

CRISTAIS NATURAIS EM DIFRAÇÃO DE NÊUTRONS

Roberto Stasiulevicius*, Cláudio Rodrigues** e Ana Paula A. Andrade***

* CDTN/CNEN-MG
Caixa Postal 941
30161-970, Belo Horizonte, MG, Brasil

** IPEN/CNEN-SP
Caixa Postal 11049
0544422-970, São Paulo, SP, Brasil

*** FAPEMIG
Rua Raul Pompeia, 101 - 5º ao 9º Andares
30330-080, Belo Horizonte, MG, Brasil

RESUMO

No presente trabalho estão apresentados os resultados obtidos na seleção preliminar de cristais reais mosaicos naturais, para uso como monocromadores de nêutrons. Para o processo de seleção através de obtenção de curvas de "rocking", foi utilizado o difratômetro de nêutrons instalado junto ao canal de irradiação ("beam hole") nº 6 do reator nuclear de pesquisa IEA-R1 (2MW), do IPEN/CNEN-SP. Os principais resultados obtidos foram para os cristais naturais de calcita, fluorita, magnetita e moscovita.

INTRODUÇÃO

O nêutron é considerado uma excelente partícula de prova usada em diversas áreas de aplicações [1-2]. Os reatores nucleares de pesquisa e de testes, do tipo térmico, têm sido usados entre as principais fontes neutrônicas. Nas execuções da maioria dos experimentos com os feixes emergentes dos canais ou tubos de irradiações tornam-se imprescindíveis aplicações dos processos para monocromatização desses nêutrons, pois os feixes se apresentam com distribuição em energias, na forma aproximada de distribuição Maxwelliana. O método mais usual para monocromatização dos nêutrons, provenientes dos canais ou tubos de irradiações dos reatores emprega a técnica seletiva por difração de nêutrons em cristais reais mosaicos.

O cristal monocromador é a parte mais sensível do instrumento de difração, sendo o seu desempenho de importância fundamental para obtenção de um ótimo compromisso, entre a intensidade difratada e a resolução obtida no experimento. Os cristais monocromadores comumente empregados nos experimentos de difração de nêutrons, são os espécimes crescidos artificialmente: grafita perolítica (PG), germânio, silício, cobre, alumínio e chumbo. A liga ternária ferromagnética de Heusler é usada nos experimentos com nêutrons polarizados [3-4].

O principal problema envolvido com o cristal artificial refere-se à sua quase perfeita distribuição granular dos cristalitos, o que pode dificultar no seu ajustamento, através da largura de mosaico cristalino, com as geometrias do conjunto de colimadores usados no experimento, resultando em baixa intensidade difratada medida e resolução não satisfatória, obtidas com o instrumento de difração. Nessa condição, torna-se necessário aplicação de alguma técnica, ou processo mecânico para deformação plástica uniforme do cristal artificial, para alargamento da distribuição de blocos cristalinos, a fim de obter intensidade e resolução satisfatórias para o experimento. Outras dificuldades encontradas com usos dos cristais convencionais naturais são: limitação na escolha do espécime; qualidade duvidosa; dimensões não apropriadas ao experimento; processo demorado de aquisição e elevado custo.

O objetivo deste trabalho é de estudar a disponibilidade de minerais das jazidas do País, principalmente, os considerados fartos no Estado de Minas Gerais, em processo de seleção preliminar de alguns tipos desses cristais naturais e suas respectivas famílias de planos difratores, para possíveis usos em experimentos com espectrometria de nêutrons, com os instrumentos: espectrômetros de cristal com um e três-eixos, e difratômetro de nêutrons. Cerca de uma centena desses

instrumentos estão instalados juntos aos canais ou tubos de irradiações, dos reatores nucleares de pesquisa e de testes que operam no mundo, e particularmente, três no Brasil, em dois reatores de pesquisas, IEA-R1 e IEN-R1, instalados, junto aos canais de irradiação. Os usos dos cristais monocromadores naturais podem amenizar as principais dificuldades encontradas para os cristais convencionais artificiais.

PRINCÍPIO DE OPERAÇÃO

O princípio de operação dos instrumentos de difração de nêutrons usa propriedades ópticas aplicadas aos monocristais, conduzida pela expressão de Bragg. Quando um feixe colimado de nêutrons polienergético incide sobre um conjunto de planos cristalinos paralelos, com distância interplanar d , com um ângulo de incidência θ , somente são refletidos os nêutrons com comprimento de onda associado λ , e que satisfazem a relação: $n\lambda = 2d \sin\theta$.

