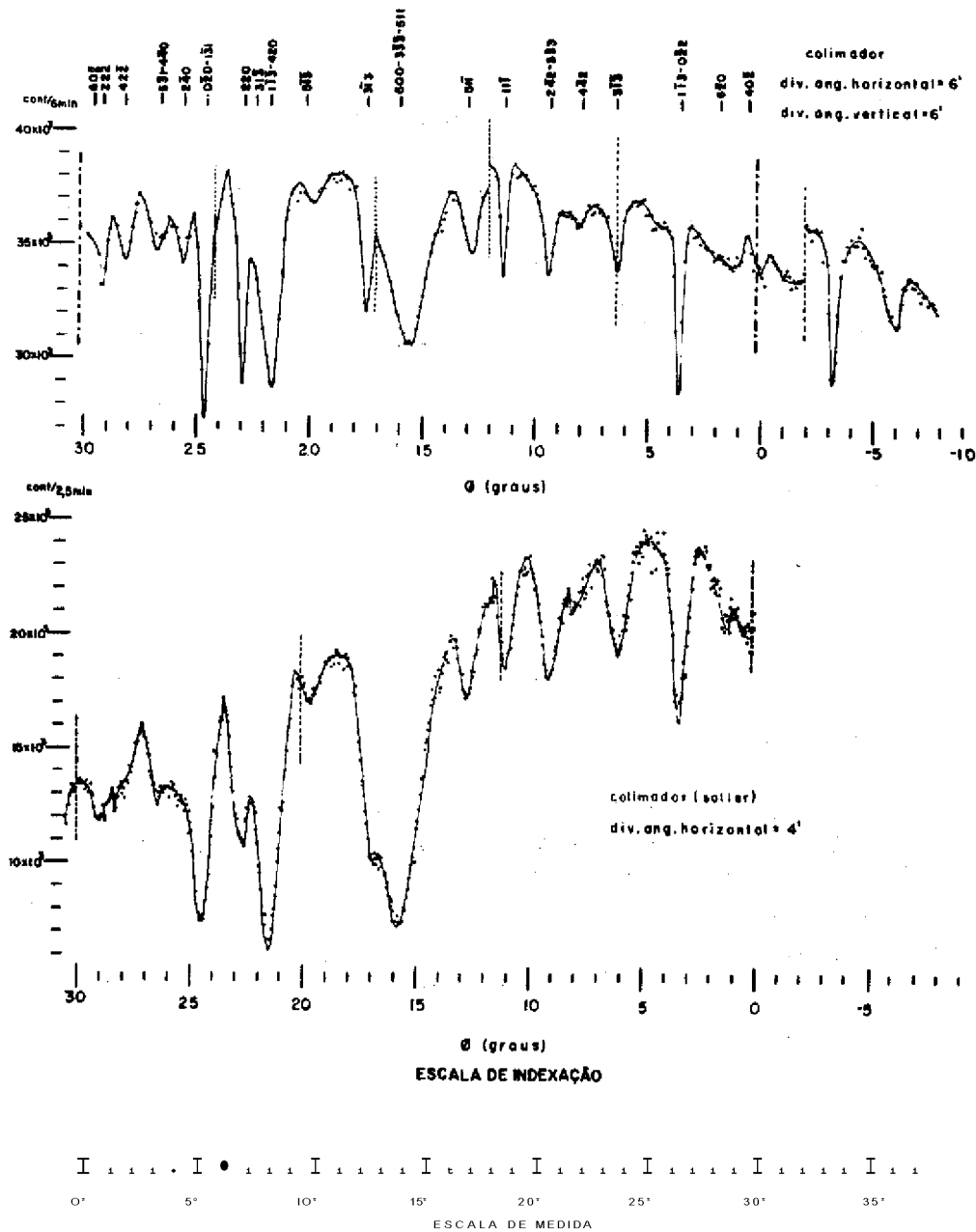


Figura IV.4 - Comparação entre os resultados experimentais obtidos com o colimador tipo Soller, de divergência angular horizontal 4' (curva inferior), e o colimador especial de divergências angulares horizontal e vertical com aproximadamente 6' (curva superior), na reflexão (111) de um cristal de cobre.

ca, com relação à superfície da esfera de reflexão, durante o giro do cristal. É provável que exista também uma degenerescência da resolução, em picos com muitas reflexões simultâneas. A existência de muitos feixes secundários, com divergências maiores do que a divergência do feixe incidente, ou mesmo do feixe primário, causaria esta degenerescência.

De um modo geral, os resultados revelaram-se muito bons, no caso da reflexão (111) do cristal de cobre mencionado. Por exemplo, o pico (111), o mais estreito talvez da figura de difração, teve sua largura na meia altura reduzida de cerca de 50' para cerca de 18' e o pico (113)-(022) passou de cerca de 50' a cerca de 20'. Passamos a considerar então como estando completo o arranjo experimental, não havendo necessidade de se alterar as divergências angulares dos outros colimadores do difratômetro, que foram conservados com as menores divergências que eles podem ter (ver itens II.3.1 e II.3.5).

IV.4 - Figura de difração múltipla da reflexão (III) de um cristal de alumínio.

Uma vez definitivo o arranjo experimental, passamos à determinação da figura de difração múltipla de um cristal de alumínio, com a forma de uma placa quadrada com 3"x 3"x1/2" (e o mesmo cristal citado no capítulo I).

A montagem do cristal foi feita na forma descrita no item IV.1 e o eixo ϕ foi feito coincidente com o eixo 2. Após um processo de ajuste que compreende colocar o detector na posição de receber o máximo de reflexão primária e acertar o cristal de maneira que gire em torno do vector de espalhamento, medimos a variação da intensidade primária da reflexão (111) dessa amostra.

A curva experimental da figura IV.5, figura de difração múltipla da reflexão (111) do cristal de alumínio, e

tado, foi obtida girando-se o cristal continuamente» com velocidade angular de $1^\circ/h$. Um programador eletrônico no sistema de detecção integrava a intensidade durante 3 minutos, findos os quais, imprimia os resultados, tornava a zero os contadores eletrônicos e reiniciava a contagem, executando estas funções - em uma fração de segundo. Embora seja pequeno o tempo necessário à realização desta parte do ciclo de contagem, ele causa uma defasagem entre o instante real do reinício da contagem e o instante em que ele deveria realmente acontecer. Entretanto, mesmo após algumas horas, esta defasagem é muito pequena. Mesmo assim, efetuávamos correções após algum tempo decorrido. O intervalo angular percorrido pelo cristal, em 3 minutos de contagem, era de $0,05^\circ$. As linhas interrompidas (ponto-traço) separam os trechos obtidos em cada ciclo de operação do reator - (aproximadamente 8 horas por dia, 5 dias por semana). Essas linhas, que aparecem também na figura IV.4 (tracejadas) com o mesmo significado, não devem ser confundidas com as que separam regiões com picos simétricos, colocadas, normalmente, em posições como 0° , 30° , 60° , etc»

O resultado experimental, representado pela figura IV.5, serviu como base para a obtenção dos resultados experimentais finais, mostrados no item IV.6.

IV.5 - Simetria do diagrama de difração múltipla.
Determinação da origem para um cristal cúbico cfa,

A indexação dos picos de uma figura de difração múltipla, como a da figura IV.5, pode ser feita depois de se determinar uma origem para o ângulo azimutal. É necessário - que se estabeleça um sistema de coordenadas de referência na rede recíproca, para que se possa definir essa origem. No caso de uma reflexão primária do tipo (hhh), o sistema adotado - foi o sistema ortogonal com eixo Z na direção $\langle 111 \rangle$, eixo X na direção $\langle 110 \rangle$ e eixo Y na direção $\langle 112 \rangle$. Nestas circunstâncias, o cristal estará na posição em que o ângulo azimutal é 0° quasi

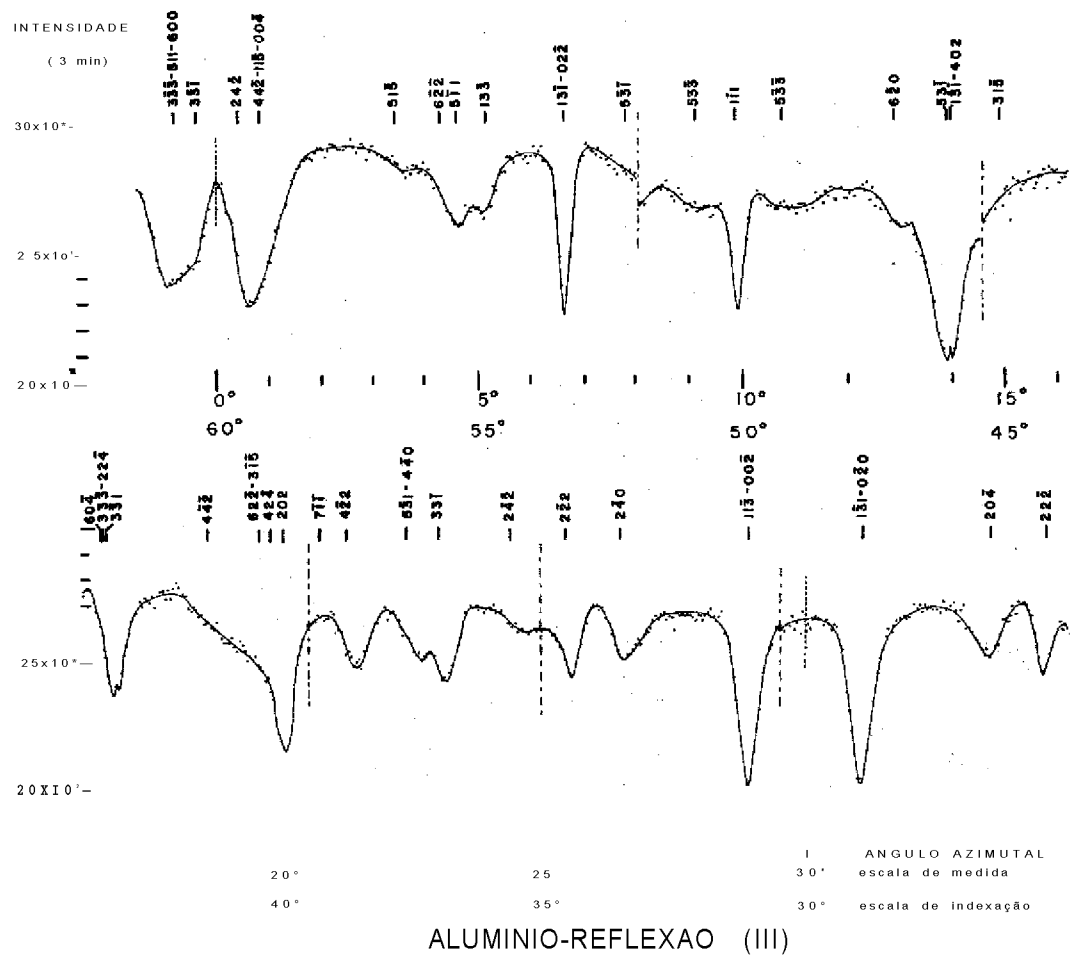


Figura IV.5 - Figura de difração múltipla do cristal de alumínio de 3" x 3" x 1[^].

do a direção do eixo Z for a mesma do vector de espalhamento - da reflexão principal e a projeção da direção do feixe incidente, sobre os planos da reflexão primaria, coincidir com a direção do eixo X, porém com sentido contrário. O sentido positivo de giro é o sentido horário, quando se olha o cristal de frente para a face <100> incidência. Para a determinação correta da origem e necessário estabelecer corretamente a direção do eixo X no cristal.

Em um cristal cúbico, a direção <111> e um eixo de terceira ordem, isto é, os pontos da rede recíproca coincidem exatamente com a posição anterior, após um giro de 120° em torno desse eixo. Portanto, é possível estabelecer 3 eixos X equivalentes no cristal. Mas uma vez escolhido um deles, está determinado o sistema.

Em uma figura de difração múltipla de um cristal cúbico cfc aparentemente existem 6 possibilidades para o eixo X, isto é, a origem parece se repetir de 60° em 60° . Na verdade, 3 dessas possibilidades conduzem a eixos falsos que não causam problemas quanto a simetria da figura, mas podem - causar problemas no calculo de intensidade. Esses eixos falsos evidentemente alternam-se com os verdadeiros.

A figura IV.6a mostra o estrato da rede recíproca, ortogonal ao eixo Z e passando pelo ponto $Z=0$. Este estrato foi obtido com um programa de computador que calcula, as coordenadas (em unidades $1/a$) dos pontos da rede recíproca que têm reflexões não nulas, no caso de um cristal cfc. Nesse estrato estão indicados os eixos verdadeiros (com V) e os falsos (com F). A simples verificação das reflexões dos planos (220), (022), e (202), quando se gira o cristal colocando-se o eixo Z coincidente com o eixo u do goniostato, não é suficiente para a determinação dos eixos verdadeiros, pois aparecem as reflexões dos planos (202), (220), e (022), em tudo idênticas às primeiras e intercaladas entre elas.

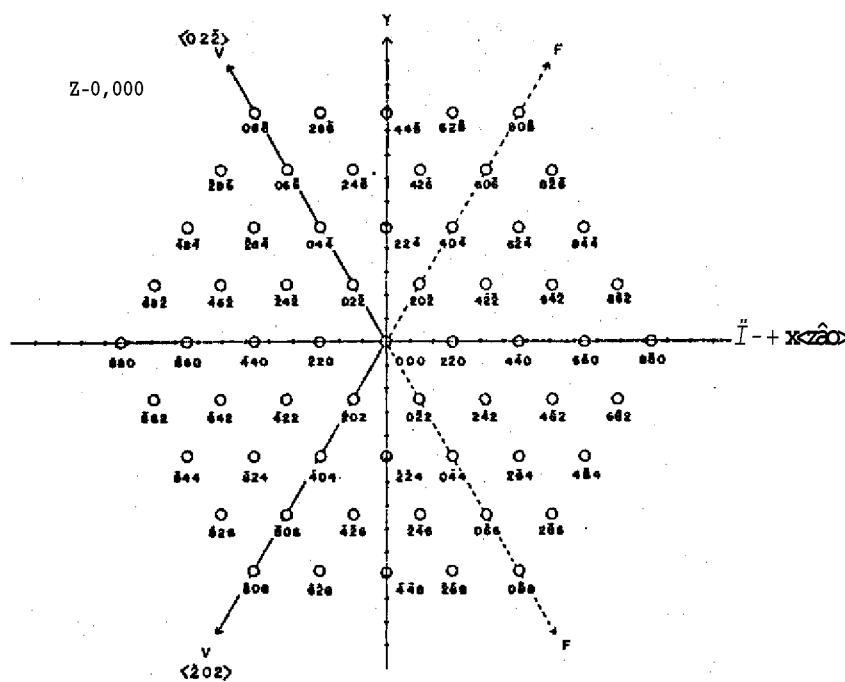


Figura IV.6a - Extrato zero de um cristal cfc, ortogonal à direção $\langle 111 \rangle$ do cristal.

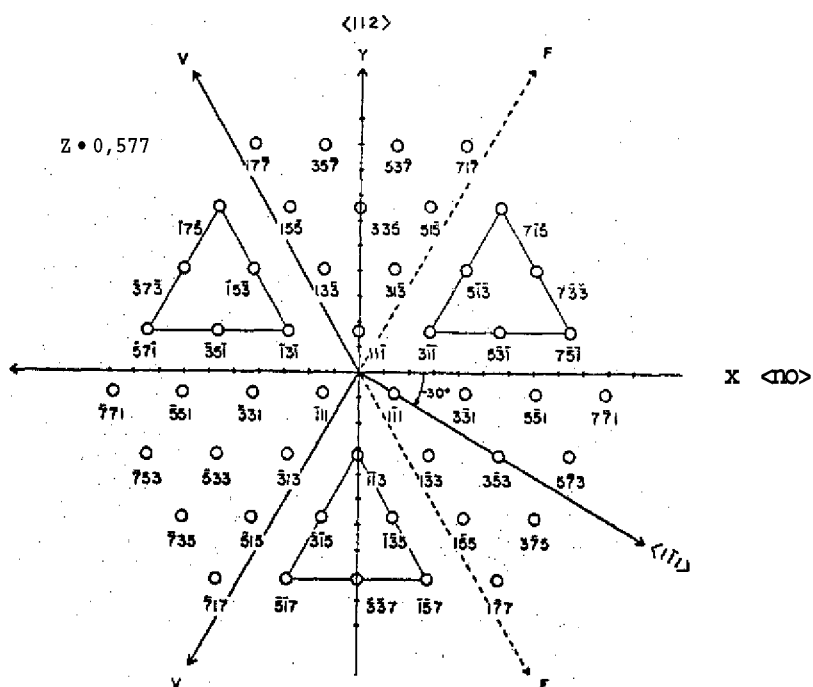


Figura IV.6b - Extrato $z = 0,577$, em caso idêntico ao da figura IV.5a.

Para a determinação dos eixos verdadeiros, usamos de um artifício que pode ser entendido pela observação da figura IV.6b. Nessa figura aparecem 3 triângulos/passando por pontos da rede recíproca, que servem para mostrar que a direção $\langle 111 \rangle$ é um eixo de ordem 3, já que os triângulos SÓ irão coincidir com gtros de 120° . Aparece também a projeção da direção $\langle 111 \rangle$, que S inclinada com relação a esse estrato, que tem $2=0,577$ (a origem se encontra no estrato imediatamente inferior a esse, ou seja, no da figura IV.6a). Neste estrato só existem 3 pontos equivalentes 111 , 111 e 111 . Medindo-se qualquer uma das reflexões provenientes destes pontos, tem-se no ângulo azimutal $+30^\circ$, a partir do eixo determinado por ela, um eixo X verdadeiro. Para conseguir a reflexão S preciso inclinar o eixo Z de um ângulo que pode ser facilmente calculado.

