

Tese de Doutorado

**Estudo e implementação de um
sistema de detecção de raios X
com aplicações em cristalografia**

Roberto da Silva

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas

Abril de 2006

Agradecimentos

A minha família por suportar-me e dar afeto e apoio financeiro no decorrer deste trabalho.

Aos “irmãos” que estão ou estiveram no Laboratório de Sistemas de Detecção: Ademarlaudo (o mestre); Herman, Luciano, Valéria e Brant; Paulo, Rogério, Rafael, P.C., Germano, etc.

Sem citar nomes, para não esquecer nenhum por escrito, agradeço aos demais amigos do CBPF e de outras instituições que tenham ajudado com apoio técnico, científico e moral.

Agradeço a “Texas Instruments” e “Analog Devices” que doaram amostras de CIs e à GAP que doou amostras de Mylar.

Aos alunos particulares e demais patrocinadores que deram apoio financeiro nos anos sem bolsa.

Nos termos da R.N. 020/2003 - Anexo II- §6.1, agradeço ao CNPq pela bolsa e taxa de bancada concedidos durante os primeiros anos deste trabalho.

Resumo

Propõe-se uma montagem experimental para um difratômetro de pó, na qual o contador de partículas é substituído por um detector sensível a posição. Com esta substituição, o intervalo de tempo exigido para obter-se um padrão de difração de alta resolução é reduzido por um fator de aproximadamente 100. As mudanças na focalização óptica devidas à introdução do detector sensível a posição são consideradas. Detalhes referentes à construção do detector são apresentados, juntamente com resultados de caracterização que demonstram a viabilidade do aparato experimental proposto. Com o intuito de melhorar a qualidade dos dados, um novo pré-amplificador de voltagem foi desenvolvido. Ele fornece melhor razão sinal-ruído, permitindo que o detector atinja resolução espacial próxima a $300 \mu\text{m}$. Uma amostra padrão de silício foi utilizada para medidas comparativas a partir das quais a qualidade das medidas obtidas com os detectores sensíveis a posição é avaliada. Finalmente, apresenta-se um algoritmo para deconvoluir os dados obtidos com o difratômetro. O desempenho do algoritmo e a possibilidade de aplicação ao problema de deconvolução são demonstrados com dados reais e simulados.

Abstract

An experimental setup is proposed for a powder diffractometer, in which the particle counter is replaced by a position sensitive detector. By doing this replacement, the time interval taken to scan a high resolution powder diffraction pattern is reduced by a factor around 100. The changes in optical focalization due to the introduction of the position sensitive detector are considered. Details concerning the construction of the detector are presented, along with characterization results that demonstrate its applicability to the proposed measurement setup. In order to improve the data quality, a new voltage preamplifier has been developed which provides improved signal to noise ratio, allowing the detector to reach spatial resolution close to $300\ \mu\text{m}$. A silicon standard sample has been used to provide comparative measurements, from which the quality of the measurements taken with the position sensitive detectors is evaluated. Finally, an algorithm is presented for deconvoluting the data obtained with the diffractometer. The algorithm performance and its applicability to the deconvolution problem are demonstrated with simulated and measured data.

Índice

Introdução	1
1 Cristalografia	3
1.1 Definição	3
1.2 Grupos espaciais	4
1.2.1 Simetrias de translação	4
1.2.2 Outras simetrias	5
1.2.3 Grupos pontuais e grupos espaciais	7
1.3 Interações de raios X com cristais	8
1.3.1 Espalhamento - Descrição geral	8
1.3.1.1 Espalhamento por um ponto	8
1.3.1.2 Espalhamento por dois pontos idênticos	10
1.3.1.3 Espalhamento por n pontos	11
1.3.2 Difração	12
1.4 Métodos Experimentais	16
1.4.1 Fontes de raios X	17
1.4.2 Método de Debye-Scherrer	20
1.4.2.1 Difrátômetros	20
2 Detectores proporcionais a gás	25
2.1 Princípios de funcionamento	25
2.1.1 Interações eletromagnéticas	26
2.1.1.1 Partículas Massivas	26
2.1.1.2 Fótons	27
2.1.2 Campo eletrostático no interior de detectores a gás	30
2.1.3 Regimes de operação	33
2.2 Eletrônica Associada	35
2.2.1 Linhas de retardo	39

2.2.2	Pré-amplificadores	40
2.2.3	Discriminadores	42
2.2.4	TACs e módulos de retardo	43
2.2.5	MCA's	44
2.3	Programas de computador	46
2.3.1	Programa de aquisição de dados	46
3	Um sistema de detecção para difratometria de pó	49
3.1	Substituição do Contador de Partículas por um DSP	52
3.1.1	Cálculo da dispersão do ponto de focalização	53
3.2	Construção do detector	57
3.2.1	Descrição das etapas de montagem	58
3.3	Medidas de Caracterização	64
3.3.1	Homogeneidade	65
3.3.2	Resolução espacial	67
3.3.3	Linearidade	69
3.3.4	Resolução em energia	71
4	Medidas com difratômetro baseado em DSP	75
4.1	Perfil de feixe direto	75
4.2	Resposta do DSP ao perfil de feixe direto	76
4.3	Medidas de padrões de difração	78
4.3.1	Calibração da relação canal-posição	79
4.3.2	Perfil da reflexão (111) do silício	79
4.3.3	Perfil de difração completo	81
4.4	Considerações sobre erros	83
5	Um método de deconvolução para espectros de difração obtidos com o DSP	87
5.1	O Problema da Deconvolução	88
5.1.1	Matriz de resposta e função de alargamento de ponto para o DSP	88
5.1.2	Principais métodos de solução e suas limitações	90
5.2	Um método de deconvolução	91
5.2.1	Amostragens de uma função distribuição de probabilidades	91
5.2.2	Simulação de amostragens	92

5.2.2.1	Amostragens da função de alargamento de ponto	94
5.2.3	Algoritmo iterativo para obtenção do espectro deconvoluído	96
5.2.4	Aplicação aos dados do padrão de difração do silício . .	100
Conclusão		103
Referências		105
A Geometria Euclideana em Difrátômetros de pó		111
A.1	Caso Retângulo	112
A.2	Caso obtusângulo	113
A.3	Caso acutângulo	113
A.4	Caso da geometria de um difratômetro	114
B Seção de Choque		117
B.1	Definição	117
B.2	Espalhamento Thomson	119
C Artigo publicado		123

Figuras

1.1	a) Estrutura cristalina do NaCl e os vetores de rede. b) A rede com uma célula primitiva. c) A base: um par de íons Na^+ e Cl^-	5
1.2	Redes de Bravais com suas células unitárias e as posições dos pontos vizinhos. Ver tabela 1.1 para nomenclatura. Fonte: [4]	6
1.3	Espalhamento de radiação por um único ponto O , visto do ponto P	9
1.4	Espalhamento de radiação incidente (y_0) na direção \hat{S}_0 por 2 pontos iguais O_1 e O_2 separados por uma distância \vec{r} , de modo que $\Delta = CO_2 + DO_2$. O vetor \vec{s} é mostrado à direita.	11
1.5	Rede unidimensional de n pontos separados por uma distância \vec{a} constante, recebendo radiação com ângulo de incidência ψ	13
1.6	Gráficos da função $g_n(x) = \frac{\text{sen}^2(\pi nx)}{\text{sen}^2(\pi x)}$ para diferentes valores de n	14
1.7	Reflexão de dois feixes paralelos de radiação por planos cristalinos paralelos separados por distância d . Sendo 2θ o ângulo de espalhamento, a diferença de caminho óptico é $AB + BC = 2d\text{sen}\theta$	16
1.8	Espectros (Intensidade <i>versus</i> comprimento de onda) para tubos de raios X com materiais de anodos e valores de V diferentes: (a) W a 30.000V, (b) Mo a 35.000V [4].	19
1.9	Esquemas de aplicação do método de Debye-Scherrer com imagens fotográficas obtidas para diferentes amostras irradiadas por radiação de cobre filtrada. Fonte: [8].	21
1.10	Esquema simplificado dos elementos básicos de um difratômetro.	22

1.11	Geometria do difratômetro para duas posições angulares diferentes do detector. Os raios X partem do ponto F , incidindo na amostra centrada no ponto A para serem detectados no ponto D . Os diferentes círculos de focalização também são mostrados.	23
1.12	Difratômetro HZG4 usado neste trabalho. O tubo de raios X aparece à esquerda e o detector, à direita. Ao centro está o porta-amostras.	23
2.1	Seção de choque de interações de fótons por unidade de comprimento (μ/ρ) no interior do gás P-10 em função da energia juntamente com as contribuições de diferentes mecanismos [19].	31
2.2	Pulsos anódicos u_{diff} calculados para diferentes valores de RC .	34
2.3	Número de íons em função da voltagem de operação para duas partículas diferentes α e β [16].	35
2.4	Esquema de detector proporcional gasoso unidimensional, onde o sinal de saída vai para os pré-amplificadores (pré-amp.). . .	36
2.5	Esquema do sistema de leitura de posição para detector monofilar.	38
2.6	a) Célula π com a terminação R equivalente à impedância característica b) célula derivada m terminada com a impedância característica R'	40
2.7	Esquemático de P_{vott} , onde a terminação de saída de 50Ω aparece envolvida pela linha tracejada [24].	41
2.8	Esquemático de P_{car} [17].	41
2.9	Esquemático de P_{novo} . $V_+ = V_{CC} = +5V$ e $V_- = -V_{CC}$	43
2.10	Diagrama de blocos para o MCA feito no laboratório.	45
2.11	Exemplo de medidas de posições de incidência de radiação obtidas com o programa Acq1d e o MCA desenvolvido no laboratório.	47
3.1	Esquema para difratômetro de pó com DSP.	52
3.2	Detalhes geométricos explicitando a dispersão do ponto de focalização.	54
3.3	Dispersão do ponto de focalização em função de λ e de θ	56
3.4	Esquema simplificado das partes do DSP.	57
3.5	Montagem do DSP - Foto 1.	58
3.6	Montagem do DSP - Foto 2.	59

3.7	Montagem do DSP - Foto 3.	60
3.8	Montagem do DSP - Foto 4.	61
3.9	Montagem do DSP - Foto 5.	62
3.10	Montagem do DSP - Foto 6.	63
3.11	Montagem do DSP - Foto 7.	64
3.12	Espectro de homogeneidade.	65
3.13	Comparação do espectro de homogeneidade ao erro estatístico esperado.	66
3.14	Arranjo experimental para medida da resolução espacial.	67
3.15	Espectro para medida de resolução espacial.	68
3.16	Perfil do feixe, com ajuste de uma curva gaussiana.	69
3.17	Espectro de linearidade.	70
3.18	Relação de linearidade entre canal e posição.	70
3.19	Espectros de medidas de energia para diferentes tensões de operação.	72
3.20	Variações de ganho e largura do pico principal para a fonte de ⁵⁵ Fe.	73
4.1	Perfis de feixe direto obtidos em regime passo a passo do difratômetro utilizando monocromador de grafite (a) e filtro de níquel (b).	76
4.2	Medida de resolução espacial (com o pico relativo à fenda de 40 μm) utilizando pré-amplificador regular (linha contínua) e pré-amplificador desenvolvido para o difratômetro com DSP (linha pontilhada).	77
4.3	Detalhe da Fig. 4.2, com resultado do ajuste de um perfil gaussiano para os dois casos: pré-amplificador regular (a) e pré-amplificador desenvolvido (b).	78
4.4	Espectro para calibração obtido pela observação sobreposta do pico (111) do silício e de um padrão regular de furos ao passo de 2,54 mm.	80
4.5	Relação entre posição-canal e canal-posição, com ajuste de uma função que inclui comportamento não linear.	81
4.6	Comparação entre perfis de feixe obtidos com DSP e com o método de varredura passo a passo com contador de partículas.	82
4.7	Sobreposição de 6 subspectros do DSP, compondo o padrão de difração do silício.	83

4.8	Comparação entre espectros completos obtidos com DSP (acima) e com o método de varredura passo a passo (abaixo).	84
4.9	Comparação entre perfis de feixe obtidos com DSP e com o método de varredura passo a passo com contador de partículas	85
5.1	Perfil observado pelo DSP para feixe colimado, com ajuste de uma função de alargamento de ponto gaussiana.	88
5.2	Distribuição de probabilidade associada a um perfil de difração hipotético (acima à esquerda) e amostragens desta distribuição.	92
5.3	Distribuição de probabilidade associada a um perfil de difração hipotético convoluído (acima à esquerda) e amostragens desta distribuição.	93
5.4	Distribuições de eventos segundo uma distribuição plana, fornecida pela função <i>random()</i> do C++.	94
5.5	Verificação da flutuação estatística de cada uma das distribuições mostradas na figura 5.3, com ajuste de perfil gaussiano.	95
5.6	Simulação de eventos segundo uma distribuição que reproduz a função de alargamento de ponto para o DSP.	96
5.7	Representação qualitativa da relação entre as formas de espectros para os padrões convoluído (esquerda) e deconvoluído (direita) para duas iterações sucessivas do processo de deconvolução.	98
5.8	Aplicação do algoritmo de deconvolução aos espectros da figura 5.3. Acima, à esquerda: perfil obtido pela convolução do perfil com 100 mil eventos.	99
5.9	Teste do algoritmo de convolução num caso hipotético em que os picos do padrão de difração estão sobrepostos.	99
5.10	Resultado de deconvolução (linha pontilhada) para cada um dos 8 picos do espectro de difração medido (linha cheia) para o silício.	101
5.11	Difratômetro com DSP construído no presente trabalho.	104
A.1	Um triângulo e seus parâmetros.	111
A.2	Triângulos inscritos: retângulo (a), obtusângulo (b) e acutângulo (c).	112
A.3	Geometria e elementos básicos de um difratômetro de pó.	115
B.1	Sistema de coordenadas para o espalhamento Thomson.	121

Tabelas

1.1	Redes de Bravais (ilustradas na figura 1.2) com seus respectivos sistemas, valores de ângulos e símbolos que as representam.	7
4.1	Medidas do parâmetro de rede para o silício, obtidas por refinamento de dados.	86

Introdução

As medidas de difração de raios X por amostras policristalinas oferecem importantes informações sobre estruturas de materiais. Os difratômetros são equipamentos com detectores próprios e que utilizam uma geometria de focalização adequada para obter estas informações de forma confiável. Assim, utilizamos estes equipamentos como ponto de partida para um sistema de detecção que utiliza Detectores Sensíveis a Posição (DSPs), detectores proporcionais a gás feitos no próprio laboratório, para realizar estas medidas com maior rapidez.

Juntamente com o sistema de medidas, é apresentado um método de deconvolução que elaboramos com o objetivo de separar a resposta do detector (que varia com a posição) do efetivo perfil de radiação difratada.

No capítulo 1 deste trabalho, são apresentados alguns conceitos básicos de cristalografia: a noção de estrutura cristalina, os princípios envolvidos na difração de raios X por cristais e os elementos básicos que constituem um difratômetro.

No capítulo 2, são apresentados os princípios de funcionamento dos DSPs utilizados, juntamente com a eletrônica associada que compõem um sistema de detecção que tem outras aplicações em detecção de raios X. O sistema eletrônico inclui um pré-amplificador construído no laboratório, que também é descrito em artigo de periódico internacional incluído em um dos apêndices.

No capítulo 3, encontram-se detalhes de construção e medidas de calibração dos DSPs, previamente desenvolvidos no LSD, para verificar a viabilidade de utilização deste tipo de detector no sistema de medidas apresentado.

No capítulo 4, são mostrados resultados experimentais obtidos com o sistema e são analisados os erros experimentais.

No capítulo 5, estão dados detalhes do método de deconvolução desenvolvido e é mostrada sua aplicação a medidas obtidas pelo sistema proposto.

Finalmente, são discutidos os resultados experimentais para obter con-

clusões sobre a qualidade do sistema e medidas que possam ser tomadas para melhorá-lo.

Capítulo 1

Cristalografia

Nesta parte do trabalho, abordamos conceitos e métodos experimentais básicos utilizados para o estudo dos diversos tipos de cristais. A cristalografia - o estudo dos cristais - utiliza diversas técnicas descritas em vasta bibliografia [1]-[10]. Enfatizamos os aspectos relacionados à difratometria com raios X, na qual os cristais são estudados através da interação com essa radiação.

1.1 Definição

Um cristal é um corpo homogêneo anisotrópico, com uma forma regular, poliédrica, delimitada por superfícies planas, que é assumida por um composto químico, sob a ação de suas forças interatômicas, quando passa, sob condições específicas, do estado líquido ou gasoso (ou de solução) para o estado sólido.

Existe uma grande variedade de materiais sob a forma de cristais, que compõem a maioria dos sólidos: mais de 95% dos compostos inorgânicos, além de substâncias orgânicas que entram na composição de açúcar, madeira, ossos e fibras musculares.

Cristais caracterizam-se pela clivagem (existência de direções preferenciais de corte) e pelas faces planas (com ângulos característicos da substância), além de terem temperatura de fusão e calor latente fixos.

Os cristais caracterizam-se também por apresentar simetrias microscópicas, que se refletem nas propriedades macroscópicas. Por outro lado, uma determinada amostra pode ser composta por grande número de cristais microscópicos, com orientações aleatórias. Além disso, o crescimento pode não

ser adequado e pode haver impurezas que contaminam o cristal. Por isso, as simetrias cristalinas podem não ser aparentes.

Finalmente, sob o ponto de vista matemático, pode-se dizer que um cristal é composto pela superposição de um grupo de partículas a uma **rede** geométrica de pontos, ou seja, é composto por partículas dispostas periodicamente no espaço. Este conceito é explorado nas seções que se seguem.

1.2 Grupos espaciais

1.2.1 Simetrias de translação

Definimos rede como um conjunto de pontos dispostos no espaço segundo as posições:

$$\vec{r} = u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c} \quad (1.1)$$

onde u , v e w são todos os números inteiros e \vec{a} , \vec{b} e \vec{c} são vetores, cujos módulos (com valores não necessariamente iguais a 1) são denominados parâmetros de rede. Um cristal é obtido quando associamos um grupo de partículas a cada ponto da rede.

Cristais são invariantes sob translações entre pontos da rede. O conjunto fixo de átomos vinculados a cada ponto da rede é denominado como base. A estrutura cristalina é determinada pela combinação da base com a rede.

Célula unitária é um dos sólidos que, repetidos lado a lado, em 3 dimensões, reproduzem a estrutura cristalina inteira. Célula primitiva é a célula unitária de menor volume possível.

Para ilustrar melhor estes conceitos, mostra-se a estrutura cristalina bidimensional do NaCl na Figura 1.1, com alguns desses elementos.

Estudando-se a morfologia dos cristais macroscopicamente, deduziu-se que eles são bem descritos como sendo constituídos por paralelepípedos de geometrias diferentes, o que levou à definição de 7 sistemas cristalinos fundamentais. Mesmo utilizando diferentes disposições de pontos de rede, demonstrou-se que existem apenas 14 tipos de redes distintas possíveis, as redes de Bravais ilustradas na figura 1.2 e listadas na tabela 1.1. Nesta figura aparecem os desenhos das células unitárias e, abaixo delas, as posições dos pontos vizinhos (pontos brancos) relativas a um determinado ponto da rede (o ponto negro,

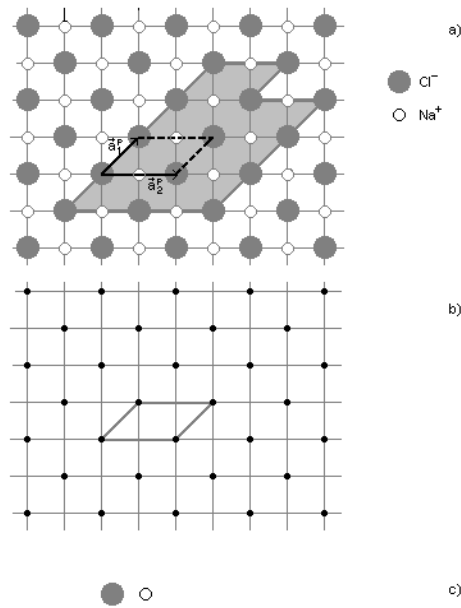


Figura 1.1: **a)** Estrutura cristalina do NaCl e os vetores de rede. **b)** A rede com uma célula primitiva. **c)** A base: um par de íons Na⁺ e Cl⁻.

no centro). Tais posições relativas também se repetem para todos os pontos de uma rede.

1.2.2 Outras simetrias

Além das simetrias de translação, os cristais apresentam também simetrias sob outras operações: **reflexão**, **rotação**, **roto-inversão**, **eixo de parafuso** e **deslizo-reflexão**.

Se \hat{z} é um vetor unitário perpendicular a um dado plano e \vec{v}_z a componente na direção \hat{z} de um dado vetor \vec{v} , a reflexão em relação a esse plano é definida como a operação que transforma \vec{v}_z em $-\vec{v}_z$ (denominada operação m - do inglês *mirror*, espelho), deixando as outras componentes inalteradas.

Há um eixo de simetria de rotação de ordem n , se houver invariância sob uma rotação de ângulo $2\pi/n$. Para cristais só ocorrem as rotações de ordem 1 (trivial), 2, 3, 4 e 6.

A roto-inversão de ordem n consiste em uma rotação de ordem n seguida de uma inversão em relação à origem. Esta simetria é simbolizada por uma

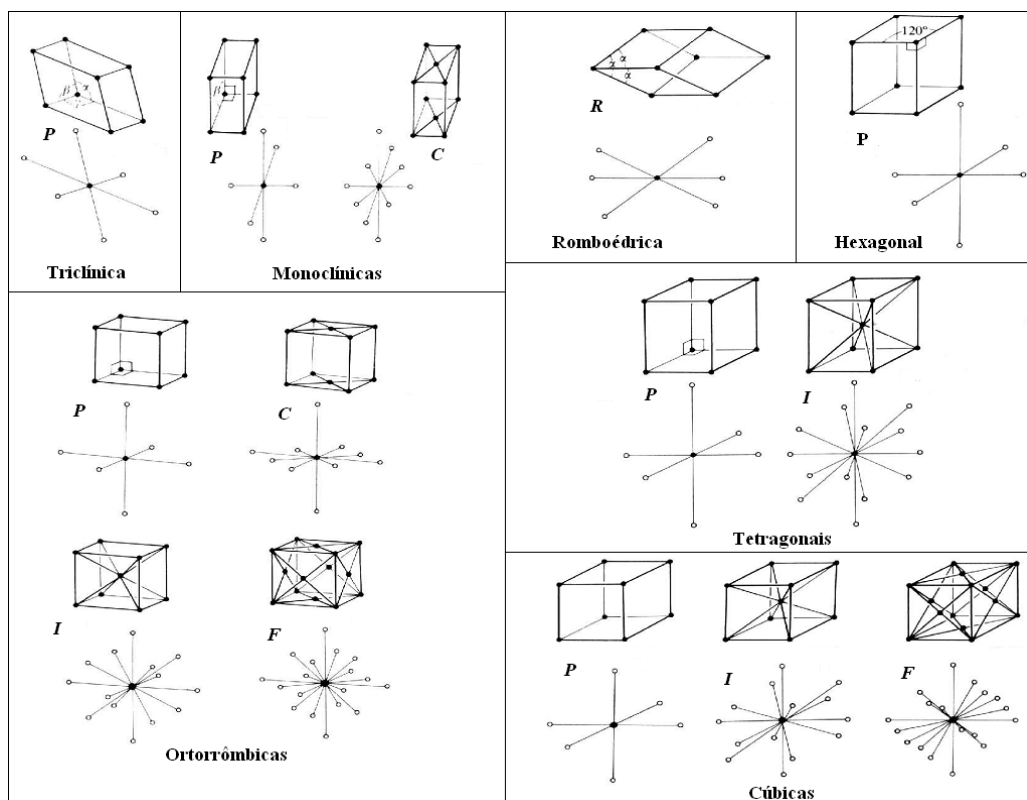


Figura 1.2: Redes de Bravais com suas células unitárias e as posições dos pontos vizinhos. Ver tabela 1.1 para nomenclatura. Fonte: [4]

Sistema	Geometria	Rede de Bravais	Símbolo da rede
Cúbico	$a = b = c, \alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	Simplex Corpo-centrado Face-centrada	P I F
Tetragonal	$a = b \neq c, \alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	Simplex Corpo-centrado	P I
Ortorrômbico	$a \neq b \neq c, \alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	Simplex Corpo-centrado Base-centrada Face-centrada	P I C F
Trigonal	$a = b = c, \alpha = \beta = \gamma \neq 90^\circ$	Simplex	R
Hexagonal	$a = b \neq c, \alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$	Simplex	P
Monoclínico	$a \neq b \neq c, \alpha = \gamma = 90^\circ \neq \beta$	Simplex Base-centrada	P C
Triclínico	$a \neq b \neq c, \alpha \neq \beta \neq \gamma \neq 90^\circ$	Simplex	P

Tabela 1.1: Redes de Bravais (ilustradas na figura 1.2) com seus respectivos sistemas, valores de ângulos e símbolos que as representam.

barra sobre o número de ordem da simetria de rotação. Para cristais só existem $\bar{1}$ (centro de simetria), $\bar{2}$ (operação m), $\bar{3}$, $\bar{4}$ e $\bar{6}$.

O eixo de parafuso (R_D) consiste em um deslocamento $(\frac{D}{R})\vec{a}$ seguido por uma rotação de ângulo $2\pi/R$ em torno deste eixo \vec{a} , com $R = 2, 3, 4$ ou 6 e $D \leq (R - 1)$.

Deslizo-reflexão é a operação que consiste na combinação de uma reflexão em relação a um plano e uma translação \vec{t} ao longo desse plano. Um caso particular é o do plano n , para o qual $\vec{t} = \frac{1}{2}\vec{a} + \frac{1}{2}\vec{b}$ (no caso em que o plano é perpendicular a \vec{c}).

1.2.3 Grupos pontuais e grupos espaciais

Uma operação representada por \mathcal{O} é denominada **fechada**, se $\mathcal{O}^n = I$ (onde n é um número inteiro e I é o operador identidade), ou seja, se for possível retornar ao mesmo estado inicial após sucessivas aplicações dessa operação. As operações em que isso não ocorre ($\mathcal{O}^n \neq I$ para qualquer n inteiro não-nulo) são denominadas **abertas**.

As operações de reflexão, rotação e roto-inversão, referentes a simetrias macroscópicas de cristais, são operações **fechadas**. Ao passo que as operações de translação, assim como as de eixo de parafuso e deslizo-reflexão, são operações **abertas**.

Há apenas 32 combinações possíveis das operações de simetria fechada, combinações estas que definem os 32 grupos pontuais. O número máximo de eixos necessários é 3.

Observa-se que as simetrias de rotação verificadas nos cristais são seqüências de simetrias das posições dos átomos em torno dos pontos da rede dentro das células unitárias.

Pela combinação das simetrias de rede e macroscópicas, são possíveis 230 classes de cristais em três dimensões. Estas classes são chamadas de grupos espaciais. Para duas dimensões existem apenas 17 grupos espaciais, também chamados, neste caso, de grupos planos.

Para nomear esses grupos espaciais, utilizam-se notações nas quais se junta o símbolo representando o tipo de rede ao símbolo do grupo pontual. A notação de Herman-Mauguin e a de Schoenflies são as mais usadas [6].

1.3 Interações de raios X com cristais

1.3.1 Espalhamento - Descrição geral

Apresentamos inicialmente o espalhamento por um único ponto (mostrado na Figura 1.3). Em seguida, estudamos o caso mais geral, que se aplica aos cristais: o espalhamento por uma rede de pontos.

1.3.1.1 Espalhamento por um ponto

Partimos da situação física em que a equação de onda que descreve a radiação incidente na origem O (posição $x = 0$) tem a solução mais simples. Esta solução (obtida em um meio homogêneo e sem fontes) é a **onda plana, monocromática** com amplitude máxima A (com dimensão de comprimento), e que depende do tempo t e da frequência ν segundo a expressão:

$$y_0 = A \exp(2\pi i \nu t), \quad (1.2)$$

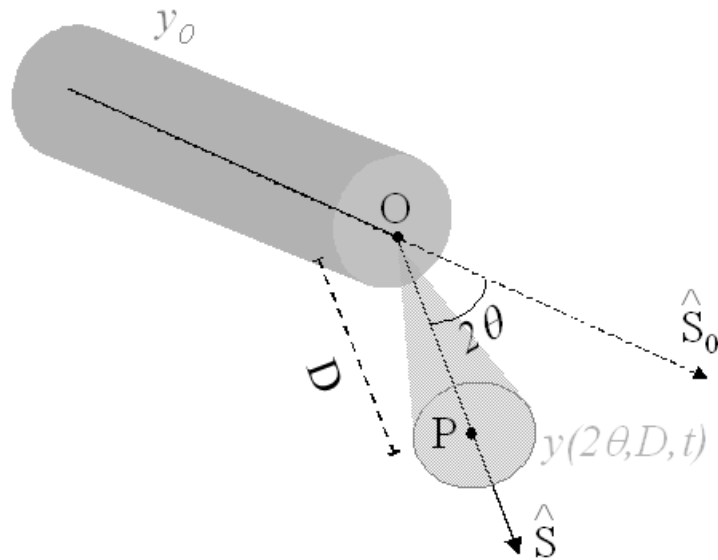


Figura 1.3: Espalhamento de radiação por um único ponto O , visto do ponto P .

demonstra-se que a onda resultante do espalhamento por um único centro espalhador localizado no ponto O , observada no ponto P , pode ser expressa por [4]:

$$y(2\theta, D, t) = f_{2\theta} \frac{A}{D} \exp\left[2\pi i\nu\left(t - \frac{D}{c}\right) - i\alpha_s\right] \quad (1.3)$$

$$= \eta_1(2\theta, D) \exp\left(2\pi i\nu t - 2\pi i \frac{D}{\lambda} - i\alpha_s\right) \quad (1.4)$$

Ou seja, o deslocamento de fase depende da forma específica da interação (através do fator de fase α_s), do comprimento de onda incidente λ e da distância de observação D . A amplitude η_1 depende do ângulo de espalhamento¹ 2θ segundo o fator $f_{2\theta}$ (que é determinado pelo tipo de interação

¹A convenção mais usada em cristalografia é denotar o ângulo de espalhamento por 2θ , em vez de θ . Se θ é o ângulo entre o feixe de radiação incidente e uma família de planos cristalinos, 2θ é o ângulo entre este feixe e a direção em que se observa sua reflexão.

que ocorre no ponto e é denominado *comprimento de espalhamento*) e de D , de tal forma que a intensidade $|y|^2$ é proporcional a D^{-2} , e a energia total, integrada em uma esfera de raio D , é conservada.