O valor de n é representado pelo conjunto dos números inteiros (1,2,3,...etc), resultante da condição de máxima interferência construtiva, através do espalhamento coerente elástico pelos vários átomos do cristal, na direção do feixe incidente, que pode ser explicado por meio da construção da esfera de Ewald, no espaço recíproco.

Ao nêutron dotado de massa de repouso m e uma velocidade v , torna possível pela hipótese de Broglie, a associação de um comprimento de onda $\lambda = h / (mv) = h / \sqrt{2mE}$, onde h é a constante de Planck e E é a energia do nêutron. Na prática pode ser usada a relação $\lambda(\text{Å}) \cong 0,286/\sqrt{E(\text{eV})}$. Assim sendo, a variação do ângulo de reflexão, em um monocristal, está associada à variação do comprimento de onda associado, ou a respectiva energia do nêutron.

DESEMPENHO DO MONOCROMADOR

Quando um feixe de nêutrons térmicos incide sob um sistema formado por núcleos, diversos tipos de espalhamentos são diferenciados. Caso todos os núcleos do sistema espalhem da mesma maneira, o espalhamento é denominado coerente, mas se os núcleos forem de espécies desiguais, com diferentes estados de "spin", relativos ao próprio nêutron e ao referido núcleo, resulta em espalhamento incoerente. Para os núcleos mantidos fixos em suas posições, o espalhamento é totalmente elástico, e se aos núcleos for permitido o recuo, o espalhamento é considerado inelástico.

A eficiência de um bom cristal monocromador de nêutrons é determinada pelas propriedades de absorção e de espalhamento de seus átomos constituintes do material, através de suas macro e microestruturas cristalinas. Além das respectivas seções de choque de espalhamentos e de absorção dos nuclídeos componentes, outros fatores que governam as difrações de Bragg são: fatores geométricos, tal como densidade no qual o plano cristalino é populado por átomos; fator de estrutura, que considera a relação de fases decorrentes das ondas produzidas pelos nêutrons espalhados, nos vários nuclídeos na célula unitária; fator

de agitação térmica dos átomos no meio, decorrente da temperatura característica de Debye do material constituinte; largura dos blocos mosaicos; distância interplanar; espessura do espécime.

CRISTAL IDEALMENTE IMPERFEITO

Diante das discrepâncias existentes entre a teoria com os dados experimentais, o modelo proposto para o cristal ideal não se ajusta de modo satisfatório, resultando daí a proposta de outra modelagem para os cristais reais. A desordem local transforma o reticulado ideal em um médio. Os cristais reais são afetados pelas diversas desordens resultantes dos movimentos de agitação térmica, e também causadas pela própria estrutura de formação do mosaico. Um modelo para o cristal real foi proposto por C.B.Dawin, onde os átomos estão organizados em blocos, cada um considerado como cristal ideal, dispostos adjacentes mas não ajustados precisamente juntos, causando imperfeições limitadas nos espécimes.

A microestrutura cristalina inclui os defeitos pontuais e as discordâncias. A idéia de mosaico foi concebida, através de um modelo matemático de um "cristal idealmente imperfeito", onde os blocos estão relacionados com as discordâncias demonstradas pelo espécime.

A curva de distribuição de intensidade difratada obtida é o resultado final da convolução assumida entre as intensidades transmitidas pelos colimadores utilizados no experimento, geralmente assumidas Gaussianas, e a curva de distribuição de blocos do cristal, caracterizada pela largura de mosaico. A curva de distribuição dos blocos do cristal examinado, muitas vezes estão constituídas por mais de uma Gaussiana, também por sua vez, convoluídas, fato que pode limitar ou eliminar a escolha do espécime.

A determinação da largura de mosaico do cristal é feita, após o estudo completo realizado, desde a saída do feixe de nêutrons do canal do reator com a passagem pelo primeiro colimador, a difração no cristal e consequente curva de rocking e a passagem pelo segundo colimador, até a sua detecção final, quando usado o espectrômetro de cristal. Com o uso do difratômetro de nêutrons, devem ser considerados os efeitos das distribuições referentes aos três colimadores e dos espécimes difratores envolvidos (monocromador e amostra examinada).