Foi procedendo desta forma que determinamos um eixo X verdadeiro e, portanto, uma origem para a escala de indexação. A indexação na figura IV.5 foi feita após a determinação dessa origem, notando-se que as escalas de medida e de indexação não coincidem, inclusive em sentido. Um resultado interessante pode ser verificado nessa figura. Trata-se dos picos dispostos simetricamente com relação ao ângulo azimutal 60° , medido na escala de indexação. Se esses picos são simétricos quanto a posição, eles não o são quanto a intensidade, como se nota imediatamente. Uma análise da intensidade desses picos é bastante complicada, mas uma comparação pode ser feita com os picos $(002)-(113)$ e $(020)-(131)$ que se encontram simetricamente colocados com relação à posição 30° , na escala de indexação. Os planos (002) e (020) têm refletividades iguais, os feixes difratados por eles são do mesmo tipo (transmitidos) com cossenos diretores iguais e os comprimentos médios calculados (ver apêndice III), resultam quase iguais. O mesmo acontece com os planos (113) e (131) . Não é de se estranhar que, quando determinados experimentalmente, eles resultem ser iguais, como se verifica nas figuras IV.5 e IV.11. Com os picos anteriormente citados, não é possível sequer separar-se em grupos de planos equivalentes como acabamos de fazer. A menos de algumas coincidências, e não se tem igualdade nas refletividades

nos tipos de feixes e nos seus cossenos diretores, e os comprimentos médios dos feixes, se calculados, dariam certamente valores diferentes. Por outro lado, os planos (331) e (242) têm algumas semelhanças:

$$(33T) : Q_{0,1} = 0.368 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}, \text{ transmitido}, y = 0,393$$

$$(242) : Q_{1,1} = 0.311 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}, \text{ refletido}, y = -0,393$$

Quanto aos comprimentos dos feixes pode-se verificar que os comprimentos médios calculados resultam sempre maiores para feixes transmitidos do que para feixes refletidos, (o fator é quase igual a 2). Portanto, a menos do valor absoluto do cosseno diretor dos feixes, estas duas reflexões secundárias não coincidem em nenhum ponto. É admissível, portanto, que as intensidades desses dois picos sejam diferentes, quando determinados experimentalmente, como se verifica nas figuras - IV.5 e IV.11.

Finalmente, estabelecida com certeza uma origem passamos à medida dos dados experimentais finais, na mesma região angular da figura IV.5, que se constitui numa região de máxima intensidade da reflexão primária. A forma que esses dados experimentais foram obtidos encontra-se descrita no item que se segue.

IV.6 - Resultados experimentais finais

Os picos de difração múltipla, determinados experimentalmente, têm duas utilidades para nos: com a posição angular (relativa) desses picos determina-se o comprimento de onda efetivo do feixe monocromático incidente e com a intensidade de pico (relativa) determina-se a largura da distribuição angular do mosaico do cristal.

Para terem essa dupla utilidade, e necessário que os picos sejam muito **bem** determinados, tanto em posição quanto em forma» A precisão com que se determina a posição de um pico experimental depende, deste ser muito bem definido, da precisão dos aparelhos utilizados, em particular do goniostato, e, finalmente do ajuste do cristal, de modo que coincidam a direção do vector de espalhamento com a direção do eixo que promove o giro azimutal no goniostato. Evidentemente a definição dos picos depende de características intrínsecas ao fenômeno de difração múltipla, podendo-se unicamente escolher cristais com distribuição adequada do mosaico. Por outro lado, precisão dos aparelhos e ajuste preciso do cristal dependem de condições que podem ser alteradas. Nestes dois últimos aspectos S que concentramos nossos esforços, a fim de obtermos medidas com grande precisão da posição angular dos picos.

O aumento da precisão instrumental restringiu-se ao incremento na precisão de operação do goniostato. Várias modificações foram feitas no instrumento, sendo que elas não foram executadas de uma só vez mas paulatinamente, durante o tempo em que estivemos desenvolvendo o processo de ajuste do cristal. Essas modificações resumiram-se no seguinte: substituição de engrenagens defeituosas; colocação de mancais flutuantes auto-ajustáveis; instalação de contadores de voltas para a indicação do ângulo azimutal, e outras modificações de menor porte. Duas das providências tomadas foram fundamentais no aumento de precisão das medidas. Uma delas foi a utilização de molas para a melhor fixação do cristal na cabeça goniométrica. Essas molas forçavam o cristal contra a cabeça goniométrica, mantendo bem juntas todas as diversas partes que a constituem. Na posição horizontal, o peso do cristal fazia com que essas partes tendessem a se separar, surgindo, inevitavelmente, uma flexão no conjunto, flexão que poderia mudar repentinamente, durante o giro do cristal. A função das molas era portanto evitar que isto acontecesse. A outra providência tomada foi não tocar no cristal, e em nenhuma*, das partes do goniostato, durante as medidas (são na fase de ajuste e que não se podia evitar de tocar na cabeça goniométrica). Este procedimento foi

facilitado pela existência do sistema de sincro-transmissores e síñero-receptores com movimentação rápida e lenta do eixo <j>, descrito no Ttem IV. 1. Uma vez ajustado o cristal, dificilmente se teria necessidade de toca-lo, oque realmente aconteceu ate se completarem todas as medidas.

O processo de ajuste do cristal e bastante delj_ cado e demorado. E um processo de otimização que envolve muitos ajustes interdependentes. A primeira parte do ajuste consiste em se colocar o detector numa posição de máximo da reflexão primária. Isto e conseguido com a determinação de uma curva de centragem do detector obtida com a movimentação do mesmo em torno da posição 26 calculada. A segunda parte do processo consiste em se acertar o goniostato. Ela é realizada determinando-se duas curvas de intensidade da reflexão, que se obtêm quando se gira o cristal em torno do eixo w. Essas duas curvas são obtidas com o cristal em posições azimutais opostas (A 180° uma da outra),, A posição correta do goniostato situa-se numa posição media entre os valores obtidos com os máximos das curvas. A terceira parte, a mais importante, constitui-se no ajuste do cristal, propriamente dito. Este ajuste é realizado «_ utilizando-se dos dois movimentos angulares da cabeça goniomf - trica. Trata-se de fazer coincidir o vector da rede reciproca, que na figura IV,,7 une a origem ao ponto (h, k, l) da reflexão primária, com o eixo de giro no cristal. O ajuste será tanto melhor quanto menor for o desvio angular e, entre os dois. Para se conseguir tal intento, procede-se da seguinte forma: de terminam-se posições do cristal, com relação ao eixo <j>, em torno de 0°, 90°, 180° e 270°, onde não existam reflexões secundarias. A determinação dessas posições i conseguida medindo-se a intensidade da reflexão primária numa região pequena em torno delas, exatamente como se faz na determinação das figuras de difração múltipla. Em seguida, escolhem-se as posições adequadas, isto e, aquelas onde não haja picos. Na figura IV.8 essas posições foram determinadas em 1,0°, 91,0°, 181,0° e 271,0°. Em seguida, em uma dessas posições, por exemplo, 1,0°» acerta-se o cristal obtendo-se o máximo da intensidade da reflexão. A posição de máximo e verificada, ou por contagem em

um contador eletrônico, ou por gráfico de intensidade em um registrador de intensidade, enquanto o cristal é girado em torno do eixo u do goniostato, usando-se do arco correspondente na cabeça goniométrica» Para verificação da posição de máximo, determina-se uma curva de intensidade, desta vez girando o próprio goniostato em torno de w . Se a posição é correta, faz-se o mesmo com o cristal em $\phi = 181,0^\circ$, para verificação. As curvas de intensidade podem ser parciais como na figura IV.8, para economia de tempo.

Ajustado o cristal em um dos eixos da cabeça goniométrica, repete-se o processo no outro eixo, ou seja, em $\phi = 91,0^\circ$ e $271,0^\circ$, no caso da figura. É comum, durante o processo, o desalinhamento em um dos eixos, enquanto se opera no outro. Por esse motivo são necessárias inúmeras tentativas para se chegar à situação representada na figura, onde os desvios da posição são da ordem de $0,0125^\circ$.

Finalmente, após o ajuste do cristal de alumínio pelo processo descrito, medimos os picos da figura de difração múltipla da reflexão (111) desse cristal. A maioria dos picos foram obtidos entre 28° e 63° , na escala de indexação (entre 32° e 36° , só medimos o pico (222), o qual não aparece nas figuras). Os resultados são mostrados nas figuras IV.9, IV.10 e IV.11. Eles foram obtidos fazendo-se a contagem ponto a ponto, para se evitar qualquer desvio na posição que poderia resultar do processo de contagem em que o cristal gira continuamente. No que se refere ao aproveitamento dos picos para a determinação de r_j é necessário obter boa precisão estatística nas medidas de intensidade. Para tanto, foi empregado um tempo de duração da contagem de 8 minutos para cada ponto. Os acréscimos do ângulo θ e ϕ variam de $0,2^\circ$, em regiões onde se tem a intensidade de base, a $0,025^\circ$ no próprio pico.

Empregamos um programa de ajuste de gaussianas para determinar a melhor curva que passa pelos pontos experimentais. O programa ajustava no máximo 7 gaussianas simultaneamente. O ajuste é feito pelo método dos mínimos quadrados e

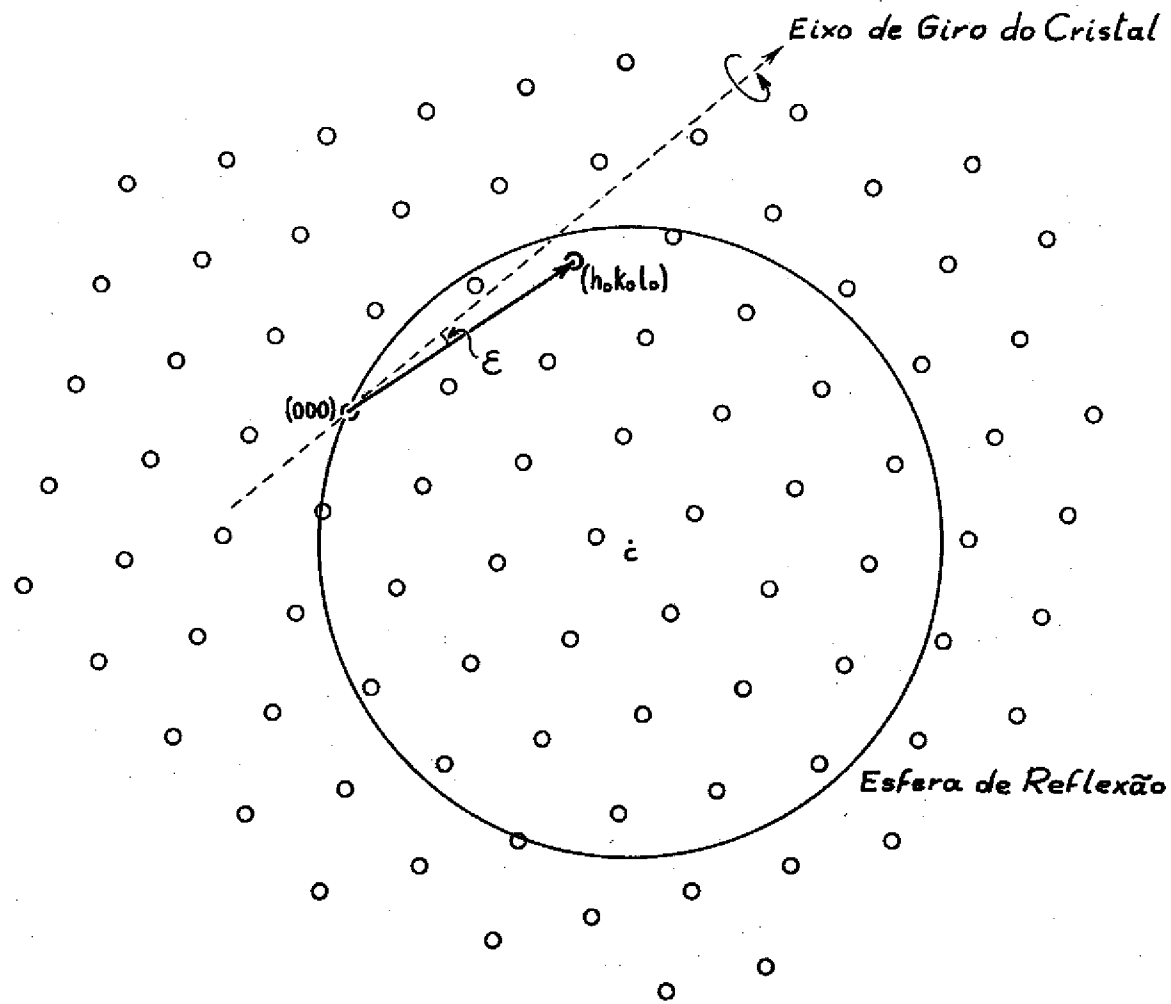


Figura IV.7 - Representação no espaço recíproco do desalinhamento entre o eixo de giro do cristal e o vetor de espalhamento.

a curva ajustada e dada por pontos, em correspondência aos pontos experimentais. Os pontos ajustados são indicados com X nas figuras. A vantagem desse programa é que ele dá os parâmetros das gaussianas (altura, largura na meia altura e posição) juntamente com os desvios resultantes das aproximações feitas. Os erros indicados nas figuras (em alguns pontos experimentais apenas, para maior clareza do desenho), correspondem a flutuações estatísticas nas medidas dos pontos. Tentamos usar uma câmara de fissão, como monitor do feixe monocromático, mas, devido à pouca intensidade deste, não conseguimos resultados satisfatórios. Sendo assim, as medidas ficaram sujeitas às flutuações de potência do reator. Entretanto, quando o tempo de contagem é razoavelmente longo, o efeito torna-se desprezível.

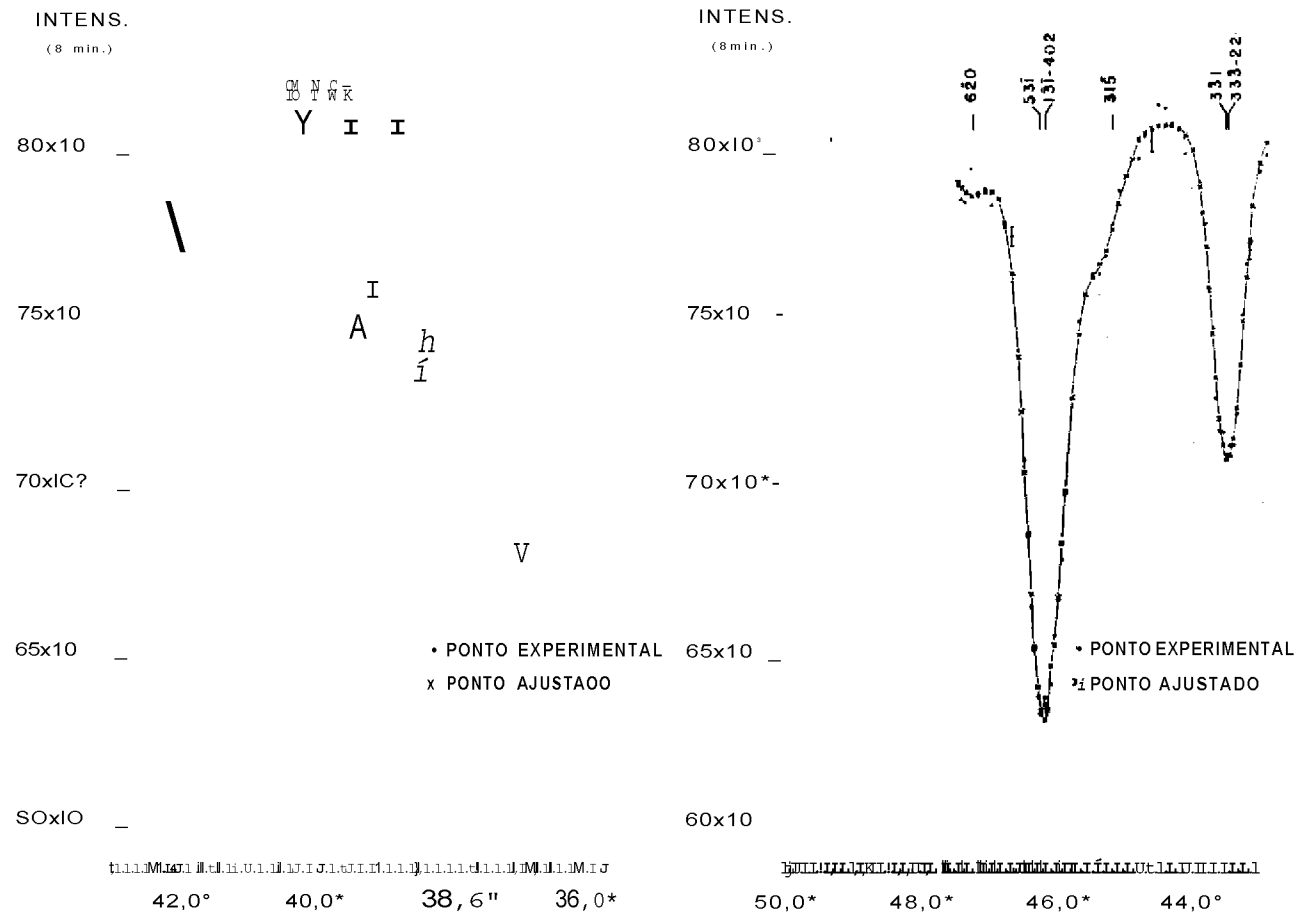


Figura IV.9 - Picos de difração múltipla da reflexão (111) de um cristal de alumínio. Região de 36° a 50°.