1.3.1.2 Espalhamento por dois pontos idênticos

A partir do resultado obtido para o espalhamento por um ponto, é possível descrever o espalhamento de radiação incidente por dois pontos idênticos (figura 1.4). Para tanto, basta fazer a superposição das ondas resultantes do espalhamento de cada um dos pontos representadas pela equação 1.3. Levando-se em conta as direções de incidência e de espalhamento expressas pelos vetores unitários \widehat{S}_0 e \widehat{S} , respectivamente, obtém-se a diferença de caminho óptico Δ entre a frente de onda espalhada por O_1 e aquela espalhada por O_2 :

$$\Delta = \vec{r} \cdot \widehat{S}_0 - \vec{r} \cdot \widehat{S} = CO_2 + DO_2 \quad (1.5)$$

É conveniente definir um vetor \vec{s} proporcional a $\widehat{S} - \widehat{S}_0$ de tal modo que Δ seja proporcional a $\vec{r} \cdot \vec{s}$. Então (ver Figura 1.4):

$$\vec{s} = \frac{\widehat{S} - \widehat{S}_0}{\lambda} \Rightarrow |\vec{s}| = \frac{2\text{sen}\theta}{\lambda} \quad (1.6)$$

ou seja, \vec{s} é um vetor não-unitário determinado pelo ângulo de espalhamento 2θ e pelo comprimento de onda da radiação incidente λ .

Considerando-se que o ponto de observação P está muito distante dos dois centros espalhadores, ou seja $|\vec{r}| \ll D$, a radiação que alcançar P terá o mesmo ângulo de espalhamento 2θ , quer tenha sido espalhada por O_1 , quer tenha sido espalhada por O_2 . Com esta aproximação:

$$\begin{aligned} y(2\theta, D, t) &= f_{2\theta} \frac{A}{D} \exp(2\pi i \nu t - 2\pi i \frac{D}{\lambda} - i\alpha_s) + \\ &\quad + f_{2\theta} \frac{A}{D} \exp(2\pi i \nu t - 2\pi i \frac{D}{\lambda} - 2\pi i \frac{\Delta}{\lambda} - i\alpha_s) \\ &= f_{2\theta} \frac{A}{D} \exp(2\pi i \nu t - 2\pi i \frac{D}{\lambda} - i\alpha_s) \left[1 + \exp(-2\pi i \frac{\Delta}{\lambda}) \right] \\ &= \eta_2(2\theta, D) \exp(2\pi i \nu t - 2\pi i \frac{D}{\lambda} - i\alpha_s) \end{aligned} \quad (1.7)$$

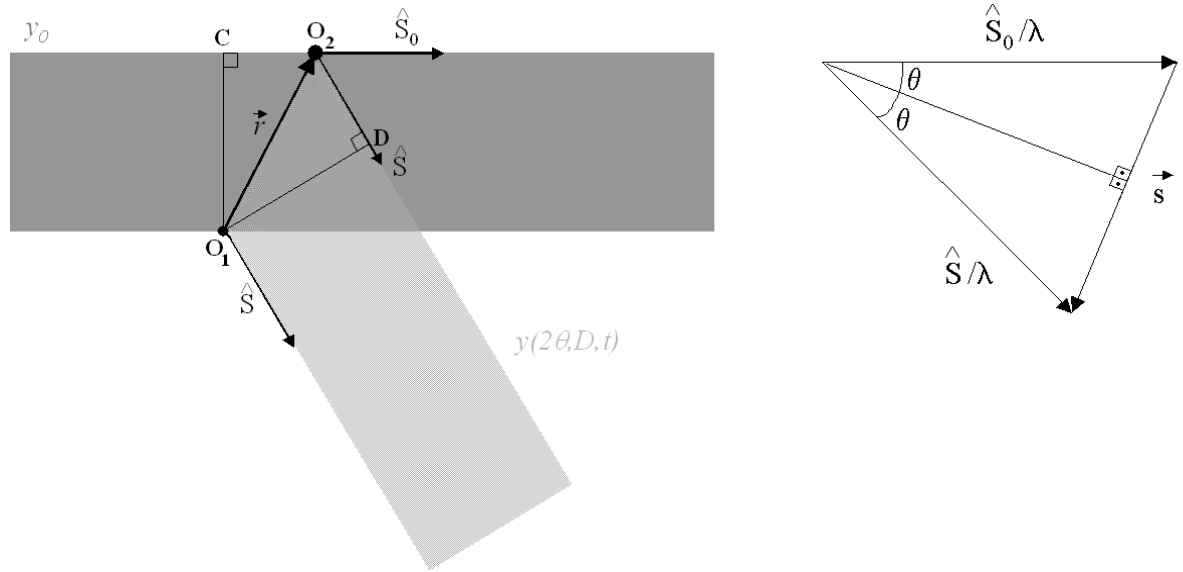


Figura 1.4: Espalhamento de radiação incidente (y_0) na direção \hat{S}_0 por 2 pontos iguais O_1 e O_2 separados por uma distância \vec{r} , de modo que $\Delta = CO_2 + DO_2$. O vetor \vec{s} é mostrado à direita.

Obtém-se portanto uma onda espalhada com forma semelhante à encontrada para o espalhamento por um ponto, mas com uma amplitude $\eta_2(2\theta, D)$ diferente. Esta amplitude depende do fator de fase $-2\pi i \frac{\Delta}{\lambda}$ proveniente da diferença de caminho óptico entre os centros espalhadores e é mais convenientemente expressa em termos do vetor \vec{s} :

$$\begin{aligned}
 \eta_2(2\theta, D) &= f_{2\theta} \frac{A}{D} \left[1 + \exp\left(-2\pi i \frac{\Delta}{\lambda}\right) \right] \\
 &= f_{2\theta} \frac{A}{D} \left[1 + \exp\left(-\frac{2\pi i}{\lambda} (\vec{r} \cdot \hat{S}_0 - \vec{r} \cdot \hat{S})\right) \right] \\
 &= f_{2\theta} \frac{A}{D} [1 + \exp(2\pi i (\vec{r} \cdot \vec{s}))] \tag{1.8}
 \end{aligned}$$

1.3.1.3 Espalhamento por n pontos

Por extensão, podemos estudar o espalhamento por uma distribuição genérica com n pontos situados em posições \vec{r}_j e não-idênticos, isto é, que interagem de

diferentes formas, podendo ter $f_{2\theta}$ diferentes, mesmo para ângulos 2θ idênticos. Utilizando novamente a aproximação de que os ângulos de espalhamento 2θ são iguais para todos os pontos porque $D \gg \vec{r}_j$ para todo j , basta calcular a amplitude η_n :

$$\begin{aligned}\eta_n(2\theta, D) &= \sum_{j=0}^{n-1} \eta_1(2\theta, D)_j \exp(2\pi i \vec{r}_j \cdot \vec{s}) = \\ &= \frac{A}{D} \sum_{j=0}^{n-1} (f_{2\theta})_j \exp(2\pi i \vec{r}_j \cdot \vec{s})\end{aligned}\quad (1.9)$$

para obter a forma de onda espalhada para uma distribuição de pontos genérica:

$$y_n(2\theta, D, t) = \frac{A}{D} \left[\sum_{j=0}^{n-1} (f_{2\theta})_j \exp(2\pi i \vec{r}_j \cdot \vec{s}) \right] \exp(2\pi i \nu t - 2\pi i \frac{D}{\lambda} - i\alpha_s)\quad (1.10)$$

1.3.2 Difração

Difração é o espalhamento de radiação por uma estrutura periódica, como, por exemplo, uma rede cristalina tridimensional. Para estudar este fenômeno, calculamos as amplitudes de espalhamento, da forma mostrada na seção anterior. Iniciamos com um caso mais simples: a interação com a rede unidimensional ilustrada na figura 1.5, que contém n pontos idênticos (com $f_{2\theta}$ idênticos) separados por uma distância \vec{a} muito menor do que a distância D de observação.

Neste caso, a amplitude total A_n , resultante do espalhamento de uma onda de amplitude A é dada por:

$$A_n = \sum_{q=0}^{n-1} \left(\frac{A}{D} f_{2\theta} \right)_q \exp(2\pi i q \vec{a} \cdot \vec{s}) = \frac{A}{D} f_{2\theta} \sum_{q=0}^{n-1} \exp(2\pi i q \vec{a} \cdot \vec{s}) = \quad (1.11)$$

onde os termos da soma estão em progressão geométrica, levando ao resultado:

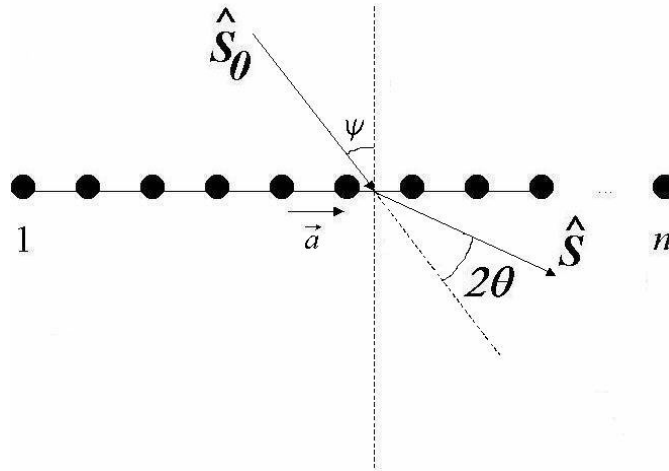


Figura 1.5: Rede unidimensional de n pontos separados por uma distância \vec{a} constante, recebendo radiação com ângulo de incidência ψ .

$$A_n = A_0 \frac{1 - \exp(2\pi i n x)}{1 - \exp(2\pi i x)} \quad (1.12)$$

com $A_0 = \frac{A}{D} f_{2\theta}$ e $x = \vec{a} \cdot \vec{s}$.

Logo, a intensidade I é dada por:

$$I = AA^* = A_0^2 \frac{\text{sen}^2(\pi n x)}{\text{sen}^2(\pi x)} = A_0^2 g_n(x) \quad (1.13)$$

Exemplos de $g_n(x)$ são mostrados na figura 1.6, da qual se conclui que, para um número de pontos n muito grande, a intensidade difratada só é significativa se:

$$x = \vec{a} \cdot \vec{s} = m \quad (1.14)$$

onde m é um número inteiro.

Esta condição pode ser expressa em função do ângulo de incidência ψ e do ângulo de espalhamento 2θ :

$$\vec{a} \cdot \frac{\vec{S} - \vec{S}_0}{\lambda} = \frac{a}{\lambda} [\text{sen}(2\theta + \psi) - \text{sen}\psi] = m \quad (1.15)$$

Se a radiação incidir perpendicularmente à rede (\widehat{S}_0 perpendicular a \vec{a} , $\psi = 0$), esta condição se reduz a :

$$\frac{a}{\lambda} \text{sen}2\theta = m \quad (1.16)$$

Esta equação não deve ser confundida com a lei de Bragg (equação 1.21), que será explicada adiante, pois refere-se a distâncias \vec{a} entre **centros espalhadores**, enquanto a lei de Bragg, refere-se a distâncias d entre **planos** formados por centros espalhadores.

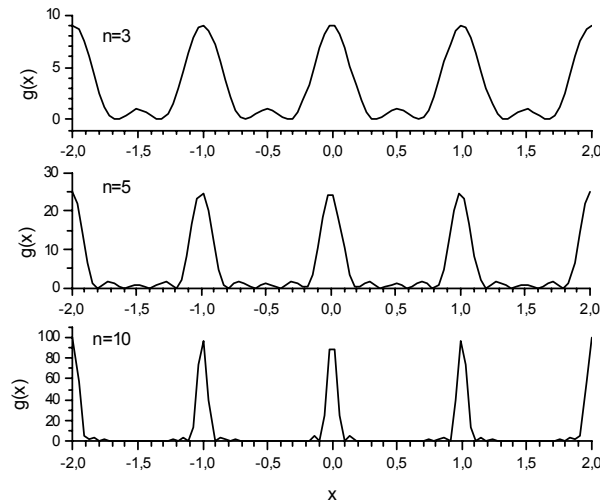


Figura 1.6: Gráficos da função $g_n(x) = \frac{\text{sen}^2(\pi nx)}{\text{sen}^2(\pi x)}$ para diferentes valores de n .

Para a rede cristalina mais geral, em 3 dimensões, podemos estender esta análise unidimensional para cada uma das componentes do vetor de rede:

$$\vec{r} = u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c} \quad (1.17)$$

Em lugar de uma soma em q , obtida no caso unidimensional, teremos três somas (em u , v e w) para cobrir todo o espaço. Para cada uma delas valerá a análise feita anteriormente, de modo que assim chegamos às **condições de Laue**, que devem ser satisfeitas para que ocorra difração:

$$\begin{aligned}\vec{a} \cdot \vec{s} &= h \\ \vec{b} \cdot \vec{s} &= k \\ \vec{c} \cdot \vec{s} &= l\end{aligned}\tag{1.18}$$

onde h , k e l são números inteiros.

Seja o vetor de rede recíproca \vec{r}^* definido como:

$$\vec{r}^* = \frac{[h(\vec{b} \times \vec{c}) + k(\vec{c} \times \vec{a}) + l(\vec{a} \times \vec{b})]}{V_{abc}}\tag{1.19}$$

onde V_{abc} é o volume do paralelepípedo definido por \vec{a} , \vec{b} e \vec{c} .

Verifica-se (por substituição de \vec{s} por \vec{r}^* em 1.18) que as condições de Laue são satisfeitas quando:

$$\vec{s} = \vec{r}^*\tag{1.20}$$

Além disso, o vetor \vec{r}^* é normal ao plano $hu + kv + lw = 1$ e seu módulo vale $1/d_{hkl}$, onde d_{hkl} é a distância desse plano à origem e é a distância interplanar entre os sucessivos planos paralelos a este (dados por $hu + kv + lw = n$, com n inteiro). Usando a equação 1.20 em módulo, obtém-se:

$$\frac{2\text{sen}\theta}{\lambda} = \frac{1}{d_{hkl}}\tag{1.21}$$

Esta é a **Lei de Bragg**, enunciada no início do século XX para explicar exatamente o mesmo fenômeno físico a partir de um modelo diferente (mostrado na figura 1.7), onde planos cristalinos paralelos separados por distâncias d funcionavam como espelhos (com ângulo de reflexão igual ao de incidência). Para obter a lei de Bragg, basta exigir que a diferença de caminho óptico entre os feixes refletidos pelos planos seja um múltiplo inteiro de

λ , condição necessária para interferência construtiva entre as ondas refletidas por dois planos paralelos[8, 11]:

$$n\lambda = 2d\sin\theta \quad (1.22)$$

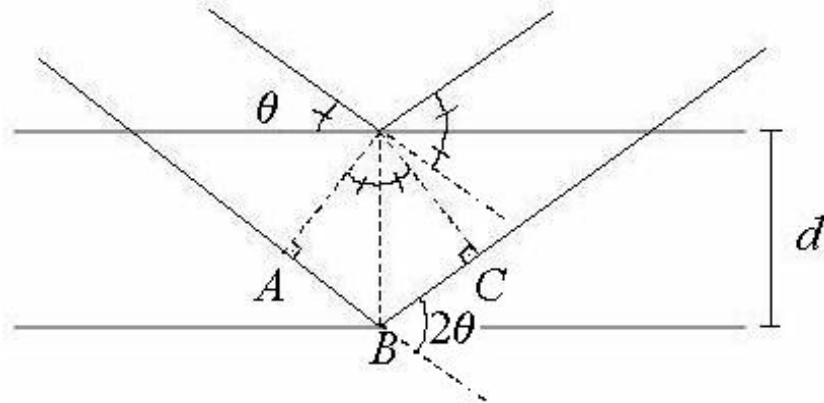


Figura 1.7: Reflexão de dois feixes paralelos de radiação por planos cristalinos paralelos separados por distância d . Sendo 2θ o ângulo de espalhamento, a diferença de caminho óptico é $AB + BC = 2d\sin\theta$.

É importante enfatizar que d_{hkl} depende do sistema cristalino. Por exemplo, para um sistema cúbico com parâmetro de rede a [8]:

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (1.23)$$

As reflexões observadas são nomeadas através dos índices correspondentes. Por exemplo, a reflexão mais intensa do silício, utilizada nas medidas mostradas no capítulo 4, é denominada reflexão (111) por ser oriunda do plano cristalino com $h = 1$, $k = 1$ e $l = 1$.

1.4 Métodos Experimentais

Para analisar as estruturas cristalinas com base na difração de raios X, existem vários métodos experimentais. Em alguns, utilizam-se monocristais,

como o método de Laue, ou aqueles nos quais se utiliza a câmara de Weissenberg ou a câmara oscilante [4]. No entanto, aqui será descrito apenas o método em que se utilizam amostras cristalinas em forma de pó. Para explicar a diferença entre os métodos de monocristais e de pó, recorre-se às equações 1.6 e 1.20, que podem ser expressas sob a forma:

$$\vec{s} = \frac{2\text{sen}\theta}{\lambda} = \vec{r}^* \quad (1.24)$$

Esta equação mostra que a difração só ocorre em condições bem restritas. Sabendo que o vetor de rede recíproca \vec{r}^* é característica intrínseca do cristal, resta buscar satisfazer essas condições procurando valores adequados do ângulo de espalhamento θ ou do comprimento de onda incidente λ . Nos métodos com monocristais, essas condições são atingidas com a utilização de θ fixo e uma faixa de diferentes comprimentos de onda incidentes, ao passo que, no método de pó, ocorre a variação dos ângulos θ , enquanto λ permanece fixo.

1.4.1 Fontes de raios X

Para a cristalografia, utilizam-se principalmente dois tipos de fontes: a radiação síncrotron e os tubos de raios X. Estes são descritos com maior ênfase por terem sido utilizados nas medidas deste trabalho.

A radiação síncrotron é gerada através da aceleração de elétrons a altas energias em trajetórias aproximadamente circulares, compostas de seções retas ao fim das quais existem eletroímãs que geram a força magnética necessária para o desvio da trajetória do elétron. Nos pontos de curvatura da trajetória ocorre a emissão dos fótons, uma vez que há aceleração centrípeta.

Nos tubos de raios X, ocorre a emissão de elétrons por um filamento (ou catodo) de metal aquecido. Eles são acelerados por uma diferença de potencial V e colidem contra um alvo (ou anodo) metálico, sendo freados e, conseqüentemente, emitindo radiação de frenagem (comumente chamada pelo termo alemão “bremsstrahlung”). A maior parte dessa energia é convertida em energia térmica (exigindo um sistema de resfriamento para o alvo) e a energia restante (aproximadamente 1%) é emitida sob a forma de raios X que saem do tubo por janelas de material transparente à radiação (tipicamente o berílio) e são direcionados para o material a ser estudado.

O espectro de radiação emitida depende do material do alvo e de V , como ilustrado na figura 1.8. Os materiais mais utilizados são o cobre e o molibidênio, mas outros materiais também são utilizados como, por exemplo, prata, níquel, ferro e cobalto. Este espectro tem dois componentes:

- o espectro contínuo, ou de radiação branca, que vem da radiação de frenagem dos elétrons incidentes no alvo, ou seja, da conversão de sua energia cinética em radiação. Os elétrons tendem a perder a energia em mais de uma colisão, liberando partes de sua energia cinética E_e em cada colisão. No entanto, pode ocorrer a interação (muito menos provável) em que o elétron perde toda a energia cinética em uma única colisão, emitindo a radiação com o menor comprimento de onda possível (λ_{\min}) que é dado por:

$$E_e = eV = \frac{hc}{\lambda_{\min}} \quad (1.25)$$

onde h é a constante de Planck e c a velocidade da luz no vácuo.

Assim como a expressão para λ_{\min} é confirmada experimentalmente, também se obtém que a intensidade I_T (a energia total irradiada por unidade de tempo) é dada por:

$$I_T = kiZV^m \quad (1.26)$$

onde k e m são constantes (sendo m aproximadamente 2), Z é o número atômico do material do alvo e i é a corrente que percorre o filamento (proporcional ao número de elétrons que colide com o alvo).

- o espectro característico que se deve a transições de níveis eletrônicos do material constituinte do alvo. Quando a voltagem está acima de um valor crítico V_C característico do material do alvo, um elétron incidente pode ejetar um elétron ligado a um átomo do alvo, deixando vazio um nível de energia. Este nível é logo ocupado por outro elétron do átomo, levando-o de uma energia E_i para um estado de energia E_f , com a emissão de um fóton de comprimento de onda $\lambda_{i \rightarrow f}$, tal que:

$$\lambda_{i \rightarrow f} = \frac{hc}{E_i - E_f} \quad (1.27)$$

Para que uma determinada linha de emissão característica ocorra, é necessário, portanto, que $E_e > E_X$, onde E_X é a energia de ionização

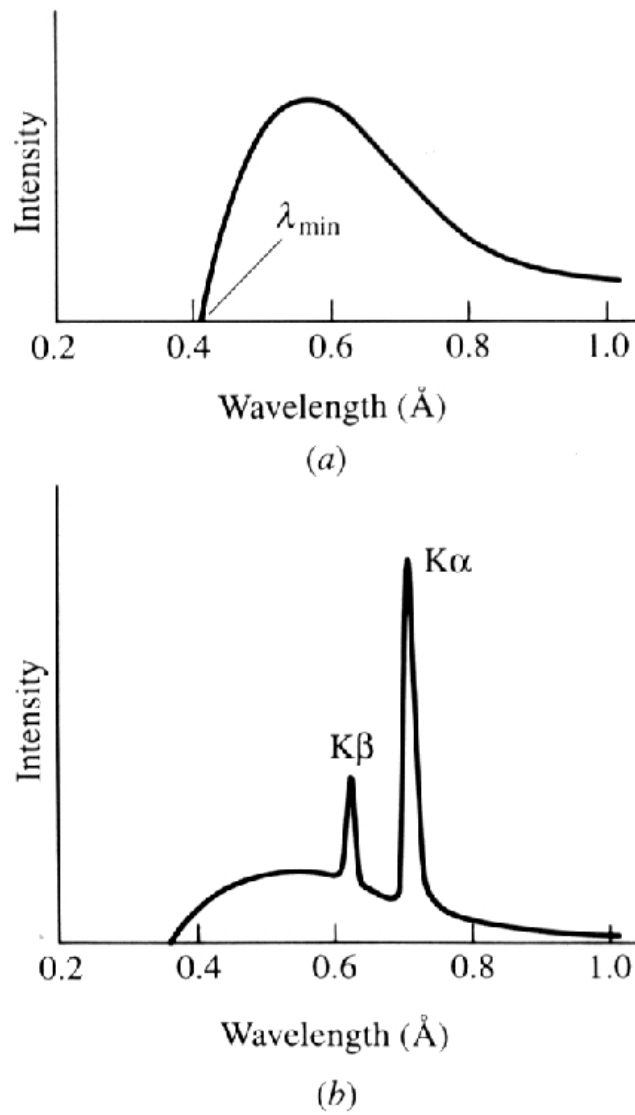


Figura 1.8: Espectros (Intensidade *versus* comprimento de onda) para tubos de raios X com materiais de anodos e valores de V diferentes: (a) W a 30.000V, (b) Mo a 35.000V [4].

da camada X . Este tipo de radiação é importante para a difração de raios X porque tem intensidades bem maiores do que a radiação de espectro contínuo e comprimentos de onda λ bem definidos (com larguras tipicamente menores que $0,001 \text{ \AA}$), característicos do material do alvo. As linhas K_α (referentes às transições da camada L para a K) e K_β (da camada M para a K) são as mais utilizadas, por terem menores comprimentos de onda, sendo menos absorvidas pela janela do tubo. Exemplos de valores de $\lambda_{i \rightarrow f}$ são mostrados na figura 1.8 (onde as posições de K_α e K_β são $0,710$ e $0,632 \text{ \AA}$ respectivamente). Outros valores típicos de λ_{K_α} (em \AA) são $0,5594$ para a prata, $1,5405$ para o cobre e $1,6578$ para o Níquel [4].

1.4.2 Método de Debye-Scherrer

Neste método, um dos métodos de pó mais comuns (ilustrado na figura 1.9), utiliza-se um feixe incidente monocromático (com um comprimento de onda bem definido). A amostra cristalina está em forma de pó fino, o que faz com que haja um número imenso de cristais idênticos com eixos orientados aleatoriamente. Assim, para cada valor d da distância entre os planos cristalinos, existe grande número de reflexões com θ idênticos que são detectados sob a forma de cones dispostos em torno do feixe incidente.

Uma tira de filme sobre uma superfície cilíndrica, com a amostra no centro e o feixe incidente perpendicular, registra a interseção dos cones com a superfície sob a forma de anéis, chamados anéis de Debye (mostrados na figura 1.9), que podem fornecer d_{hkl} a partir da equação 1.21, uma vez que o ângulo θ é determinado a partir do raio do anel e λ é fixo.

Estes princípios são aplicados nas medidas com os difratômetros, que são descritos a seguir.

1.4.2.1 Difratômetros

Neste tipo de sistema, ilustrado na figura 1.10, utilizam-se os princípios do método de Debye, mas a medição das intensidades difratadas em função do ângulo de difração é feita por um detector (ou contador) que se move sobre um círculo centrado na amostra, varrendo uma faixa pré-determinada de ângulos 2θ de espalhamento e obtendo a intensidade difratada para cada posição angular, de modo que, no fim da medida, obtém-se a intensidade

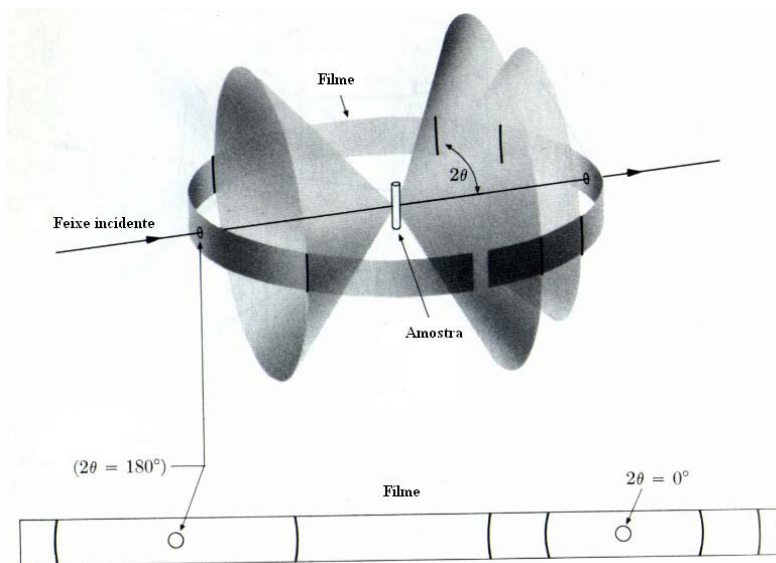
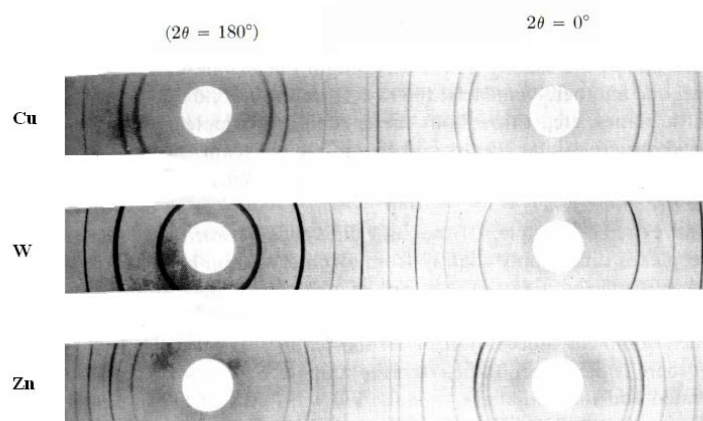
**Método de Debye-Scherrer****Imagens fotográficas**

Figura 1.9: Esquemas de aplicação do método de Debye-Scherrer com imagens fotográficas obtidas para diferentes amostras irradiadas por radiação de cobre filtrada. Fonte: [8].

difratada em função de 2θ . A radiação incidente é colimada por um conjunto de fendas ou outros elementos ópticos para garantir que o ângulo de incidência sob a amostra seja fixo e com pequena dispersão. Assim, nos difratômetros, a radiação não é captada na forma de anéis, mas sim sobre um pequeno arco na interseção desses anéis com o plano em que o detector se desloca.

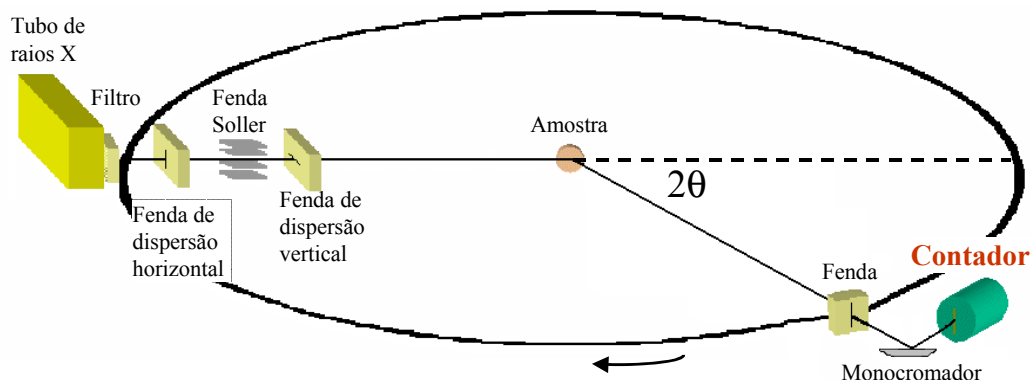


Figura 1.10: Esquema simplificado dos elementos básicos de um difratômetro.