ARRANJO EXPERIMENTAL

A fonte de nêutrons utilizada nos experimentos foi o reator nuclear de pesquisa IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP, operando na potência de 2MW, com fluxo máximo de nêutrons da ordem de $10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

O difratômetro de nêutrons está instalado no canal de irradiação # 6, do reator IEA-R1. Como cristal monocromador do difratômetro foi usado o artificial de Cu(220), que através do ângulo $2\theta = 18,33^\circ$, permitiu obter o feixe monocromatizado inicial em $\lambda_0 = 1,137\text{Å}$.

Os espécimes de calcita, fluorita, magnetita e mica, foram colocados sucessivamente no sistema goniométrico instalado no difratômetro de nêutrons, onde todos os movimentos angulares disponíveis são controlados por programação em microcomputador.

Após o ajuste e a orientação do cristal em exame no sistema goniométrico, orientado no ângulo 2θ correspondente a família de planos difratores em estudo, é feito o giro do espécime em torno da função angular omega prevista, obtendo-se varredura completa e obtenção da curva de "rocking", em vários posicionamentos angulares de alinhamentos, concluindo com a escolha da melhor curva representativa.

Assume-se que grande quantidade de blocos mosaicos tomam parte do espalhamento coerente elástico do nêutron, e que as flutuações são identificadas pelo parâmetro Δ , que representa a magnitude do desvio angular com relação ao valor médio. Neste caso $W(\Delta)$ é assumida como uma função erro, do tipo

$$W(\Delta) = \{1 / [\sqrt{(2\pi)} \eta]\} \exp[-(\Delta^2/2\eta^2)],$$

onde η é o desvio padrão, dado por:

$$\eta = \{\beta / [2 \sqrt{(2\ln 2)}]\},$$

com β representando a largura de mosaico do cristal, obtida na meia altura da distribuição (FWHM).

MÉTODO EXPERIMENTAL

As imperfeições nos cristais usados em grandes dimensões nos instrumentos são as principais razões porque uma dada linha monocromática de difração de Bragg se apresenta na forma de curva dotada de certa largura característica da distribuição, decorrente da estrutura de mosaico representativa do espécime em estudo. O resultado do alargamento do feixe conduz a um aumento da intensidade difratada, o que constitui uma vantagem, em prejuízo da obtenção de resolução experimental adequada.

Com a finalidade de selecionar cristais mosaicos monocromadores para os instrumentos que operam com a técnica seletiva de difração de nêutrons, são obtidas as respectivas curvas de rocking representativas dos espécimes e principais famílias de planos difratores. A curva é obtida com o instrumento de difração, por meio de rotação do espécime em torno do eixo vertical, em mesa goniométrica suporte, e medindo-se simultaneamente, a intensidade do feixe monocromático emergente mantendo-se o braço do espectrômetro fixo, em posição 2θ escolhido, em posição preferencial de máximo no pico da distribuição Maxwelliana, emergente do canal de irradiação do reator.

Considerando que a intenção dos experimentos foi de mostrar a possibilidade qualitativa dos usos dos cristais naturais em experimentos de espectrometria de nêutrons, com uso do difratômetro de nêutrons, os valores totais obtidos para as larguras de mosaico dos espécimes examinados estão afetados pelo alargamento intrínseco do

sistema experimental estimado em torno de $8'$, daí consequente obtenção do valor β' no experimento.

RESULTADOS EXPERIMENTAIS

As Figuras 1-4 mostram as curvas de rocking obtidas, respectivamente dos quatro cristais naturais selecionados de calcita (200), fluorita (111), magnetita (111) e moscovita (0002), com as respectivas melhores famílias de planos refletoras dos espécimes considerados. Aos pontos experimentais foi ajustada a curva principal, convoluída para as várias curvas Gaussianas contribuidoras, através de programa de computador denominado PEAKFIT.

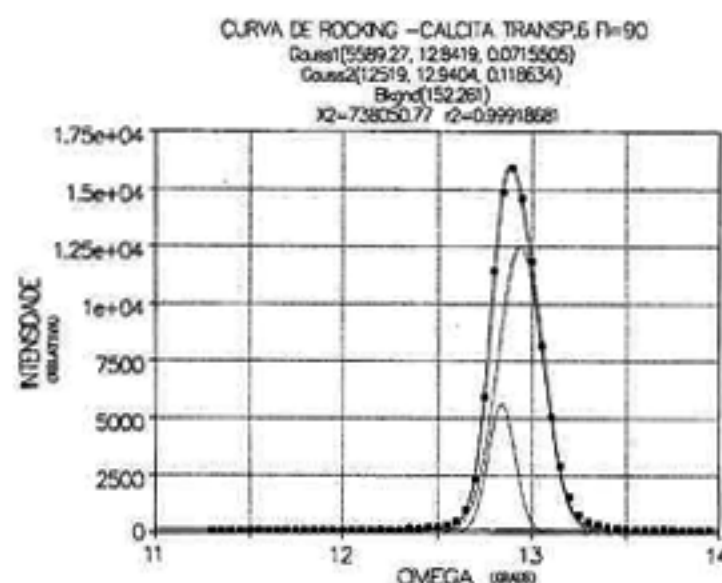


Figura 1. Curva de Rocking do Cristal de Calcita (200)