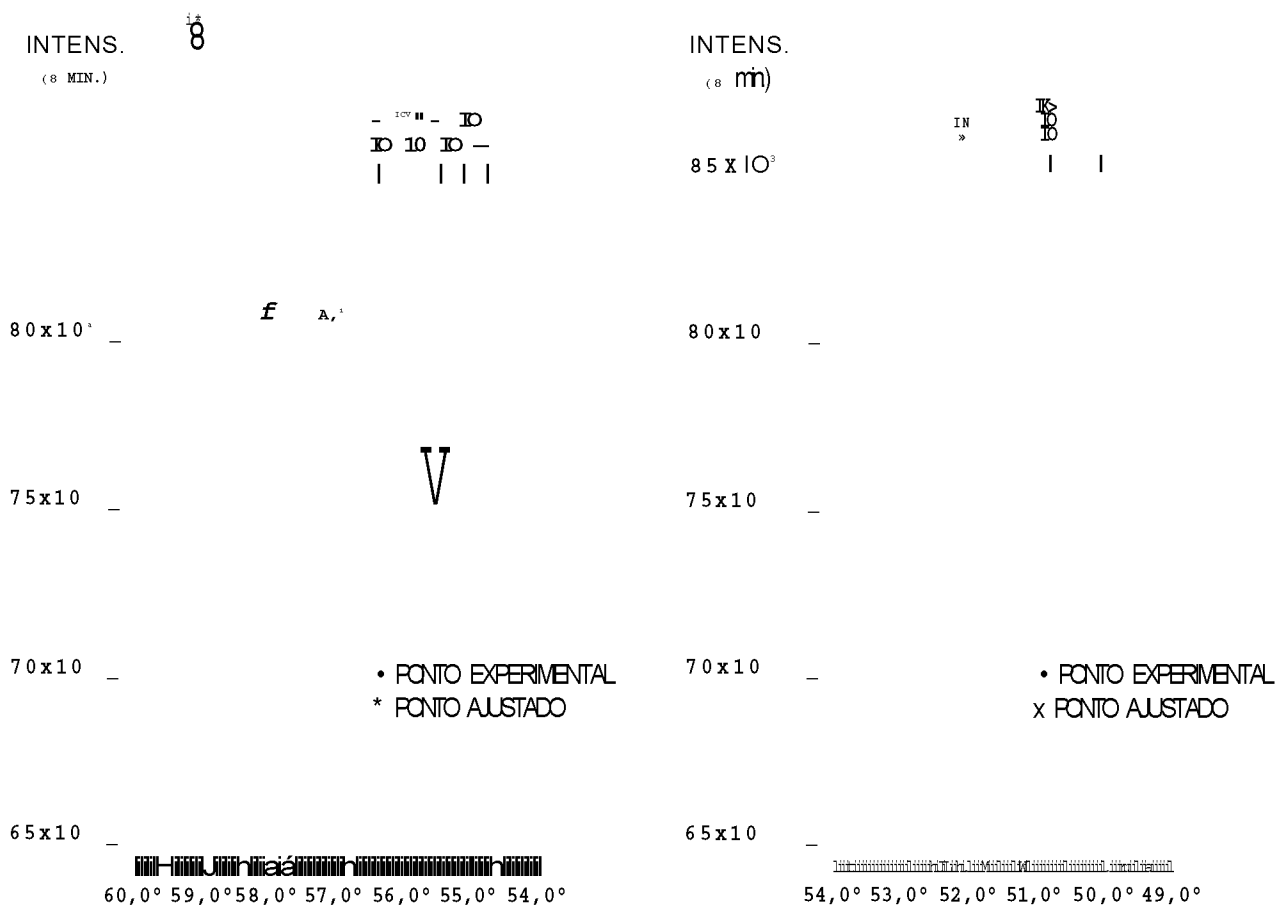
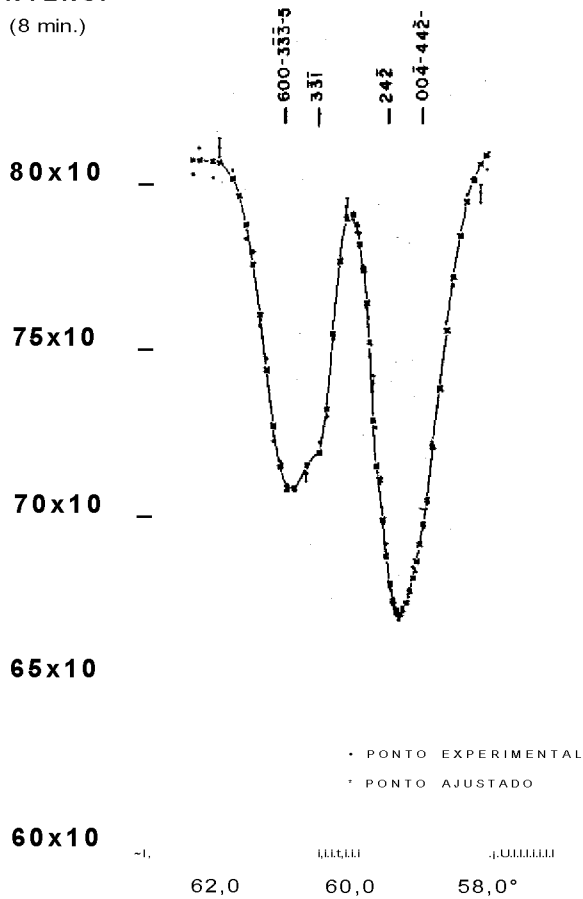


Figura IV.10 - Picos de difração múltipla da reflexão (111) de um cristal de alumínio. Região-
de 49° a 60°.

—/
o

INTENS.
(8 min.)



INTENS.
(8 min.)

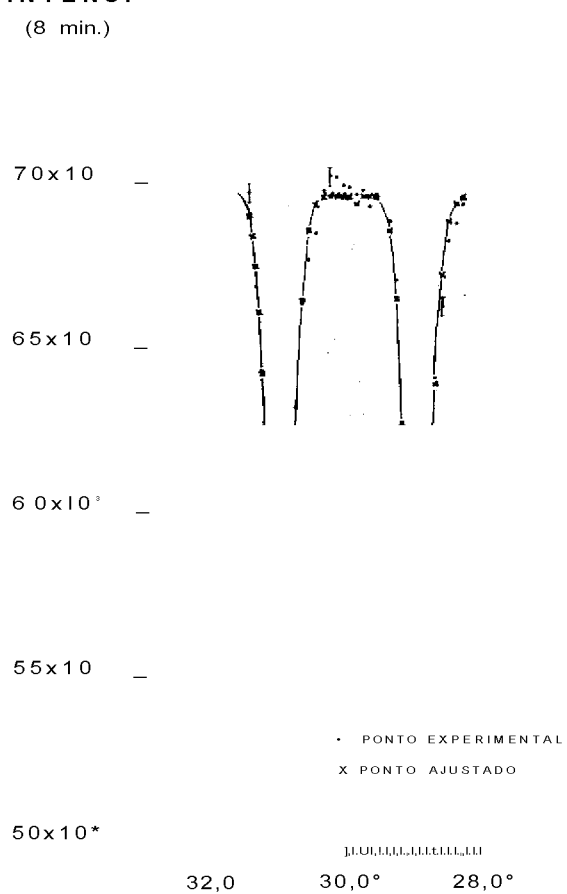


Figura IV.11 - Picos de difração múltipla da reflexão (111) de um cristal de alumínio.
Regiões de 28° a 33° e de 57° a 63°.

CAPITULO VRESULTADOS E DISCUSSÕESV.1 - Determinação do comprimento de onda dos neutrons efetivamente espalhados em forma múltipla.

Os picos de difração múltipla resultam de situações geométricas bem definidas entre a esfera de reflexão e os pontos da rede recíproca, como mostramos no capítulo I. A indexação dos picos de uma figura de difração múltipla como as das figuras IV.4 e IV.5 do capítulo anterior, ou seja, a determinação dos índices dos planos secundários que deram origem - aos picos, é feita usando-se somente relações geométricas entre a posição da esfera de reflexão e os pontos da rede recíproca. A indexação torna-se, assim, independente de qualquer resultado experimental, dependendo somente do comprimento de onda do feixe monocromático incidente, dos parâmetros da rede, e de se estabelecer qual é a reflexão primária cuja intensidade é observada. A reflexão primária indica a direção cristalina, em torno da qual o cristal vai girar, e a posição da esfera de reflexão com relação à rede recíproca. Depois de se convencer de uma direção cristalográfica perpendicular ao eixo de rotação, como origem (v. item IV.5), pode-se determinar o ponto da rede recíproca que toca a superfície da esfera de **Ewald**, durante o giro do cristal. Determina-se, também, o valor do ângulo azimutal em que isso acontece. Na verdade, um ponto toca a superfície da esfera duas vezes pois, durante o giro do cristal, o ponto descreve uma trajetória circular que intercepta a sua superfície em dois pontos (entrada e saída), a menos que essa trajetória seja tangente a esfera.

Para a indexação das figuras de difração múltipla do capítulo anterior, usamos um programa de computador que, a partir do conhecimento do comprimento de onda do feixe incidente, do parâmetro da rede e dos índices da reflexão primária (do tipo (hhh)), determina os índices dos planos que produzem reflexões secundárias, e em que posição azimutal elas ocorrem. Nesse programa é adotado o sistema de eixos descrito no item - IV.5, que é apropriado ao caso de cristais cúbicos de faces centradas (cfc).

Nas primeiras indexações que fizemos, verificamos que a posição calculada de muitos dos picos diferia apreciavelmente dos resultados experimentais. A explicação poderia ser ajuste mal feito do cristal, ou então, valores incorretos entre os fornecidos como dados de entrada do programa.

Fizemos um ajuste mais preciso do cristal, porém a situação não se modificou sensivelmente. Desta forma, restava alterar ou o parâmetro da rede, ou o comprimento de onda, ou ambos para se tentar uma melhor coincidência entre as posições calculadas e as posições reais dos picos. No caso particular do alumínio, o parâmetro da sua rede é tabelado (Crystal Data, 1963), com erros da ordem de 10^{-4} Å e os valores giram em torno de 4,049 Å, na temperatura ambiente. Adotando-se um desses valores tabelados, isto é, fixando-se o valor do parâmetro da rede, as posições calculadas dos picos ficam dependentes exclusivamente do valor do comprimento de onda. Se do assim, é possível pensar em usar essas posições, para a determinação do comprimento de onda efetivamente espalhado em forma múltipla. Se o cristal estiver muito bem ajustado, na posição de Bragg correta para se obter a reflexão primária, o comprimento de onda assim determinado corresponde ao valor do máximo da distribuição em X do feixe monocromático. A hipótese que é feita ao se fixar o parâmetro da rede, é que o valor, além de correto, corresponde ao valor que o cristal de alumínio teria, independentemente de todas as suas propriedades intrínsecas (grau de pureza, concentração de defeitos, etc).

Por outro lado, o comprimento de onda do feixe monocromático, em um difratômetro de neutrons, depende de um método de calibração do instrumento, para ser conhecido com alguma precisão. Essa precisão não ultrapassa $10^{-2} \%$, como se pode aquilatar dos valores mencionados em alguns trabalhos feitos com difratômetros de neutrons (**Borgonovi & Caglioti**, 1962; **Moon & Shull**, 1964; **Buras et al**, 1971). As posições dos picos de difração múltipla são sensíveis a variações de X menores do que $10^{-2} \%$. Alguns picos mais sensíveis, mudam de posição de forma detectável quando se muda o comprimento de onda em cerca de $2 \times 10^{-4} \%$ (nem sempre, entretanto, esses picos são bem definidos, a ponto de se conseguir determinar a posição deles com bastante certeza). Isto foi verificado, depois que modificamos o programa de indexação para que se pudesse ter a variação da posição dos picos com a variação do comprimento de onda. As curvas obtidas com esse programa são mostradas nas figuras V.1a e V.1b, no caso de um cristal de alumínio com parâmetro $a = 4,0489 \text{ \AA}$, conforme foi estabelecido. Com essas curvas e as posições dos picos determinadas experimentalmente, pode-se determinar o comprimento de onda que é efetivamente espalhado em forma múltipla. Se o cristal estiver perfeitamente ajustado, no ângulo de Bragg correto para a reflexão primária, o comprimento de onda encontrado, corresponde ao máximo da distribuição em X do feixe monocromático. Curvas semelhantes a essas podem ser encontradas no trabalho sobre indexação de picos positivos de **H.Cole, F.W. Chambers e H.M.Dunn** (1962). São curvas de variação da posição azimutal dos picos positivos da reflexão proibida (222) de um cristal de germanio com a razão entre o parâmetro da rede e o comprimento de onda, isto é, a/X . As nossas curvas, além de não serem em a/X , correspondem a uma faixa muito estreita de valores de X e são praticamente segmentos de reta nesse trecho.

A determinação de X pode ser feita determinando-se a distância angular dos picos a partir da origem. Entretanto, erros sistemáticos, que podem ser causados por um ajuste imperfeito do cristal, podem alterar o valor da distância e, conseqüentemente, do valor determinado» Além do que, seria ne

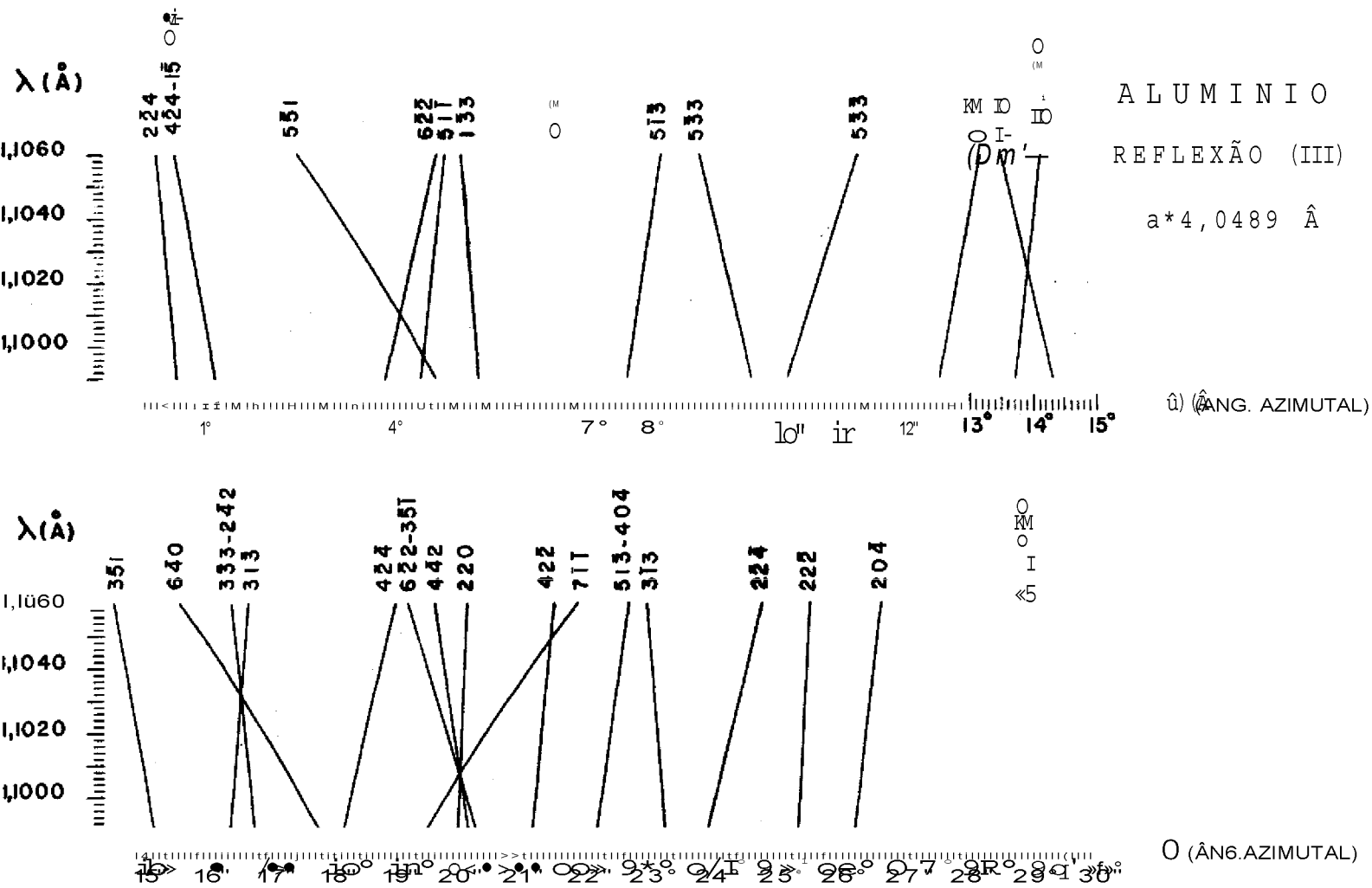


Figura V.1a - Variação da posição angular azimutal dos picos de difração múltipla, com o comprimento de onda, para a reflexão (111) de um cristal de alumínio. Intervalo angular de 0° a 30°.

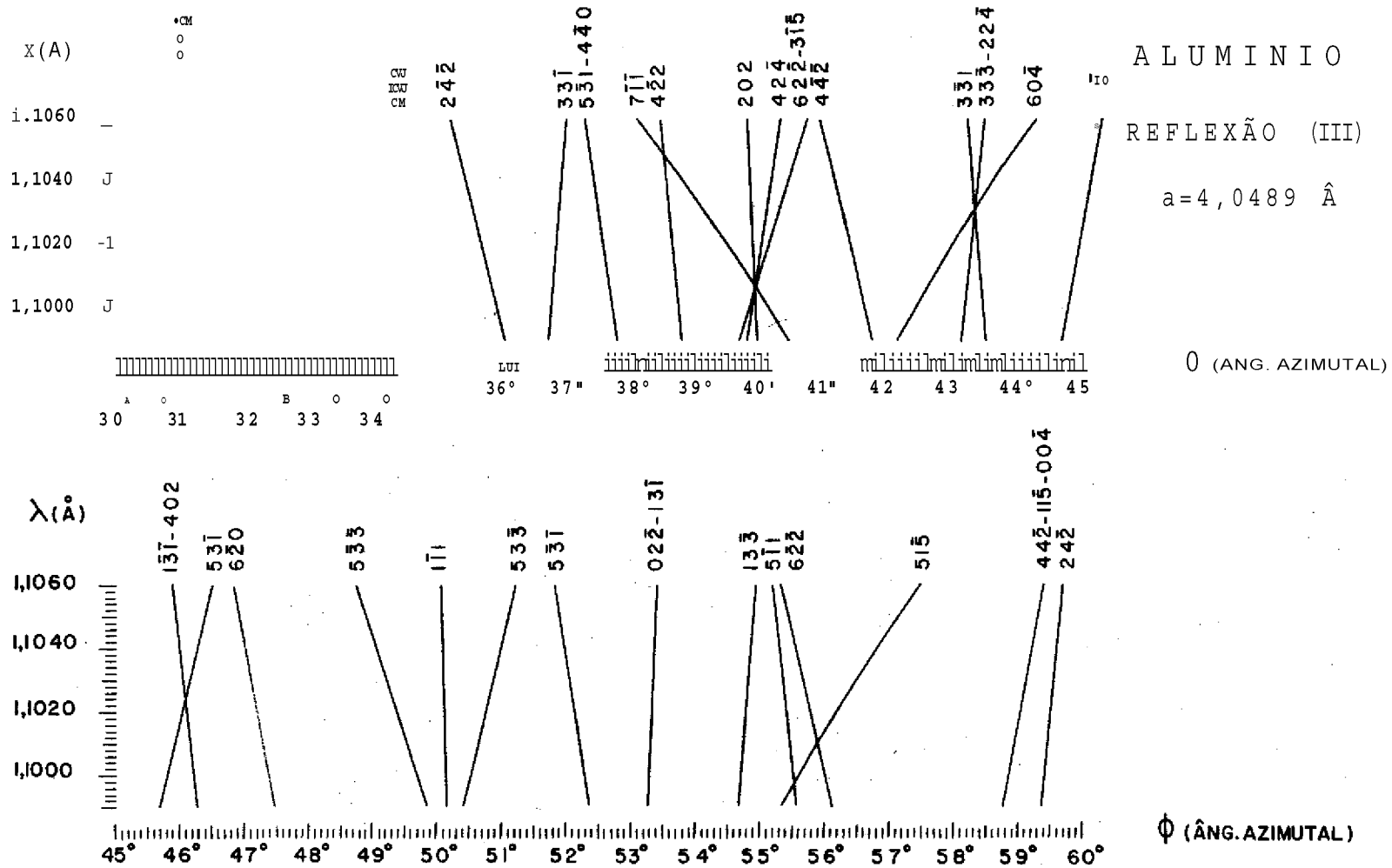


Figura V.1b Variação da posição angular azimutal dos picos de difração múltipla, com o comprimento de onda, para a reflexão (111) de um cristal de alumínio. Intervalo angular de 30° a 60°.

cessaria a determinação da origem com muita precisão. Por estes motivos, adotamos certos critérios para a realização da medida. Estes critérios são os seguintes:

1. Nós medimos distâncias entre dois picos e não a distância de um pico à origem. A comparação entre as diferenças obtidas e as diferenças calculadas fornece o valor de X , em cada caso.