A geometria do difratômetro (ilustrada na figura 1.11 e explicada no capítulo 3 e no apêndice A) é própria para melhorar a focalização da radiação a ser medida. Para isso, a amostra, que se localiza no centro do círculo de movimento do detector, movimenta-se em sincronia com ele, mas com velocidade angular diferente, mais especificamente, a metade. Deste modo, o plano da amostra sempre tangencia um círculo (o **círculo de focalização** mostrado na figura 1.11) que também compreende os pontos de onde sai o feixe de raios X (ponto **F** na figura 1.11) e o ponto onde os raios difratados incidem no detector (ponto **D**). Deve-se enfatizar que o movimento do detector não ocorre no círculo de focalização. Além disso, o raio deste círculo diminui com 2θ . Esta geometria é denominada **geometria de Bragg-Brentano** e foi utilizada nas medidas do presente trabalho.

A título de exemplo, mostramos aqui o modelo de difratômetro utilizado neste trabalho (mostrado na figura 1.12), o HZG4 [12] fabricado pela Seifert - com gerador de raios X ID 3000 [13] e tubo modelo FK61-10 com anodo de cobre usado com um monocromador de grafite. Também é possível posicionar um filtro junto ao detector para filtrar radiação espúria que possa provir da amostra. No capítulo 3, que aborda a construção do sistema de medidas

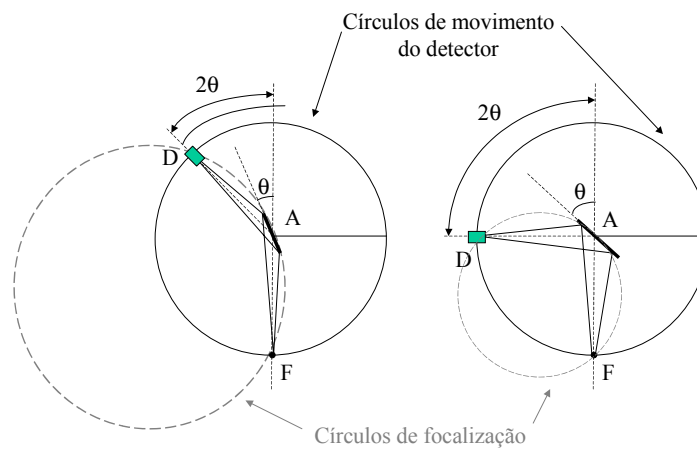


Figura 1.11: Geometria do difratômetro para duas posições angulares diferentes do detector. Os raios X partem do ponto **F**, incidindo na amostra centrada no ponto **A** para serem detectados no ponto **D**. Os diferentes círculos de focalização também são mostrados.



Figura 1.12: Difratômetro HZG4 usado neste trabalho. O tubo de raios X aparece à esquerda e o detector, à direita. Ao centro está o porta-amostras.

desenvolvido neste trabalho, mostramos que o HZG4 foi usado apenas como ponto de partida para o novo sistema, que utiliza os detectores sensíveis a posição descritos no próximo capítulo.

Capítulo 2

Detectores proporcionais a gás

Apresentamos os princípios de funcionamento dos detectores de radiação proporcionais a gás utilizados neste trabalho, bem como uma descrição da eletrônica associada à aquisição de dados.

2.1 Princípios de funcionamento

Detectores de radiação são equipamentos que promovem interações de partículas incidentes (sejam os próprios fótons, constituintes da radiação eletromagnética, sejam partículas massivas que produzem radiação eletromagnética e partículas eletricamente carregadas no interior do detector), de forma que são gerados sinais que podem ser analisados pelo usuário. Descrevemos aqui os detectores proporcionais a gás, nos quais as partículas interagem eletromagneticamente com o gás contido no detector, dando origem a pulsos elétricos que podem ser captados e tratados eletronicamente. As medidas realizadas neste trabalho concentram-se na análise de fótons de raios X de energia muito inferior a 100 keV. Por esta razão, enfatizamos os fenômenos e os equipamentos utilizados para esta faixa de energia.

Os detectores que utilizamos [14] têm geometria retangular (conforme explicado na seção 2.2), contendo um pequeno volume de gás localizado entre a janela (que é aterrada e feita de material que permite a passagem da radiação) e o plano catódico utilizado para leitura de sinais induzidos. Entre estes localiza-se um fio anódico sob alta voltagem. Com esta disposição geométrica e com as tensões elétricas aplicadas, existe um campo eletrostático que permite a captação de partículas ionizadas devido à passagem de radi-

ação. O campo elétrico estabelecido entre anodo e catodo deve ser intenso o suficiente para impedir que a carga elétrica de ionização se recombine no próprio meio gasoso, o que suprimiria a possibilidade de observação de um sinal elétrico nos eletrodos.

2.1.1 Interações eletromagnéticas

2.1.1.1 Partículas Massivas

A perda de energia de uma partícula carregada que atravessa uma espessura x de um meio material é um processo aproximadamente contínuo, resultado de várias colisões entre a partícula incidente e os elétrons do meio material. Para partículas com massas muito maiores do que a do elétron, essa perda é quantificada através da fórmula de Bethe-Bloch [15, 16]:

$$\frac{dE}{dx} = -2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Zz^2}{A\beta^2} \left[\ln \left(\frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{\max}}{I^2} \right) - 2\beta^2 - \delta - 2\frac{C}{Z} \right] \quad (2.1)$$

onde: N_a é o número de Avogadro; m_e e r_e são a massa e o raio clássico do elétron; ρ , a densidade do meio material; Z e A , os números atômico e de massa do meio e z , a carga da partícula incidente em termos da carga elementar e ; γ vale $(1 - \beta^2)^{-1/2}$, onde β é a velocidade da partícula dividida pela velocidade c da luz no vácuo; I é o potencial médio de excitação do material e W_{\max} é a transferência máxima de energia permitida na colisão entre uma partícula incidente de massa M e um elétron; δ é o termo de correção de densidade e C é o coeficiente de correção para camadas atômicas.

Esta fórmula foi obtida através do estudo do movimento de uma partícula carregada que interage, por simples atração ou repulsão coulombiana, com elétrons atômicos do meio material considerados praticamente em repouso. No cálculo, assume-se que a partícula incidente não seja desviada da trajetória inicial. Tais hipóteses, que simplificam os cálculos, só são aceitáveis para $M \gg m_e$. Os dois últimos termos são correções determinadas empiricamente. A correção de densidade é importante para altas energias, enquanto a correção de camadas visa remediar o fato de que a hipótese de um meio com elétrons atômicos estacionários não é mais válida quando as partículas incidentes têm velocidades próximas às velocidades orbitais dos elétrons ligados dos materiais.

Para partículas não-relativísticas, o primeiro termo da equação 2.1 é predominante. Portanto, a dependência com a velocidade é, basicamente, da forma v^{-2} .

Para elétrons ou pósitrons incidentes, o cálculo da perda de energia devida ao fenômeno descrito no parágrafo anterior é diferente porque as partículas incidentes têm massas semelhantes àsquelas das partículas-alvo e são partículas idênticas a elas. Além disso, o processo de emissão de radiação por interação com os núcleos atômicos (“bremsstrahlung”) contribui para a perda de energia destas partículas leves, tornando-se dominante para energias acima de determinado valor que é característico do material e se situa tipicamente entre 10 e 100 MeV [16].

2.1.1.2 Fótons

Diferentemente de um feixe de partículas massivas, um feixe de fótons não pode atravessar um meio material sofrendo apenas perda de energia. Ele pode perder intensidade, ou seja, energia total, por ter o número de fótons diminuído. Os fótons que sofrem interações são desviados da direção de incidência do feixe ou simplesmente absorvidos. Os fótons que não sofrem interações mantêm a energia original, e atravessam o meio com a mesma direção de incidência inicial. Por isto, no caso dos fótons não convém estudar a quantidade $\frac{dE}{dx}$, como no caso das partículas carregadas. É necessária, portanto, outra abordagem do problema.

Uma primeira abordagem foi feita no quadro do eletromagnetismo clássico, no qual se estudou o Espalhamento Thompson. Este fenômeno consiste na incidência de radiação (sob a forma de uma onda eletromagnética) sobre uma partícula carregada fazendo-a oscilar com a mesma frequência da radiação incidente. Nesta oscilação (um movimento acelerado) ocorre emissão de radiação pela partícula carregada. No caso em que a partícula carregada é o elétron, a seção de choque total, explicada no Apêndice B, depende do raio clássico do elétron, r_e , e é dada por:

$$\sigma_{Th} = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 = \frac{8\pi}{3} r_e^2 \quad (2.2)$$

Também é possível estudar o problema com os métodos da Mecânica Quântica. Quando fótons incidem em um meio material, vários mecanismos de interação são possíveis, com probabilidades que dependem da energia.

Para energias acima de 1 MeV, o processo predominante é a produção de pares elétron-pósitron; para energias na faixa de centenas de keV, o espalhamento Compton é o mais provável e para baixas energias, inferiores a 100 keV, o efeito fotoelétrico é o mais relevante.

O efeito fotoelétrico, predominante na faixa de energia dos raios X, consiste na absorção do fóton incidente por um átomo do material, resultando na ejeção de um elétron¹ com energia E dada por:

$$E = h\nu - \mathcal{E} \quad (2.3)$$

onde \mathcal{E} é a energia de ligação do elétron ao átomo.

Uma vez que o átomo fica em estado excitado depois desta interação, pode ocorrer a subsequente emissão de outro elétron (efeito Auger) ou a emissão de um fóton por captura de um elétron livre. Este fóton pode escapar do detector sem interagir, gerando o chamado “pico de escape” nas medidas de energia, centrado em uma energia E_{esc} dada por:

$$E_{esc} = h\nu - E_x \quad (2.4)$$

onde $h\nu$ é a energia do fóton incidente e E_x é a energia do nível x que o elétron capturado passa a ocupar.

O cálculo analítico da seção de choque para este tipo de espalhamento é inviável por causa da complexidade das funções de onda relativas aos átomos dos materiais. Para se obter uma estimativa, fazem-se algumas aproximações simplificadoras. Levando-se em conta que a maioria das interações ocorre com os elétrons da camada K, e considerando-se $h\nu \ll m_e c^2$, obtém-se a seção de choque por uma aproximação de Born [16]:

$$\sigma_{foto} = 4\sqrt{2}\alpha^4 Z^5 \sigma_{Th} \frac{N_a}{A} \left(\frac{m_e c^2}{h\nu} \right)^{7/2} \quad (2.5)$$

onde α é a constante de estrutura fina, que vale $\frac{1}{137}$.

Para energias próximas à do nível K, esta seção de choque é modificada por um fator de correção e vale [16]:

¹Neste processo (que não pode ocorrer para elétrons livres, de acordo com as leis de conservação da energia e do momento), o íon resultante recebe o momento de recuo.

$$\sigma_{foto} = \sigma_{Th} \frac{2^7 \pi}{Z^2 \alpha^3} \frac{N_a}{A} \left(\frac{\nu_k}{\nu} \right)^4 \frac{\exp(-4\xi \cot^{-1} \xi)}{1 - \exp(-2\pi\xi)} \quad (2.6)$$

onde $\nu_k = (Z - 0,03)^2 m_e c^2 \alpha^2 / 2h$ e $\xi = \sqrt{\nu_k / (\nu - \nu_k)}$.

Finalmente, para $h\nu \gg m_e c^2$, obtém-se:

$$\sigma_{foto} = \frac{3}{2} \sigma_{Th} \alpha^4 Z^5 \frac{N_a}{A} \left(\frac{m_e c^2}{h\nu} \right) \quad (2.7)$$

No caso do efeito Compton, que representa alguma contribuição na faixa de energia dos raios X, ocorre o espalhamento de um fóton por um elétron que pode ser considerado livre se o fóton incidente tem energia muito maior que a energia de ligação do elétron. A seção de choque σ_c para este espalhamento é obtida através da fórmula de Klein-Nishina [18] :

$$\sigma_c = \frac{3\sigma_{Th}}{4} \left\{ \frac{1+\gamma}{\gamma^2} \left[\frac{2(1+\gamma)}{1+2\gamma} - \frac{\ln(1+2\gamma)}{\gamma} \right] + \frac{\ln(1+2\gamma)}{2\gamma} - \frac{1+3\gamma}{(1+2\gamma)^2} \right\} \quad (2.8)$$

Esta expressão se reduz à expressão clássica $\sigma = \sigma_{Th}$ (equação 2.2) para energias muito baixas.

A produção de pares consiste na transformação de um fóton em um par elétron-pósitron. Novamente, para que haja conservação simultânea de energia e momento, é necessário que haja outra partícula que absorva momento de recuo, papel normalmente desempenhado pelos núcleos. Este processo só pode ocorrer se o fóton tiver energia suficiente para criar um par elétron-pósitron, ou seja, maior que $2m_e c^2$. Portanto, a produção de pares não é relevante para o processo de detecção de raios X.

A partir das probabilidades para os processos descritos acima, encontra-se o coeficiente de absorção linear μ , dado por:

$$\mu = n\sigma \quad (2.9)$$

onde n é o número de átomos por unidade de volume e σ , a seção de choque total (a soma das seções de choque dos processos mencionados).

Este coeficiente, com dimensão de $(\text{comprimento})^{-1}$, fornece a probabilidade total de interação do fóton por unidade de comprimento. Se um número I_0 de fótons incide no material, a quantidade N de fótons restantes depois de atravessar uma espessura x é:

$$N = N_o \exp(-\mu x) \quad (2.10)$$

É comum expressar esta grandeza em termos da espessura reduzida X do material, que leva em conta a densidade ρ (g/cm^3). Desta forma, obtém-se:

$$x \rightarrow X = \rho x \quad (2.11)$$

$$N = N_o \exp(-\mu' X) \quad (2.12)$$

onde μ' é medido em cm^2/g .

Na figura 2.1, está mostrado μ' em função da energia do fóton incidente para o caso em que o meio material é o gás P-10 (90% Ar e 10 % CH_4 em volume), freqüentemente usado em detectores proporcionais gasosos. Os valores são similares aos obtidos para a mistura de 75% de Ar e 25% de C_2H_6 .

2.1.2 Campo eletrostático no interior de detectores a gás

Para vencer a atração coulombiana e a conseqüente recombinação dos íons resultantes da absorção fotoelétrica, é necessária a aplicação de um forte campo elétrico na região de detecção. A presença deste campo deve também promover a possibilidade de se estimar a energia depositada por cada partícula detectada, independentemente de sua posição de incidência ou de sua trajetória no interior do detector. Para este fim, é conveniente a implementação de eletrodos em geometria onde há um fio (anodo) sob potencial V_0 no centro de um cilindro oco metálico aterrado (catodo). Com esta configuração, no interior do cilindro existe um campo \vec{E} , que pode ser expresso em termos da distância radial \vec{r} do eixo, do raio do fio (a) e do raio interno do cilindro (b):

$$\vec{E}(\vec{r}) = \frac{V_0}{\ln(b/a)} \frac{\hat{r}}{r} \quad (2.13)$$

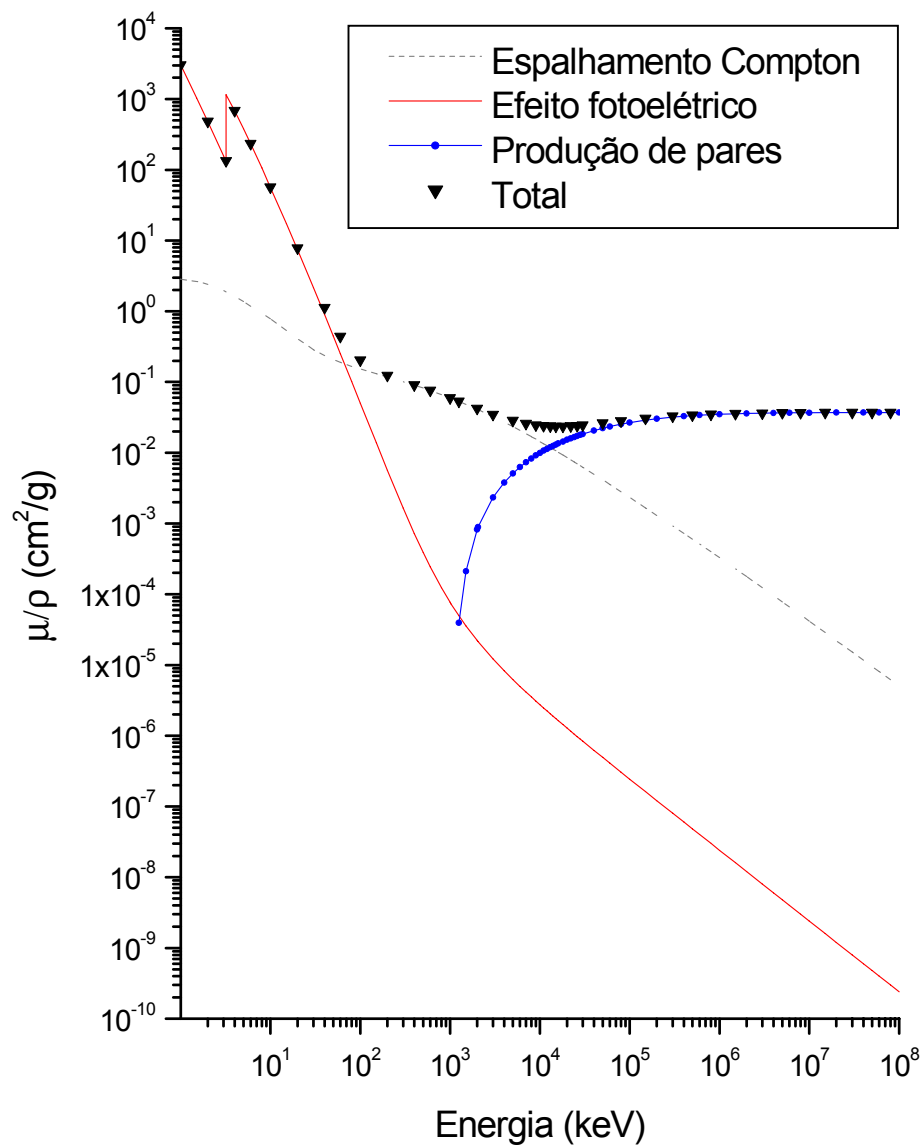


Figura 2.1: Seção de choque de interações de fótons por unidade de comprimento (μ/ρ) no interior do gás P-10 em função da energia juntamente com as contribuições de diferentes mecanismos [19].

Conseqüentemente, a diferença de potencial V (em relação a $r = a$) para uma posição \vec{r} nesta região é dada por:

$$V(\vec{r}) = -\frac{V_0}{\ln(b/a)} \ln\left(\frac{r}{a}\right) \quad (2.14)$$

As expressões acima podem ser consideradas válidas mesmo para configurações em que o catodo não tem forma cilíndrica. Um caso importante é o das câmeras proporcionais multifilares, em que um plano de fios paralelos uniformemente espaçados por uma distância s , é disposto entre dois planos catódicos a uma distância L do plano de fios. A aproximação é válida desde que se tenha $L \gg s \gg a$.

Conhecendo-se as expressões para $\vec{E}(\vec{r})$ e $V(\vec{r})$ e empregando-se o princípio da conservação da energia, é possível obter a expressão analítica para a variação de tensão no anodo em função do tempo, $u(t)$, devida à movimentação de uma carga puntiforme no interior do campo eletrostático [16]:

$$u(t) = -\frac{q}{2\pi\epsilon\epsilon_0 l} \ln\left(\sqrt{1 + \frac{t}{t_0}}\right) \quad (2.15)$$

onde q é a carga total (a carga da avalanche definida na subseção 2.1.3) e t_0 (que é constante para um dado detector) é dado por:

$$t_0 = \frac{p\pi\epsilon\epsilon_0 r_0^2}{\mu^+ C_l V_0} \quad (2.16)$$

onde p é a pressão do gás, μ^+ é o coeficiente de mobilidade dos íons positivos desse gás e ϵ , sua constante dielétrica em termos da permissividade do vácuo ϵ_0 ; C_l é a capacitância do detector por unidade de comprimento, l e r_0 são, respectivamente, o comprimento do fio e seu raio, e V_0 a diferença de potencial entre anodo e catodo.

Para se obter a expressão 2.15, foi desprezada a contribuição dos elétrons, porque eles são rapidamente atraídos pelo fio anodo enquanto que os íons positivos se deslocam da região próxima ao raio do fio até o catodo, com velocidade muito menor que a do elétron. A interação dos íons com o campo é portanto mais importante que a dos elétrons, sendo eles os responsáveis pela variação de tensão observada, $u(t)$.

Por sua vez, o sinal $u_{cat}(t)$ induzido no catodo é simétrico em relação a $u(t)$ (positivo, portanto). Nos casos em que a geometria do catodo não é perfeitamente cilíndrica, e que a superfície do catodo não circunda completamente o anodo, $u(t)$ tem amplitude menor do que a prevista pela equação 2.15. Isto ocorre porque, nestas circunstâncias, parte da carga elétrica induzida não é observada.

A capacitância C do detector juntamente com a impedância de entrada R de qualquer circuito que venha a ser utilizado para observar diretamente $u(t)$, definem um circuito diferenciador - ou um filtro passa-alta, do ponto de vista da eletrônica. A forma analítica do sinal efetivamente observado é obtida pela atuação da função de transferência do circuito diferenciador, no domínio da frequência, sobre todas as componentes espectrais de $u(t)$. Uma vez que $u(t)$ varia lentamente com t , é possível demonstrar [17] que o resultado desta operação no domínio do tempo é uma função $u_{diff}(t)$ que pode ser aproximada por:

$$u_{diff}(t) = u_{cat}(t) \exp(-t/RC) \quad (2.17)$$

Na figura 2.2, estão mostrados pulsos u_{diff} calculados para diferentes valores de RC , com $p = 1$ atm, $\varepsilon = 1.003$, $r_0 = 15 \mu\text{m}$, $l = 30$ cm, $\mu^+ = 1.7 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{atm}/\text{V} \cdot \text{s}$, $q = 10^6 e$ e $V_0 = 2600$ V.

2.1.3 Regimes de operação

Os detectores a gás podem ser operados em diferentes regimes definidos de acordo com o campo elétrico aplicado, determinado pela voltagem anódica como está mostrado na figura 2.3. Sob voltagem nula, não há pulsos captados porque os pares $\text{ion}^+ \text{-} e^-$ recombina-se sob a atração coulombiana. Aumentando-se a voltagem (região I da figura), o campo elétrico vai suprimindo este efeito até chegar a uma situação de saturação, ou região de ionização (região II), na qual todos os pares criados são coletados. Nesta região, o número de íons coletados permanece aproximadamente constante, mesmo com aumento da voltagem aplicada. Com voltagens maiores, os elétrons passam a ser acelerados e podem ionizar outras moléculas do gás, o que gera mais elétrons que são acelerados e produzem outros íons, formando o que é conhecido como processo de **avalanche**. Isto resulta em amplificação do sinal original e, até um certo limite de voltagem, é mantida a proporcionalidade entre a carga total coletada por ionização e a voltagem aplicada (região

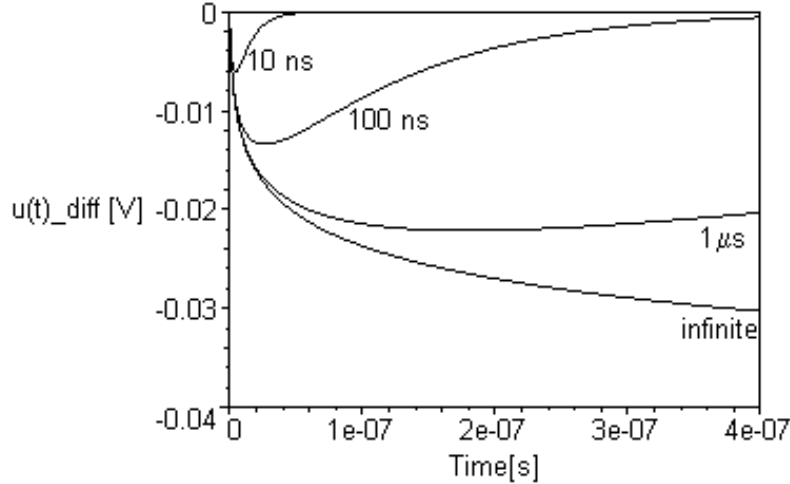


Figura 2.2: Pulsos anódicos u_{diff} calculados para diferentes valores de RC .

III). Esta é a situação em que operam os detectores proporcionais utilizados neste trabalho. Com o aumento da voltagem, o campo elétrico começa a ser distorcido devido à própria densidade de carga elétrica de ionização espacialmente distribuída. Nesta região (região IV), a relação de proporcionalidade entre voltagem aplicada e carga coletada é gradualmente perdida. Além desta região a carga coletada já não depende da voltagem aplicada, de modo que o sinal elétrico observado tem aproximadamente a mesma amplitude para qualquer partícula detectada. Os detectores que são operados desta forma são denominados contadores Geiger. Para evitar este efeito, são usados gases denominados “quenchers” (abafadores), que absorvem parte da energia gerada neste tipo de processo, evitando que o detector entre em regime de descarga contínua. Finalmente, para valores extremos de voltagem, atinge-se uma região de operação (“Discharge region”) onde aparecem descargas elétricas mesmo sem a incidência de partículas, o que tende a resultar em danos ao detector.

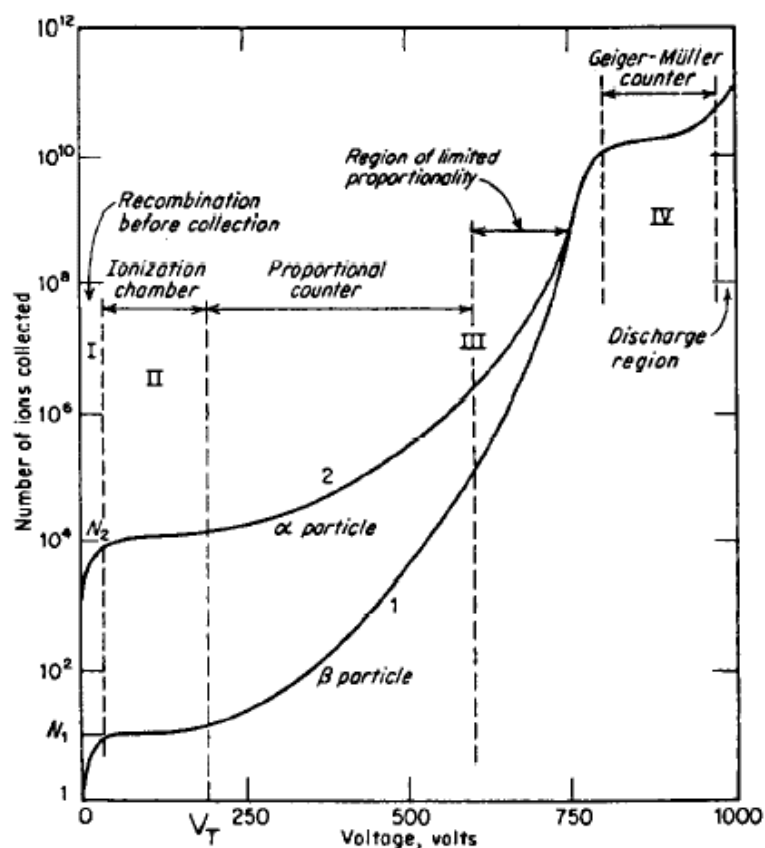


Figura 2.3: Número de íons em função da voltagem de operação para duas partículas diferentes α e β [16].

2.2 Eletrônica Associada

O sistema de detecção que é tema do presente trabalho tem por objetivo, além de contar fótons de raios X, identificar a posição dos mesmos ao longo de uma janela linear. A este sistema corresponde um conjunto de módulos de eletrônica analógica e digital que permite processar informações desde o nível da interação física no interior do detector até a visualização dos espectros de contagem *versus* posição.

O detector (esquematizado na figura 2.4) é um contador proporcional, com a particularidade de que é capaz de prover uma estimativa precisa da posição das partículas detectadas. Por esta razão, detectores deste tipo são

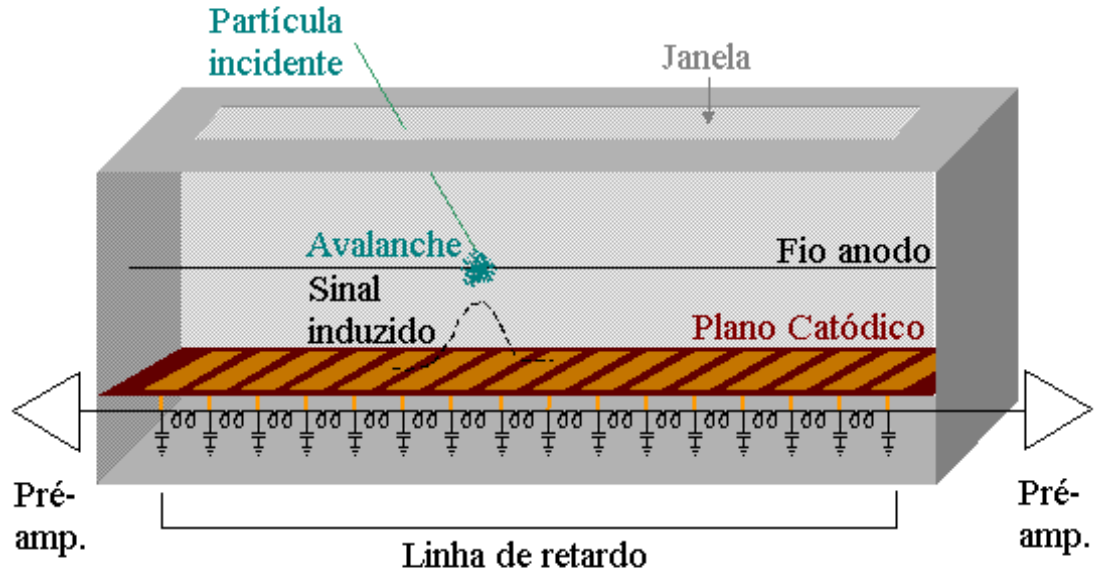


Figura 2.4: Esquema de detector proporcional gasoso unidimensional, onde o sinal de saída vai para os pré-amplificadores (pré-amp.).

chamados de **Detectores Sensíveis à Posição (DSP)**.