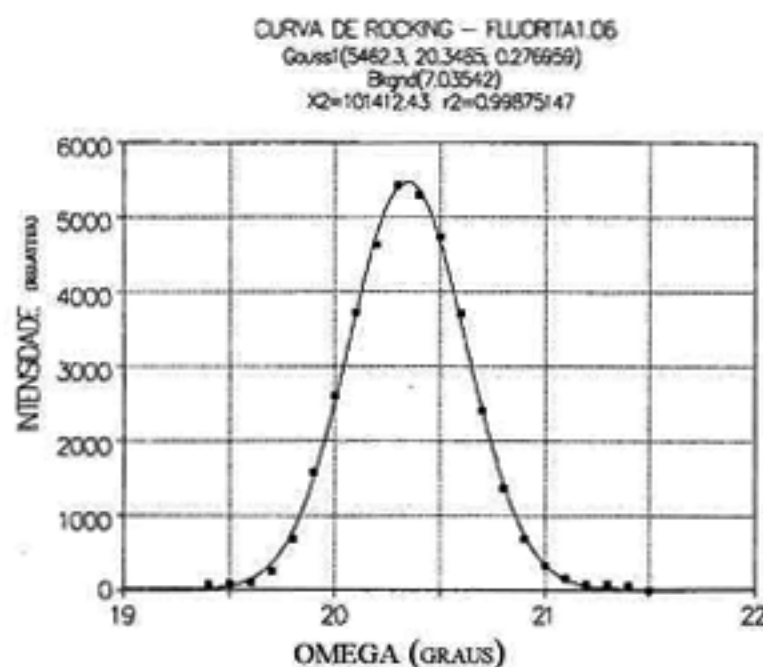


Figura 2. Curva de Rocking do Cristal de Fluorita (111)

A Tabela 1 apresenta os principais parâmetros teóricos e obtidos nos experimentos para os quatro espécimes selecionados neste trabalho para fins de usos nos instrumentos que operam com difração de nêutrons.

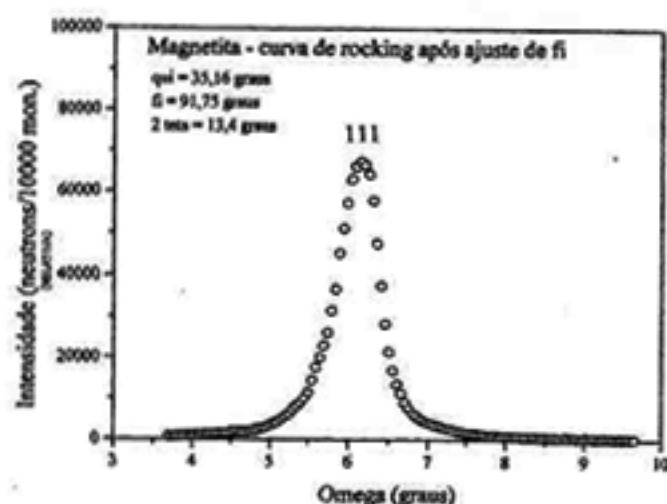


Figura 3. Curva de Rocking do Cristal de Magnetita(111)