2. Só utilizamos picos que estejam distanciados de poucos graus entre si.

3. Procuramos determinar as distâncias entre os picos que, visivelmente, se aproximam ou se afastam um do outro, quando X varia.

Com o primeiro critério procuramos evitar que seja necessária a determinação precisa da posição da origem da figura de difração múltipla. Além do mais, para picos muito distantes da origem, os erros sistemáticos poderiam levar a determinações bastante imprecisas de X . Com o segundo critério, como no caso dos picos distantes da origem, procuramos evitar o efeito dos erros sistemáticos, na determinação de X . O terceiro critério visa incrementar a precisão da determinação de X , pois a distância entre dois picos, nas condições citadas, é mais sensível à variação de X , do que no caso de dois picos que tem o mesmo comportamento com relação a origem, isto é, afastam-se ou se aproximam dela (com curvas de variação quase paralelas).

Seguindo estes critérios, usamos das posições dos picos das figuras IV.9, IV.10 e IV.11, (excetuando-se alguns deles), para a determinação de X . Os resultados encontrados, acham-se na tabela nº 2. Para alguns dos picos, usamos a posição determinada pelo programa de ajuste de gaussianas, com os desvios fornecidos.

Algumas observações são necessárias: os picos que se originam de planos secundários de índices altos, são,

em geral, os mais largos por descreverem trajetórias rasantes, com relação a esfera de Ewald. A posição deles não é bem definida, mas, por outro lado, as curvas de variação da posição desses picos é bastante inclinada. Assim, com um par de picos - que tenham posições pouco definidas, pode-se, contudo, obter um valor muito bom de X . Este é o motivo da aparente discrepância entre os erros nas diferenças e os erros nos valores de X , na tabela nº 2.

Calculamos a média ponderada (Parrat, 1961) dos valores de X da tabela, e resultou:

$$X = (1,1027 \pm 0,0003) X$$

Alguns fatos mostram que este valor é razoável: O principal é que a indexação feita considerando-se este comprimento de onda (e o valor do parâmetro da rede igual ao citado) deu uma boa concordância com a posição dos picos experimentais. Outro fato é que, na figura IV.9, há 3 picos que são resultantes de vários planos secundários juntos. Eles são aparecem juntos quando X pertence a uma região em torno do valor 1,1027 Å, conforme pode ser verificado em V.l.b. Esses picos são formados pelos planos:

$$\begin{array}{ll} (622), (3\bar{1}5), (424), (202) & (- 40^\circ) \\ (53\bar{1}), (13\bar{1}) - (402) & (- 46^\circ) \\ (331), (333) - (224) & (- 43^\circ) \end{array}$$

Os picos são bem definidos e razoavelmente estreitos, indicando que os planos que formam interceptam a esfera de reflexão aproximadamente no mesmo ângulo azimutal. Desta forma, a indexação parece correta e, conseqüentemente, o valor de X é aceitável.

PICO	POSIÇÃO	PICO	POSIÇÃO	DIFERENÇA	$X \left(\frac{\circ}{\text{Å}} \right)$
133	$54,794^{\circ} + 0,006^{\circ}$	111	$50,096^{\circ} \pm 0,003^{\circ}$	$4,698^{\circ} \pm 0,007^{\circ}$	$1,1026 \pm 0,0001$
133	$54,794^{\circ} \pm 0,006^{\circ}$	531	$52,100^{\circ} \pm 0,100^{\circ}$	$2,694^{\circ} \pm 0,100^{\circ}$	$1,1024 \pm 0,0008$
022 - 131	$53,333^{\circ} + 0,002^{\circ}$	531	$52,100^{\circ} \pm 0,100^{\circ}$	$1,233^{\circ} \pm 0,100^{\circ}$	$1,1024 \pm 0,0010$
022 - 131	$53,333^{\circ} + 0,002^{\circ}$	111	$50,096^{\circ} \pm 0,003^{\circ}$	$3,237^{\circ} \pm 0,004^{\circ}$	$1,1029 \pm 0,0001$
333 - 224 , 331	$43,383^{\circ} + 0,020^{\circ}$	131 - 402	$46,100^{\circ} \pm 0,011^{\circ}$	$2,717^{\circ} \pm 0,023^{\circ}$	$1,1027 \pm 0,0004$
424 - 202	$40,039^{\circ} + 0,020^{\circ}$	422	$38,681^{\circ} \pm 0,010^{\circ}$	$1,358^{\circ} \pm 0,022^{\circ}$	$1,1027 \pm 0,0004$
424 - 202	$40,039^{\circ} + 0,020^{\circ}$	531 - 440	$37,610^{\circ} \pm 0,012^{\circ}$	$2,429^{\circ} \pm 0,023^{\circ}$	$1,1024 \pm 0,0003$
424 - 202	$40,039^{\circ} + 0,020^{\circ}$	240	$33,600^{\circ} \pm 0,050^{\circ}$	$6,439^{\circ} \pm 0,054^{\circ}$	$1,1027 \pm 0,0007$
531 - 440	$37,600^{\circ} + 0,050^{\circ}$	222	$34,612^{\circ} \pm 0,004^{\circ}$	$2,988^{\circ} \pm 0,050^{\circ}$	$1,1024 \pm 0,0012$
222	$34,612^{\circ} + 0,004^{\circ}$	113 - 002	$31,031^{\circ} \pm 0,002^{\circ}$	$3,581^{\circ} \pm 0,004^{\circ}$	$1,1031 \pm 0,0001'$
222	$34,612^{\circ} + 0,004^{\circ}$	240	$33,600^{\circ} \pm 0,050^{\circ}$	$1,012^{\circ} \pm 0,050^{\circ}$	$1,1028 \pm 0,0004$
240	$33,600^{\circ} + 0,050^{\circ}$	113 - 002	$31,031^{\circ} \pm 0,002^{\circ}$	$2,569^{\circ} \pm 0,050^{\circ}$	$1,1030 \pm 0,0005$

TABELA. N9 2 - Valores obtidos para o comprimento de onda cora as diferenças entre as posições angulares de alguns picos da difração múltipla de um cristal de alumínio.

V.2 - Determinação da largura de mosaico na difração múltipla de um cristal de alumínio

A razão entre a intensidade de pico e a intensidade de base na difração múltipla, possibilitarem principio, a determinação da largura de mosaico n» ligada a uma certa direção no cristal. A razão experimental r , para uma determinada reflexão múltipla, esta relacionada com: p^* e p_0 , pela expressão (Caticha-Ellis, 1969).

$$r = \frac{P^*}{P_0} \quad (5.1)$$

onde

$$P_1 = \sum_{hkl} I_{hkl} \quad (0) \quad P^* = \sum_{hkl} I_{hkl}^* \quad (0) \\ P_0 = \sum_{hkl} I_{hkl} \quad (0)$$

P_x e p_x são intensidades relativas calculadas, ou com as soluções exatas, ou com as soluções aproximadas, no caso múltiplo e no caso simples, respectivamente.

O fato de que as intensidades são medidas em uma mesma escala, implica em que não ha necessidade de medidas absolutas de intensidade. Sendo assim, a razão experimental r e obtida simplesmente com as intensidades de pico e de base d_j retamente determinadas nos picos de difração múltipla.

s d

No nosso caso, a razão PJ/PT^* foi calculada teoricamente, para diversos valores de n . O calculo foi feito em computador com programas que se utilizam do termo geral da expansão em série de Taylor, mostrado no item III.4.1a, considerando termos até uma ordem n . Essa ordem foi feita no máximo igual a 14 nos nossos programas, meramente por uma questão de formato de saída dos dados. A razão entre intensidades foi chamada de GAMA nos gráficos feitos.

Para a determinação das curvas GAMA, foi necessário calcular os parâmetros que, no capítulo III se encontram nos itens III.3.1 e III.3.2. As refletividades foram calculadas com (3.8a).

Para o cálculo, o comprimento de onda foi considerado como sendo $X = 1,1028 \text{ \AA}$ (resultado de uma determinação anterior de X), o recíproco do volume da cela unitária N_c foi calculado considerando-se o parâmetro da cela igual a $a \cdot 4,0489 \text{ \AA}$. O fator de estrutura r_{hkl}^* para o caso de um cristal cúbico cfc é igual a $4b$, quando h, k, l têm a mesma paridade, e zero quando eles têm paridade mista. A amplitude de espalhamento F_{hkl} foi calculada usando-se a expressão (3.11), onde c_c seção de choque de espalhamento coerente, foi encontrada tabelada com o valor $c_c = 1,5 \pm 0,1b$ (BNL 325; Int. Tables Vol. III; **Bacon**, 1962). Com este valor, resultou que $F_{hkl} \approx 1,38 \times 10^{12} \text{ cm}$, para as reflexões com índices de mesma paridade em um cristal de alumínio. As refletividades Q_{ij} , dependem do processo $i \rightarrow j$ considerado. Calculamos alguns para os processos mais prováveis. Alguns valores particulares são mostrados nas curvas GAMA, nas figuras V.2, V.3, V.4 e V.5.

O fator de temperatura, que aparece em (3.12), foi calculado para os diversos processos $i \rightarrow j$, sendo que M , dado por (3.13), foi calculado através da determinação $d \# B$ em (3.14). A temperatura de Debye escolhida foi $\theta = 389^\circ \text{ K}$, que é um valor determinado no intervalo de temperatura de 15° K a 300° K (**Holm**, 1957). A temperatura absoluta do cristal, foi considerada como sendo a ambiente, isto é, $T = 293^\circ \text{ K}$. Sendo assim, com $\Phi(x)$ (3.15) determinada pelas tabelas existentes (Int. Tables, Vol. III; **Holm**, 1957), chega-se ao valor $B = 0,86 \text{ R}^2$. Com este valor calculou-se M e desta forma foi possível calcular a amplitude de espalhamento, quando se considera o efeito da temperatura, na expressão (3.12). Conseqüentemente, o fator de estrutura F_{hkl} , e, assim, as refletividades Q_{ij} ficaram corrigidos do efeito da temperatura.

Finalmente, o coeficiente de absorção linear e-

fetivo p , foi determinado levando-se em conta a "aproximação - incoerente de Placzek", descrita no item III.3.2. Na expressão (3.27), N foi calculado e encontrou-se $N = 0,602 \times 10^{23}$ átomos/cm³, t foi calculada através de (3.26) onde B foi dado acj_ ma e $X = 1,1028$ jt. As secções de choque usadas foram as seguintes:

$$\begin{aligned} \sigma_a &= 0,235 \pm 0,005 \text{ b} && (\text{BNL 325 - Supp. nQ 2}) . \\ a_e &= 1,5 \pm 0,1 \text{ b} && (\text{BNL 325 - Int.Tables, V.111 Bacon, 1962}). \\ a_i &< 0,1 \text{ b} && [\text{Ringo, 1957}). \end{aligned}$$

a_g e tabelada para a energia correspondente à velocidade 2.200 m/seg dos nêutrons. Essa secção de choque varia com $1/v$ isto e, com o inverso da velocidade do niutron. Fizemos uma correção de a_a , para o valor da energia quando $X = 1,1028$ H, a_i ,

través da formula:

$$= 0,55611 \cdot X \cdot a_i \quad (X \text{ em } \acute{e})$$

o valor encontrado foi

$$\sigma_x \ll 0,144b \quad (X * 1,1028 \ 8)$$

O valor de u calculado com os valores acima, resultou:

$$y * 0,0507 \text{ cm}^{-1}$$

Com u e os calculados, pudemos determinar a curva GAMA x n, uma vez determinados ps comprimentos Z_i dos feixes. Esses comprimentos resultaram ser limitados por todas as dimensões do cristal, e não sã pela espessura T . Desta forma, eles não puderam ser calculados por $SL^{\wedge} - J/y^{\wedge}$ e tornou -se necessário calcular médias dos para cada um dos casos considerados. A forma de determinação dessas médias é relatada -

no apêndice III.

Os programas que fizemos, calcularam as curvas - da variação de GAMA com n considerando termos até 14ª ordem. Como se trata de um processo iterativo, nos obtivemos as razões p^k / p^{k-1} , a partir da aproximação de 1ª ordem. A razão é calculada com p^k é p^{k-1} com o mesmo número de termos, isto é, se p^k é de ordem k , p^{k-1} também o é. As curvas, que representam as aproximações da 1ª à 14ª ordem, encontram-se nas figuras V.2, V.3, V.4 e V.5. A curva central, para a qual convergem as aproximações, foi obtida com um programa de integração numérica das equações diferenciais. A convergência, para esta curva, se faz de modo perfeito. Muitas vezes não é necessário chegar até a 14ª ordem para que a convergência se verifique - em quase todo o intervalo de n , nas figuras. As figuras V.2, V.3, V.4 e V.5 correspondem a 4 casos diferentes. Na figura V.2 o feixe secundário é do tipo transmitido. Na figura V.3, ele é refletido. Na figura V.4, são dois feixes secundários, sendo os dois transmitidos. Na figura V.5 são também dois feixes, porém um é transmitido e o outro refletido. Outras combinações de tipos de feixes, e, inclusive, em maior número, são possíveis com o emprego do termo geral que deduzimos. É necessário apenas determinar os elementos de uma matriz X_k^k , do tipo da que aparece no exemplo dado no apêndice I. Os programas de computador são facilmente feitos e, normalmente, sofrem apenas algumas modificações quando se passa de um caso para outro. Os programas, feitos para os 4 casos das figuras, encontram-se no apêndice IV.

A tabela nº 3 apresenta o resultado da determinação de n^* através das curvas GAMA, para alguns dos picos obtidos nas figuras IV.9, IV.10 e IV.11. Nessa tabela, além das posições angulares tipos e cossenos diretores dos feixes secundários, estão indicadas as larguras ajustadas pelo programa de ajuste de gaussianas, com o único objetivo de dar uma idéia da largura do pico considerado. Os valores de r foram determinados levando-se em conta apenas a flutuação estatística das coincidências.

R. G. Wenzel, R. Fulfaro e R. Stasiulevicius ((1967), determinaram a largura na meia altura da distribuição mosaico, do mesmo cristal de alumínio que usamos. O objetivo do trabalho era apenas estabelecer valores aproximados para as larguras da distribuição mosaico de vários cristais, com o fim de escolher o mais adequado a geometria dos colimadores do difratômetro de neutrons. Desta forma, não houve, por parte dos autores, preocupação na determinação dos erros nos resultados. Entretanto, o valor encontrado para o cristal de alumínio, pode ser comparado com os nossos resultados. Os autores mencionados, determinaram a largura na meia altura da distribuição mosaico do cristal de alumínio (que eles chamaram $A_{\frac{1}{2}}$ (6)), por uma curva de "rocking", obtida no espectrómetro de cristal do IEA. O valor encontrado foi $b = 0,354^\circ$, que resulta em $\Rightarrow \text{rt} = 0,153^\circ$. A média simples dos nossos resultados dá um valor $\bar{n} = 0,144$, comparável, portanto, com o valor encontrado por **Wenzel, Fulfaro e Stasiulevicius**.