O método de leitura de posição baseia-se na utilização de linhas de retardo, que fornecem a posição de incidência a partir do tempo de propagação do sinal induzido no catodo. Este último é segmentado em pistas condutoras independentes, e cada uma destas pistas é ligada a uma das células de uma linha de retardo feita de componentes discretos. O sinal induzido nas pistas de catodo pela carga de ionização é, portanto, espacialmente dividido sobre as pistas do catodo, e levado a se propagar pela linha de retardo em direções opostas. A estimativa de posição é obtida pela medida do tempo de propagação dos sinais.

Conforme indicado na figura 2.2, a amplitude dos sinais na saída da linha de retardo é muito inferior a 1 V. No caso presente, a constante de tempo é definida pela impedância da linha de retardo (da ordem de uma centena de Ω ou inferior), e pela capacitância do detector (da ordem de dezenas de

pF). Espera-se, portanto, um sinal de amplitude inferior a 1 mV na saída do detector. A fim de que este sinal possa ser analisado, a primeira etapa de processamento deve ser necessariamente a pré-amplificação. Esta etapa não é qualificada simplesmente como amplificação porque o nível de ruído eletrônico presente nos dispositivos amplificadores é tipicamente da ordem de magnitude do sinal que ora se pretende amplificar. O pré-amplificador é, por isto, um dispositivo de importância particular: primeiro responsável, na cadeia eletrônica, pela qualidade das medidas feitas com o detector.

Em seguida, os sinais pré-amplificados nas extremidades da linha de retardo passam por circuitos discriminadores. A função destes é emitir um sinal lógico quando a amplitude do sinal pré-amplificado exceder um nível de tensão estabelecido acima do ruído eletrônico, ou seja, quando for detectada uma partícula. O conjunto pré-amplificador + discriminador define a relação sinal/ruído do sistema de detecção, e esta é um parâmetro de qualidade importante para o sistema completo.

A diferença de tempo entre os sinais lógicos emitidos pelo discriminador contém a informação sobre posição de incidência da partícula detectada. No caso presente, esta diferença é medida por um módulo conversor tempo amplitude (*Time to Amplitude Converter* - TAC) comercial em padrão NIM [20]. A amplitude do sinal de saída do TAC é diretamente proporcional à diferença de tempo entre os sinais dos dois discriminadores. Para assegurar que um dos sinais discriminados preceda seu par, um módulo de retardo externo, também comercial, é introduzido entre um dos discriminadores e o TAC (seção 2.5).

A partir do TAC, o processamento de sinais passa a ser digital. Cada pulso é digitalizado por um conversor analógico-digital, e os resultados de conversão são armazenados em registradores que são lidos e alocados em endereços de memória, de modo a construir um histograma de contagem *versus* posição. Todo o processamento digital, em nosso caso, é feito por um único módulo que opera conectado ao barramento de entrada/saída de dados de computadores compatíveis com a linha IBM-PC. Um programa realiza a interface entre este módulo e as instruções externas controladas por usuários do sistema de detecção.

Descrevemos a seguir alguns aspectos técnicos de cada um dos elementos acima mencionados.

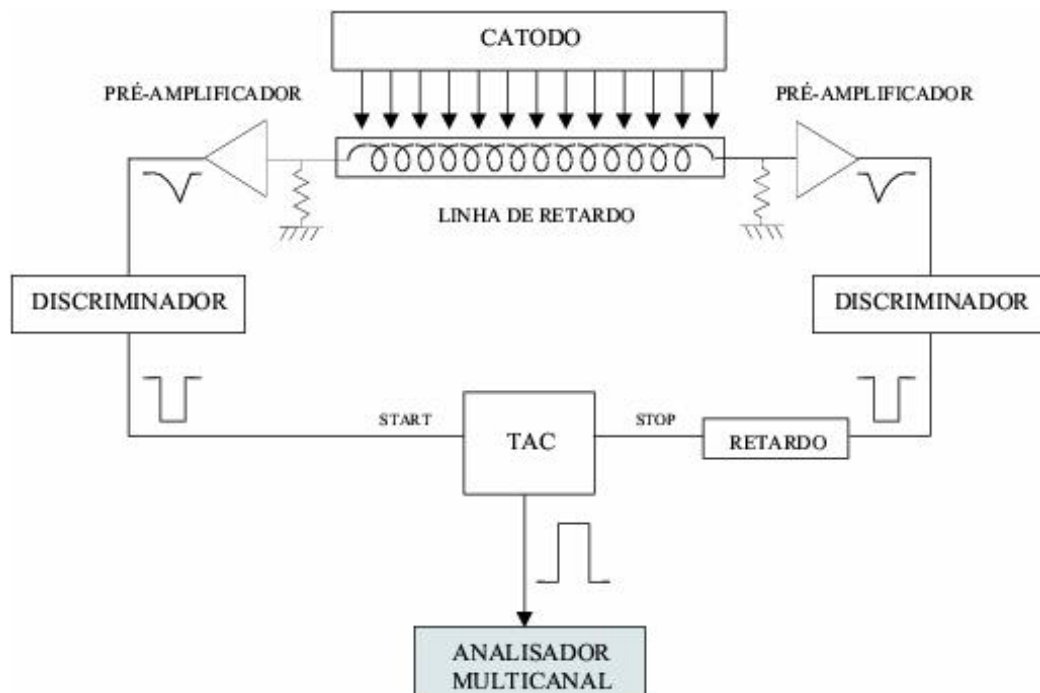


Figura 2.5: Esquema do sistema de leitura de posição para detector monofilar.

2.2.1 Linhas de retardo

As linhas de retardo aqui referidas são feitas de células compostas por capacitores e indutores. Um dos modelos mais simples de linha de retardo consiste na justaposição de células do tipo π , mostrado na figura 2.6(a). Pode-se mostrar que este tipo de células apresenta os seguintes parâmetros elétricos característicos:

$$Z = \frac{\sqrt{L/C}}{\sqrt{1 - (\omega/\omega_0)^2}} \quad (2.18)$$

$$\tau = \sqrt{LC} \quad (\text{para } \omega \ll \omega_0) \quad (2.19)$$

$$\omega_0 = \frac{2}{\sqrt{LC}} \quad (2.20)$$

onde ω é a frequência de cada componente espectral de um sinal de entrada, Z é a impedância, τ o retardo ou tempo de propagação por célula, e ω_0 é uma frequência característica que define a banda passante do sinal de entrada;

Nota-se, da expressão para Z , que para $\omega \ll \omega_0$ a impedância - como o retardo - tende para um valor constante $Z_0 = \sqrt{\frac{L}{C}}$. A escolha de L e de C é feita de modo a assegurar que tenhamos, na medida do possível, $\omega \ll \omega_0$. A fim de evitar reflexões de sinal nas extremidades da linha de retardo, esta é normalmente terminada por um resistor de valor $R = Z_0$.

Pode-se também mostrar que um outro tipo de célula de retardo, derivado da célula π , apresenta a mesma impedância característica. Nesta célula (mostrada na figura 2.6(b)), denominada **derivada m** da célula original, as capacitâncias e indutâncias têm valores [17]:

$$C' = mC \quad (2.21)$$

$$L' = mL \quad (2.22)$$

$$C'' = \frac{1 - m^2}{4m} C \quad (2.23)$$

onde m é um valor constante, escolhido de modo que o desempenho da célula derivada seja superior ao da célula original.

Para $m = 0,6$ verifica-se que a faixa de frequências para a qual Z é constante é mais extensa que no caso das células π [17]. Por isto as células derivadas m são preferíveis e são as que usamos na montagem das linhas de retardo do DSP.

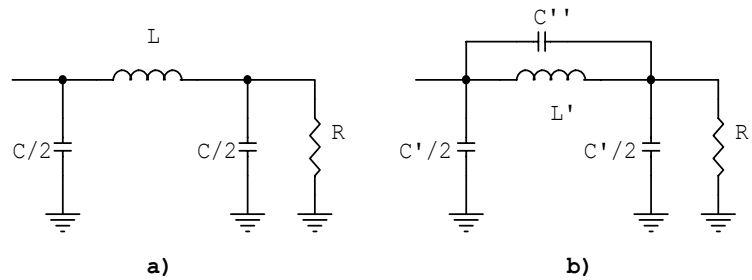


Figura 2.6: **a)** Célula π com a terminação R equivalente à impedância característica **b)** célula derivada m terminada com a impedância característica R' .

2.2.2 Pré-amplificadores

No presente trabalho foram utilizados quatro modelos de pré-amplificadores. Três deles foram desenvolvidos no próprio Laboratório de Sistemas de Detecção do CBPF: um pré-amplificador de voltagem que só contém componentes discretos (P_{volt}), um pré-amplificador de carga (P_{car}) e um pré-amplificador de voltagem desenvolvido especificamente para melhorar a relação sinal/ruído do DSP. Este último combina estágios de componentes discretos com um estágio em circuito integrado. Para fins de comparação, foi também utilizado um amplificador de carga comercial (P_{com}).

- P_{volt} (ilustrado na figura 2.7) é um pré-amplificador de voltagem com alta impedância de entrada. Consiste em cinco estágios de ganho constituídos por transistores. O primeiro deles, o de entrada, usa um transistor a efeito de campo (FET, Motorola 2N5245A ou Philips F245A) cuja tensão de “gate” é regulada por um potenciômetro, permitindo assim um ajuste de ganho. Os outros quatro estágios de ganho idênticos montados em cascata usam transistores bipolares 2N2369. O último transistor, também um 2N2369A em configuração coletor-comum, é um “driver” de corrente para a saída. A alimentação de +12V passa por um filtro π do tipo LC e há filtros RC passa-alta tanto no sinal de entrada (IN na figura 2.7) quanto no de saída (OUT) para desacoplamento, ou seja, para eliminação de níveis DC (voltagens constantes). Este circuito foi usado na fase inicial do trabalho, quando se buscava estabelecer a estrutura básica do sistema de detecção.

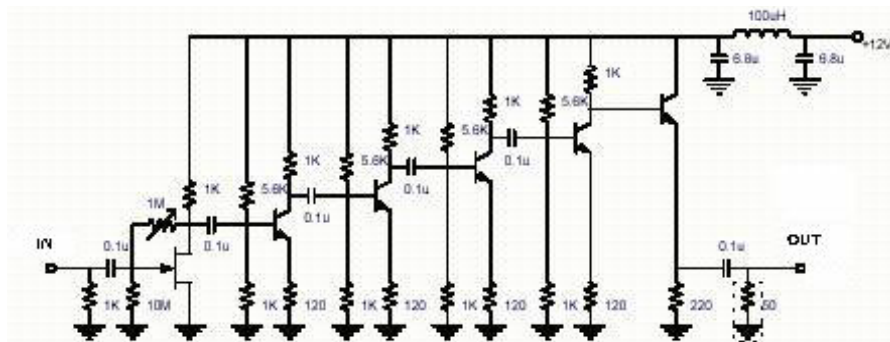


Figura 2.7: Esquemático de P_{volt} , onde a terminação de saída de 50Ω aparece envolvida pela linha tracejada [24].

- P_{car} (figura 2.8) é um pré-amplificador de carga que usa o amplificador operacional LM6265 [25]. As alimentações DC (-12 V e $+12 \text{ V}$) e os sinais de entrada e de saída são filtrados da mesma maneira que em P_{volt} e há diodos de proteção contra os pulsos de descargas. Um capacitor e um resistor em paralelo definem o circuito de realimentação do amplificador operacional. Com esta configuração obtém-se a integração do sinal de entrada [26], que corresponde à carga elétrica do mesmo. P_{car} é usado para se medir o ganho intrínseco do detector em função da voltagem de operação. Com isto determina-se a faixa de voltagem para operação em regime de contador proporcional.

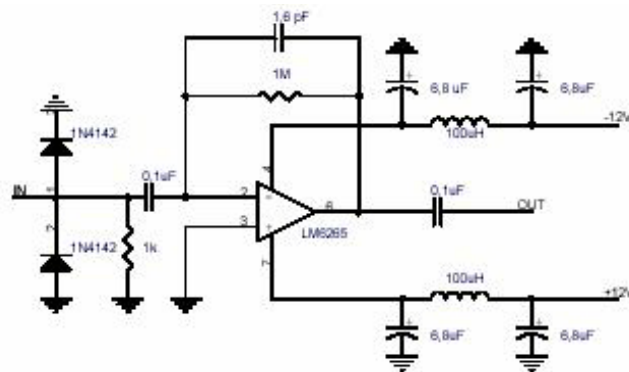


Figura 2.8: Esquemático de P_{car} [17].

- P_{novo} usa o mesmo tipo de filtragem descrito para P_{volt} e P_{car} , como pode ser visto na figura 2.9. No entanto, este pré-amplificador combina um estágio de ganho com transístores com o amplificador operacional OPA657 [27] e usa alimentações de + 5V e -5 V. Os transístores BFR93A [28] são usados porque são muito rápidos (frequência de transição acima de 4 GHz) e exibem bom desempenho no que concerne a ruído. O transístor de entrada está configurado de modo a prover ganho unitário e impedância de entrada relativamente alta (alguns $k\Omega$). Um estágio de ganho elevado é definido pelo segundo transístor BFR93A. Em seguida, um “driver” de corrente é implementado usando um transístor bipolar mais simples (2N2369A). O estágio de saída utiliza um amplificador operacional configurado para acrescentar ganho de um fator 20. Com P_{novo} pudemos melhorar tanto o tempo de resposta (“*rise-time*”) aos pulsos do detector quanto a relação sinal/ruído. Seu desenvolvimento foi objeto de um trabalho específico, e mostrou-se útil para outros sistemas de detecção (em particular um sistema de câmeras multifilares para detecção de múons usado no Centro Europeu de Pesquisa Nuclear - CERN). O texto referente ao trabalho completo está no Apêndice C.
- P_{com} [29] é um pré-amplificador comercial de carga: Ortec 142IH. Foi usado para fins de comparação com o pré-amplificador desenvolvido em laboratório.

2.2.3 Discriminadores

Discriminadores são dispositivos que produzem uma saída lógica não-nula se o sinal de entrada for maior do que um nível de tensão fixo, definido externamente (em geral através de um potenciômetro). Outros tipos de discriminador disparam apenas quando o sinal de entrada excede uma fração de sua amplitude máxima. Este modo de operação - denominado “fração constante” - oferece maior precisão nas medidas de tempo. Neste trabalho foi usado um discriminador comercial do tipo fração constante (Ortec 584) [31].

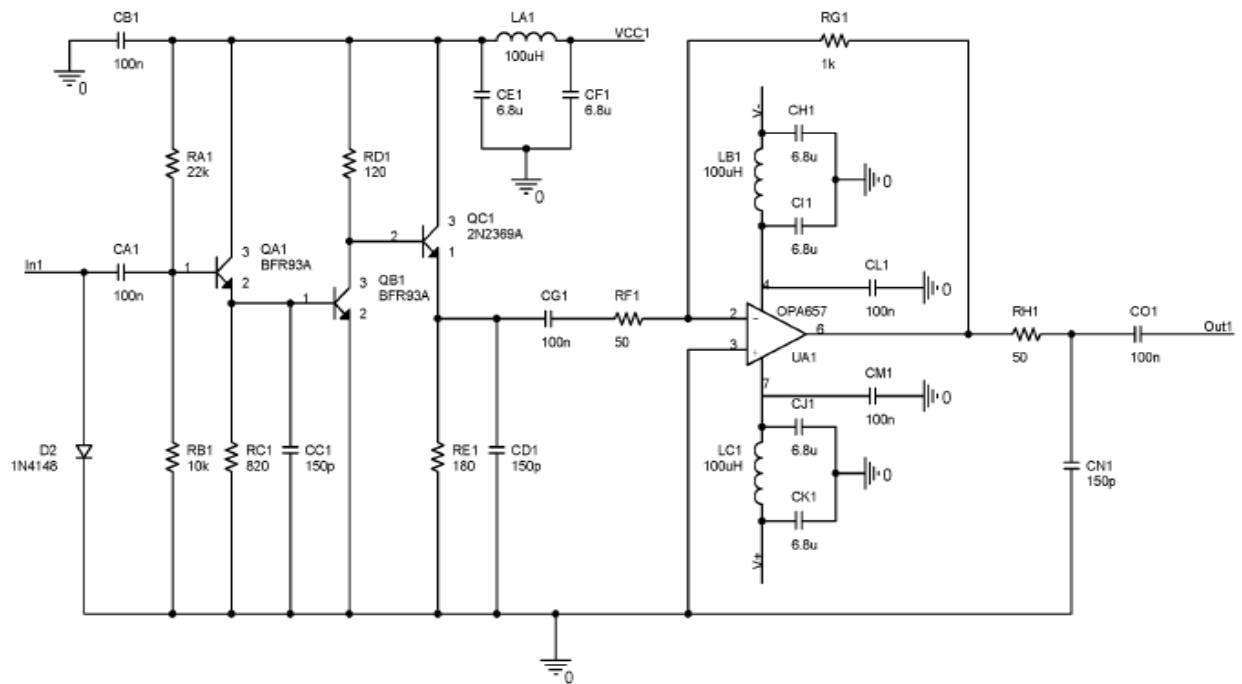


Figura 2.9: Esquemático de P_{nova} . $V_+ = V_{CC} = +5V$ e $V_- = -V_{CC}$.

2.2.4 TACs e módulos de retardo

Conversores Tempo-Amplitude, ou TACs, são dispositivos que fornecem como saída pulsos analógicos com amplitude proporcional ao tempo decorrido entre um primeiro sinal de entrada (“*START*”) e o próximo (“*STOP*”). No presente caso, *START* e *STOP* são os dois sinais pré-amplificados das extremidades das linhas de retardo. Os elementos fundamentais nesta conversão são um capacitor e uma fonte de corrente constante. Entre a fonte e o capacitor existem duas chaves (na verdade, transístores que desempenham esta função), uma que é fechada com a chegada de um sinal na entrada *START* e outra que é aberta com a chegada de um sinal de *STOP*. Deste modo, o capacitor é carregado e a carga nele acumulada é convertida em um sinal cuja amplitude é proporcional ao tempo em que a fonte ficou conectada, ou seja, à diferença de tempo entre os sinais *START* e *STOP*. Este método, puramente analógico, apresenta precisão na faixa de pico-segundos, e mostrou-se confiável a ponto de ter-se tornado uma tradição nas medições de intervalos

de tempo. Utilizamos um modelo comercial (Ortec 566) [32], que opera na faixa de 50ns a 2ms.

Os módulos de retardo são dispositivos relativamente mais simples, cuja função é introduzir um atraso ajustável a algum sinal de entrada. Na verdade, estes dispositivos recebem um sinal de entrada e geram outro sinal na saída, depois de decorrido um intervalo de tempo. Isto os diferencia das linhas de retardo, nas quais o mesmo sinal de entrada é atrasado pelo efeito da propagação através de células RC. Seu uso junto ao TAC, conforme mostrado na figura 2.5, garante que o sinal *START* sempre precede o sinal *STOP*, desde que o retardo programado seja superior ao tempo de propagação total imposto pela linha de retardo. O módulo de retardo utilizado foi o modelo Ortec 416A.

2.2.5 MCAs

Os MCAs (“MultiChannel Analyzers” - Analisadores MultiCanal) têm como função separar os pulsos de entrada de acordo com as amplitudes e fornecer um histograma, ou espectro. Os MCAs, em geral, podem ser divididos nos seguintes blocos principais: estágio analógico (“buffer” e discriminadores), ADC (“Analog to Digital Converter” - Conversor Analógico-Digital), memória e circuitos de processamento digital.

ADCs são dispositivos que transformam uma característica de um pulso analógico, por exemplo, a amplitude, em um sinal digital (um número binário). Existem várias técnicas para realizar isto, porém uma das mais utilizadas é a de aproximações sucessivas, na qual o sinal de entrada é comparado com sucessivos valores de tensões de referência (cada um associado a um número binário) até que a diferença entre o sinal de entrada e o de referência seja menor que um valor limite (que é uma característica do ADC - sua resolução). Enfim, o número binário associado a esse valor de referência é a saída do ADC.

Nas medidas deste trabalho, utilizamos um MCA desenvolvido no próprio laboratório [33], com desempenho compatível com MCAs comerciais e custo menor. Os MCAs utilizados consistem de “hardware” (placas de circuito impresso que são inseridas no barramento ISA dos microcomputadores) e “software” (programas com interface gráfica - ver subseção 2.3.1) que permitem fazer várias operações, inclusive a gravação dos dados e a visualização dos resultados na tela em forma de gráficos.

O MCA do laboratório utiliza Dispositivos Complexos de Lógica Pro-

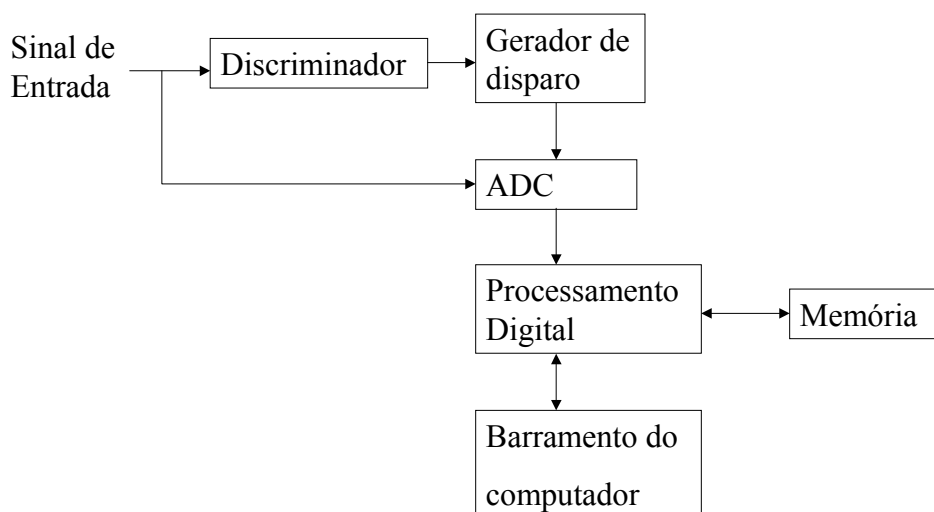


Figura 2.10: Diagrama de blocos para o MCA feito no laboratório.

gramável (CPLDs da sigla em inglês) para realizar as funções lógicas do processamento digital, ao contrário de outros MCAs que utilizam microprocessadores para isso. Através da técnica de máquinas de estado são gerados diversos sinais de controle que realizam as etapas do processamento digital dos dados. O dispositivo usado no MCA é a CPLD XC95108 da Xilinx [34]. O ADC utilizado foi o AD976ACN, da Analog Devices[35], que usa o método de aproximações sucessivas.

Este sistema funciona da forma ilustrada na figura 2.10. O sinal de entrada vai para o ADC e para um discriminador (com tensão de limiar que é previamente ajustada pelo usuário). Se a saída do discriminador for não-nula, ela ativa um gerador de disparo que faz o ADC amostrar o sinal analógico de entrada, convertendo-o para um número binário. A saída digital é então enviada para o processamento digital, onde ocorre um processo de histogramação, cujo resultado é guardado finalmente na memória. O programa de controle no computador envia instruções de início e fim de aquisição, e faz a leitura dos histogramas resultantes, através do barramento.

2.3 Programas de computador

Tanto para a aquisição dos dados do sistema de detecção, quanto para o posterior tratamento, foram utilizados programas para computadores pessoais (PCs). Foram utilizados pacotes comerciais como o Microcal Origin, assim como programas desenvolvidos no próprio laboratório, como se descreve a seguir.

2.3.1 Programa de aquisição de dados

Para o controle da aquisição e posterior visualização e armazenamento dos dados obtidos pelo sistema descrito, é necessário utilizar um programa de computador.

Este programa (chamado Acq1D) foi desenvolvido no ambiente DELPHI [37], que permite usar a linguagem PASCAL e a linguagem de baixo nível Assembly, juntamente com elementos gráficos do sistema Windows. O programa funciona em microcomputadores com sistema operacional Windows 95 ou versões posteriores. As rotinas em Assembly são utilizadas na comunicação entre o PC e o MCA, seja na transferência de dados entre memória e placa, seja na escrita dos sinais de controle do circuito: READ (leitura) e WRITE (escrita).

As principais características do sistema são: permitir o controle da aquisição (pela escolha do tempo de duração ou através de botões para iniciá-la e encerrá-la) e permitir a visualização do espectro das medidas sob a forma de um gráfico, onde a ordenada é o número de contagens e a abscissa é o número de ordem do canal (que pode ser calibrado para posição de incidência do fóton, como será visto no capítulo 3). O programa oferece diversas outras ferramentas que podem ser acionadas pelo usuário de forma simples por meio de botões e menus existentes no programa, como se vê no exemplo de aquisição mostrado na Figura 2.11. Quanto aos gráficos, é possível usar escala linear ou logarítmica, selecionar regiões de interesse e visualizar vários espectros simultaneamente, entre outras possibilidades. O programa permite gravar os dados nos formatos ASCII, JPEG e BITMAP, além de um formato próprio do programa (extensão .uni).

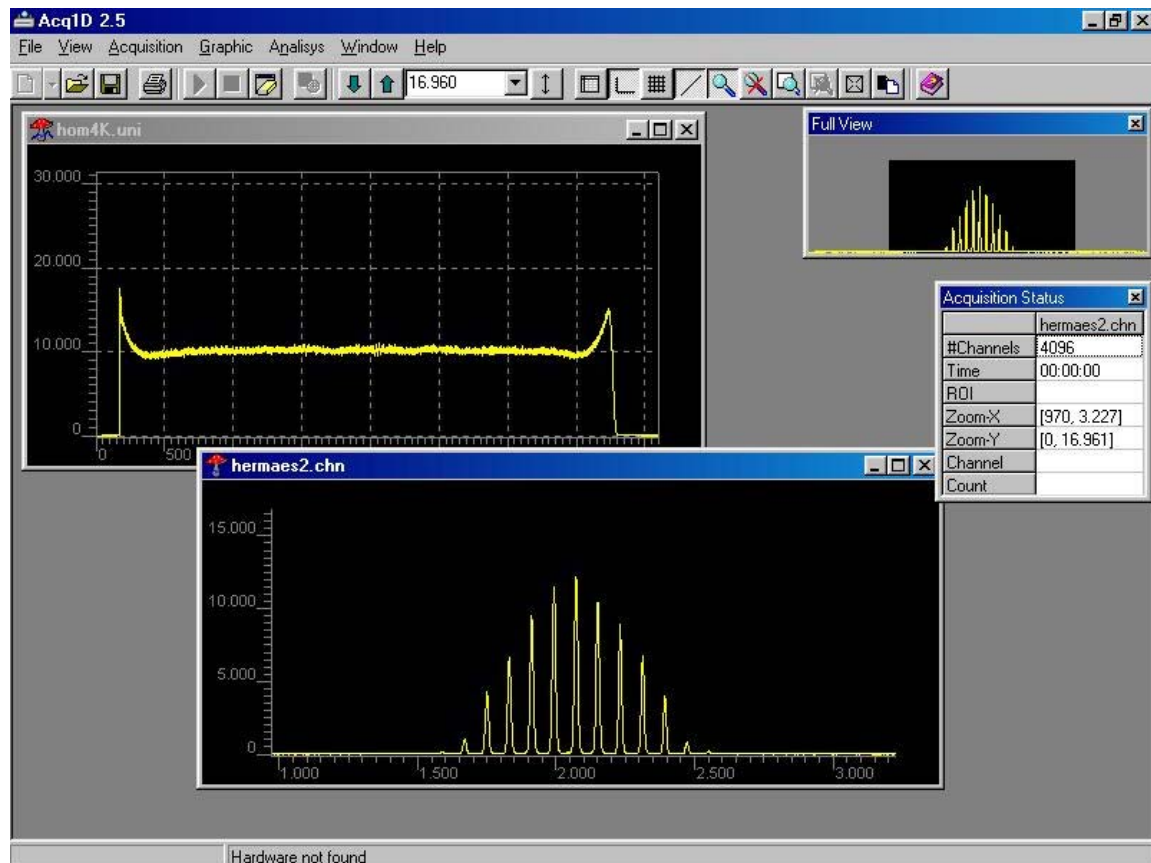


Figura 2.11: Exemplo de medidas de posições de incidência de radiação obtidas com o programa AcqId e o MCA desenvolvido no laboratório.

Capítulo 3

Um sistema de detecção para difratometria de pó

Na subseção 1.4.2 foi descrito o arranjo experimental geralmente usado para se registrar o padrão de difração de uma amostra policristalina. Este arranjo permite a obtenção de difratogramas de excelente qualidade, devido à combinação de vários elementos geométricos (mostrados no Apêndice A) e ópticos, entre os quais podemos destacar:

- **Operação em modo de reflexão:** A amostra cristalina é disposta sobre uma superfície plana, que faz ângulo θ em relação ao feixe de radiação incidente. A observação do feixe difratado é feita na direção definida pelo ângulo 2θ , que corresponde ao feixe refletido pela superfície da amostra. Caso esta posição corresponda a uma reflexão de Bragg para algum plano cristalino (ver subseção 1.3.2), um máximo de intensidade é aí registrado. O fato de se trabalhar em regime de reflexão implica melhor aproveitamento da intensidade do feixe direto, já que assim se reduz a probabilidade de absorção do feixe difratado pela própria amostra (o que tende a ocorrer quando se opera em regime de transmissão).
- **Geometria de focalização:** Dada uma posição da superfície da amostra definida pelo ângulo θ relativamente ao centro do feixe direto, nota-se que todos os cristalitos - aleatoriamente orientados - que estejam alinhados segundo o mesmo ângulo θ em relação a qualquer subfeixe do feixe direto, apresenta um feixe refletido que converge para um único ponto (ver Apêndice A). Dispondo-se um contador de partículas

sobre este ponto, obtém-se a melhor definição possível, em termos de resolução espacial, para o perfil de feixe refletido/difratado. O fato de a amostra ser acondicionada em forma de pó - policristais - também contribui para aumentar a intensidade do feixe difratado sobre o ponto de focalização, uma vez que uma grande quantidade de cristalitos contribui para a difração em cada ângulo θ .