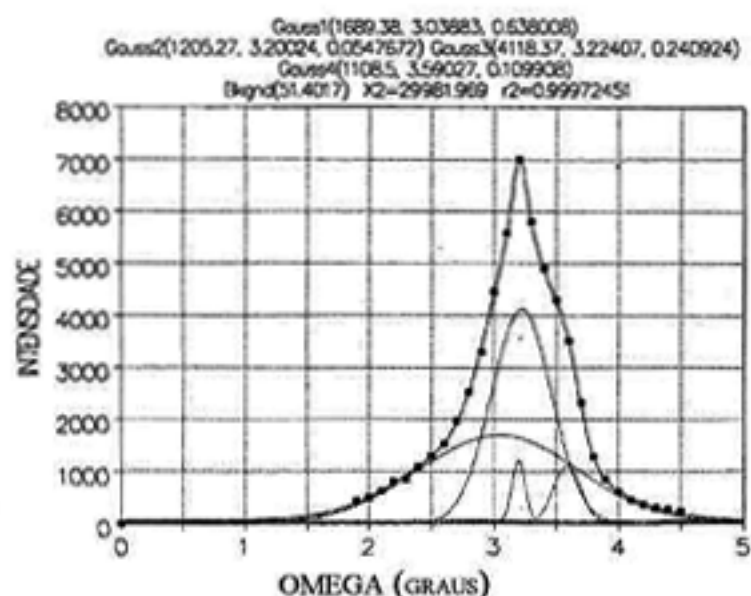


Figura 4. Curva de Rocking do Cristal de Moscovita (0002)

TABELA 1. Parâmetros Cristalinos

CRISTAL	PLANO (hkl)	d (Å)	β' (Min.)	Intens. Relativa
Calcita	(200)	3,03	17,0	1,59
Fluorita	(111)	3,15	19,1	1,79
Magnetita	(111)	4,85	25,2	5,12
Mica	(002)	9,96	39,6	0,17

CONCLUSÕES

Os resultados obtidos neste trabalho atestam o bom desempenho de quatro tipos de cristais naturais selecionados entre outros, de calcita, fluorita, magnetita e moscovita, capazes de substituírem de modo satisfatório os cristais convencionais artificiais, normalmente utilizados nos experimentos. A calcita (200) compete com os principais cristais artificiais utilizados, como a grafita pirolítica (que não é propriamente um cristal, porque possui apenas orientação no eixo z), e os de cobre, alumínio e de chumbo.

Os cristais semicondutores de germânio e silício, caracterizados pela isenção da contaminação de nêutrons de segunda ordem ($n=2$), quando usados nas famílias de planos (111) ou (311), podem ser, perfeitamente, substituídas com uso da fluorita (111), que apresenta a mesma propriedade e razoável intensidade difratada.

A liga de Heusler usada em experimentos com nêutrons polarizados pode ser substituída pelo cristal natural de magnetita (111), que apresenta excelente refletividade para nêutrons, mesmo operando sem a presença de campo magnético.

A moscovita (0002) com grande distância interplanar ($\sim 10\text{Å}$) é excelente para os experimentos com nêutrons "frios", em desenvolvimentos nos modernos laboratórios de estudos neutrônicos.

Ademais, os cristais naturais são mais versáteis quanto aos valores das laguras de mosaico, encontrados nas diversas jazidas do País, permitindo assim que os espécimes escolhidos se ajustem às condições peculiares exigidas nos diversos experimentos, com tamanhos pretendidos e a custos acessíveis, e podem ser selecionados através de experimento rápido, por meio de um espectrômetro de cristal, ou um difratômetro de nêutrons, conforme mostrado neste trabalho.

REFERÊNCIAS

- [1] JAERI, Proceedings of the Fifth International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research - Neutron as Microscopic Probes, JAERI-M 93-228, Vol. 1, 1993.
- [2] STASIULEVICIUS, R.; RODRIGUES, C. Uso do Nêutron como Partícula de Prova nas Diversas Áreas de Investigações. Anais do III Encontro de Aplicações Nucleares, Vol.2, p. 918-922, 7-11 Agosto, 1995.
- [3] STASIULEVICIUS, R; ANDRADE, A.P.A. Cristais Mosaicos Monocromadores de Nêutrons Térmicos. Anais do V^o Congresso Geral de Energia Nuclear, Vol. II, p. 489-492, 29 Agosto - 02 Setembro, 1994.
- [4] AXE, J.D.; CHEUNG, S.; COX, D.E.; PASSEL, L.; VOGT, T.; BAR-ZIV, S., Composite Germanium Monochromator for High Resolution Neutron Powder Diffraction Applications. Journal of Neutrons Research, Vol. 2, No. 3, p. 85-94, 1994.

ABSTRACT

This paper presents a practical and fast experimental method for selection and quality formation examination of the natural mosaic crystals, for using as neutron monochromator, in neutrons spectrometric studies. For this objective a neutron diffractometer installed in the # 06 beam - hole of the IEA - R1 nuclear research reactor of IPEN/CNEN-SP, was used the calcite (200), fluorite (111), magnetite (111) and moscovite (0002) natural crystals were studied by theirs representatives rocking curves.