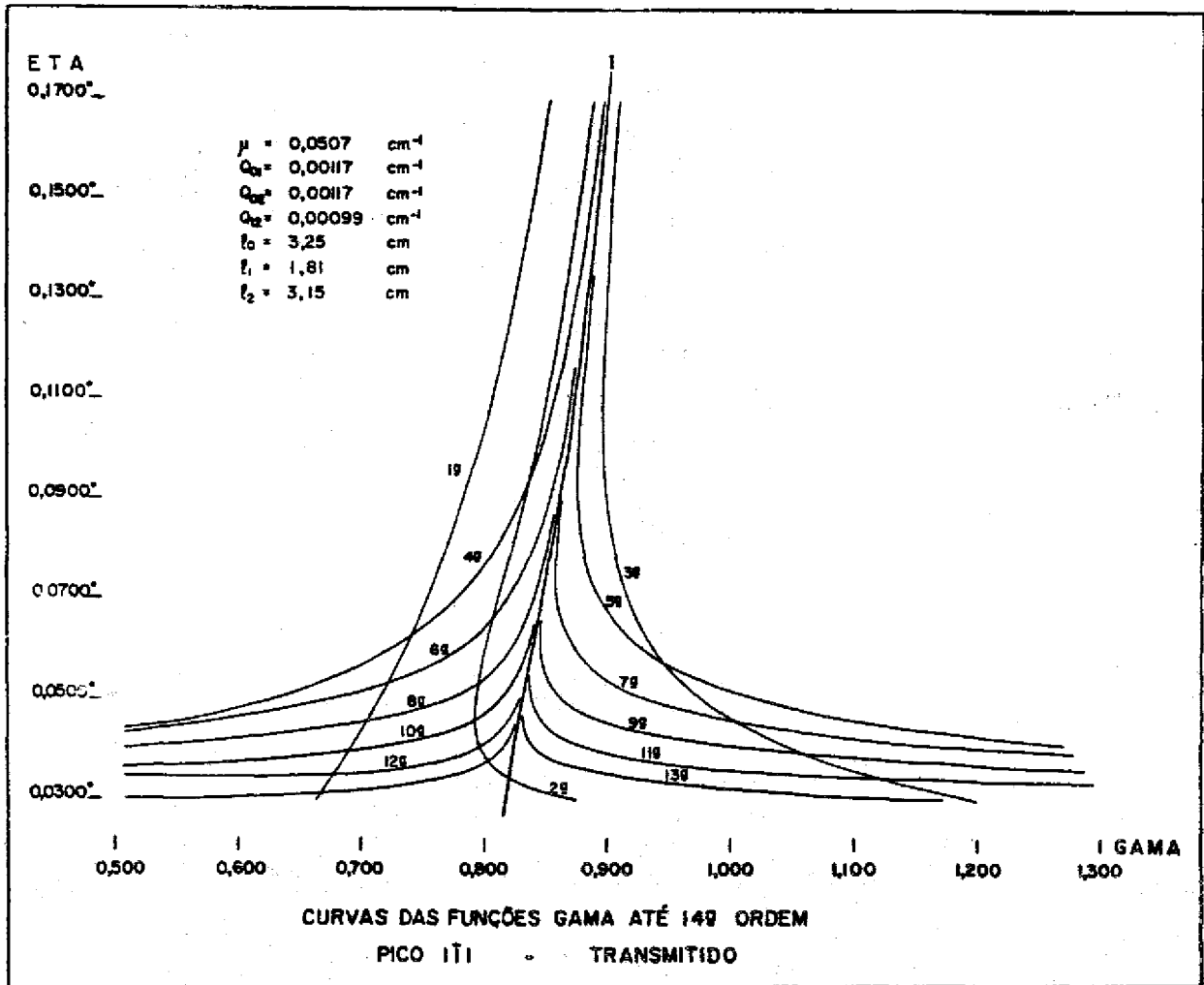


Figura V.2

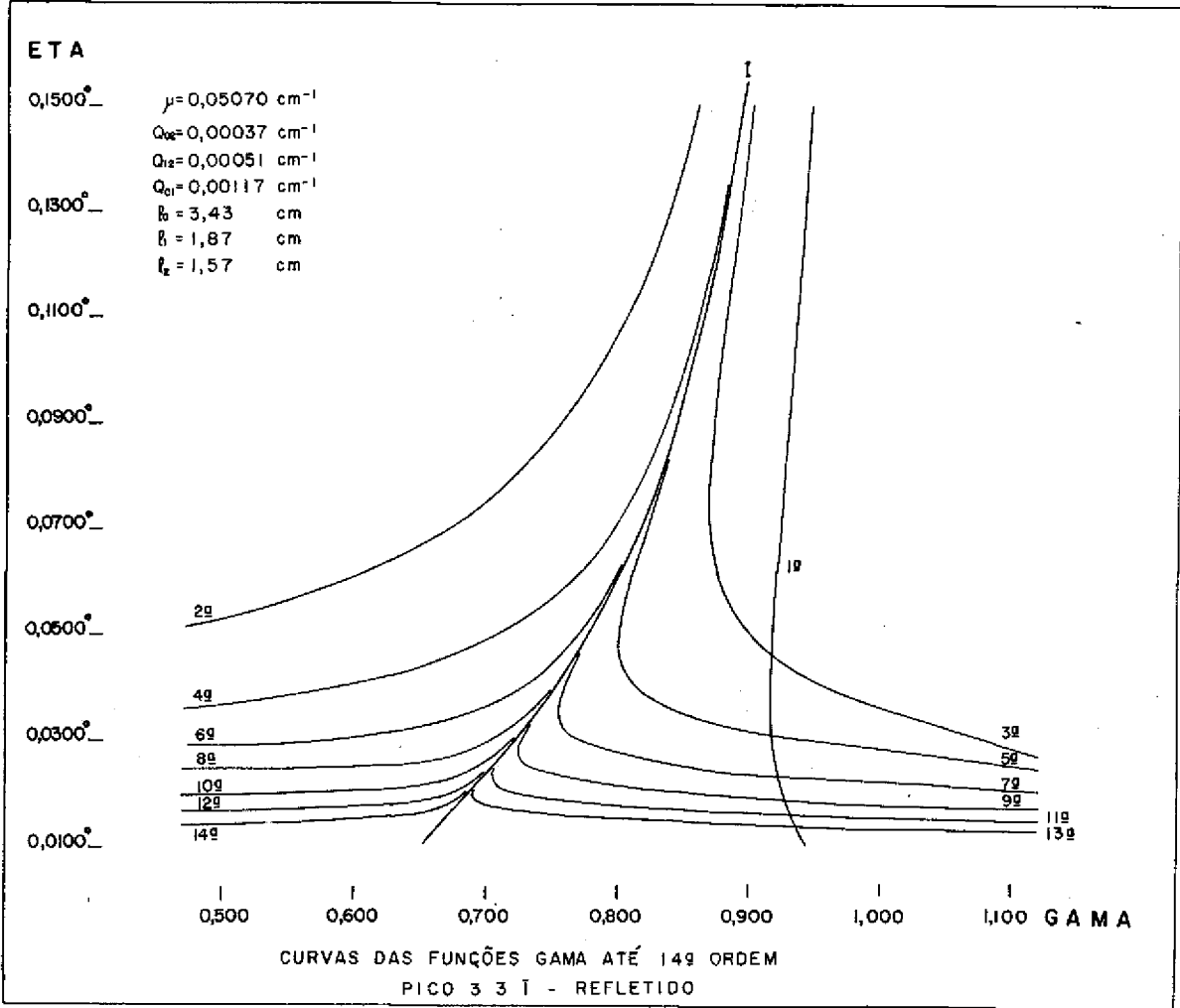


Figura V.3

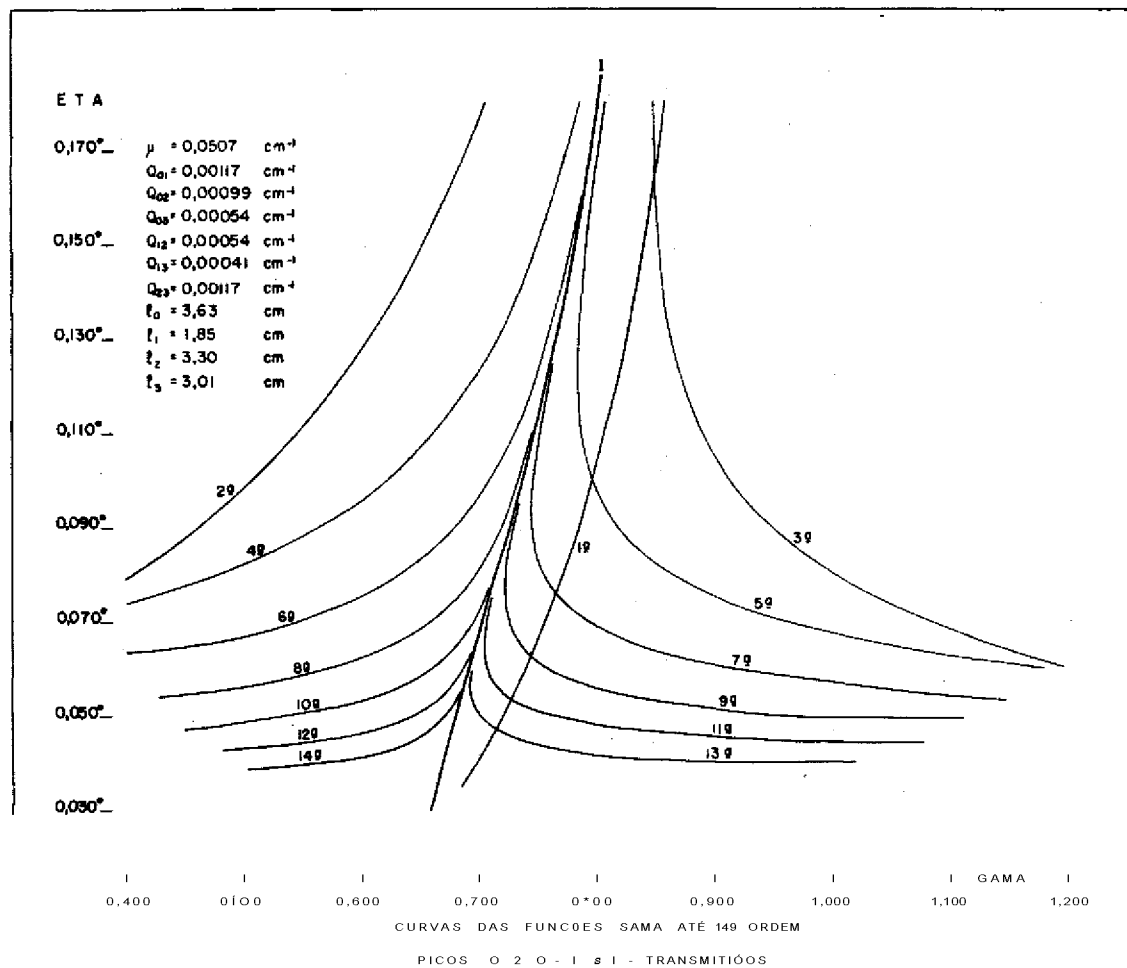


Figura V.4

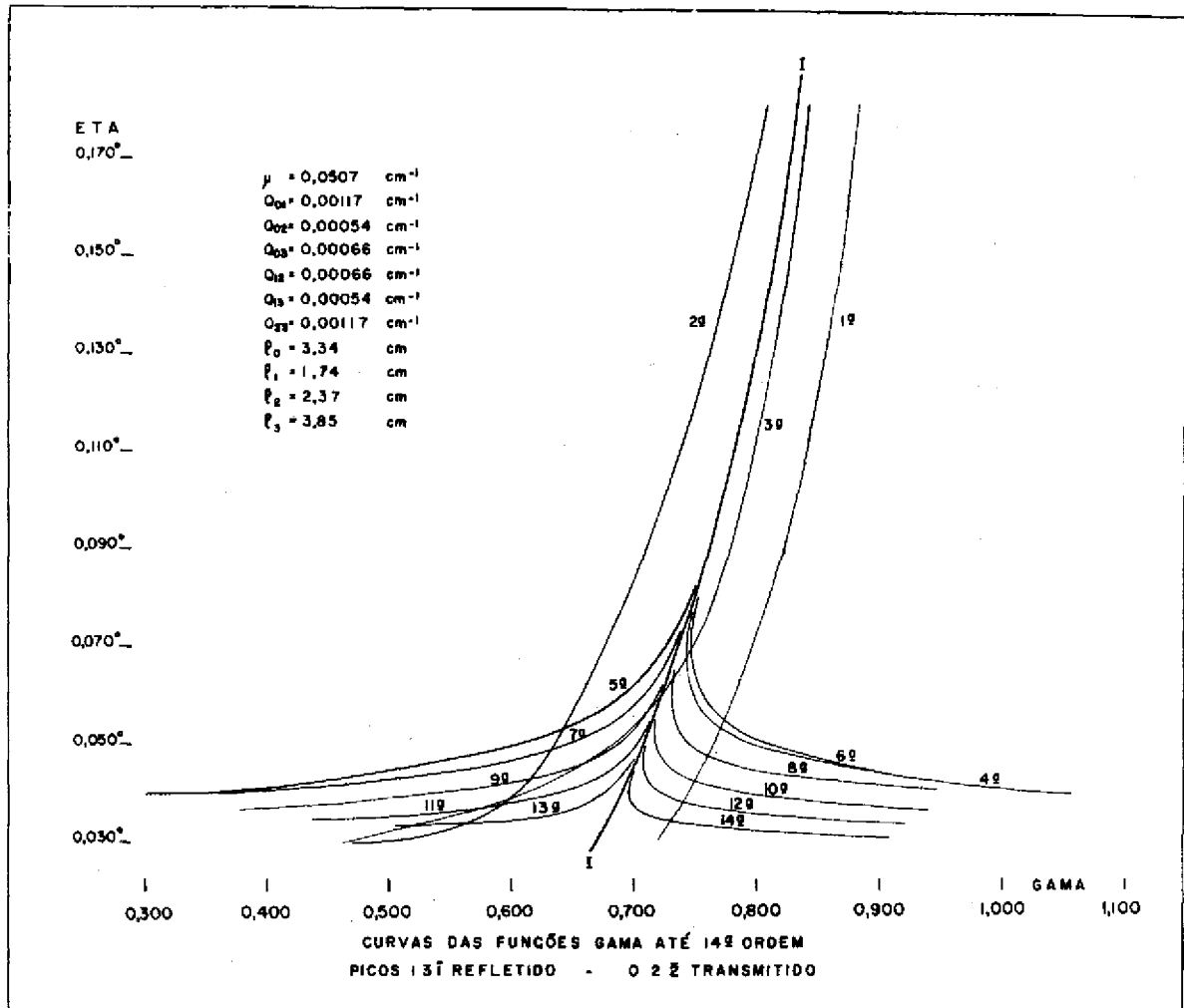


Figura V.5

TABELA N9 3

VALORES DA LARGURA DE MOSAICO ASSOCIADA n , DETERMINADAS
A PARTIR DOS PICOS DE DIFRAÇÃO MÚLTIPLA E DAS CURVAS GAMA

PICO	POSIÇÃO	TIPO	COSSENO DIRETOR	LARGURA AJUSTADA	r	n
111	50,1°	TRANS	0,0787	0,214° ± 0,006°	0,892 ±0,009	0,17° + 0,025° - 0,017°
020	230,1°	REFL	-0,0787	0,324° ± 0,006°	0,839 ±0,010	e i « ⁶ + 0,012° - 0,012
222	34,6°	REFL	-0,0787	0,350° ± 0,014°	0,881 ±0,010	0,155° * 0,027° - 0,018
133	54,8°	TRANS	0,0787	0,250° ±0,014°	0,934 ±0,012	0,170° * 0,030° - 0,025
331	218,7°	TRANS	0,3930	0,500° ±0,010°	0,916 ±0,012	0,132° * 0,032° - 0,025
131 022	53,3°	REFL TRANS	-0,2359 0,2359	0,278° ±0,004°	0,811 ±0,009	0,142° + 0,022° - 0,012°
020 131	28,9°	TRANS TRANS	0,5500 0,3930	0,378° ±0,008°	0,771 ±0,009	0,135° + 0,010° - 0,010°
002 113	31,1°	TRANS TRANS	0,5500 0,3930	0,374° ±0,008°	0,770 ±0,009	0,132° + 0,010° - 0,010°

CAPITULO VI

CONCLUSÕES GERAIS

A instrumentação necessária a realização de uma experiência em difração múltipla de neutrons, inclui, além do difratômetro, um goniostato de 5 eixos e, pelo menos, um colimador com divergência angular limitada em qualquer plano (no caso de um colimador so, este deve ser o segundo colimador) Conforme o objetivo da experiência, tanto o difratômetro quanto o goniostato, devem ter uma precisão mecânica muito boa. E o caso da determinação do comprimento de onda efetivamente espalhado na difração múltipla, através da posição azimutal dos picos. Se o objetivo esta ligado tão somente à determinação de intensidades relativas dos picos de difração múltipla, como acontece quando se quer determinar a largura de mosaico, a partir da análise de intensidade, e necessário ter boa resolução na figura de difração , além de pouca flutuação nas contagens. Estas duas últimas características são conflitantes, no sentido de que boa resolução implica, geralmente, em pouca intensidade dos feixes, o que, por sua vez, leva a medidas com flutuações estatísticas grandes (a menos que se aumente o tempo de medida). Este problema e mais grave no caso da difração múltipla, porque, na maioria dos casos, as flutuações de intensidade são menores do que 10%, sendo importante que a flutuação estatística seja bem pequena, de modo a não causar erros muito grandes nas intensidades relativas medidas. Como nos utilizamos tanto a posição como a intensidade relativa dos picos de difração múltipla, é natural que tivéssemos que cuidar dos dois aspectos mencionados: precisão mecânica e medidas de intensidade com baixa flutuação estatística. Uma precisão mecânica razoável foi conseguida depois de varias modificações no difratô

metro e no goniostato, que estão em forma resumida, relatadas nos capítulos II e IV, respectivamente. A precisão na determinação das intensidades relativas foi conseguida aumentando-se o tempo de contagem para cada ponto, chegando-se a um máximo de 8 minutos, no caso dos resultados experimentais definitivos, que aparecem no capítulo IV. Desta forma, a realização de uma experiência em difração múltipla de nêutrons, requer cuidados especiais na instrumentação e na obtenção de dados.

Por outro lado, a análise desses dados envolve a solução de um sistema de equações lineares diferenciais, que não é, de modo geral, fácil de obter. A solução aproximada, na forma de uma expansão das intensidades, em série **de Taylor** em torno do ponto $x = 0$, embora mais fácil de obter, traz alguns problemas relativos à convergência dessas séries que podem impedir ou dificultar o seu uso. A necessidade de que os produtos $u_j L$ e Q_j^2 , definidos no capítulo I, sejam bem menores do que 1, implica em limitações no emprego de certas amostras pouco absorvedoras de nêutrons, particularmente quando a espessura dessas amostras é muito grande. Para algumas das reflexões envolvidas em um processo de difração múltipla, pode acontecer que os produtos $T_j \cdot J_j$ sejam pouco maiores do que 1. Mas, felizmente, isto não implica, necessariamente, na divergência das séries, uma vez que estas devem depender de todos os produtos, considerados em conjunto, e não de alguns, isoladamente. Os produtos, via de regra, são sempre menores do que 1, nas condições normais de espessura e absorção dos cristais. Contudo se a divergência das séries pode ser contornada, o que não se pode contornar é o fato de que essas séries não convergem rapidamente, quando os produtos citados têm valores em torno de 1. No caso particular do cristal de alumínio que estudamos caímos em um destes casos. A solução encontrada para o tratamento da intensidade, foi determinar o termo geral da expansão em série de **Taylor** e, com isto, conseguir aproximações de qualquer ordem, através do cálculo em computador. As curvas que aparecem no final do capítulo anterior, mostram como se comportam as aproximações calculadas para a razão de intensidades, que é definida no mesmo capítulo, quando se varia a largura de

mosaico n . No intervalo de variação de n , nas figuras, a convergência se torna razoável, quando se tem em torno de dez termos nas aproximações. Para valores muito baixos de n , a razão diverge em qualquer das ordens calculadas. Pela tendência das curvas, é possível que, aquém de um certo valor de n , não se tenha mais convergência. Neste caso, o conjunto de produtos Q_j e w_j , não permite, de nenhuma forma, a convergência. Um outro aspecto que deve ser notado nas curvas é que, aparentemente, se teriam duas soluções para n para um determinado valor da razão entre as intensidades obtidas experimentalmente (r). É evidente, entretanto que as soluções provenientes das partes das curvas que se tornam quase horizontais, na região de n pequeno, devem ser desprezadas, por serem resultantes de uma parte divergente da solução. Naquela região vale a solução obtida por integração numérica das equações, para a qual convergem as soluções aproximadas. Uma análise mais acurada da convergência da solução aproximada, pode ser feita uma vez que se tem a fórmula de recorrência que permite o cálculo da expansão até uma ordem n qualquer.

Os resultados obtidos com as curvas GAMA, já foram comentados no capítulo anterior. Contudo, resta dizer que se o objetivo é determinar, realmente, a largura de mosaico nas direções dos feixes secundários é necessário introduzir nas equações diferenciais os calculados com as larguras de mosaico adequadas em cada uma das direções dos feixes participantes do fenômeno. Assim, por exemplo, em um pico causado por planos (020), em uma reflexão primária (111), tem-se a considerar a largura n_{111} , na direção $\langle 111 \rangle$, n_{020} na direção $\langle 020 \rangle$ e n^{jj} , na direção $\langle TlT \rangle$, a qual resulta da diferença de índices dos planos (020) e (111). Para a determinação de r_{j_0} é necessário conhecer $n_{x_{11}}$ e r . Desta maneira, uma verificação da provável anisotropia de n não é facilmente conseguida, embora, em princípio, ela não seja impossível.

Em certas condições, quando um feixe secundário é praticamente paralelo as faces de uma placa cristalina, o n determinado na direção desse feixe, vai representar o mosaico

de uma camada fina da superfície. Outros feixes, com outras - inclinações, poderão levar a valores de n diferentes. **E** o que acontece no caso dos cristais estudados por **Catioha-Ellis** (1969), nos quais as superfícies foram danificadas no processo de corte das placas, e desta forma, os n originários de camadas próximas a superfície, resultaram diferentes de outros, originários de camadas mais profundas. Com nêutrons, mesmo que as superfícies sejam danificadas e os feixes sejam paralelos a elas, n . não representa uma camada fina de uma dessas superfícies. Não é este o motivo, portanto, que o tornará diferente, pelo menos em forma apreciável, dos valores encontrados com feixes que tenham outras inclinações. A razão é que os feixes de nêutrons penetram toda a massa cristalina (no caso de cristais pouco absorvedores) e os n resultantes representam uma média de todo o cristal. De qualquer forma, se não se tomar o cuidado de diferenciar os n , de acordo com a direção dos feixes que participam de um pico de difração múltipla, a análise não será perfeita.