O ponto de focalização naturalmente varia com θ , mas descreve um círculo sobre o qual se desloca o detector/contador de partículas. Para cada valor de θ , o detector ocupa a posição 2θ sobre o círculo. O raio do círculo sobre o qual se situam a fonte de radiação, o detector e a superfície da amostra (denominado círculo de focalização) também varia com θ . O círculo centrado na superfície da amostra e sobre o qual se localizam a fonte de radiação e o detector tem raio fixo. Este é o círculo de difração (ver Apêndice A). O arranjo geométrico de um difratômetro de pó é tal que o movimento do detector ocorre precisamente sobre o círculo de difração, alinhado simultaneamente com o círculo de focalização. Esta é a geometria de Bragg-Brentano para difratômetros de raios X.

- **Óptica de preparação de feixe:** Diversos componentes ópticos são interpostos entre a fonte de raios X e a amostra, e entre esta e o detector. Os mais comumente usados são:
 1. Filtro de comprimento de onda: um material absorvedor através do qual passa o feixe direto, a fim de atenuar a componente contínua do espectro de emissão da fonte de raios X, deixando passar favoravelmente a componente característica da fonte (quando esta produz radiação pelo processo de *Bremstrahlung*). Para isto pode também ser usada uma combinação de dois ou mais filtros, que selecionam um comprimento de onda, ou uma faixa de comprimentos de onda, enquanto absorve a radiação relativa a comprimentos de onda fora desta faixa.
 2. Fendas: diferentes fendas podem ser dispostas ao longo da trajetória do feixe, a fim de definir a área de iluminação sobre a amostra. O esquema mais simples consiste em uma fenda vertical e uma fenda horizontal. Para limitar - ou, praticamente, eliminar - a divergência do feixe em alguma direção, usam-se as

fendas chamadas *soller*. Estas contêm uma série de placas metálicas rigorosamente alinhadas em paralelo entre si, e dispostas paralelamente à trajetória principal do feixe direto ou difratado. O efeito das placas é direcionar (selecionar) os fótons na direção paralela, suprimindo a divergência. É comum se dispor também uma fenda próximo à janela do detector, cuja função principal é evitar a detecção de partículas espalhadas pelo próprio ar ou por outros materiais presentes entre a fonte, a amostra e o detector.

3. Monocromadores: ao invés de filtros, pode-se usar um cristal orientado de modo a selecionar um comprimento de onda bem definido. Conhecida a orientação interna do cristal, o mesmo pode ser alinhado convenientemente em relação ao feixe (direto ou difratado), para que somente o comprimento de onda que apresenta reflexão de Bragg nesse alinhamento seja transmitido.

O conjunto destes elementos, mais os dispositivos mecânicos, elétricos e eletrônicos vinculados à movimentação da amostra, do detector, e eventualmente da própria fonte de radiação, definem um difratômetro. Muitas configurações e modelos se desenvolveram e se aprimoraram, resultando numa oferta comercial de dispositivos de alto desempenho para a realização da difratometria de pó.

Entretanto, todo o processo é condicionado à aquisição de medidas em seqüência, cada uma tomando um certo intervalo de tempo. Seja por uma varredura contínua, seja por um levantamento passo-a-passo, a obtenção do espectro de difração requer uma série de amostragens que cubram, ponto a ponto, toda a faixa angular que se pretenda observar. Em conseqüência, a obtenção de difratogramas de boa qualidade costuma tomar tempo da ordem de horas.

Apresentamos a seguir uma alternativa para o sistema de detecção que reduz significativamente o tempo necessário para o registro do padrão de difração. O esquema proposto é basicamente a substituição do contador de partículas por um detector sensível a posição. Com isto é possível o registro simultâneo da intensidade da radiação sobre toda uma faixa angular sobre o círculo de difração, em lugar da varredura ponto a ponto.

Embora haja atualmente oferta comercial de sistemas semelhantes [38, 39], o instrumento aqui descrito apresenta aspectos particulares e originais que o distinguem, sobretudo a velocidade de aquisição e a facilidade de mudar

parâmetros da eletrônica de leitura, conforme expomos na apresentação de suas partes e do método de tratamento de dados.

3.1 Substituição do Contador de Partículas por um DSP

No capítulo anterior foram apresentados o Detector Sensível a Posição (DSP) e a eletrônica de aquisição de dados a ele associada. O interesse principal do DSP, no que nos concerne aqui, é sua capacidade de realizar - em uma posição fixa - a contagem de partículas ao longo de uma dimensão linear. A figura 3.1 ilustra a geometria de um difratômetro em que o contador de partículas é substituído pelo DSP.

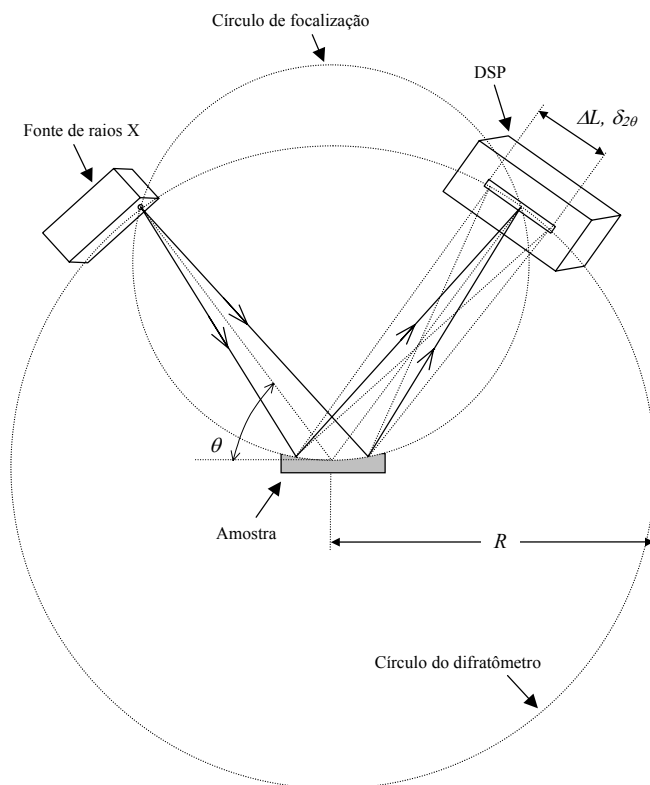


Figura 3.1: Esquema para difratômetro de pó com DSP.

3.1. SUBSTITUIÇÃO DO CONTADOR DE PARTÍCULAS POR UM DSP⁵³

Em função da flexibilidade do difratômetro HZG4 (descrito no item 1.4.2.1), no qual podemos remover e movimentar os elementos ópticos acima mencionados, é possível implementar a configuração de difratômetro mostrada na figura 3.1. Note-se, pela figura, que a uma posição fixa definida pelo ângulo θ entre o feixe incidente e a superfície da amostra, corresponde uma faixa de ângulos de difração determinada pelos parâmetros geométricos do difratômetro e do DSP. No caso presente temos $R \approx 28$ cm, $\Delta L \approx 10$ cm $\implies \delta_{2\theta} \approx 16,37^\circ$.

Este arranjo permite, portanto, a cobertura de todo o intervalo de ângulos de difração a partir de um pequeno número de posições fixas, definidas pelo ângulo θ . Tipicamente, as medidas de difração cobrem a faixa de $2\theta = 10^\circ$ a $2\theta = 100^\circ$, e são realizadas cerca de 5000 amostragens do padrão de difração da amostra (passo de $0,02^\circ$ em 2θ). Esta mesma faixa angular é coberta com 6 amostragens do DSP.

3.1.1 Cálculo da dispersão do ponto de focalização

Uma visão ampliada da figura 3.1 na região da janela do detector mostra que, devido ao fato de esta ser plana, a amostragem do DSP não é feita exatamente sobre o círculo de difração. Este detalhe é mostrado na figura 3.2.

Por semelhança de triângulos, notamos que:

$$\frac{R \cos \lambda}{R} = \frac{R}{R+x} \implies x = \frac{R(1 - \cos \lambda)}{\cos \lambda} \quad (3.1)$$

onde x é a distância entre o círculo de difração e a janela do detector, e λ é o ângulo do feixe difratado medido a partir da posição 2θ . De acordo com a figura 3.2(a), λ varia de $-\frac{\delta_{2\theta}}{2}$ a $+\frac{\delta_{2\theta}}{2}$ (supondo que o centro do detector coincide com a interseção entre os círculos de focalização e de difração). O parâmetro x remete a uma dispersão do ponto de focalização, expressa por Δ na figura, que também pode ser estimada a partir de considerações geométricas. Notamos inicialmente que Δ é dado por (ver figura 3.2(b)):

$$\Delta = s_1 + s_2 \quad (3.2)$$

Para estimar s_1 e s_2 precisamos conhecer a dispersão do ponto de focalização promovida pelo ângulo de divergência 2γ na direção perpendicular a λ . O ângulo γ está identificado na figura 3.2(a) e é expresso por:

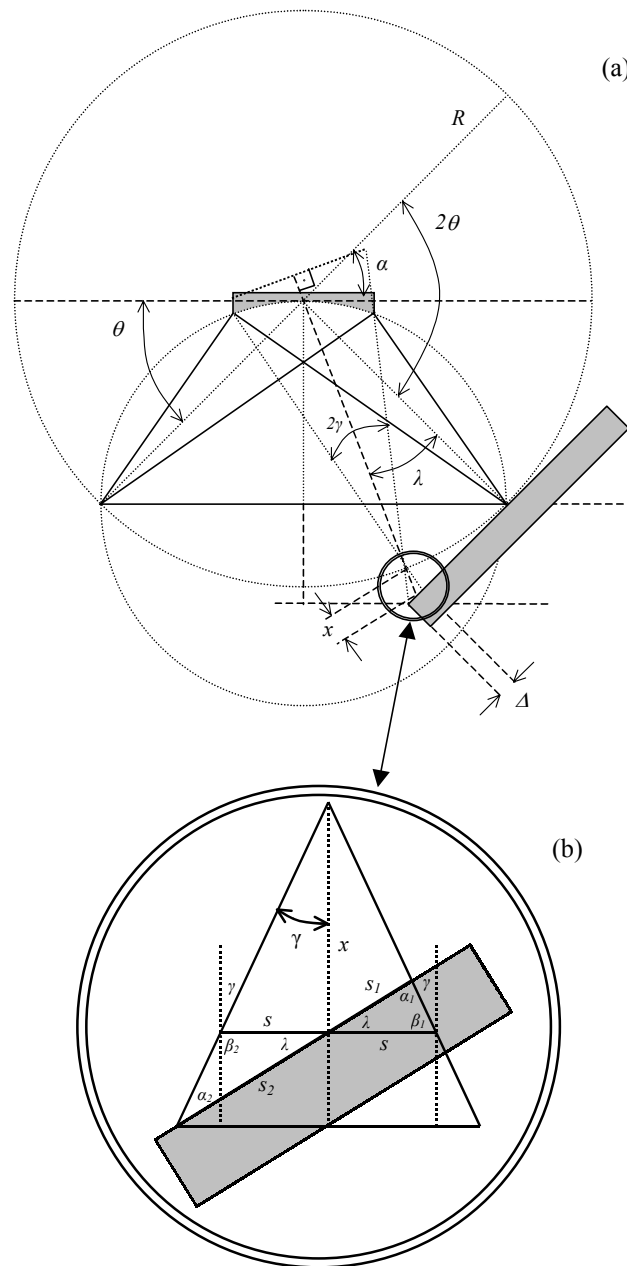


Figura 3.2: Detalhes geométricos explicitando a dispersão do ponto de focalização.

3.1. SUBSTITUIÇÃO DO CONTADOR DE PARTÍCULAS POR UM DSP⁵⁵

$$\operatorname{tg}\gamma = \frac{\frac{L}{2} \cos \alpha}{R + \frac{L}{2} \operatorname{sen}\alpha} \quad (3.3)$$

onde L é o comprimento da região da amostra efetivamente iluminado pelo feixe incidente e $\alpha = \frac{\pi}{2} - (\theta + \lambda)$. Assim:

$$\gamma = \operatorname{tg}^{-1} \left[\frac{\frac{L}{2} \operatorname{sen}(\theta + \lambda)}{R + \frac{L}{2} \cos(\theta + \lambda)} \right] \quad (3.4)$$

Vemos que a dispersão referida é dada por $2s = 2x \operatorname{tg} \gamma$. Note-se que a dispersão $2s$ deve ser projetada sobre a janela do detector - que faz ângulo λ com o segmento de reta definido por $2s$. Esta operação de projeção nos conduz ao valor de Δ . Para executá-la recorreremos à *Lei dos Senos*:

$$\begin{aligned} \frac{s}{\operatorname{sen}\alpha_1} &= \frac{s_1}{\operatorname{sen}\beta_1} \implies s_1 = \frac{s \operatorname{sen}\beta_1}{\operatorname{sen}\alpha_1} \\ \frac{s}{\operatorname{sen}\alpha_2} &= \frac{s_2}{\operatorname{sen}\beta_2} \implies s_2 = \frac{s \operatorname{sen}\beta_2}{\operatorname{sen}\alpha_2} \end{aligned} \quad (3.5)$$

Da própria figura vemos que:

$$\begin{aligned} \beta_1 &= \frac{\pi}{2} - \gamma \\ \beta_2 &= \frac{\pi}{2} + \gamma \\ \alpha_1 &= \frac{\pi}{2} + (\gamma - \lambda) \\ \alpha_2 &= \frac{\pi}{2} - (\gamma + \lambda) \end{aligned} \quad (3.6)$$

Finalmente computamos:

$$\Delta = \frac{s \operatorname{sen}\beta_1}{\operatorname{sen}\alpha_1} + \frac{s \operatorname{sen}\beta_2}{\operatorname{sen}\alpha_2} = s \cos \gamma \left(\frac{1}{\cos(\gamma - \lambda)} + \frac{1}{\cos(\gamma + \lambda)} \right) \quad (3.7)$$

onde $s = x \operatorname{tg}\gamma$, $x = \frac{R[1 - \cos \lambda]}{\cos \lambda}$ e γ é dado pela equação 3.4.

Notemos que, para $\lambda = 0$, ou seja, para o ponto em que a janela do DSP tangencia o círculo de focalização, temos $\Delta = 0$, independentemente do valor de θ . Não há, portanto, dispersão do ponto focalização nesta condição. Esta dispersão não se traduz como erro na posição do feixe difratado, mas antes como um alargamento do perfil deste feixe.

Na figura 3.3 está mostrado o gráfico de Δ como função de λ para várias posições θ . Foram usados os parâmetros $L = 2$ cm e $R = 28$ cm - que se referem ao difratômetro HZG4.

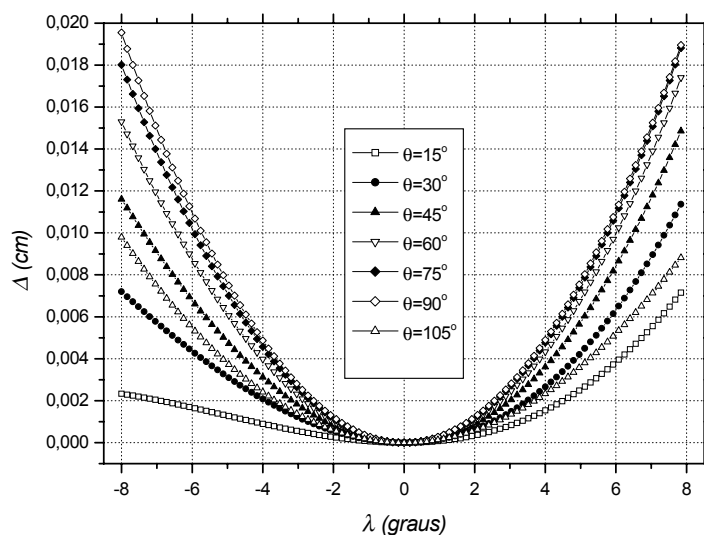


Figura 3.3: Dispersão do ponto de focalização em função de λ e de θ .

Observamos na figura 3.3 que o comportamento de Δ é relativamente complexo: apesar de passar por 0 em $\lambda = 0$ para qualquer valor de θ , não há simetria ao longo da janela do detector. Entretanto, o valor máximo da dispersão é pequeno, inferior a $200 \mu\text{m}$, sobre toda a faixa de difração entre $2\theta = 7^\circ$ e $2\theta = 113^\circ$. A esta dispersão linear corresponde uma dispersão angular, $\frac{\Delta}{R}$, inferior a $0,04^\circ$. Um estudo dedicado à correção dos dados registrados pelo detector levando em conta o erro de dispersão é apresentado no capítulo 5.

3.2 Construção do detector

Do ponto de vista da construção, o DSP pode ser visto como dividido em duas partes principais: a câmara de detecção e a câmara de localização. As duas partes são separadas, embora a montagem final as reduza a uma única peça. Um esquema simplificado da montagem está mostrado na figura 3.4.

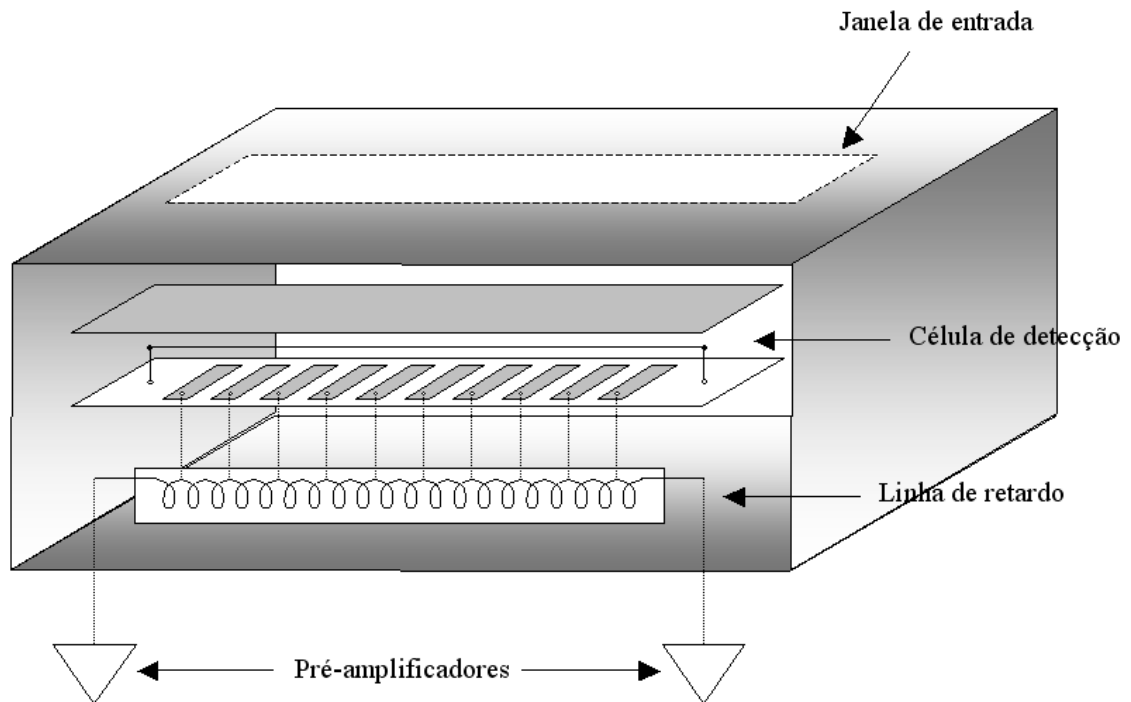


Figura 3.4: Esquema simplificado das partes do DSP.

A câmara de detecção é um compartimento no qual é injetado o gás de operação, e estão dispostos os eletrodos que definem o campo eletrostático. Conforme já exposto no capítulo 2, o anodo é um fio fino (tungstênio revestido com ouro, diâmetro $20 \mu\text{m}$) disposto entre dois planos condutores. Um deles é a própria janela de entrada de radiação, o outro é o catodo de leitura de sinais. Este último é segmentado em pistas individuais, que captam a carga elétrica induzida pelo processo de avalanche originado pela detecção de partículas ionizantes. A montagem do detector é tal que, neste compartimento, apenas os eletrodos estão em contato com o gás de operação.

A cada uma das pistas do catodo é conectada uma das células da linha de retardo. A conexão é feita através de furos metalizados - e vedados com solda - dispostos sobre as pistas.

Do lado externo à câmara de detecção dispõem-se a linha de retardo, suas terminações resistivas, os conectores de sinal e de alta tensão. Esta parte é a que chamamos câmara de localização. Seus elementos são facilmente acessíveis, permitindo eventuais modificações dos parâmetros eletrônicos da captação de sinal.

3.2.1 Descrição das etapas de montagem

Uma série de fotografias está mostrada nas figuras 3.5 a 3.11, que registram o processo de montagem do detector sensível a posição, conforme descrevemos a seguir:

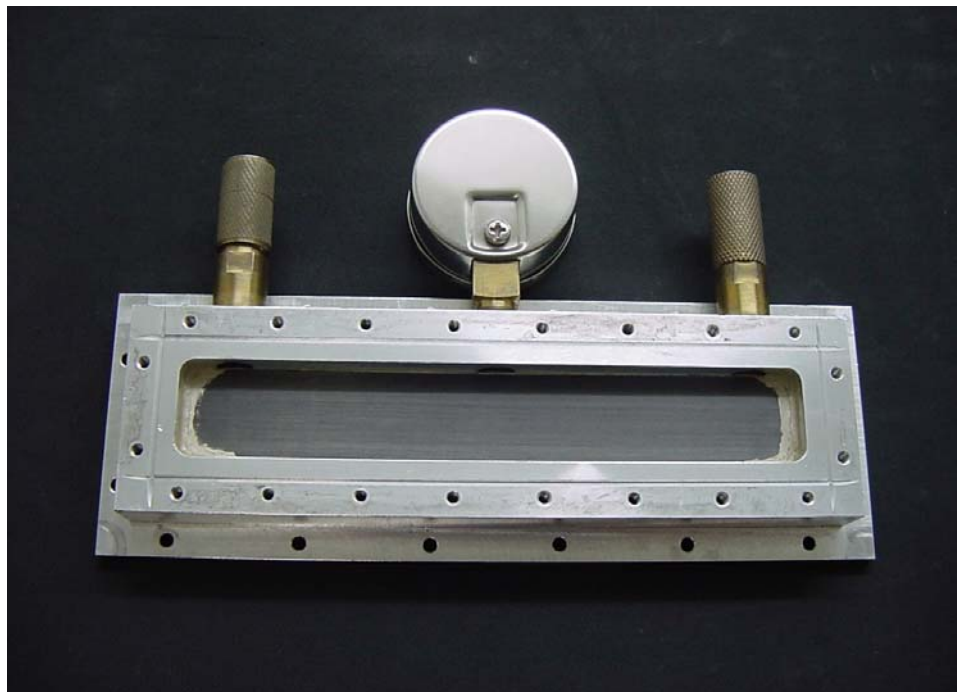


Figura 3.5: Montagem do DSP - Foto 1.

- Foto 1 - Um conjunto de peças é preparado para receber a câmara de detecção. Faz parte do conjunto uma tampa usinada em bloco de alumínio, sobre a qual está colada a janela do detector, de forma que a fresta (janela) por onde a radiação pode passar mede $10 \times 0,835$ cm. O material da janela é fibra de carbono (com 0,4 mm de espessura) colada com cola condutora sobre a tampa de alumínio. A fibra de carbono é um material que absorve um pouco mais os raios X do que o berílio¹ (comumente usado como material para janela de detectores de raios X), mas apresenta as vantagens de ser mais barata, mecanicamente mais resistente e facilmente manipulável. Duas válvulas, para entrada e saída de gás, e um manômetro, para controle permanente da pressão do gás de operação, são aparafusados e colados ao bloco de alumínio;

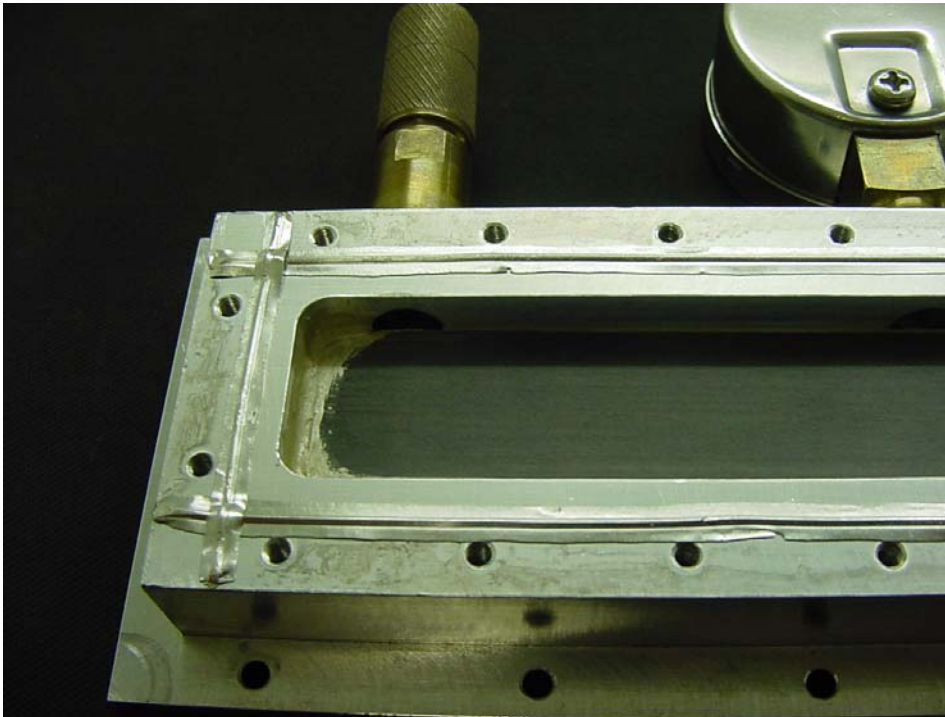


Figura 3.6: Montagem do DSP - Foto 2.

¹Mais precisamente, usando os valores de μ e ρ [8] na equação 2.12, verifica-se que a absorção em 0,4 mm de percurso é de 32% para a fibra de carbono contra 7% para o berílio.

- Foto 2 - Sobre a superfície superior da tampa são previstas ranhuras para instalação de um anel de vedação, de modo que a próxima peça da montagem (incluindo anodo e catodo de leitura de sinal) defina uma região hermética para a câmara de detecção. A foto mostra um detalhe da montagem, onde se vê o anel de vedação já instalado. O material (na forma de um fio com diâmetro de 1 mm) desse anel é índio, um metal maleável com excelentes propriedades para este tipo de aplicação;

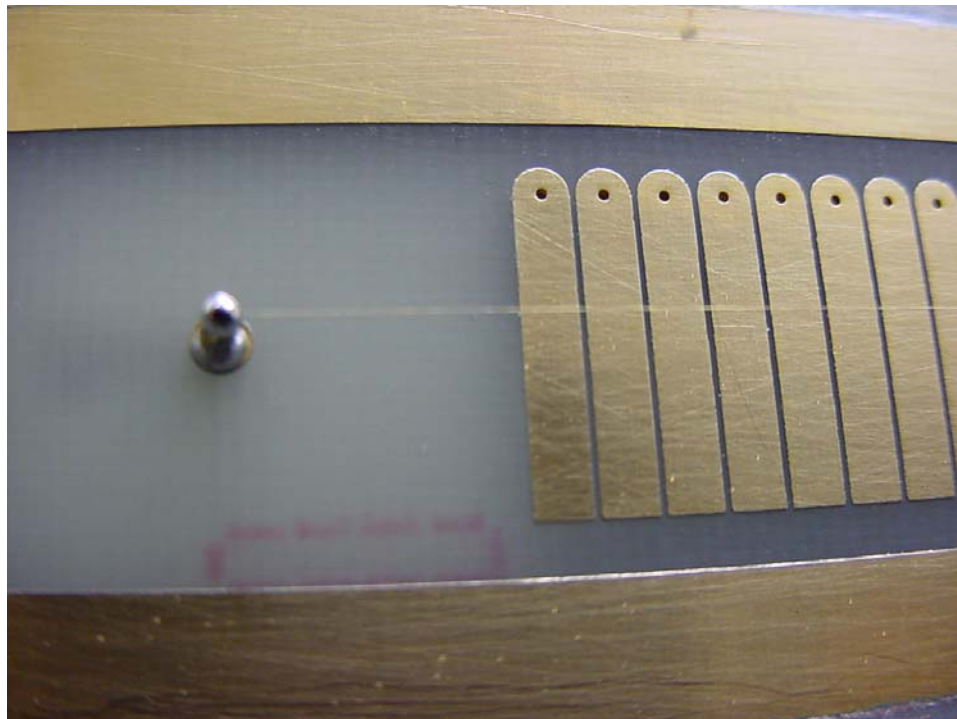


Figura 3.7: Montagem do DSP - Foto 3.

- Foto 3 - Detalhe de uma peça que inclui o catodo de leitura de sinal, com suas pistas condutoras segmentadas, a um passo de 2,54mm, e seus respectivos furos metalizados. Na mesma peça são soldados dois pinos, de altura 3 mm, sobre os quais é soldado o fio anodo, sob a tensão de um peso com aproximadamente 70 g. A profundidade da câmara de detecção é de 6 mm, de modo que o fio anodo fica disposto perpendicularmente às pistas de catodo e centrado entre a janela e estas

pistas. Esta peça é fabricada em fibra de vidro de espessura 2,4 mm, com tecnologia de circuito impresso. Um revestimento de ouro é aplicado à superfície de cobre do circuito, para garantir melhor estabilidade química aos eletrodos. Do lado oposto às pistas é soldado um conector para conexão da linha de retardo. A própria solda dos pinos dos conectores preenche completamente os furos metalizados, eliminando a possibilidade de fuga de gás pelos mesmos;

- Foto 4 - O conjunto com anodo e catodo de leitura é disposto sobre a câmara de detecção, e uma peça em alumínio é aparafusada ao bloco. A função desta peça é distribuir a pressão dos parafusos sobre a superfície do primeiro bloco, esmagando o fio de índio que realiza a vedação. Vêem-se na foto o conector para linhas de retardo e o cabo para aplicação de alta tensão já soldados;

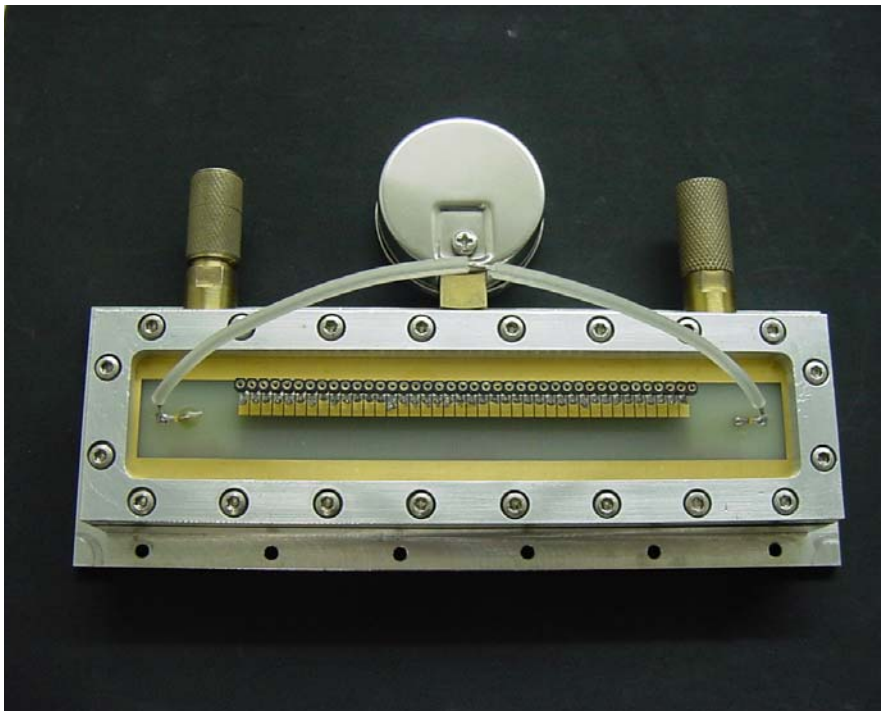


Figura 3.8: Montagem do DSP - Foto 4.

62CAPÍTULO 3. UM SISTEMA DE DETECÇÃO PARA DIFRATOMETRIA DE PÓ

- Foto 5 - O circuito da linha de retardo, previamente confeccionado, é conectado às pistas de catodo. No total são implementadas 50 células de retardo, uma para cada pista de catodo mais 5 células de guarda a cada lado do circuito. O circuito de retardo é descrito na subseção 2.2.1. Os indutores são obtidos por enrolamento de um fio esmaltado (7 voltas por célula) em torno de um núcleo de fibra de vidro de 6 mm de diâmetro. A indutância mútua entre bobinagens adjacentes melhora o desempenho do circuito, mas impõe uma assimetria em suas extremidades, por esta razão são instaladas as células de guarda. Os valores característicos da linha são: 27 pF entre indutor e terra, 12 pF em paralelo com o indutor e 140 Ω de terminação. Na foto, também se vêem os resistores de terminação da linha de retardo e os cabos para conexão de sinal e aterramento;

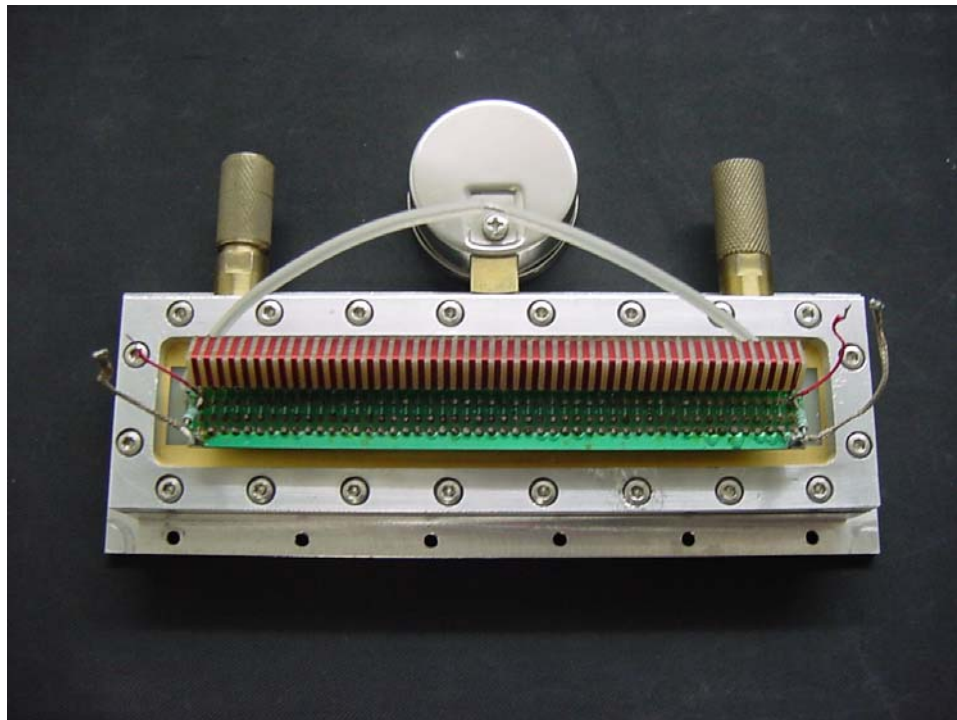


Figura 3.9: Montagem do DSP - Foto 5.

- Foto 6 - Outro bloco usinado em alumínio é instalado, configurando o

corpo de detector. Sobre este estão soldados os conectores (em padrão LEMO) a partir dos quais são observados os sinais induzidos sobre as pistas do catodo, bem como o conector de alta tensão (em padrão SHV). Na foto, as conexões já estão feitas, e podemos ver claramente o que denominamos câmara de localização. Conforme anunciado acima, esta câmara é isolada da câmara de detecção, e pode ser facilmente acessada sem a necessidade de se interferir no volume ativo, onde se encontra o gás de operação. Uma tampa (não mostrada na foto), também em alumínio, é aparafusada ao corpo do detector, de modo que a câmara de localização se torna uma gaiola de Faraday. Este aspecto é importante para a qualidade do sinal, bem como para a integridade da relação sinal/ruído;

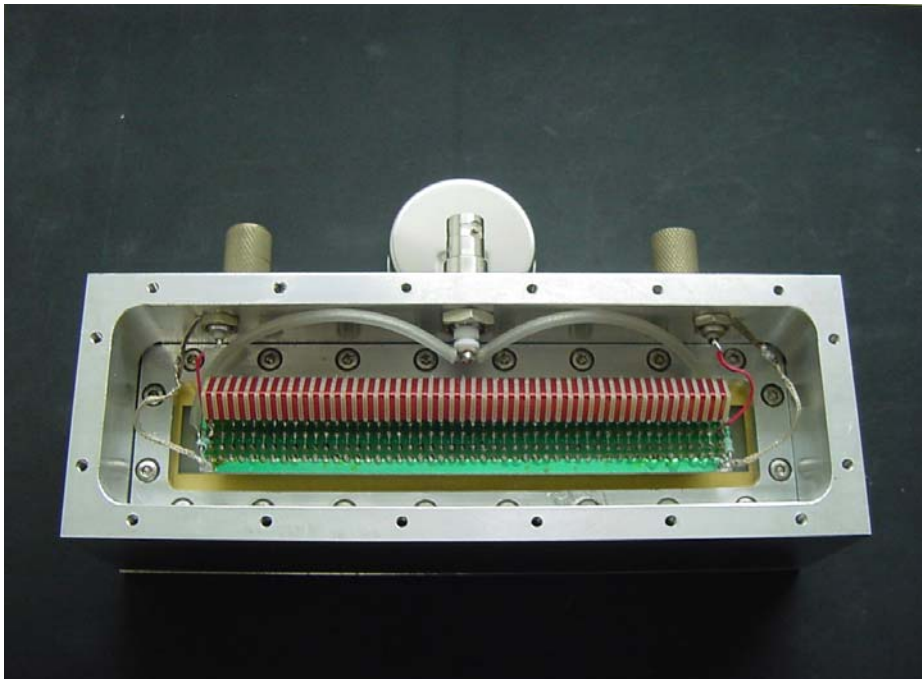


Figura 3.10: Montagem do DSP - Foto 6.

- Foto 7 - Final do processo: montagem concluída do detector proporcional gasoso com janela de 10 cm e com câmara de detecção separada da câmara de localização.

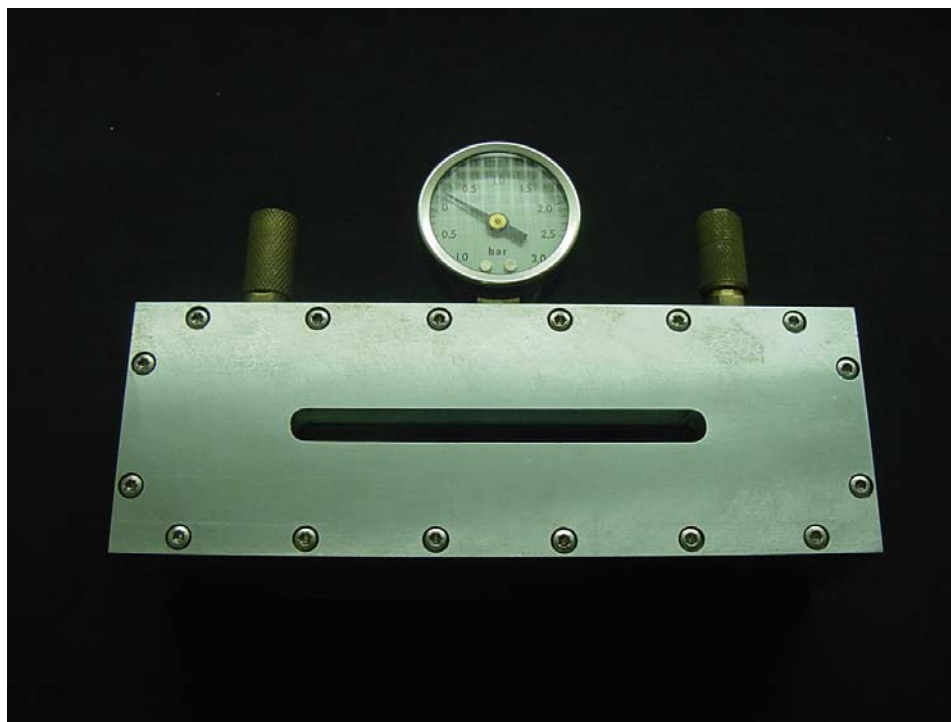


Figura 3.11: Montagem do DSP - Foto 7.

Terminada a montagem, é feito vácuo da ordem de 10^{-5} – 10^{-6} mBar à câmara de detecção, a fim de suprimir contaminações em nível microscópico. Esta operação é elaborada e conduzida de tal maneira que o gás de operação (Argônio + 25% de C_2H_6 , pressão de 2 atm) é injetado sem que haja possibilidade de contaminação pelo ar.

3.3 Medidas de Caracterização

Algumas medidas básicas de caracterização são necessárias para que se verifique o comportamento do detector, e para que se estimem parâmetros relevantes para a confiabilidade das medidas com ele realizadas. As medidas apresentadas nesta seção foram feitas com uma fonte radioativa (^{55}Fe , linha de emissão de 5,9 keV) que emite fótons (raios X) de energia próxima à radiação característica do tubo de cobre usado no difratômetro.

3.3.1 Homogeneidade

Considerando que o DSP atua como uma série praticamente contínua de detectores posicionados lado a lado ao longo de uma coordenada linear, importa saber se todos os detectores da suposta série apresentam a mesma eficiência para detecção de partículas. Para quantificar esta característica, iluminamos a janela do detector com a fonte disposta a uma distância de 27 cm, alinhada aproximadamente segundo o centro do fio anodo e perpendicular ao plano catodo. Como a fonte de ^{55}Fe é homogênea e isotrópica, espera-se que o mesmo número de partículas por unidade de tempo incida sobre o comprimento ativo do detector, a menos de flutuações estatísticas e correções devidas à distância finita entre detector e fonte. Um resultado típico deste tipo de medida é mostrado na figura 3.12.

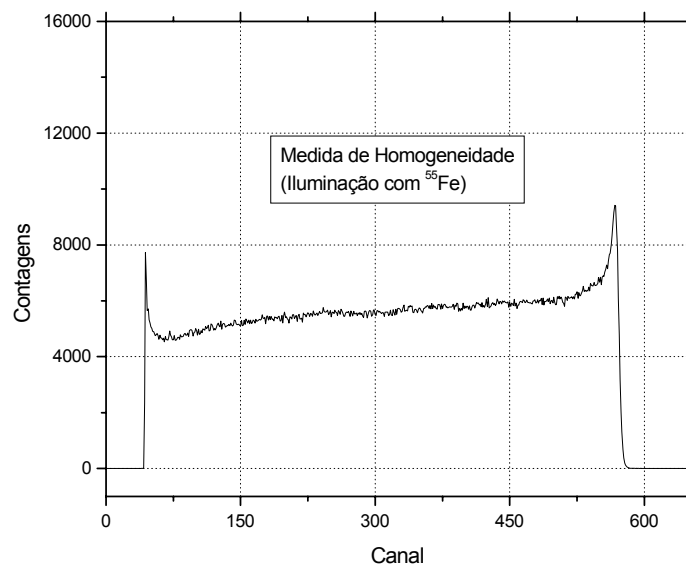


Figura 3.12: Espectro de homogeneidade.

Notamos um desvio do padrão de homogeneidade nas extremidades do espectro, que é esperado devido à combinação dos seguintes fatores: efeitos de borda do campo eletrostático na região das pontas do fio anodo, com-

portamento diferenciado para sinais elétricos coletados próximo às células de guarda da linha de retardo, ausência de pistas de catodo sob as extremidades do anodo (ver **Foto 3**). Também notamos um comportamento sistemático: aumento suave da contagem na direção ao longo da janela. Foi verificado que este comportamento não está relacionado unicamente ao alinhamento da fonte, nem à geometria interna do detector. Trata-se portanto de um efeito da eletrônica de aquisição de dados. À parte estas considerações, observa-se que não há defeitos maiores do padrão de homogeneidade. Na figura 3.13, mostramos a região interna do espectro e uma comparação com o erro estatístico esperado para a taxa de contagem registrada ($\sigma = \pm\sqrt{N}$, onde N é o número de contagens por canal). Concluímos desta figura que o grau de homogeneidade do DSP é comparável - senão inferior - ao erro estatístico esperado, pelo menos até a faixa próxima de 10^4 contagens por canal. A linearidade diferencial [16] obtida para o sistema é de 4,93%.

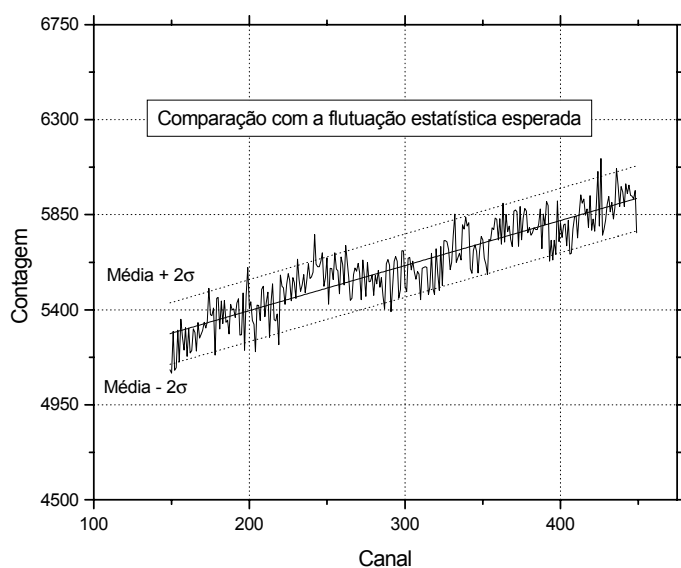


Figura 3.13: Comparação do espectro de homogeneidade ao erro estatístico esperado.

3.3.2 Resolução espacial

O DSP está proposto para atuar num difratômetro onde são amostrados perfis de feixes de difração. Materiais cristalinos apresentam perfis de largura muito pequena, tipicamente inferior a 1 grau. A medida da resolução espacial do DSP nos permite estimar sua aplicabilidade para este fim. Para realizá-la, preparamos um feixe da fonte ^{55}Fe , colimado por uma fenda de largura muito inferior à resolução esperada (da ordem de centenas de μm). O arranjo experimental está mostrado na figura 3.14.

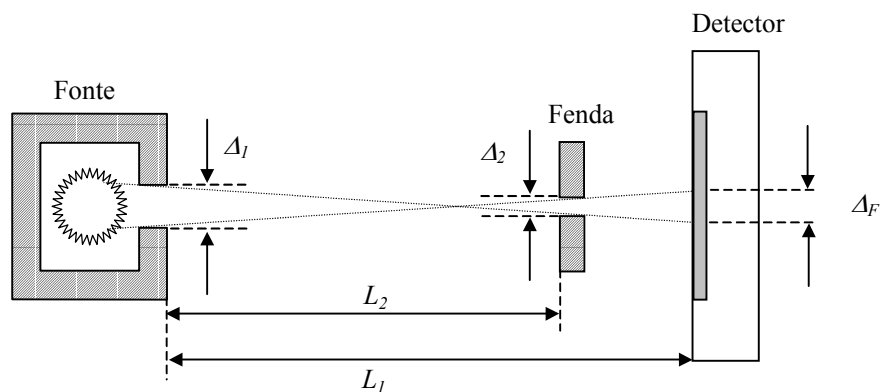


Figura 3.14: Arranjo experimental para medição da resolução espacial.

A partir dos valores para a abertura da fonte ($\Delta_1 \approx 3 \text{ mm}$), abertura da fenda ($\Delta_2 \approx 40 \mu\text{m}$), e das distâncias fonte-detector ($L_1 = 28,8 \text{ cm}$) e fonte-fenda ($L_2 = 27,5 \text{ cm}$), podemos estimar a largura do perfil de feixe colimado sobre a janela do detector (Δ_F):

$$\Delta_F = \frac{L_1 \Delta_2 + (L_1 - L_2) \Delta_1}{L_2} = 184 \mu\text{m} \quad (3.8)$$

O espectro obtido está mostrado na figura 3.15, na qual se vêem o perfil de feixe registrado pelo DSP para o feixe colimado e a faixa de canais que

corresponde à largura (27 mm) da máscara de suporte da fenda (de abertura Δ_2). Esta última informação nos permite estimar a relação canal/mm, com a qual convertemos o espectro em uma medida calibrada do perfil de feixe, que é mostrada na figura 3.16.

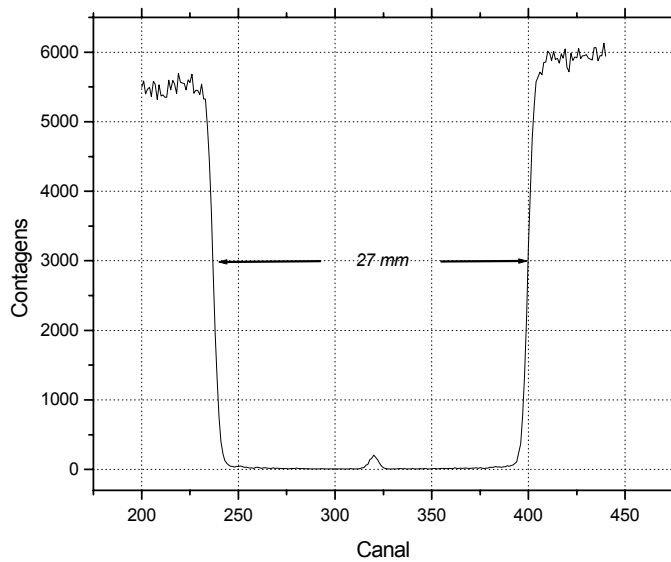


Figura 3.15: Espectro para medida de resolução espacial.

Como há uma relação de convolução entre o perfil de feixe observado pelo DSP e o feixe real, podemos calcular a resolução espacial do detector, Δ_D , a partir da expressão:

$$\Delta_D = \sqrt{\Delta_M^2 - \Delta_F^2} = 745 \mu\text{m} \quad (3.9)$$

onde Δ_M é a largura do perfil medido pelo DSP, mencionado como o valor 2σ na figura 3.16.

Para o caso do difratômetro utilizado, cujo raio é $R = 28$ cm, esta resolução corresponde a uma faixa angular de 0,15 graus. Este valor é compatível com a largura angular típica de perfis de difração para materiais cristalinos.

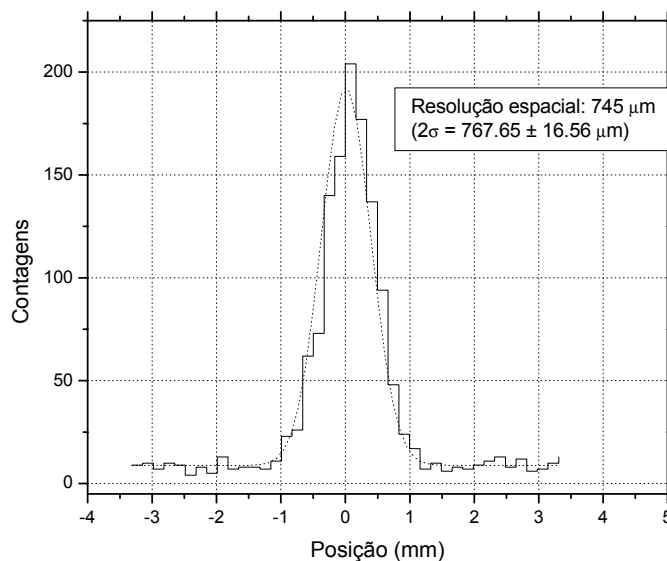


Figura 3.16: Perfil do feixe, com ajuste de uma curva gaussiana.

3.3.3 Linearidade

Espera-se que haja correspondência linear entre as coordenadas de medidas providas pelo sistema de aquisição de dados (expresso em número de canais do conversor analógico-digital), e as coordenadas reais de posição para partículas detectadas. Entretanto, um sistema eletrônico qualquer dificilmente apresenta comportamento perfeitamente linear, de modo que é necessário também quantificar os desvios de não-linearidade. Para isto, substituímos a fenda do arranjo mostrado na figura 3.14, por uma máscara contendo furos regularmente espaçados, ao passo de 2,54 mm. Cada furo tem diâmetro de aproximadamente 1 mm. O resultado é mostrado na figura 3.17.

Notamos que há um desvio da relação de linearidade nas extremidades do espectro, semelhante ao que foi verificado no espectro de homogeneidade. Eliminando-se os 4 primeiros e os 5 últimos picos da figura 3.17 e ajustando-se gaussianas a cada um dos picos restantes para se determinarem as posições centrais de cada pico, obtemos o resultado mostrado na figura 3.18. A linearidade integral [16] obtida para o sistema é de 6,01%.

A rigor, um ajuste adequado para a relação posição-canais só é obtido com uma expressão quadrática. Este aspecto é tratado na subseção 4.3.1.

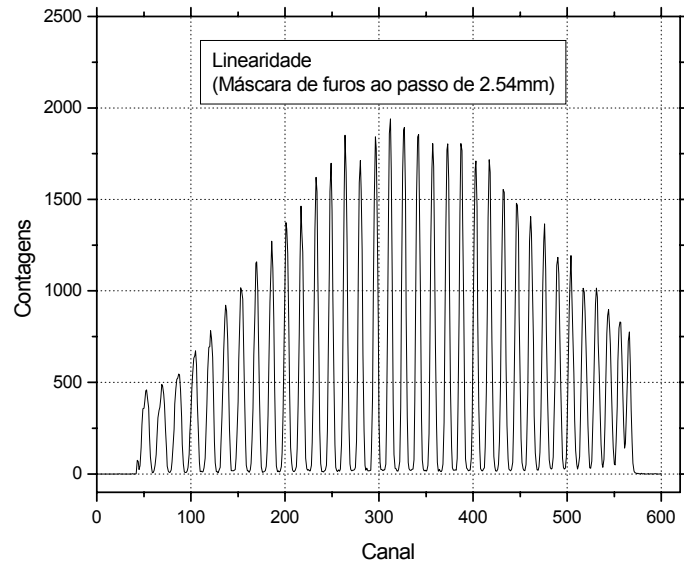


Figura 3.17: Espectro de linearidade.

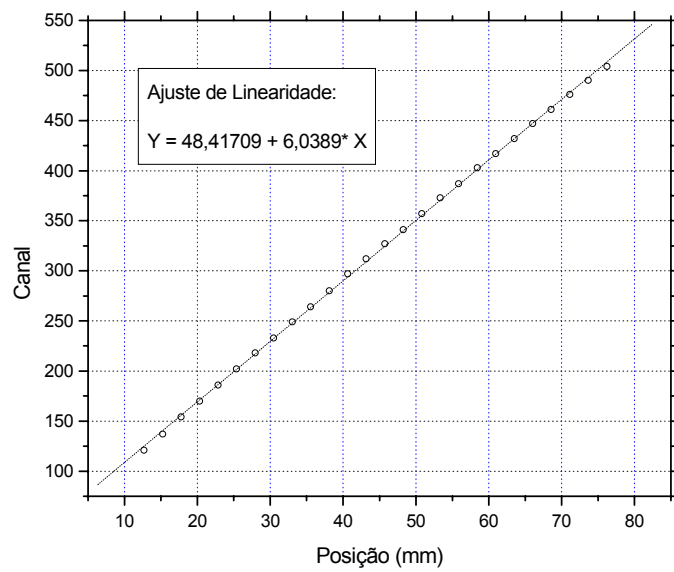


Figura 3.18: Relação de linearidade entre canal e posição.

3.3.4 Resolução em energia

Os difratômetros de pó utilizam radiação monocromatizada, ou seja, fótons de energia limitada a uma faixa estreita. Cada fóton detectado gera um número médio de portadores de carga elétrica, que por sua vez originam o elétrico observado. A sensibilidade do detector à energia depositada em seu volume ativo por uma partícula é estimada pela resolução em energia. Embora, no caso presente, esta sensibilidade não tenha relevância fundamental (já que todos os fótons do feixe difratado têm praticamente a mesma energia), é importante conhecer as variações desta sensibilidade em função da voltagem de operação do detector. Estas duas informações nos permitem determinar se o detector está operando na região proporcional, assim como também provê uma estimativa da relação sinal/ruído.

O espectro para medidas em energia é obtido pelo mesmo sistema de conversão analógico-digital descrito na seção 2.2, com o sinal do conversor tempo-amplitude substituído pelo sinal de anodo amplificado. Para isto utilizamos um amplificador comercial (Ortec, modelo 474)[40] tipicamente utilizado como condicionador de sinal em medidas de espectroscopia em energia. Na figura 3.19, mostramos espectros para a fonte de ^{55}Fe , para valores de tensão de operação variando de 2090 V a 2170 V. Para estas medidas, o amplificador esteve ajustado com os seguintes parâmetros: ganho 1, constante de integração 500 ns, sem constante de diferenciação.

Notamos que, tanto o pico principal de emissão da fonte, quanto o pico de escape (definido na subseção 2.1.1) são identificáveis nos espectros. À medida que aumenta o valor da voltagem, a amplitude dos sinais correspondentes a cada um dos picos se afasta da linha de base (ruído eletrônico), demonstrando o fato de o DSP operar em regime proporcional. Na figura 3.20 estão registradas as variações de ganho e de largura do pico principal em função da voltagem. Ambas são típicas de contadores proporcionais com resolução em energia $\Delta E/E$ da ordem de 20%. Neste caso obtivemos $\Delta E/E = 21,34\%$ com 2110 V.

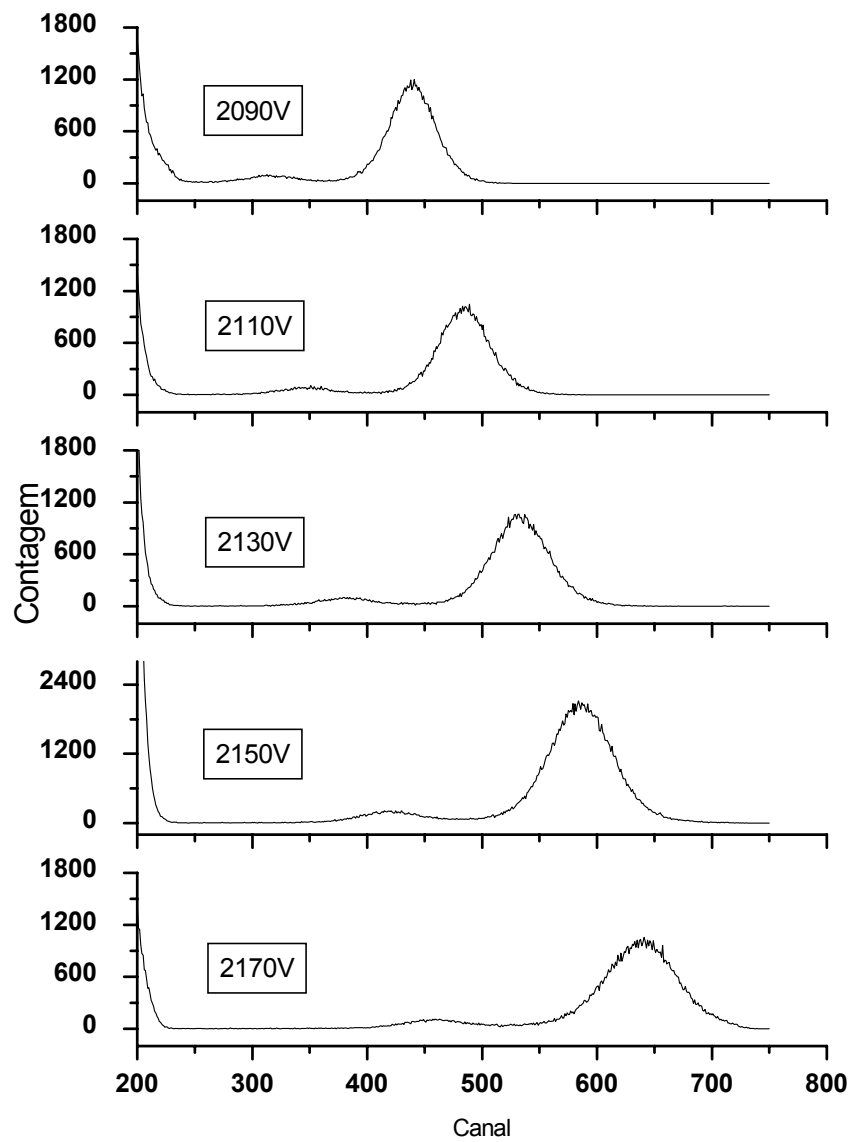


Figura 3.19: Espectros de medidas de energia para diferentes tensões de operação.