Outro cuidado a ser tomado, na análise de intensidade, é o da determinação da origem correta da figura de difração múltipla, conforme está explicado no item IV.5. Se não se tiver este cuidado, pode-se errar na indexação dos picos e, conseqüentemente, a intensidade, que depende dos planos envolvidos no fenômeno, não poderá ser analisada corretamente.

Finalmente, conclui-se que as posições dos picos de difração múltipla podem servir para a determinação do comprimento de onda do feixe monocromático, com precisão incomum em difratometria de nêutrons. E as intensidades relativas desses mesmos picos podem ser usadas na determinação da largura de mosaico do cristal. Com uma análise mais cuidadosa, pode-se determinar as larguras da distribuição do mosaico, em diversas - direções no cristal, e, assim, verificar se essa distribuição é anisotrópica ou não.

APÊNDICE I

-SOLUÇÃO Aproximada das Equações Diferenciais de Variação de Potencia.

Termo Geral da Expansão em Serie de Taylor;

Para as equações diferenciais:

$$\frac{dP}{dx} = \frac{P}{Y_0} - \sum_{j=1}^J \frac{P_j}{Y_j} + \sum_{i=1}^I \left(\frac{P_i}{Y_i} + \frac{E_i Q_i}{J} \right) - \sum_{j=1}^J \frac{P_j}{Y_j} \quad (I)$$

$$\frac{dP_{ii}}{dx} = \frac{P_{ii}}{Y_{ii}} - \sum_{i=1}^I \frac{Q_{xi}}{Y_i} - \sum_{i=1}^I \left(\frac{P_{ii}}{Y_i} + \frac{E_i Q_i}{J} \right) + \sum_{j=1}^J \frac{P_{ji}}{Y_j}$$

que descrevem a variação de potência dos diversos feixes ao atravessarem uma camada cristalina de espessura dx, a uma distancia x da superfície de incidência de um cristal na forma de placa, pode ser encontrada uma solução aproximada, conforme proposta por Moon & Shull (1964) e apresentada por eles como a expansão da intensidade do feixe primário considerando termos até 3- ordem, no caso em que o feixe primário e o feixe secundário são ambos transmitidos. Caticha-Ellis (1969) apresenta a expansão ate 2- ordem quando o feixe primário é refletido e se tem n feixes secundários, de quaisquer tipos» Ele particulariza para os casos em que o feixe primário é refletido e o feixe secundário é transmitido ou refletido. Apresenta também a expansão ate 3- ordem, quando o feixe primário e refletido e o feixe secundário e transmitido. Expansões com termos de ordens mais altas são obviamente possíveis, mas o processo de derivações sucessivas, usado na obtenção dos termos da expansão, torna-se exaustivo e sujeito a erros casuais. No que se segue, apresentamos a derivação do termo geral da expansão em série de Taylor das intensidades, as quais se constituem numa solução aproximada das equações - apresentadas.

A última das equações em (I) quando retiramos a restrição $j = 2$, passa a representar, de fato, todas as equações envolvidas, sendo que i , por sua vez, passa a representar qualquer um dos feixes ($i = 0, 1, 2, \dots$). Ou seja, obtém-se a equação geral:

$$+ \frac{dP_i}{dx} \left[\frac{E}{j+1} - \frac{P_i}{Y_j} - \frac{P_i}{Y_i} \right] + \frac{E}{j+1} Q_i = 0 \quad (II)$$

Soluções $P_i(x)$, aproximadas, podem ser encontradas quando se faz a expansão em série de Taylor das funções $P_i(x)$, em torno do ponto $x=0$, resultando em uma série de McLaurin expressa por:

$$P_i(x) = P_i(0) + \frac{dP_i}{dx} \Big|_{x=0} x + \frac{d^2 P_i}{2! dx^2} \Big|_{x=0} \frac{x^2}{2} + \dots + \frac{d^n P_i}{n! dx^n} \Big|_{x=0} \frac{x^n}{n!} + \dots$$

Nesta expansão a derivada no termo de 1- ordem é obtida usando-se da própria equação geral (II). Esta derivada tem a forma seguinte:

$$\frac{dP_i}{dx} = \frac{E}{j+1} \left[\frac{P_i}{Y_j} - \frac{P_i}{Y_i} \right] - \frac{E}{j+1} Q_i \quad (III)$$

onde fizemos $Y = E Q_i + A_i$.

Para simplificar, vamos introduzir uma notação mais conveniente para as derivadas de ordem n ($n = 1, 2, 3, \dots$):

$$\frac{d^n P_i}{dx^n}$$

Quando calculada no ponto $x=0$, usaremos a notação $P_i^{(n)}(0)$.

Vamos introduzir também uma constante de sinal das equações. Esta constante s^k (normalmente chamada de sinal) para um feixe k , terá os

valores:

+ 1 : para os feixes transmitidos

- 1 : para os feixes refletidos

A expressão (III), após as simplificações propostas, resulta em:

$$s \cdot P^{\wedge}(x) = E \frac{P(x)}{\prod_{j=1}^n \gamma_j} Q \dots - \frac{P(x)}{\gamma_j} A. \quad (IIIa)$$

Evidentemente s para as derivadas $P^{\wedge}(x) \gg \dots$ sempre o mesmo e igual ao sinal de $P^{\wedge}(x)$.

Devido ao valor unitário de s. e possível escrever (IIIa) na forma seguinte:

$$P^{\wedge}(x) = E \frac{P(x)}{\prod_{j=1}^n \gamma_j} s_j - \frac{P(x)}{\gamma_j} s_{-j} \quad (IIIb)$$

O termo de 1- ordem sera portanto:

$$P^{\wedge}(x) = E \frac{P(0)}{\prod_{j=1}^n \gamma_j} s_j x_j - \frac{P(0)}{\gamma_i} s_{-i} x_i \quad (IV)$$

onde $x_i = \frac{x}{\gamma_i}$ e $i = 0, 1, 2, \dots, k, \dots$

Chamando $s_j = \frac{Q_{ij}}{\gamma_j}$ para $j \neq i$
 $-s_{-i} = \frac{A_{-i}}{\gamma_i}$ para $j = i$

tem-se a expressão (IV) reescrita como:

$$P^{\wedge}(x) = E \frac{P(0)}{\prod_{j=1}^n \gamma_j} X^k \quad k = 0, 1, 2, \dots, i, \dots \quad (IVa)$$

O termo de 2- ordem e obtido a partir da derivação de (IIIb), isto e,

$$p f^2 U) - \sum_{j \neq i} E P^{\wedge} x) s. - P^{\wedge} x) s. -$$

Substituindo-se os x que são dados por (11b), chega-se a:

$$Pr\{x\} - E \left(\sum_{j \neq i} E P. (x) s. - P. (x) s. s. - J_i + \right.$$

$$\left. - \left(\sum_{k \neq j} E P_{,,} (x) s. - P. (x) s. \right) s. - \right.$$

Com $P^{\wedge\wedge} x$ obtém-se o termo de 2- ordem (que vamos escrever sem a constante 1/2) :

$$P_{,i} f^2 \hat{1} 0) x^2 - E \left(\sum_{k \neq j} E P (0) X. . + P. (0) X..) X. + \right.$$

$$\left. + \left(\sum_{l \neq i} E P_{,i} (0) X_{,i} . + P. (0) X..) X.. \right) \right.$$

Com a introdução dos X_{jj} e dos X^{\wedge} , isto é, com o desaparecimento do sinal negativo, as somatórias em j , k e l perderam as restrições $j \neq i$, $k \neq j$ e $J T^{\wedge} i$ e a expressão pode ser escrita de modo mais simples, como mostrado a seguir. Em uma 1- etapa temos a assimilação dos termos isolados nas somatórias entre parêntesis, resultando em:

$$p_{,i} P_{,i} 0) x^2 - E \left(\sum_{k \neq j} E P_{,k} (0) X_{,i} X_{,j} \right) + \sum_{l \neq i} E P_{,i} (0) X_{,i} X_{,l}$$

A última somatória é na verdade um só termo pois j representa todo; os feixes com exceção do feixe de índice i , desta forma, sendo $l \neq j$,

evidentemente f sō poderā ser igual a i e a expressāo resulta:

$$p_i^{(0)} x^i - \sum_{j/i} \left(\sum_{k \in I} P_k^{(0)} X_{k1} \dots X_{21} \right) + P_1^{(0)} X_{11} \dots X_{11}$$

Eliminando as duas ultimas restriçōes, segue-se sucessivamente:

$$p_x^{(0)} x^2 - \sum_j \left(\sum_{i, k} P_{ki}^{(0)} X_{k1} X_{j1} + P_x^{(0)} X_{xx} X_{xx} \right)$$

$$p_1^{(0)} x^2 - \sum_j \sum_k P_{kj}^{(0)} X_{k1} X_{j1} \tag{V}$$

De uma forma anāloga chega-se a:

$$p_1^{(0)} x^3 \gg \sum_j \sum_k \sum_l P_{jkl}^{(0)} X_{j1} X_{k1} X_{l1} \tag{VI}$$

Um termo de ordem n tera entāo;

$$p_1^{(0)} x^n \gg \sum_j \sum_k \sum_i \dots \sum_r \sum_s P_{jkr \dots}^{(0)} X_{j1} X_{k1} \dots X_{r1} X_{s1} \dots$$

n somatōrias produto, de n coeficientes

Sendo assim, a expressāo (IVa) pode ser escrita na forma seguinte:

$$p_1^{(0)} x = P_0^{(0)} X_{01} + P_1^{(0)} X_{11} + \dots + P_{11}^{(0)} X_{11} \tag{VII}$$

Chamando os $X^{\wedge} - X^{\wedge} P$, tem-se, em forma simplificada,

$$P^{\ll 1} x - \sum_k P_k^{(0)} X_{k1} \tag{Vila}$$

A expressão (V) por sua vez pode também ser escrita na forma:

$$\begin{aligned}
 P_i^2 \setminus 0) x^2 - P(0) & (X_{00} X_{01} + X_{01} X_{11} + \dots X_{01} X_{11} + \dots) + \\
 & + P_1(0) (X_{10} X_{01} + X_{11} X_{11} + \dots X_{11} X_{11} + \dots) + \\
 & + P_i(0) (X_{i0} X_{01} + X_{i1} X_{11} + \dots X_{i1} X_{11} + \dots) +
 \end{aligned}$$

ou, conforme se pode deduzir da passagem de (VII) para (Vila),

$$P_i^2 \setminus 0) x^2 \gg \sum_k P_k(0) \sum_{j, l} X_{kj} X_{jl} \quad (\text{VIII})$$

Chamando os coeficientes de (VIII) de

$$x_{ij}^{<2>} - \sum_j X_{ij} X_{jl}$$

$$x_{11}^{<2>} - \sum_{j, l} X_{1j} X_{jl}$$

$$x_{31}^{<2>} - \sum_{j, l} X_{3j} X_{jl}$$

tem-se:

$$P_i^2 \setminus 0) x^2 - \sum_k P_k(0) X^k$$

Por um desenvolvimento análogo chega-se a

$$P_i^{(n)}(0) x^n \gg \sum_k E P_k(0) X_k^{(n)}$$

onde:

$$X_{01}^{(1)} = \sum_j X_{0j} \cdot X_{j1}^{(2)}$$

$$X_k^{(3)} = \sum_j X_{kj} \cdot X_j^{(2)}$$

$$X_{kX}^{(2)} = \sum_j E X_{kj} \cdot X_{j1}^{(2)}$$

O termo de ordem n sera portanto:

$$P_i^{(n)}(0) x^n = \sum_k E P_k(0) X_k^{(n)}$$

onde:

$$y_{k1}^{(n)} = \sum_j y_{kj} \cdot y_{j1}^{(n-1)} \quad (\text{IX})$$

Portanto, os coeficientes que aparecem em um termo qualquer da expansão são dados por (IX). É importante notar que os coeficientes em (IX), ou seja, os X_{kj} , são sempre os mesmos, qualquer que seja n. Portanto, a expansão pode ser escrita como:

$$P_i(x) = P_i(0) + P_i^{(1)}(0) x + \frac{P_i^{(2)}(0)}{2!} x^2 + \frac{P_i^{(3)}(0)}{3!} x^3 + \dots$$

$$+ \dots + \frac{P_i^{(n)}(0)}{n!} x^n + \dots$$

onde

$$P_i^{(n)}(0) x^n \gg \sum_k E P_k(0) X_{ki}^{(n)}$$

sendo que os X_j são dados por (IX), onde, como vimos,

$$X_j = \sum_{k=1}^n s_{jk} x_k \quad (X_k = \bar{Y}_k)$$

$$X_{jj} = -s_{jj} A_{jj} x_j \quad \text{para } k = i \quad (X_j = \bar{Y}_k)$$

e os sinais são dados por :

$$s_{jj} = + 1, \text{ se } i \text{ é um feixe transmitido}$$

$$s_{jj} = - 1, \text{ se } j \text{ é um feixe refletido}$$

O termo de 1- ordem também tem seus coeficientes como combinações dos coeficientes do termo de ordem zero, Este termo de ordem zero pode ser escrito:

$$P.C(0) = \sum_k P_k < 0 > x_k^{(0)}$$

onde

$$X_k^{(0)} = 0 \text{ para } k \neq i$$

$$X_k^{(0)} = 1 \text{ para } k = i$$

(X)

O termo de 1- ordem, portanto, pode ser escrito:

$$P^{(1)}(0) x = \sum_j E P_j(0) \sum_k X_k^{(0)}$$

que devido a (X) resulta em:

$$P^{(1)}(0) x = \sum_j P_j(0) X_j$$

expressão que coincide com (VII).

Exemplo de Aplicação do Termo Geral:

Vamos aplicar o termo geral no caso de 2 feixes difratados, sendo o feixe 1 refletido e o feixe 2 transmitido. As condições de contorno, quando o feixe 1 é refletido, são as seguintes:

Em $x \gg 0$

$$\begin{aligned}
 P_0 &= P_0(0) \\
 P_L &= P_i(0) / 0 \\
 P_i &= P_i(0) \quad = 0 \text{ para feixes transmitidos} \\
 &\quad \neq 0 \text{ para feixes refletidos}
 \end{aligned}$$

Em $x \ll T$ (T = espessura do cristal)

$$\begin{aligned}
 P_i(T) &= 0 \\
 P^{\wedge}(T) &\gg 0 \text{ para todos os feixes refletidos}
 \end{aligned}$$

Da condição $P^{\wedge}(T) \gg 0$ resulta da serie que:

$$P_i(0) = P^{\wedge}(0) x - P_i^{(20)} x^2 - P_i^{(40)} x^3 + \dots$$

Os $P_i^{(20)}$ são obtidos da matriz que se segue, onde chamamos $x^{\wedge} = \frac{1}{2} \lambda$ quando $x = T$, e os sinais são:

$$s_0 = s_1 = +1$$

Matriz $X^{\wedge j}$

$$\begin{array}{ccc}
 0 & 1 & 2 \\
 -A_{00}^{\wedge} & -Q_{01}^{\wedge} & Q_{02}^{\wedge}
 \end{array}$$

$$\begin{array}{ccc}
 \sim 2 \times 2 & \sim 2 \times 2 & \sim 2 \times 2
 \end{array}$$

Portanto, da expressão (VII) se tem:

$$p_j H_0) T = P_0(0) (-Q_{01} l_0) + P_x(0) A_{1 \leftarrow -1} + P_2(0) (-Q_{12}) t_2$$

Os coeficientes do 1º termo são portanto:

$$x_{01}^{(P)} = -Q_{01} l_0$$

$$x_{11}^{(1)} = -A_{1 \leftarrow -1} f_1$$

$$x_{21}^{(1)} = -Q_{12} f_2$$

O termo de 2- ordem, obtido de (VIII), resulta:

$$\backslash P_{<^3*0} T^2 = \int P_0(0) (A_0 f_q Q_{01} l_0 - Q_{01}^* A_{1 \leftarrow -1} - Q_{02} f_0 Q_{12}^* +$$

$$+ \int P_1(0) (l_0^2 + l_0^2 + 2 l_0^2 + 2 l_0^2 + 2 l_0^2) +$$

$$+ \int P_2(0) (-Q_{02} f_2 Q_{01} f_0 - Q_{12} f_1 A_{1 \leftarrow -1} + A_1 f_1))$$

Os coeficientes do termo de 2- ordem são portanto:

$$x_{02} = -Q_{02} f_0 Q_{01} l_0 - Q_{12} f_1 A_{1 \leftarrow -1} + A_1 f_1$$

$$x_{12} = -Q_{12} f_1 A_{1 \leftarrow -1} + A_1 f_1$$

$$x_{22} = -Q_{12} f_1 A_{1 \leftarrow -1} + A_1 f_1$$

O termo de 3- ordem por sua vez resulta:

$$x_{f W}^3 = \int P_0(0) J - A_0 f_0 (A_0 Q_{01} f_2 - A_x Q_{01} f_0 i_1)$$

$$- \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_0 \hbar^{-2} \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_1 \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_2 \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_3$$

o que pode ser escrito na forma:

$$P_1 = \frac{N}{E}$$

onde:

$$N = \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_0 + 2 \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_1 + \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_2 + \langle \sigma_1 \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_3$$

$$A_0^2 Q_{01} i_0^3 - A_0 A_1 Q_{01} i_0 i_1 - A_0 Q_{02} Q_{12} i_0 i_2 + A_1^2 Q_{01} Q_{01} i_1^2 +$$

$$Q_{01}^3 i_0^3 - 1 + Q_{01} Q_{02} A_0^2 i_0^2 - Q_{01} Q_{12} i_0 i_1 i_2 + A_1 Q_{02} Q_{12} A_0 A_1 i_0^2 +$$

$$A_2 \langle \sigma_2 \sigma_{12} \rangle_0^2$$

$$D = 1 + A_x l_x + i - (A^2 l_x - \langle \sigma_{01} l_0 l_x - Q_{2h} l_2 \rangle)$$

$$4 \langle \sigma_0 \sigma_1 \sigma_2 \rangle_0 \sim \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_1 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_2 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_3 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_4 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_5 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_6 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_7 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_8 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_9 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_{10}$$

$$A_1^2 l_x^2 \sim A_1 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_1 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_2 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_3 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_4 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_5 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_6 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_7 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_8 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_9 \langle \sigma_1 \sigma_2 \rangle_{10}$$

APÊNDICE II

Calculo dos comprimentos das placas do colimador

Para se obter as colimações vertical e horizontal simultaneamente, determina-se o comprimento das placas baseando-se no esquema da figura I.