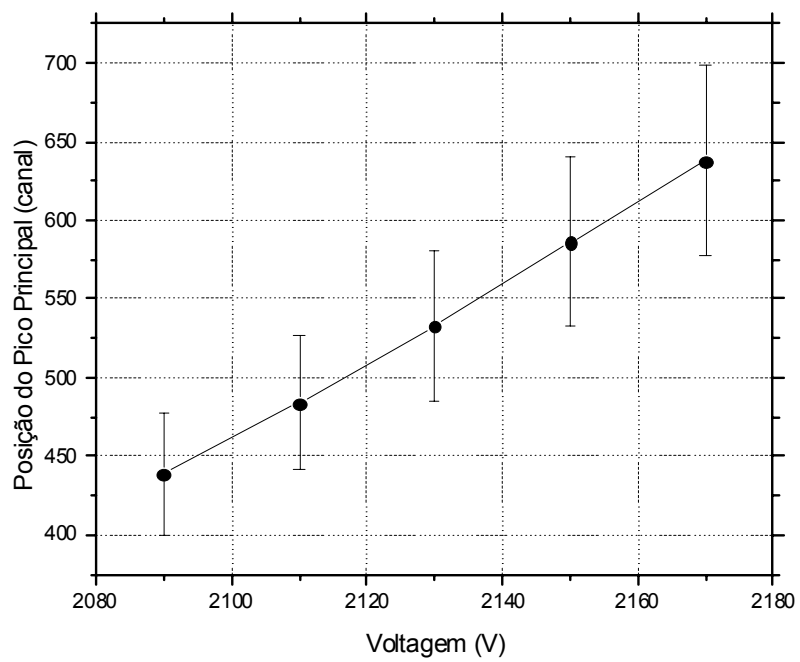


Figura 3.20: Variações de ganho e largura do pico principal para a fonte de ^{55}Fe .

Capítulo 4

Medidas com difratômetro baseado em DSP

O uso do DSP como elemento integrante de um difratômetro de pó exige algumas averiguações quantitativas relativas tanto ao difratômetro - incluindo a fonte de radiação - quanto ao detector, de modo que a integração final possa prover resultados cuja qualidade e confiabilidade sejam conhecidos. Apresentamos a seguir algumas medidas realizadas com este fim, bem como medidas realizadas com o sistema completo e comparações com resultados obtidos com o difratômetro em sua configuração prévia.

4.1 Perfil de feixe direto

A melhor colimação possível do feixe direto no difratômetro HZG4 (ver item 1.4.2.1) é obtida quando utilizamos as fendas de menor abertura possível na fonte de radiação e no detector. No nosso caso, as fendas de menor abertura de que dispomos são de $90\ \mu\text{m}$ e $40\ \mu\text{m}$, que foram usadas respectivamente junto à fonte e ao detector. Quando se fazem medidas de difratometria, não necessariamente se usam estas mesmas fendas, mas com elas podemos avaliar qual deve ser o desempenho do detector para obter a melhor qualidade possível nas medidas conduzidas com o difratômetro. O perfil de feixe obtido nestas condições está mostrado na figura 4.1.

Conforme mencionado no capítulo 3, a monocromatização do feixe pode ser obtida com cristal monocromador ou com filtro absorvedor. Para o caso do uso do DSP em substituição ao contador de partículas, não foi possível

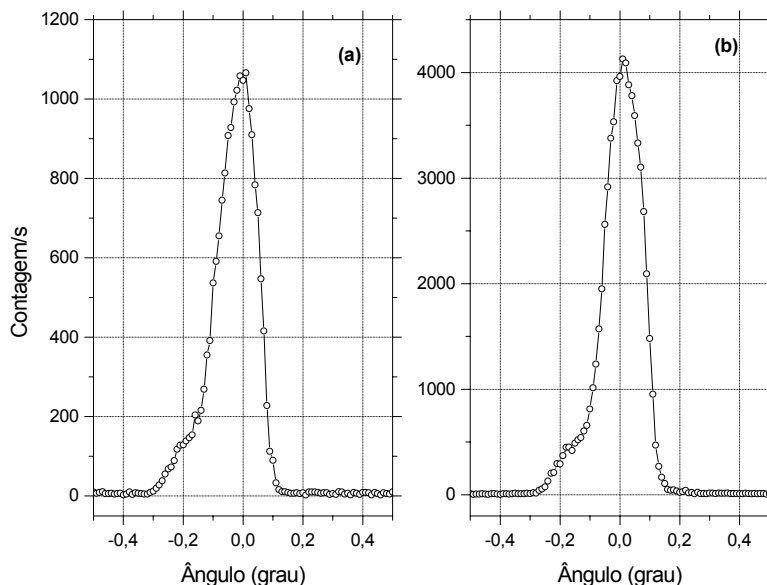


Figura 4.1: Perfis de feixe direto obtidos em regime passo a passo do difratômetro utilizando monocromador de grafite (a) e filtro de níquel (b).

manter o monocromador na mesa de difração. Portanto trabalhamos com filtro absorvedor de níquel, para a radiação característica do cobre. Na figura é mostrado o perfil de feixe para os dois casos, e vemos que não há perda sensível de qualidade devido ao uso do filtro. Notamos que a menor largura de feixe possível é da ordem de 0,2 graus.

4.2 Resposta do DSP ao perfil de feixe direto

Cabe perguntar se o DSP apresenta resolução espacial compatível com o perfil de feixe acima apresentado. Resultados já relatados sobre detectores similares ao descrito no capítulo anterior indicam que a resolução espacial pode chegar a poucas centenas de micrômetros. Para um raio de difratômetro da ordem de 25 cm, que é o caso presente, a resolução requerida deve ser pelo menos 1 mm. Vimos na subseção 3.3.2 que a resolução obtida com o

DSP foi próxima de 0,7 mm. Verificamos que este resultado não era devido ao detector, mas sim à qualidade da relação sinal/ruído. Por esta razão empreendemos um estudo detalhado do pré-amplificador, que é o módulo mais diretamente responsável por este aspecto. Dadas a importância e a especificidade do tema, este estudo é apresentado como anexo no Apêndice C.

Na figura 4.2, apresentamos uma comparação entre duas medidas do perfil de feixe direto em sua melhor colimação: uma em que foi usado o mesmo pré-amplificador empregado nas medidas de caracterização mostradas na subseção 3.3.2, e outra com o pré-amplificador desenvolvido para este trabalho. Uma fenda (de largura de 27 mm e abertura de $40 \mu\text{m}$) é usada junto à janela do detector nos dois casos.

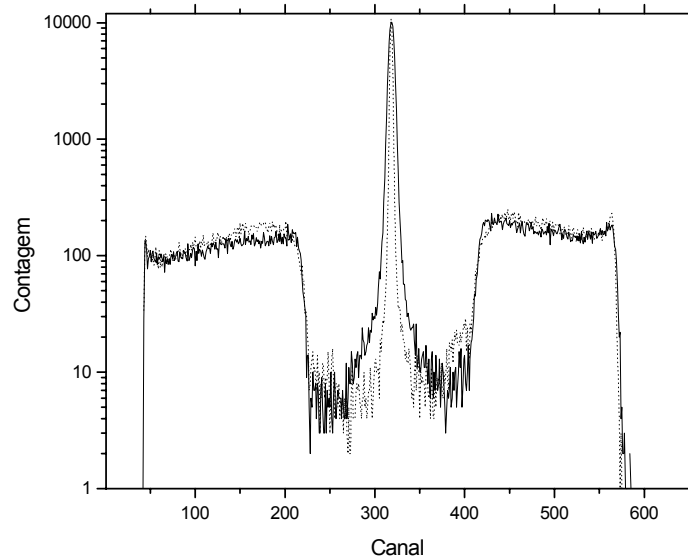


Figura 4.2: Medida de resolução espacial (com o pico relativo à fenda de $40 \mu\text{m}$) utilizando pré-amplificador regular (linha contínua) e pré-amplificador desenvolvido para o difratômetro com DSP (linha pontilhada).

Notamos nitidamente um melhor desempenho do novo pré-amplificador em termos de resolução espacial, que é quantificado na figura 4.3. Nesta

última é apresentada a região em torno do pico no espectro anterior, e é feita a conversão de canais em milímetros. A resolução espacial foi melhorada por um fator maior que 2, chegando a um valor próximo de $300 \mu\text{m}$ - que é esperado para a tecnologia de detectores a gás sensíveis a posição.

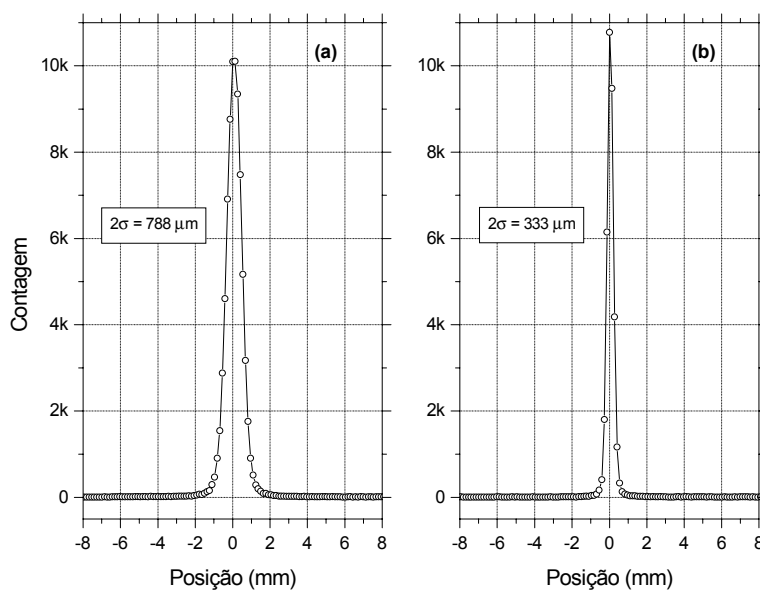


Figura 4.3: Detalhe da Fig. 4.2, com resultado do ajuste de um perfil gaussiano para os dois casos: pré-amplificador regular (a) e pré-amplificador desenvolvido (b).

4.3 Medidas de padrões de difração

A fim de preparar o difratômetro para medidas de padrões de difração, utilizamos uma amostra policristalina de silício, cuja estrutura é conhecida (fornecida pelo fabricante)[42]. Grandezas relevantes são o tamanho de grão ($4,9 \mu\text{m}$) e o parâmetro de rede a :

$$(0,54311946 \pm 0,00000092)nm \quad (4.1)$$

4.3.1 Calibração da relação canal-posição

Para estabelecer a relação entre número de canal e posição em coordenadas espaciais, foi descrito na seção 3.3.3 o procedimento envolvendo o uso de uma máscara. Com o difratômetro é também necessário estabelecer uma calibração angular. Para isto combinamos o uso da máscara de linearidade com o uso da amostra padrão de silício. O DSP é instalado na posição do contador de partículas do difratômetro, como indicado na figura 3.1. A amostra é fixada ao porta-amostras, e é escolhida uma posição $\theta - 2\theta$ tal que a reflexão (111) do silício seja observada. Simultaneamente a máscara de linearidade é posta junto à janela do detector. O espectro obtido é mostrado na figura 4.4.

Com base na posição dos picos observados na figura 4.4 e sabendo-se que o passo entre furos na máscara é de 2,54 mm, podemos determinar a relação canal-posição mostrada na figura 4.5.

O melhor ajuste da posição dos picos às suas correspondentes localizações sobre a máscara é obtido com uma função quadrática, em vez de uma função linear. Na própria figura estão expressas as relações para conversão de canal a posição e de posição a canal. Este fato mostra que a resposta do sistema eletrônico de localização não é perfeitamente linear. Pudemos identificar a não-linearidade no nível do circuito de conversão analógico-digital. O desvio com respeito ao comportamento linear é pequeno (o coeficiente do termo quadrático tem valor próximo de zero), mas tem impacto sobre a precisão das medidas realizadas com o difratômetro. Portanto, deve ser levado em conta.

Com estes resultados, e conhecendo-se o raio do círculo de difração, podemos determinar a correspondência entre canal eletrônico e ângulo de difração. A calibração consiste em atribuir à posição do pico o valor de 2θ previamente conhecido para a reflexão (111) da amostra: $28,442^\circ$.

4.3.2 Perfil da reflexão (111) do silício

Feita a otimização do desempenho do detector, e estabelecida sua calibração no círculo de difração, procedemos a uma comparação entre o desempenho do

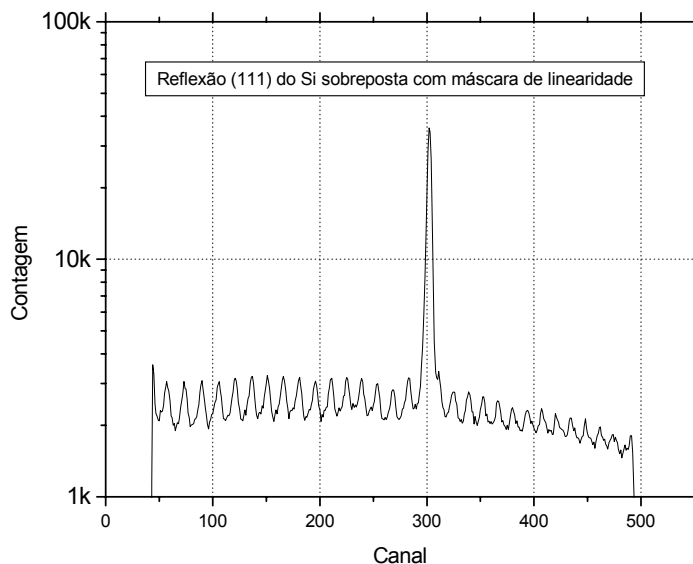


Figura 4.4: Espectro para calibração obtido pela observação sobreposta do pico (111) do silício e de um padrão regular de furos ao passo de 2,54 mm.

sistema assim configurado e o do sistema anterior. Adotamos como critério de comparação o levantamento do perfil de uma reflexão de Bragg: o próprio pico (111) do silício. O resultado é apresentado na figura 4.6, na qual vemos sobrepostos o perfil obtido com DSP e o perfil obtido previamente pelo método passo a passo com contador de partículas. Para o levantamento passo a passo foi usada uma fenda de $220 \mu\text{m}$ junto ao detector. As demais condições experimentais são idênticas para ambos os casos, exceto pelo fato de, no caso do DSP, não haver fenda para eliminação de espalhamento pelo ar.

Analisando qualitativamente a comparação mostrada na figura 4.6, podemos afirmar que o uso de um DSP é competitivo, sobretudo quando consideramos que o tempo de aquisição de dados para o espectro completo é reduzido por um fator da ordem de 100.

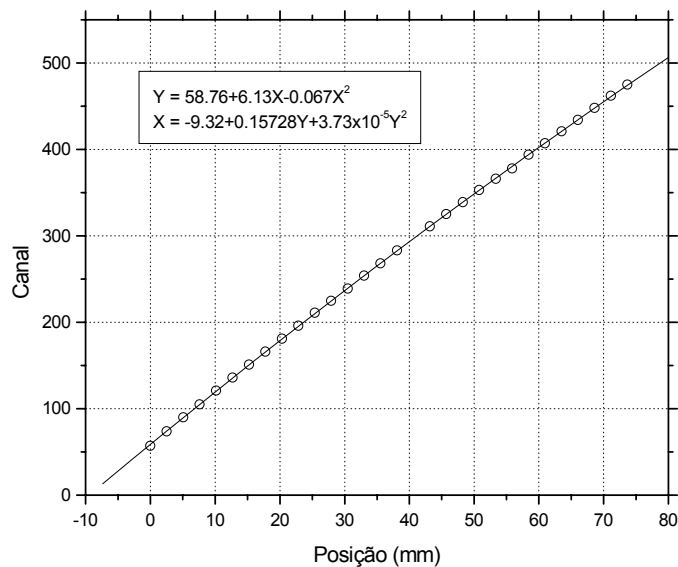


Figura 4.5: Relação entre posição-canal e canal-posição, com ajuste de uma função que inclui comportamento não linear.

4.3.3 Perfil de difração completo

Cada espectro obtido com o DSP no difratômetro cobre uma faixa angular de aproximadamente 18° . As regiões das extremidades do espectro são eliminadas por incluírem efeitos de borda (ver seção 3.3). Um espectro completo pode, portanto, ser obtido a partir de 6 medidas com DSP, cobrindo assim a faixa típica de padrões de difração.

Na figura 4.7 são mostradas as 6 tomadas de dados realizadas para compor o espectro de difração do silício. Entre cada uma e a adjacente há um deslocamento de 15° , por isso a calibração de todos os espectros é simples: basta acrescentar o valor do deslocamento à calibração já obtida.

Notamos quedas de intensidade de um subespectro ao próximo. Atribuímos este efeito ao fato de haver uma contribuição de espalhamento do ar que varia com 2θ . Para confirmar esta suposição e eliminar o efeito, seria necessária a confecção de blindagem adequada entre a amostra e o DSP. En-

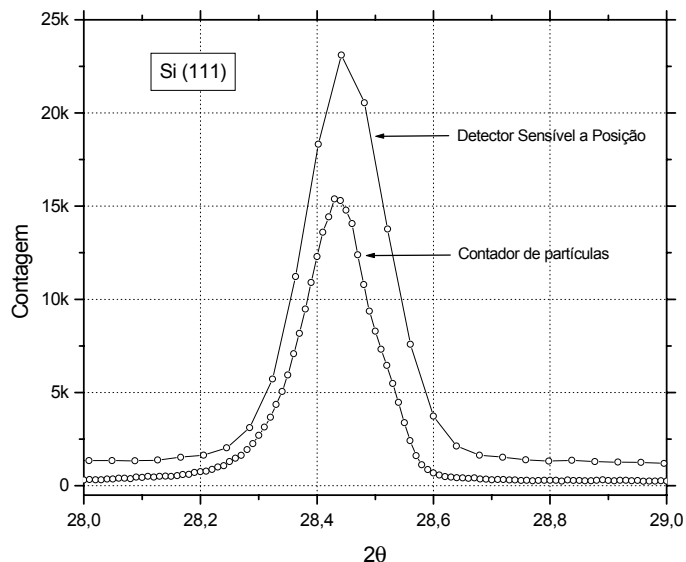


Figura 4.6: Comparação entre perfis de feixe obtidos com DSP e com o método de varredura passo a passo com contador de partículas.

tretanto esta solução por ora não pode ser implementada. A fim de corrigir o espectro, supusemos uma contribuição constante do ruído de fundo em cada espectro, e a subtraímos de cada um deles, de modo que a transição de um a outro seja suave. Esta operação é relativamente simples, uma vez que há uma região de sobreposição de informações entre um espectro e os adjacentes.

A comparação entre espectros completos, obtidos com DSP e pelo método de varredura passo a passo é apresentada na figura 4.8.

Com relação aos espectros mostrados, ressaltamos que, no caso do DSP, foram realizadas 6 tomadas de dados, cada uma durante 30 s (total 180 s). No caso da varredura passo a passo foi usado um passo de $0,05^\circ$ em 2θ , e foi feita uma tomada de dados de 1 s por passo (total 1800 s).

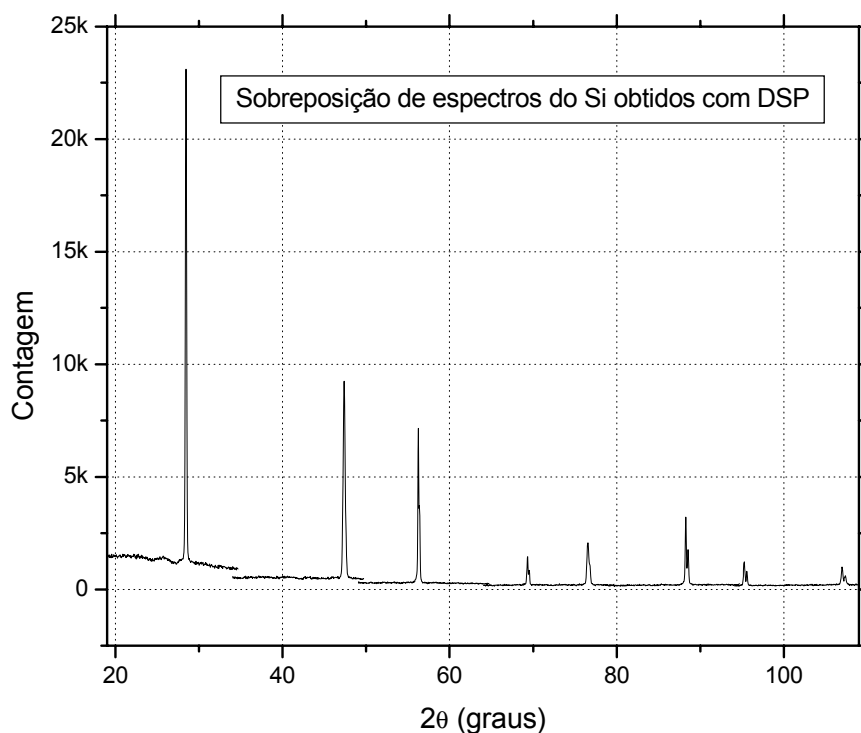


Figura 4.7: Sobreposição de 6 subespectros do DSP, compondo o padrão de difração do silício.

4.4 Considerações sobre erros

Além do erro de focalização inerente ao uso do DSP já identificado e descrito na seção 3.3.2, devemos computar também a incerteza na medida do círculo do raio de difração e nas condições de alinhamento óptico.

Para o raio do círculo de difração, estimamos que a incerteza seja da ordem de 1cm. Isto porque não dispomos de uma informação precisa sobre o posicionamento do foco da fonte de radiação, nem das posições relativas entre foco-amostra e amostra-detector. Note-se que a incerteza não é unicamente devida à imprecisão do dispositivo de medida, mas também ao posicionamento de dois elementos do difratômetro: tubo gerador de raios X e mesa de difração, que, no caso do difratômetro HZG4, são fisicamente separados.

Quanto às incertezas (Δ) no alinhamento óptico, podemos listar:

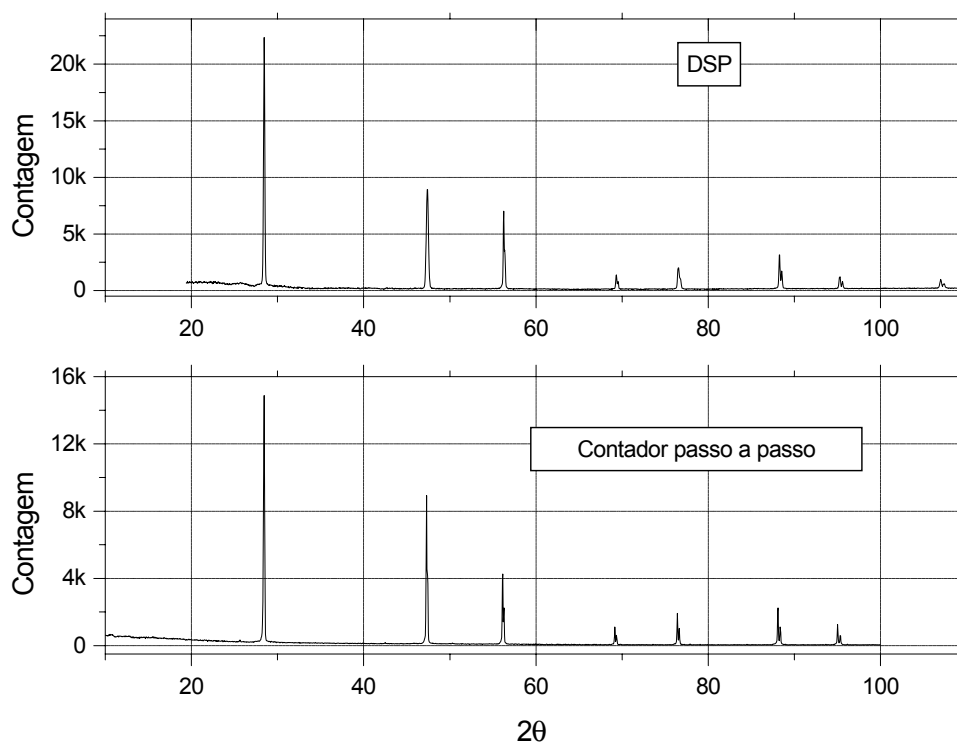


Figura 4.8: Comparação entre espectros completos obtidos com DSP (acima) e com o método de varredura passo a passo (abaixo).

- posicionamento do DSP na direção vertical, supostamente alinhada de modo que fonte, amostra e janela do detector estejam no mesmo plano ($\Delta \approx 1 \text{ mm}$);
- posicionamento do DSP ortogonalmente ao eixo do ângulo de reflexão para o feixe difratado ($\Delta \approx 1^\circ$);
- orientação do DSP relativamente ao plano ortogonal ao eixo do feixe difratado ($\Delta \approx 1^\circ$).

O impacto final da superposição de incertezas sobre a precisão angular do espectro de difração pode ser estimado por propagação de erros: é da ordem de décimos de grau. O estudo detalhado das fontes de incerteza e a

supressão dos respectivos erros é objeto de um trabalho à parte, que não é tratado aqui.

Devem também ser levados em conta os erros comuns também ao método de varredura passo a passo, tais como o alinhamento entre feixe incidente e posição da amostra. Para fins de comparação, tomamos o espectro do silício em varredura passo a passo como padrão e a partir dele inferimos os erros acrescentados pelo uso do DSP. Um resultado desta comparação é mostrado na figura 4.9, onde são mostrados os perfis de dois picos de difração para o silício, obtidos com DSP.

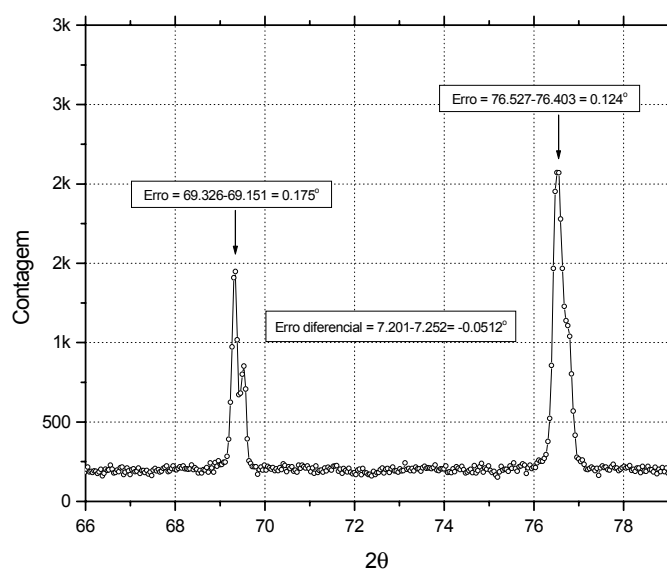


Figura 4.9: Comparação entre perfis de feixe obtidos com DSP e com o método de varredura passo a passo com contador de partículas

Vemos na figura que a posição de cada um dos picos, relativamente à posição dos mesmos no padrão, apresenta erro inferior a $0,2^\circ$. O erro diferencial é tomado como sendo a diferença entre a posição dos picos no espectro do DSP, menos a mesma diferença no espectro do padrão. Para os picos apresentados na figura este erro é inferior a $0,1^\circ$. Foi tomado o valor de 26 cm para o raio do círculo de difração.

A fim de elucidar as conseqüências destas imprecisões sobre os valores obtidos para os parâmetros estruturais da amostra, foi feito o refinamento

de dados pelo método de Rietveld [41]. Como o silício tem estrutura cúbica, o parâmetro de rede relevante é o comprimento do lado da célula unitária a . Na tabela 4.1 apresentamos os dados obtidos por refinamento da amostra padrão de Si[42] usando o programa FullProf [43], numa comparação entre as medidas obtidas com o difratômetro comercial HZG4 (“Padrão”) e os dois casos em que supomos os valores de 26 cm e 27 cm para o raio R_c do círculo de difração. Além do valor obtido para o parâmetro de rede, estão também mostrados os valores para o fator χ^2 , que estima a qualidade do ajuste obtido no refinamento, e de R_{Bragg} [43].

Analisando a tabela, verificamos que os valores de a obtidos com o DSP estão de acordo com o valor fornecido pelo fabricante (ver página 79) e com aquele obtido com o difratômetro comercial, com erros relativos da ordem de 0,003. Também se deve levar em conta o fato de que os erros fornecidos pelo Fullprof estão evidentemente abaixo de um valor realista, algo que ocorre constantemente com esse programa. Obtendo valores com o programa TOPAS[44], os resultados foram análogos.

		Refinamento FullProf
Parâmetro de rede (Angstroms)	Padrão	5,42536±0,00003
	R = 26cm	5,4156±0,0001
	R = 27cm	5,41409±0,00027
χ^2	Padrão	1,71
	R = 26cm	10,9
	R = 27cm	45,8
R_{Bragg}	Padrão	5,26
	R = 26cm	9,43
	R = 27cm	35,2

Tabela 4.1: Medidas do parâmetro de rede para o silício, obtidas por refinamento de dados.