No esquema se tem:

Distância entre placas	$S = 0,878 \text{ mm}$
Espessura das placas	$d = 0,3 \text{ mm}$
Comprimento total	$L = 810 \text{ mm}$
P^{\wedge} e P^{\wedge}	Placas horizontais
$?2^{\circ}4$	Placas verticais

Os comprimentos das placas e as distâncias entre os conjuntos formados por elas, são calculados com as equações que são apresentadas em seguida:

Colimação horizontal

Para se ter o caso em que é impossível a um feixe passar por canais que não sejam consecutivos, basta estabelecer que os pontos B, E e F, da figura I, estejam alinhados. As coordenadas desses pontos, em um sistema ortogonal com a origem na extremidade esquerda da placa imediatamente inferior a que contém o ponto B, com o eixo x na direção do comprimento das placas e o eixo z perpendicular às faces das mesmas, são $B = (I^{\wedge}.S)$, $E = (L, S+d)$, $F = (L, 2S+d)$.

A equação da reta que passa por B e E é dada por:

$$\frac{X - L_2}{L_3 - L_2} = \frac{Y - S}{S + d - S} \quad \frac{X - L_2}{3} = \frac{Y - S}{2}$$

Impondo-se a condição de que esta reta passe também pelo ponto F, tem-se a seguinte equação:

$$d (L - L_2) - (S + d) (L_3 - L_2)$$

Chamando-se $(S + d) \gg a$, onde $a \gg 1,178$ mm, chega-se à:

$$L d - L_2 d = a - a L_2$$

Colimação vertical

Usando-se o mesmo processo anterior, forma-se uma segunda equação:

$$L_3 d - L_1 d \ll a L_2 - a L_1$$

Resolvendo-se o sistema de duas equações a três incógnitas em função de obtém-se:

$$\begin{aligned} L_2 &= 64,84 + 0,92 \\ L_3 &= 254,57 + 0,68 L_1^{\wedge} \end{aligned} \quad (D)$$

Porem, a condição para se ter a mesma divergência vertical e horizontal é $L_3 = L - L_2$. Com as equações (1) e esta nova equação, pode-se obter os comprimentos:

$$L_1 = 330,36 \text{ mm}$$

$$L_2 \gg 368,45 \text{ mm}$$

$$L_3 \ll 479,58 \text{ mm}$$

Com estes valores calculam-se os comprimentos das placas:

$$P_1 = 330,4 \text{ mm}$$

$$P_2 \gg 38,1 \text{ mm}$$

$$P_3 = 111,1 \text{ mm}$$

$$P^{\wedge} = 330,4 \text{ mm}$$

Os comprimentos totais, das partes vertical e horizontal, resultam:

$$P_2 + P_3 + P_4 = 479,58 \gg P^{\wedge}$$

$$P_1 + P_2 + P_3 = 479,58$$

Calculo da divergencia

Como os comprimentos das partes vertical e horizontal são iguais e as distancias entre placas também, a divergencia é a mesma nesses dois sentidos. A divergencia é dada por:

$$a_H \ll a_V * \frac{1}{479,6} = 1,8307 \times 10^{-3} \text{ rad}$$

A divergencia, em graus, é:

$$a_H = a_V * 6,29^*$$

Calculo do ângulo crítico

O ângulo crítico é calculado pela expressão (Hughes, 1953):

$$\theta_c = \lambda \left(\frac{N}{b} \right)^{1/2}$$

II

onde λ é o comprimento de onda, N é a densidade e b é a amplitude de espalhamento dos núcleos.

Foram usadas para o colimador chapas de bronze fosforoso. A composição do bronze fosforoso é a seguinte:

$$\text{Cu} - 95,75 \% \quad (b - 0,79 \times 10^{-12} \text{ cm})$$

$$\text{Sb} - 4,00 \% \quad (b - 0,54 \times 10^{-12} \text{ cm})$$

$$\text{P} - 0,25 \% \quad (b - 0,53 \times 10^{-12} \text{ cm})$$

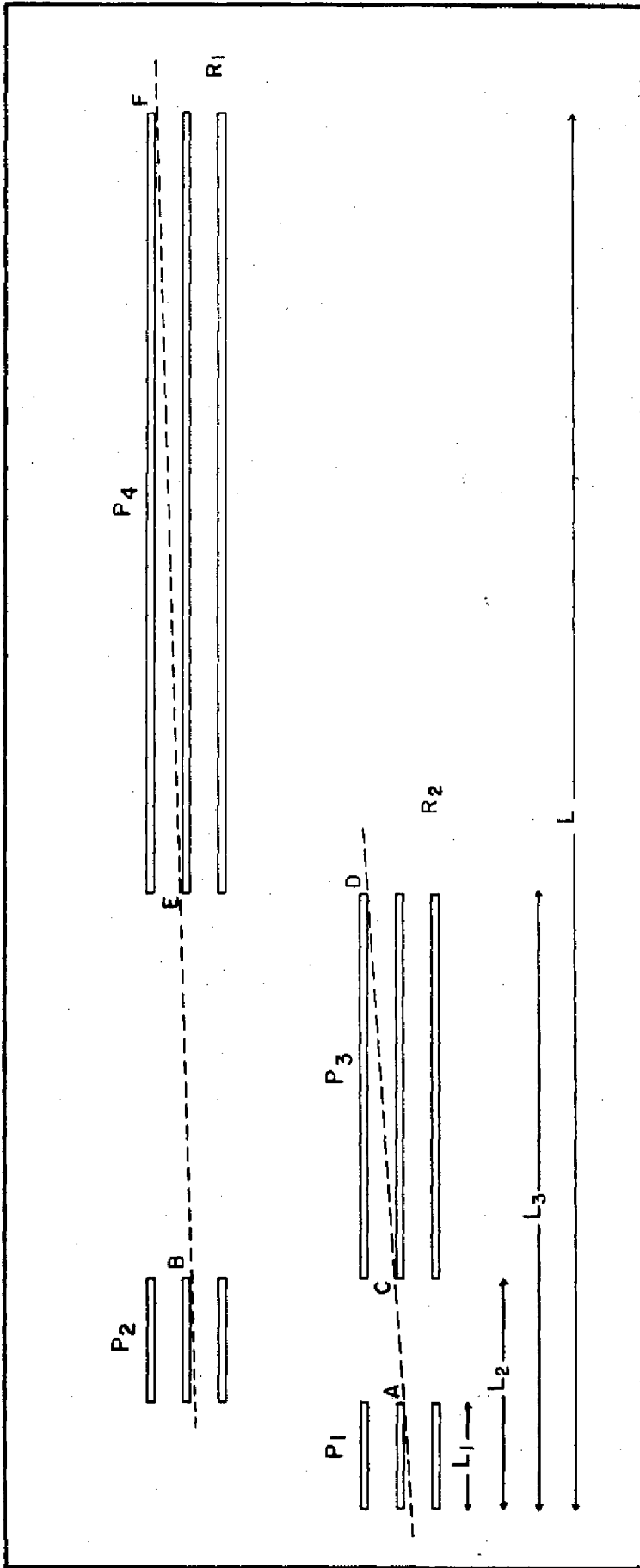
Consideremos para efeito de cálculo apenas o cobre porque as outras substancias entram em pequena quantidade na formação do bronze fosforoso; além das amplitudes de espalhamento serem pouco menores do que a do cobre. Assim:

$$\text{Cu} - 1,062 \times 10^{-22} \text{ g} \quad (\text{massa atômica})$$

$$N = \frac{8,85}{1,062} \times 10^{22} = 8,33 \times 10^{22} \text{ átomos/ cm}^3$$

O ângulo crítico resulta:

$$\theta_c * 1,58 \times 10^{-3} \text{ rad} \quad \text{ou} \quad \theta_c * 5,4'$$



APÊNDICE III

Cálculo dos comprimentos médios dos feixes

No cristal de alumínio de 3" x 3" x 1/2" que analisamos, os feixes eram limitados por todas as dimensões do cristal e não somente pela espessura. Desta forma, tornou-se necessário calcular os comprimentos médios / dos feixes: incidente, primário e de todos os secundários.

Para o cálculo da média, em primeiro lugar determinamos a região do cristal banhada pelo feixe incidente. O cristal tinha o seu eixo de giro passando mais próximo de um dos seus vértices, para evitar uma região / cristalina com orientação diferente. Na figura II estão definidas estas regiões e o centro de rotação por onde passa o eixo. Na região banhada pelo feixe, é considerado um quadriculado e de cada ponto de intersecção das retas que formam o quadriculado, supoe-se nascendo um feixe. Na verdade, considera-se a projeção desses feixes sobre a superfície de incidência e achase a média de todos eles. Esses feixes nascem nas intersecções, mas o ponto onde eles saem do cristal deve ser determinado de acordo com o tipo de feixe e de acordo com a região onde ele se encontra. A figura III vem em auxílio, para o esclarecimento da questão. No perfil da direita, verifica-se que a projeção do feixe incidente, no seu percurso no interior do cristal, sempre acaba na face lateral.

Na vista de cima da figura II, essa face lateral reduz-se a uma aresta onde as projeções terminam. Sendo assim, a média para o feixe incidente é fácil de ser conseguida, bastando somente, considerar todos os comprimentos dos segmentos que nascem nas intersecções e acabam na aresta. Já o feixe primário, como qualquer outro ~~feixe~~ do tipo refletido, é mais complicado. Todos os segmentos nascem na parte inferior da região determinada pelo feixe incidente, mas terminam, ou na face superior do cristal (fei-

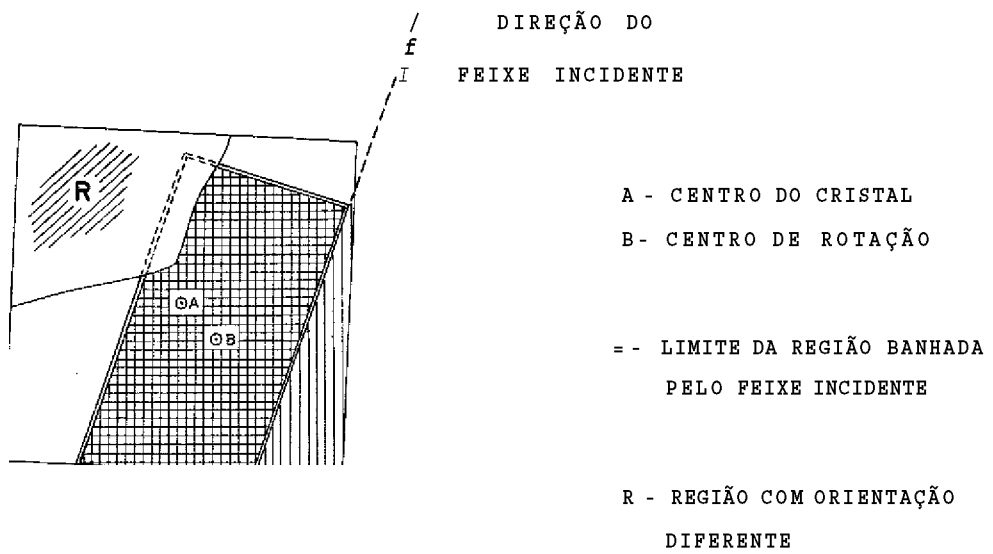
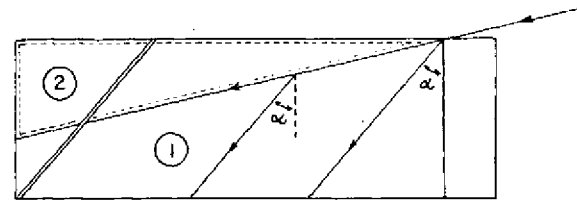
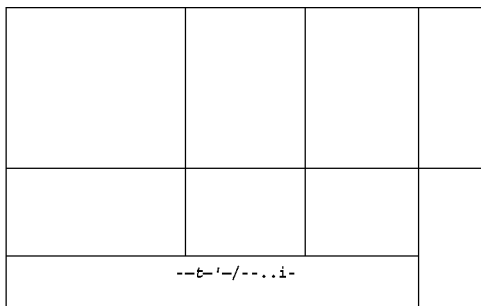


Figura II

FEIXE PRIMARIO
(REFLETIDO)

FEIXE INCIDENTE



—— LIMITE DA REGIÃO BANHADA PELOS FEIXES INCIDENTE E PRIMÁRIO

(7) REGIÃO DE FEIXES QUE TERMINAM NA FACE SUPERIOR DO CRISTAL

⊗ REGIÃO DE FEIXES QUE TERMINAM NA FACE LATERAL DO CRISTAL

(D) PROJEÇÃO DE ALGUNS COMPRIMENTOS DE FEIXES

(T) REGIÃO DE FEIXES DE MESMO COMPRIMENTO QUE ATRAVESSAM O CRISTAL

⊗ REGIÃO AONDE OS FEIXES TERMINAM NA FACE LATERAL DO CRISTAL

SITUAÇÃO DOS FEIXES COM O CRISTAL VISTO DE PERFIL

Figura III

xes da região 1 na figura III), ou na face lateral, como no caso do feixe incidente (região 2). As projeções dos feixes da região 1 tem comprimentos que vão diminuindo, conforme os feixes vão nascendo mais próximos da superfície. Na região 2 os comprimentos vão diminuindo conforme nascem em regiões mais profundas do cristal. As projeções de feixes das duas regiões podem ser vistas em 3, na figura II. Finalmente, feixes do tipo transmitido, como o feixe incidente porém com inclinação menor com relação à superfície do cristal, também formam duas regiões distintas (perfil da direita, na figura III) Na região 2 se tem praticamente o mesmo caso que na região 2 anterior. Mas na região 1, todos os feixes têm o mesmo comprimento, dado por $\ell = T/\gamma^2$, pois nascem sempre na superfície de incidência do cristal e terminam na outra face.

Para a obtenção das médias foram sempre consideradas as projeções. Depois pois das médias das projeções estarem determinadas é que se corrigiu para a inclinação dos feixes. A tabela nº 4 mostra os valores encontrados para os comprimentos dos feixes relativos aos picos utilizados na determinação de n, no capítulo V.

Tabela nº 4

(ℓ em cm)

ℓ Picos	Tipo dos feixes secundarios	ℓ_0 (inc.)	*1 (prim.)	ℓ_1 (sec.1)	(sec.2)
(111)	TRANS	3,25	1,81	3,15	
(020)	REFL	3,70	1,79	2,67	
(222)	REFL	3,58	2,29	2,90	
(133)	TRANS	3,12	1,66	3,75	
(331)	TRANS	3,42	1,74	3,66	
(131) - (022)	REFL-TRANS	3,34	1,74	2,37	3,85
(020) - (131)	TRANS-TRANS	3,63	1,85	3,30	3,01
(002) - (113)	TRANS-TRANS	3,60	1,86	3,34	2,97

APÊNDICE IV

Programas de Computador Utilizados :

Na análise dos picos de difração múltipla de um cristal de alumínio, usamos muitos programas de computador. Vamos resumir as funções executadas por alguns dos principais programas usados:

-INDEXAÇÃO EXATA- Faz a indexação de uma figura de difração dentro de um intervalo angular azimutal pre-determinado. São dados de entrada: o intervalo angular; o comprimento de onda do feixe monocromático; o parâmetro da rede; os índices $(h \ k \ l)$ da reflexão principal (do tipo $(h \ h \ h)$)*
o o o *

São dados de saída : os índices dos planos; o ângulo azimutal correspondente em que a reflexão múltipla ocorre.

-INDEXAÇÃO EXATA 2- Foi derivado do primeiro e tem como diferença, que ele admite n comprimentos de dados de entrada, fornecendo n conjuntos de saída. Desta forma, pode-se calcular a curva de variação da posição dos picos, com o comprimento de onda ou com o parâmetro da rede,

-EXTRATOS- Este programa determina os índices dos planos que podem ser difratados múltiplamente, e que estão dentro de um cubo na rede recíproca, com aresta $2n$, onde n é o valor máximo que podem ter os índices dos planos. Estes planos aparecem em extratos perpendiculares ao eixo Z , o qual coincide com a direção k do vetor da reflexão primária. São dados de entrada : n , índice máximo dos planos; o comprimento de onda; o parâmetro da rede; os índices da reflexão primária. São dados de saída : a coordenada Z dos extratos; o raio do círculo de intersecção desse extrato com a esfera de Ewald; os índices dos pontos da rede recíproca, nesse extrato e dentro do cubo; as coordenadas desses pontos em um sistema X, Y, Z definido; os ângulos azimutais em que o ponto intercepta a esfera de Ewald (na entrada e na saída); as coordenadas da projeção do centro da esfera sobre o extrato, na posição em que o ponto da rede recíproca toca a esfera.

Os outros programas foram utilizados, porém tiveram um papel menos importante, na análise de dados, do que os citados.

Os programas mais importantes, utilizados áa análise dos dados da difração múltipla do cristal de alumínio mencionado, são "listados" a seguir. Além desses, empregou-se também o programa GAMAI, diferente do GAMAI, por ser apropriado ao caso de 3 feixes apenas.

```

C   GAMART - PROGRAMA QUE CALCULA GAMA, RAZÃO ENTRE A INTENSIDADE DE
C   PICO E A INTENSIDADE DE BASE NA DIFRACAO MÚLTIPLA. GAMA E CALCULADA
C   EM APROXIMAÇÕES DA IA. A M-ESIMA ORDEM DE UMA EXPANSÃO EM
C   SERIE DE TAYLOR, NO CASO DE UM FEIXE PRIMÁRIO REFLETIDO E DOIS ,
C   FEIXES SECUNDÁRIOS, SENDO 0 PRIMEIRO REFLETIDO E 0 SEGUNDO TRANSMITIDO.
C
C   DIMENSION TIT(30),A(4,4),B(2,2),X(15,4),Y(15,4),Z(15,2),GAMA(14),
1COM(20)
   READ CMU,T,ETA1,ETA2,EPS,CZ1,CZ2,CZ3,CZ4,AL0,AL1,AL2,AL3,R1,
1R2,E3,R4,R5,R6,M
   N=2.+(ETA2-ETA1)/EPS
   M1=M+1
   ACR=0.
   CTE1=3.14159*SQRT(2.*3.14159)
   CTE=180./CTE1
   DO 10 1=1,N
   ETA=ETA1+ACR
   ETTA=CTE/ETA
   Q01=R1*ETTA
   Q02=R2*ETTA
   Q03=R3*ETTA
   Q12=R4*ETTA
   Q13=R5*ETTA
   Q23=R6*ETTA
   AS=CMU+Q01
   A0=AS+Q02+Q03
   A1=AS+Q12+Q13 •
   A2=CMU+Q02+Q12+Q23
   A3=CMU+Q03+Q13+Q23
   A(1,1)=-A0*AL0
   A(2,1)=-Q01*AL0

```

```

A (3 ,1) = -Q02*AL0
A (4 ,1) = Q03*AL0
A (1 ,2) = Q01*AL1
A (2 .2) = A1*AL1
A (3 >>2) = -Q12*AL1
A (4 ,2) = Q13*AL1
A (1 >>3) = Q02*AL2
A (2 ,3) = -Q12*AL2
A (3 ,3) = A2*AL2
A (4 .3) = Q23*AL2
A (1 ,4) = Q03*AL3
A (2 .4) = -Q13*AL3
A (3 ,4) = -Q23*AL3
A (4 ,4) = -A3*AL3
B (1 .1) = -AS*ALO
B (2 .1) = A (2 , 1)
B (1 2) = A (1 , 2)
B (2 2) = AS*AL1
X (1 .1) = 0.
X (1 , 2) = -1.
X (1 , 3) = 0.
X (1 4) = 0.
Y (1 , D) = 0.
Y d , 2) = 0.
Y (1 , 3) = 1.
Y (1 , 4) = 0.
Z (1 , 1) = 0.
Z (1 , 2) = -1.
A01==0.
BOI*=0.
C01==1.
A02==0.
B02==0.
C02=•1.
TNM==0.
TEN>1.
FAT=•1.
DO 20 J=2,M1
K>J-•1

```

```
DO 30 L=1,4
  X(J,L)=A(1,L)*X(K,1)+A(2,L)*X(K,2)+A(3,L)*X(K,3)+A(4,L)*X(K,4)
30 Y(J,L)=A(1,L)*Y(K,1)+A(2,L)*Y(K,2)+A(3,L)*Y(K,3)+A(4,L)*Y(K,4)
  DO 40 L=1,2
40 Z(J,L)=B(1,L)*Z(K,1)+B(2,L)*Z(K,2)
  EME=FLOAT(K)
  FAT=FAT*EME
  TA01=X(J,3)/FAT
  TB01=X(J,1)/FAT
  TC01=X(J,2)/FAT
  A01=A01-TA01
  B01=B01-TB01
  C01=C01+TC01
  TA02=Y(J,2)/FAT
  TB02=Y(J,1)/FAT
  TC02=Y(J,3)/FAT
  A02=A02-TA02
  B02=B02-TB02
  C02=C02+TC02
  TNU=A01*B02+B01*C02
  TDE=C01*C02-A01*A02
  P1D=TNU/TDE
  TS1=Z(J,1)/FAT
  TS2=Z(J,2)/FAT
  TNM=TNM-TS1
  TDN=TDN+TS2
  P1S=TNM/TDN
  GAMA(K)=P1D/P1S
20 CONTINUE
  WRITE ETA; GAMA(K)
  ACR=ACR+EPS
10 CONTINUE
  STOP
  END
```

```

C   GAMATT - PROGRAMA QUE CALCULA GAMA, RAZÃO ENTRE A INTENSIDADE DE
C   PICO E A INTENSIDADE DE BASE NA DIFRACAO MÚLTIPLA. GAMA E CALCU-
C   LADA EM APROXIMAÇÕES DA IA. A M-ESIMA ORDEM DE UMA EXPANSÃO EM
C   SERIE DE TAYLOR, NO CASO DE UM FEIXE PRIMÁRIO REFLETIDO E DOIS
C   FEIXES SECUNDÁRIOS TRANSMITIDOS.
C
C   DIMENSION  TIT(30),A(4,4),B(2,2),X(15,4),Y(15,2),GAMA(14),COM(20)
C
C   READ  CMU,T,ETA1,ETA2,EPS,CZ1,CZ2,CZ3,CZ4,AL0,AL1,AL2,AL3,R1,
1R2,R3,R4,R5,R6,M
C
C   N=2.+(ETA2-ETA1)/EPS
C   M1»M+1
C   ACR=0.
C   CTE1=3.14159*SQRT(2.*3.14159)
C   CTE=180./CTE1
C   DO 10 1=1,N
C   ETA=ETA1+ACR
C   ETTA=CTE/ETA
C   Q01=R1*ETTA
C   Q02=R2*ETTA
C   Q03=R3*ETTA
C   Q12=R4*ETTA
C   Q13=R5*ETTA
C   Q23=R6*ETTA
C   AS=CMU+Q01
C   A0=AS+Q02+Q03
C   A1=AS+Q12+Q13
C   A2=CMU+Q02+Q12+Q23
C   A3=CMU+Q03+Q23
C   A(1,1)=-A0*AL0
C   A(2,1)=-Q01*AL0
C   A(3,1)=Q02*AL0
C   A(4,1)=Q03*AL0
C   A(1,2)=Q01*AL1
C   A(2,2)=A1*AL1
C   A(3,2)=Q12*AL1
C   A(4,2)=Q13*AL1
C   A(1,3)=Q02*AL2

```

```

A(2,3)=-Q12*AL2
A(3,3)=-A2*AL2
A(4,3)=Q23*AL2
A(1,4)=Q03*AL3
A(2,4)=-Q13*AL3
A(3,4)=Q23*AL3
A(4,4)=-A3*AL3
B(1,1)=-AS*AL0
B(2,1)=-A(2,1)
B(1,2)=A(1,2)
B(2,2)=AS*AL1
X(1,1)=0.
X(1,2)=1.
X(1,3)=0.
X(1,4)=0.
Y(1,1)=0.
Y(1,2)=-1.
TDE=1.
TNU=0.
TNM=0.
TDN=1.
FAT=1.
DO 20 J=2,M1
K=J-1
DO 30 L=1,4
30 X(J,L)=A(1,L)*X(K,1)+A(2,L)*X(K,2)+A(3,L)*X(K,3)+A(4,L)*X(K,4)
DO 40 L=1,2
40 Y(J,L)=B(1,L)*Y(K,1)+B(2,L)*Y(K,2)
EME=FLOAT(K)
FAT=FAT*EME
TD1=X(J,1)/FAT
TD2=X(J,2)/FAT
TNU=TNU-TD1
TDE=TDE+TD2
P1D=TNU/TDE
TS1=Y(J,1)/FAT
TS2=Y(J,2)/FAT
TNM=TNM-TS1
TDN=TDN+TS2
P1S=TNM/TDN

```

```

GAMA (K) = P1D/PIS
20 CONTINUE
WRITE ETA, GAMA(K)
ACR = ACR + EPS
10 CONTINUE
STOP
END

```

```

C   GAMAI - PROGRAMA QUE CALCULA GAMA, RAZÃO ENTRE A INTENSIDADE DE
C   PICO E A INTENSIDADE DE BASE NA DIFRACAO MÚLTIPLA. GAMA E CALCU-
C   LADA POR MEIO DE INTEGRAÇÕES NUMÉRICAS DAS EQUAÇÕES DIFERENCIAIS,
C   NO CASO DE UMA REFLEXÃO SIMÉTRICA E DOIS FEIXES SECUNDÁRIOS DE
C   QUALQUER TIPO.
C

```

```

DIMENSION POT(4)
READ CMU, T, ETA1, ETA2, EPS, R1, R2, R3, R4, R5, R6, CL(1), CL(2), CL(3),
1CL(4), CZ(1), CZ(2), CZ(3), CZ(4)
N = 2. + (ETA2 - ETA1) / EPS
ACR = 0.
CTE1 = 3.14159 * SQRT(2. * 3.14159)
CTE = 180. / CTE1
DO 10 I = 1, N
ETA = ETA1 + ACR
ETTA = CTE / ETA
R(1, 2) = R1 * ETTA
R(1, 3) = R2 * ETTA
R(1, 4) = R3 * ETTA
R(2, 3) = R4 * ETTA
R(2, 4) = R5 * ETTA
R(3, 4) = R6 * ETTA
DO 20 J = 2, 4, 2
NB = J
CALL COEFF
DO 30 K = 1, NB
30 CALL INTMUN(K)
CALL PRSOL

```

```

20 POT(J)=SOL(2,1)
   GAMAI-POT(4)/POT(2)
   WRITE ETA,R(1,2),R(1,3),R(1,4),R(2,3),R(2,4),R(3,4),POT(4),
1POT(2),GAMAI
   ACR=ACR+EPS
10 CONTINUE
   STOP
   END

```

```

SUBROUTINE COEFF
DIMENSION DELT(4,4)
COMMON/BLOC01/NB/BLOC02/CMU,R(4,4)/BLOC05/CZ(4)/BLOC07/SIG(4,4)
DO 10 I=1,NB
DO 10 J=1,NB
DELT(I.EQ.J) DELT(I,J)»1.
10 CONTINUE
DO 20 I=1,NB
DO 20 J=1,NB
20 IF (I.GT.J) R(I,J)=R(J,I)
DO 30 I=1,NB
DO 30 J=1,NB
30 SIG(I,J)=R(I,J)/CZ(I)*ABS(CZ(I))
DO 40 J=1,NB
SIG(J,J)»-CMU
DO 40 K=1,NB
40 SIG(J,J)=SIG(J,J)-R(J,K)*(1.-DELT(J,K))
DO 50 L=1,NB
50 SIG(L,L)=SIG(L,L)/CZ(L)*ABS(CZ(L))
RETURN
END

```

```

SUBROUTINE INTNUM(L)
DIMENSION PS(7,7),DEX(4)
COMMON/BLOC01/NB/BLOC03/IND CL(4)/BLOC04/NP/BLOC07/SIG(4,4)/BLOC08
1/U(4,500,4)
DATA PS/10.,20.,30.,40.,75.,20.,71.,21.,51.,71.,51.,,
131.,11.,12.,32.,42.,22.,32.,62.,42.,23.,43.,12.,33.,53.,,
273.,33.,24.,14.,44.,34.,34.,74.,24.,45.,65.,35.,15.,15.,,
335.,65.,56.,36.,16.,56.,76.,26.,36./

```

```

    NFOR=IND+1
    NBACK=IND-1
    DO 5 J=1,NB
    DEX(J)=CL/(NP-1)
5   U(L,IND,J)=PS(L,J)
C   INTEGRAÇÃO NO SENTIDO POSITIVO
    DO 10 I=NFOR,NP
    DO 20 J=1,NB
    U(L,I,J)=U(L,I-1,J)
    DO 30 L1=1,NB
30  U(L,I,J)=U(L,I,J)+DEX(L1)*SIG(J,L1)*U(L,I-1,L1)
20  CONTINUE
10  CONTINUE
C   INTEGRAÇÃO NO SENTIDO NEGATIVO
    DO 40 M=1,NBACK
    I=NBACK-M+1
    DO 50 J=1,NB
    U(L,I,J)«U(L,I+1,J)
    DO 60 L1=1,NB
60  U(L,I,J)»U(L,I,J)-DEX(L1)*SIG(J,L)*U(L,I+1,L1)
50  CONTINUE
40  CONTINUE
    RETURN
    END

```

```

SUBROUTINE PRSOL
DIMENSION NBS(4),AMAT(4,4),VECT(4),ALMB(4)
COMMON/BLOC01/NB/BLOCO4/NP/BLOC05/CZ(4)/BLOC06/SOL(4,500)/BLOC08/
1U(4,500,4)
DO 10 J=1,NB
IF (CZ(J)) 30,300,20
20 NBS(J)=1
GO TO 10
30 NBS(J)=NP
GO TO 10
300 WRITE (6,1)
1  FORMAT (1H0,44H UM DOS FEIXES E PARALELO AS FACES DA PLACA.)
RETURN
10 CONTINUE

```

```

    VECT(1)=100.
    DO 40 J=2,NB
40  VECT(J)=0.
    , DO 50 J=1,NB
50  AMAT(1,J)=U(J,1,1)
    DO 60 J=2,NB
    DO 60 L=1,NB
    NFK=NBS(J)
60  AMAT(J,L)=U(L,NFK,J)
    NB1=NB+1
    CALL SOLV (NB,NB1,AMAT, VECT,ALMB)
    DO 70 J=1,NB
    DO 70 L=1,NB
    SOL(L,J)=0.
    DO 70 M=1,NB
70  SOL(L,J)=SOL(L,J)+ALMB(M)*U(M,J,L)
    RETURN
    END

```

```

    SUBROUTINE SOLV (NEQ,NEQ1,S,V,X)
    DIMENSION S(4,4),V(4),X(4),A(4,5)
    EPS=1.0E-08
    DO 10 I=1,NEQ
    DO 10 J=1,NEQ
10  A(I,J)=S(I,J)
    DO 20 I=1,NEQ
20  A(I,NEQ1)=V(I)
    DO 30 I=1,NEQ
    XMAX=ABS(A(I,I))
    L=I
    KK=I+1
    DO 40 K=KK,NEQ
    IF (XMAX-ABS(A(K,I))) 50,40,40
50  XMAX=ABS(A(K,I))
    L=K
40  CONTINUE
    IF (XMAX-EPS) 60,60,70
60  WRITE (6,80) XMAX
80  FORMAT (1X.17H MATRIZ SINGULAR,,F15.8,1X,31H, MENOR DO QUE 0 ZERO
    1NUMERICO.)

```

```
      GO TO 250
70 DO 90 J=1,NEQ
      B=A(I,J)
      A(I,J)=A(L,J)
      A(L,J)=B
90 CONTINUE
      M=NEQ+1
120 A(I,M)=A(I,M)/A(I,I)
      IF (M-I) 100,100,110
110 M=M-1
      GO TO 120
100 IF (1-1) 125,125,115
115 N=1
      GO TO 150
125 N=I
130 N=N+1
      IF (N-I) 135,130,135
135 IF (N-NEQ) 150,150,30
150 M=NEQ+1
170 A(N,M)=A(N,M)TA(N,I)*A(I,M)
      IF (M-I) 130,130,180
180 M=M-1
      GO TO 170
30 CONTINUE
      DO 200 I=1,NEQ
250 RETURN
      END
```

BIBLIOGRAFIA

- Arndt, U.Å. and Willis, B.T.M. - Single Crystal Diffraction - Cambridge at the University Press (1966)
- Bacon, G.E. and Lowde, R.D. - Acta Cryst. (1948), 1, 303
- Bacon, G.E. - Neutron Diffraction - 2nd edition - Oxford at the Clarendon Press (1962)
- Borgonovi, G. e Caglioti, G. - II Nuovo Cimento - Serie X, Vol. 24, 1174-1178
- Blinowski, K. and Sosnowski, J. - Nuclear Instruments and Methods, 10 (1961) 289-294
- BNL - 325 - Hughes, D.J., Schwartz, R.B. - Neutron Cross Sections - 2nd edition (1958)
- BNL - 325 - Supplement n^o 2 - Stehn, John R., Goldberg, Murrey D., Magurno Benjamin A., Wiener-Chasman, Renate - Neutron Cross Sections - Vol. 1 2nd edition (1964)
- Buras, B., Giebulowicz, T., Minor, W., Rajca, A., Sosnowska, I., Sledziewska-Blocka, D. and Wojtczak, K. - Institute of Experimental Physics - Warsaw University, Warszawa, Poland - IFD /11/71
- Caglioti, G. - Advanced Course on Neutron Crystal Spectrometry - Vol. 1 seções VII e VIII - Institutt for Atomenergi, Kjeller, Norway (1962)
- Caticha-Ellis, S. - Acta Cryst. (1969), A25, 666
- Cole, H., Chambers, F.W. and Dunn, H.M. - Acta Cryst. (1962), 15, 138
- Crystal Data Determinative Tables - second edition - American Crystallographic Association - April 1, 1963
- Cullity, B.D. - Elements of X-Ray Diffraction - Addison-Wesley Publishing Co., Inc. (1967)
- Dietrich, O.W. and Als-Nielsen, J. - Acta Cryst. (1965), 18, 184

- Fermi, E. & Marshall, L. - Phys. Rev. 71, 666, (1947)
- Fuifaro, Roberto - Tese de doutoramento apresentada a Universidade Estadual de Campinas (1970)
- Fuifaro, R. - Publicação IEA n9235 (1971)
- Harada, K., Parente, C.B.R., Kóishi, Y. - Publicação IEA n9 152 , pág. 125 (1967)
- Holm, M.W. - Phillips Petroleum Co. - IDO - 16399 (1957)
- Holm, M.W. - Phillips Petroleum Co. - IDO - 16115 (1st Rev.) (1955)
- Hughes, D.J. - Pile Neutron Research - Addison-Wesley Publishing Company, Inc., Cambridge 42 , Mass. (1953)
- Imakuma, Kengo - Tese de doutoramento apresentada ao Instituto de Física da Universidade de São Paulo (1972)
- International Tables for X-Ray Crystallography - Vol. II - Published for The International Union of Crystallography by the Kynoch Press, Birmingham, England (1967)
- International Tables for X-Ray Crystallography - Vol.III - Published for The International Union of Crystallography by the Kynoch Press, Birmingham England (1967)
- James, R.W. - The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays - The Crystalline State - Vol. II - G. Bell and Sons Ltd. , London (1967)
- Jones, Ian R. - Lawrence Radiation Laboratory (Livermore) - UCRL - 7611 (1963)
- Leser, J. - Tese de mestrado apresentada ao Instituto Tecnológico de Aeronáutica - Dezembro de 1968
- Moon, R.M. and Shull, C.G. - Acta Cryst. (1964), 17, 805
- O'Connor, D.A. and Sosnowski, J. - Acta Cryst. (1961), 14, 292
- Parente, C.B.R. - Publicação IEA n9 152, pág. 115, (1967)
- Parente, C.B.R., Harada, K., Koishi, Y., Wenzel, R.G. - Publicação IEA n9 152, pag. 121, (1967).

Parrat, Lyman G. - Probability and Experimental Errors in Science - John Wiley and Sons, Inc., New York (1961)

i

Popovici, M. and Gelberg, D. - Nuclear Instruments and Methods - 40 (1966)
77-83

Popovici, M., Gheorghiu, Z. and Gelberg» D. - Institute for Atomic Physics, Bucharest, Romania, FN - 34(1968)

Penteado Filho, A.C. e Souza Santos, M.D. - Publicação IEA - n9 44 (1961)

Ringo, G.R. - Handbuch der Physik - Vol. XXXII,-Springer - Verlag, Berlin Güttingen - Heidelberg (1957) 552

Sailor, V.L., Foote Jr., H.L., Landon, H.H., and Wood, R.E. - The Review of Scientific Instruments, vol. 27, n° 1, (1956)

Souza Santos, M.D. e Saraiva de Toledo, P. - Publicação IEA - n9 11 (1958)

Spencer, R.R. and Smith, J.R. - Nuclear Science and Engineering, 8, 393-399 (1960)

Vinhas, L.A., Herdade, S.B., Rodriguez, C, Amaral, L.Q. - Publicação IEA n9 152, pag. 83, (1967)

Wajima, John T., Rustad, Brice M. and Melkonian, Edward - Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 15, n94 , April, (1960)

Wenzel, R.G., Fulfaro, R. e Stasiulevicius, R. - Publicação IEA - n9 152, pag.9 , (1967)

Woolfson, M.M. - An Introduction to X-Ray Crystallography - Cambridge at the University Press (1970)

Zachariasen, William H. - Theory of X-Ray Diffraction in Crystals - Dover Publications, Inc. - New York (1945)

Zachariasen, W.H. - Acta Cryst. (1968), A24, 212