Capítulo 5

Um método de deconvolução para espectros de difração obtidos com o DSP

Conforme visto nos capítulos anteriores, as medidas de difratometria de alta resolução requerem o levantamento de perfis de difração que podem incluir picos com largura da ordem de décimos de grau. Caso estes perfis sejam registrados por um detector sensível a posição, deve ser levado em conta que os dados observados resultam da convolução do perfil de difração pela matriz de resposta (ver seção 5.1) do detector. Devido ao fato de o detector ser sensível a posição, deve também ser considerado que a função de resposta não é necessariamente a mesma ao longo de toda a janela de detecção. Em particular, pode ocorrer que a própria óptica de difração implique um comportamento variável do perfil de feixe sobre a janela do detector, como foi mostrado na figura 3.3. Este processo é equivalente a uma convolução, e deve igualmente ser considerado. Portanto, ainda que a resolução espacial do detector seja compatível com a resolução angular exigida pelo perfil de difração, é pertinente a abordagem do caso geral em que os espectros registrados pelo mesmo têm que ser deconvoluídos. A seguir apresentamos um método de tratamento de dados desenvolvido para este fim.

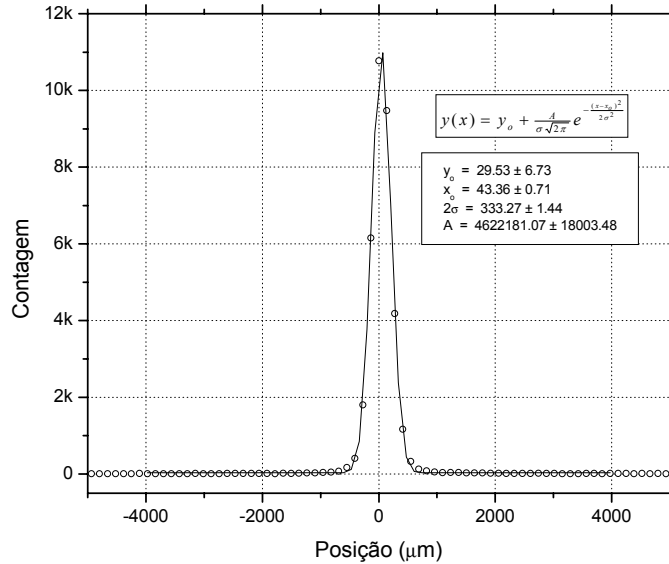


Figura 5.1: Perfil observado pelo DSP para feixe colimado, com ajuste de uma função de alargamento de ponto gaussiana.

5.1 O Problema da Deconvolução

5.1.1 Matriz de resposta e função de alargamento de ponto para o DSP

A medida de resolução espacial do DSP demonstra que a um feixe perfeitamente colimado corresponde uma distribuição de contagem de eventos em torno da posição do feixe. Idealmente, podemos afirmar que a um ponto (distribuição delta de Dirac) corresponde uma distribuição espacialmente alargada, pelo que a denominamos “função de alargamento de ponto” (FAP). Na figura 5.1 está mostrado o padrão de resposta do DSP a uma fenda colimada, de largura próxima a um décimo da resolução espacial do detector. Para efeitos práticos, este padrão pode ser associado diretamente à FAP.

Na própria figura estão indicados os parâmetros de uma função analítica, gaussiana, que se ajusta bem ao padrão observado:

$$y(x) = y_o + \frac{A}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-x_o)^2}{2\sigma^2}} \quad (5.1)$$

Na expressão acima, A é a área (equivalente ao número total de contagens) do espectro, x_o é a posição central do feixe, e σ é um parâmetro relacionado à incerteza na medida de posição, ou seja, à própria resolução espacial. O termo y_o é interpretável como um nível de ruído constante (*background*) sobreposto ao espectro. Supondo que a cada ponto sobre a janela linear do detector esteja associada a função $y(x)$, nota-se facilmente que, a um perfil de difração $p(x)$ corresponde a observação, pelo DSP, de um perfil observado $f(x)$ dado por:

$$f(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} y(x-u)p(u)du = y * p \quad (5.2)$$

A expressão acima corresponde à operação de convolução. Caso fosse possível identificar também o perfil de feixe observado a uma função analítica (contínua, diferenciável), poderíamos recorrer ao Teorema da Convolução para obter uma expressão exata para o perfil de difração:

$$F(\omega) = Y(\omega)P(\omega) \Rightarrow P(\omega) = \frac{F(\omega)}{Y(\omega)} \quad (5.3)$$

F , Y e P são as Transformadas de Fourier para f , y e p . A variável ω está associada reciprocamente à variável x , e corresponde à frequência espectral de cada uma das componentes espectrais incluídas na representação matemática de Fourier. Portanto, neste contexto, o espectro de difração procurado é expresso por:

$$p(x) = TF^{-1} \{P(\omega)\} \quad (5.4)$$

Ocorre que não se pode, em geral, atribuir ou associar uma função analítica ao perfil observado. Na prática, dispõe-se de uma amostragem de f em um número finito de pontos. Se N é o número de amostragens, verifica-se que a operação de convolução é representada por um produto de matrizes da forma:

$$[f]_N = [y]_{N \times N} [p]_N \quad (5.5)$$

onde $[f]$ é um vetor coluna com as f_i amostragens de f , e $[p]$ é o equivalente para p .

Naturalmente deve ser realizada a operação de deconvolução, que neste caso envolve a inversão de uma matriz, para que se conheçam os p_i componentes de p . A matriz quadrada $[y]$ é composta por vetores cujos componentes são valores da função y . Por exemplo, Para $N = 10$, e com uma função y estendendo-se sobre 9 canais, a operação se escreve:

$$\begin{bmatrix} f_1 \\ f_2 \\ f_3 \\ f_4 \\ f_5 \\ f_6 \\ f_7 \\ f_8 \\ f_9 \\ f_{10} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} y_5 & y_4 & y_3 & y_2 & y_1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ y_6 & y_5 & y_4 & y_3 & y_2 & y_1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ y_7 & y_6 & y_5 & y_4 & y_3 & y_2 & y_1 & 0 & 0 & 0 \\ y_8 & y_7 & y_6 & y_5 & y_4 & y_3 & y_2 & y_1 & 0 & 0 \\ y_9 & y_8 & y_7 & y_6 & y_5 & y_4 & y_3 & y_2 & y_1 & 0 \\ 0 & y_9 & y_8 & y_7 & y_6 & y_5 & y_4 & y_3 & y_2 & y_1 \\ 0 & 0 & y_9 & y_8 & y_7 & y_6 & y_5 & y_4 & y_3 & y_2 \\ 0 & 0 & 0 & y_9 & y_8 & y_7 & y_6 & y_5 & y_4 & y_3 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & y_9 & y_8 & y_7 & y_6 & y_5 & y_4 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & y_9 & y_8 & y_7 & y_6 & y_5 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} p_1 \\ p_2 \\ p_3 \\ p_4 \\ p_5 \\ p_6 \\ p_7 \\ p_8 \\ p_9 \\ p_{10} \end{bmatrix} \quad (5.6)$$

Denominamos a matriz $[y]$ como a “Matriz de Resposta” do detector. Supondo que esta matriz seja inversível, podemos obter o equivalente ao resultado de deconvolução pela aplicação de $[y]^{-1}$ a $[f]$:

$$[y]^{-1} [f] = [y]^{-1} [y] [p] = [p] \quad (5.7)$$

5.1.2 Principais métodos de solução e suas limitações

Na exposição precedente estão sugeridos os principais métodos para solução do problema de convolução:

- resolução da equação integral 5.2;
- utilização do Teorema de Convolução, e posterior aplicação da transformação inversa de Fourier;

- inversão da matriz de resposta, e posterior aplicação da mesma ao vetor definido pelo espectro observado.

As duas primeiras alternativas supõem o ajuste de uma função analítica ao espectro observado, ou a solução numérica de equações integrais. A terceira exige a inversão de uma matriz envolvendo da ordem de dezenas de milhares de termos. Embora existam técnicas já desenvolvidas que podem se aplicar a algum destes métodos [46] (por exemplo, as Transformadas Rápidas de Fourier ou métodos desenvolvidos especificamente para a cristalografia, como o BGMN [47]), o sucesso de cada uma delas é condicionado por vários fatores, entre os quais destacamos o fato de que dispomos apenas de uma amostragem estatística dos espectros envolvidos no problema. Além deste, no caso presente temos também as possíveis variações da função de resposta em cada ponto do detector. Neste último caso só resta a possibilidade de se trabalhar com o problema matricial, com uma matriz que apresenta uma função diferente em cada uma de suas linhas.

5.2 Um método de deconvolução

5.2.1 Amostragens de uma função distribuição de probabilidades

Mesmo que se disponha de um detector perfeito, operando sob um sistema óptico sem distorções, o que se observa como espectro medido é sempre uma amostragem discreta, composta por um número finito de eventos (partículas detectadas). Quanto maior for o número de eventos da amostragem, melhor será a definição dos detalhes do espectro. Como exemplo, apresentamos na figura 5.2 uma função distribuição de probabilidades e três amostragens da mesma (ver subseção 5.2.2).

Claramente associamos, pelo exemplo da figura, uma função distribuição de probabilidades a um possível padrão de difração. A distribuição é normalizada, de modo que, para um evento detectado, a probabilidade de o mesmo ser localizado sobre algum ponto (canal) da janela do detector seja unitária. A cada canal corresponde uma probabilidade diferencial, que determina a forma do espectro.

No caso genérico, o padrão de difração é convoluído pela matriz de resposta do detector, conforme exposto acima. As amostragens observadas são,

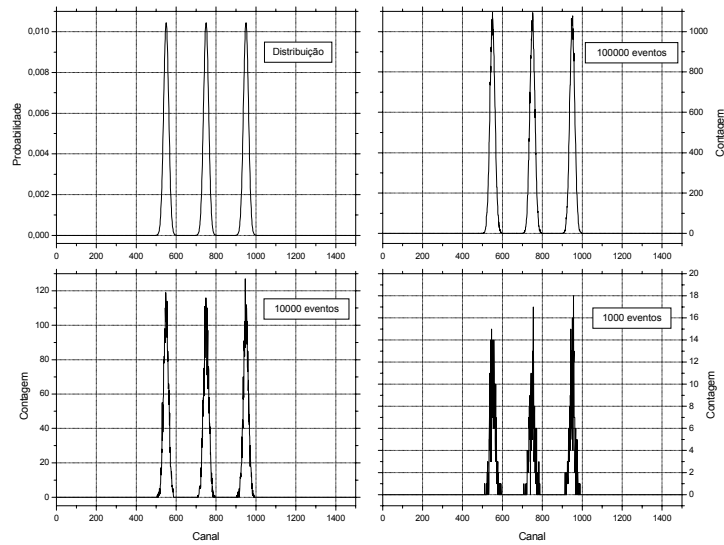


Figura 5.2: Distribuição de probabilidade associada a um perfil de difração hipotético (acima à esquerda) e amostragens desta distribuição.

portanto, relativas a um padrão de difração já convoluído. Na figura 5.3, está mostrado o mesmo exemplo da figura anterior, agora com a distribuição original convoluída por um perfil gaussiano com 100 canais de largura 2σ .

Importa estabelecer um método para, a partir de uma das amostragens, reconstituir-se a amostragem correspondente (com mesmo número de eventos) do padrão não-convoluído. Este aspecto distingue o método aqui apresentado: não se pretende prover uma forma analítica para o padrão de difração deconvoluído, mas apenas uma de suas possíveis amostragens.

5.2.2 Simulação de amostragens

Para simular amostragens de uma distribuição de probabilidades, utilizamos o gerador de números aleatórios disponível como uma das funções primitivas da linguagem C++[48], a função *random()*. Esta função gera um número inteiro entre 0 e $(n - 1)$ segundo uma distribuição “plana”, ou seja, com probabilidade igual para cada um dos números entre 0 e n . A fim de demonstrar sua aplicabilidade para uso na geração de uma distribuição de probabilidades qualquer, apresentamos na figura 5.4 uma série de quatro espectros,

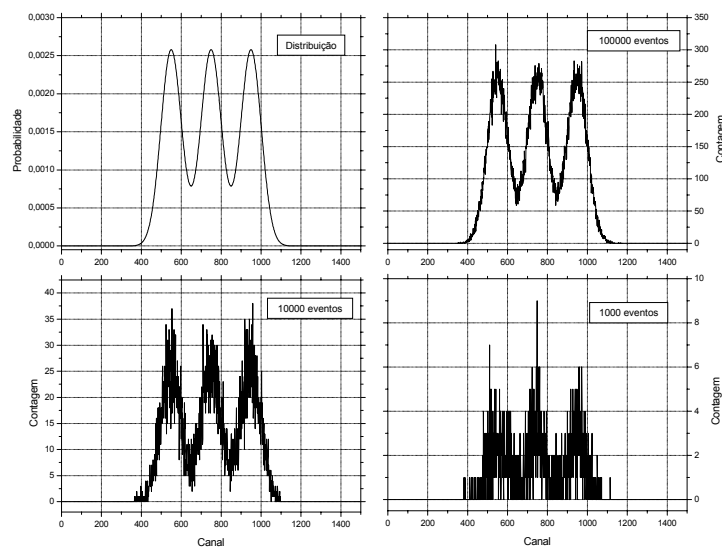


Figura 5.3: Distribuição de probabilidade associada a um perfil de difração hipotético convoluído (acima à esquerda) e amostragens desta distribuição.

com amostragens de mil, 10 mil, 100 mil e um milhão de eventos (um evento = um número entre 0 e 200).

Os espectros da figura 5.4 equivalem visualmente a um ruído “branco”, cuja flutuação estatística diminui com o número de eventos. Para fins de simulação de eventos físicos, esperamos que esta flutuação seja compatível com o ruído intrínseco de processos de Poisson. Neste cenário, cada fóton emitido pela fonte de radiação representa um ensaio. A probabilidade para que um fóton atinja o detector é um número constante e pequeno diante do número de eventos gerados pela fonte por unidade de tempo. Estas hipóteses conduzem ao modelo de Poisson, que é verificado experimentalmente para os processos físicos de detecção de partículas [20]. Na figura 5.5 mostramos a distribuição de valores em torno da média das contagens para cada um dos espectros da figura 5.4. Notamos que, efetivamente, as flutuações são compatíveis com o esperado pelo modelo de Poisson: $\sigma \cong \sqrt{N}$, onde N é o valor médio. Portanto não é necessário utilizar funções com maior grau de aleatoriedade, mas de implementação mais complexa [46].

Podemos interpretar os espectros na figura 5.4 como padrões observados por um detector iluminado uniformemente, com a mesma taxa de eventos

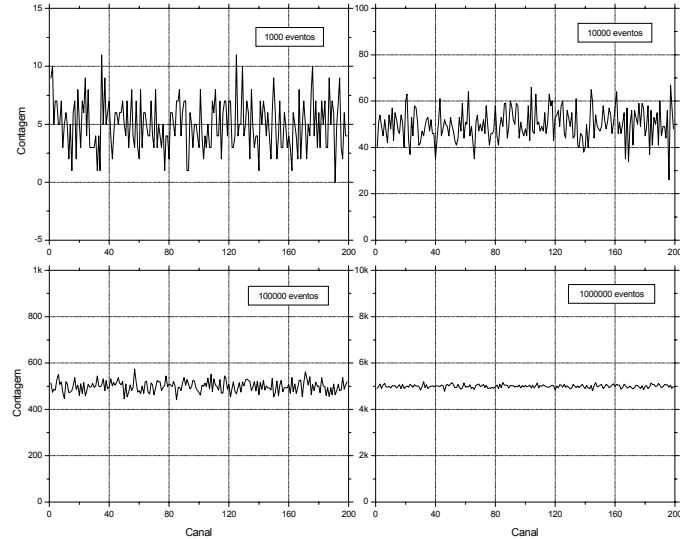


Figura 5.4: Distribuições de eventos segundo uma distribuição plana, fornecida pela função *random()* do C++.

por unidade de tempo em cada um de seus canais. Como cada canal segue supostamente uma distribuição de Poisson, as flutuações de um canal a outro devem variar em torno da média com flutuação $\sigma = \sqrt{N}$, o que é comprovado pela figura 5.5.

5.2.2.1 Amostragens da função de alargamento de ponto

Para simular amostragens de uma distribuição qualquer, em particular da FAP, utilizamos a função *random()* em combinação com o perfil da distribuição que se pretende simular. No caso presente, um evento direcionado a um ponto fixo da janela do detector é detectado em um ponto qualquer, segundo a distribuição mostrada na figura 5.1. Obtemos o ajuste de uma distribuição de probabilidades gaussiana para a FAP e, para cada evento simulado, seguimos o seguinte procedimento:

- Sorteamos, com *random()*, um número de canal dentro da faixa sobre a qual é conhecida a FAP;

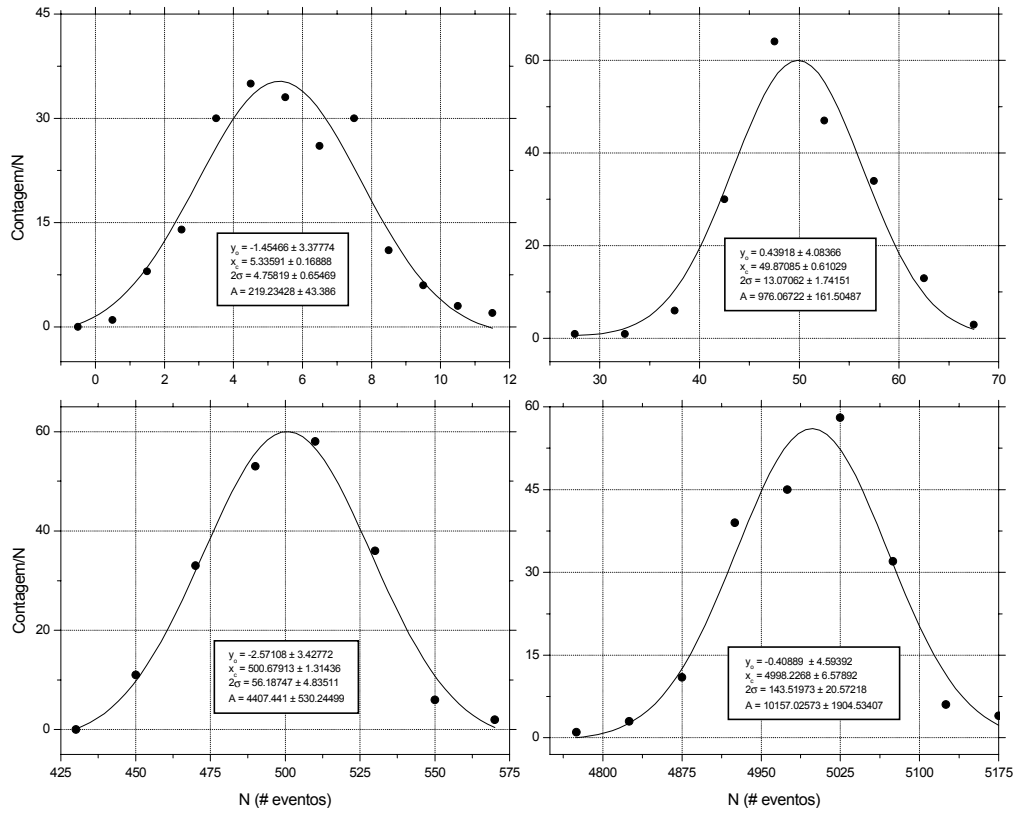


Figura 5.5: Verificação da flutuação estatística de cada uma das distribuições mostradas na figura 5.3, com ajuste de perfil gaussiano.

- Sorteamos, em seguida, um número entre 0 e um valor máximo (um fator de escala é aplicado, de modo que ao número inteiro sorteado corresponda diretamente um número entre 0 e o valor máximo da FAP);
- Se, para o número de canal anteriormente sorteado, o valor do segundo número sorteado for inferior ao valor da FAP naquele canal, o evento é considerado válido. Caso contrário, o evento é descartado.

Com isto obtemos distribuições de eventos que simulam com muita precisão as distribuições observadas com o DSP. Apresentamos na figura 5.6 um exemplo no qual foram simulados 100 mil eventos, todos incidentes sobre a mesma posição no detector, com flutuação pré-estabelecida de 30 canais.

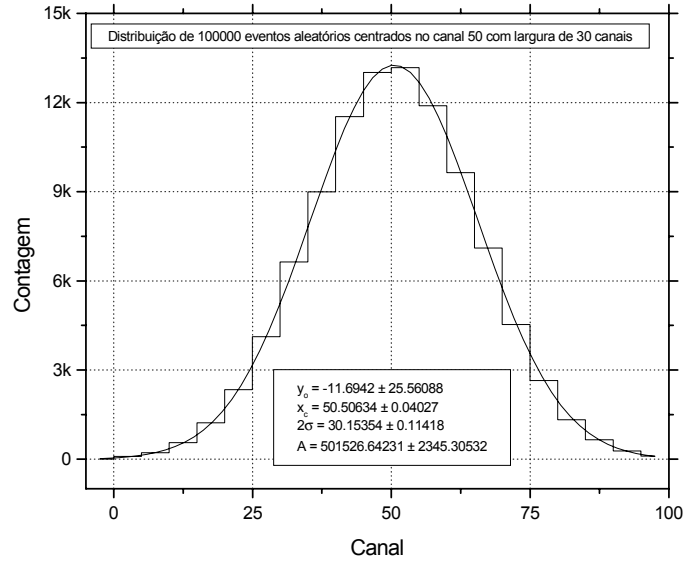


Figura 5.6: Simulação de eventos segundo uma distribuição que reproduz a função de alargamento de ponto para o DSP.

5.2.3 Algoritmo iterativo para obtenção do espectro deconvoluído

Utilizando a ferramenta de simulação de amostragens acima descrito, em conjunto com a noção de que os espectros observados resultam de um processo estatístico determinado por uma função de alargamento de ponto conhecida, elaboramos o seguinte procedimento para obter estimativas do espectro deconvoluído:

- São sorteados eventos sobre a janela do detector, segundo uma distribuição que deveria ser o próprio perfil de difração que se pretende estimar;
- Como este perfil não é conhecido, tomamos como primeira hipótese que este perfil é dado pela própria distribuição de dados observada (o espectro medido);

- Cada evento sorteado é distribuído segundo a FAP previamente conhecida, de modo que podem-se armazenar duas informações: o canal sorteado sobre a janela do detector (que segue o padrão de difração), e o canal onde o evento foi efetivamente detectado (que forma o espectro observado);
- O número de eventos gerados é exatamente o número total de contagens registradas no espectro observado;
- Ao fim da primeira iteração, os dois conjuntos de dados fornecem dois espectros: um para o padrão de difração “tentativo”, outro para um espectro observado “por simulação”;
- Assim como o espectro observado “por simulação” difere do efetivamente observado, também o padrão de difração “tentativo” difere do padrão de difração real;
- Supõe-se que há proporcionalidade entre as diferenças de cada par de espectros, de modo que o padrão de difração “tentativo” pode ser aprimorado de acordo com a proporção verificada entre os espectros observados realmente e por simulação (ver figura 5.7). Em cada canal x_i , o valor do espectro tentativo é tomado como:

$$p_{n+1}(x_i) = p_n(x_i) \frac{f_{n+1}(x_i)}{f_n(x_i)} \quad (5.8)$$

- Um novo ciclo iterativo é iniciado, tomando o padrão de difração “tentativo” modificado como nova estimativa para o padrão de difração real;
- Os ciclos são repetidos, até que haja concordância satisfatória entre os espectros observados realmente e por simulação. Neste ponto, a última hipótese para o padrão de difração “tentativo” é tomado como sendo o espectro deconvoluído.

Todos os passos deste procedimento são física e matematicamente confiáveis. Entretanto pode ser questionada a hipótese de proporcionalidade entre as formas dos espectros convoluído e não convoluído. Esta hipótese foi inicialmente apresentada e testada em um algoritmo utilizado para corrigir o efeito das fendas sobre o espectro de difração de raios X a baixo ângulo [49].

Naturalmente há situações em que esta hipótese não pode ser assumida, mas no caso em que a função de alargamento de ponto tem forma gaussiana a proporcionalidade entre as formas de perfil convoluído e deconvoluído é evidente. Caso se verificasse o contrário, logicamente não haveria convergência do processo iterativo para um espectro estável. Verificamos que o método é estável, e que responde satisfatoriamente a testes de confiabilidade. Um exemplo é mostrado na figura 5.8, onde estão expostos os resultados obtidos para a deconvolução dos espectros mostrados em 5.3.

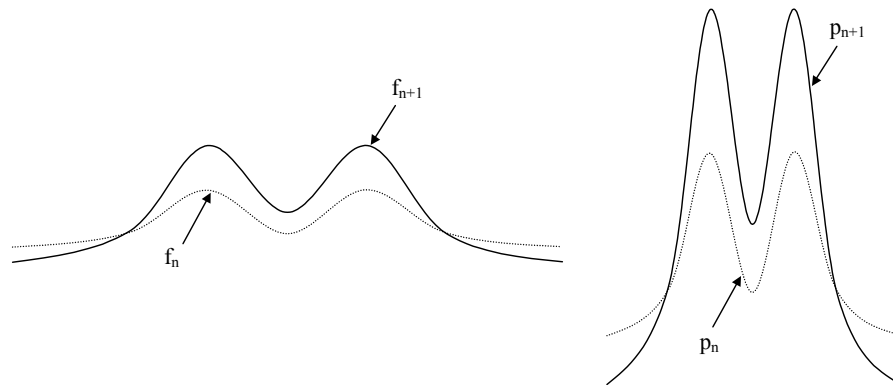


Figura 5.7: Representação qualitativa da relação entre as formas de espectros para os padrões convoluído (esquerda) e deconvoluído (direita) para duas iterações sucessivas do processo de deconvolução.

Os espectros da figura 5.8 foram obtidos com 5 ciclos de iteração. O primeiro deles (acima, à esquerda) é o resultado da operação de convolução da FAP sobre espectro deconvoluído obtido para 100 mil eventos. Note-se a similaridade deste com a distribuição equivalente, mostrada na figura 5.3. Observamos que os 3 picos são nitidamente separados ao final das 5 iterações, e que a qualidade do espectro deconvoluído depende do número de eventos registrados em cada amostragem.

Na figura 5.9, está apresentado um caso crítico, em que os picos do padrão original estão separados por uma distância comparável à própria resolução espacial do detector. Observamos que, ao final de 100 ciclos de iteração, os 3 picos estão nitidamente identificados.

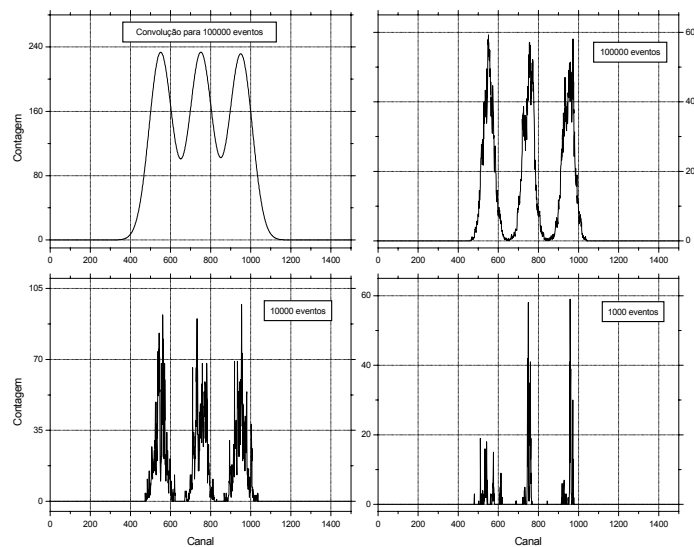


Figura 5.8: Aplicação do algoritmo de deconvolução aos espectros da figura 5.3. Acima, à esquerda: perfil obtido pela convolução do perfil com 100 mil eventos.

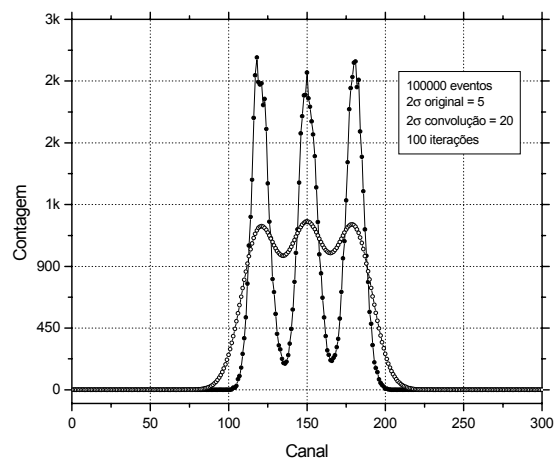


Figura 5.9: Teste do algoritmo de convolução num caso hipotético em que os picos do padrão de difração estão sobrepostos.

A implementação completa do algoritmo é feita em um programa principal em linguagem C++ [48]. A este são agregados subprogramas, para preparação dos dados, simulação de amostragens, testes de procedimentos, etc. O tempo de computação tomado por cada ciclo depende do número total de contagens no espectro observado. Tipicamente é da ordem de segundos para contagens na faixa de 10000 eventos.

5.2.4 Aplicação aos dados do padrão de difração do silício

Mostramos na figura 5.10 o resultado de deconvolução para cada um dos picos da amostra padrão de silício, obtido pelo método acima exposto. Foi usada a FAP mostrada na figura 5.1. O resultado é quase idêntico ao espectro medido, confunde-se com ele.

A aplicação do refinamento de Rietveld aos dados deconvoluídos resultou numa nova estimativa para o parâmetro de rede: (5.41343 ± 0.00008) Å. Notamos que não há impacto significativo do processo de deconvolução sobre o valor obtido por refinamento, sobretudo porque os erros dominantes estão associados às imprecisões geométricas que interferem sobre a posição dos picos, e não às larguras dos mesmos. Por outro lado, o resultado de deconvolução mostra que as larguras de pico ficaram praticamente inalteradas, o que demonstra que a resolução espacial do detector é suficiente para uma amostragem precisa do espectro.

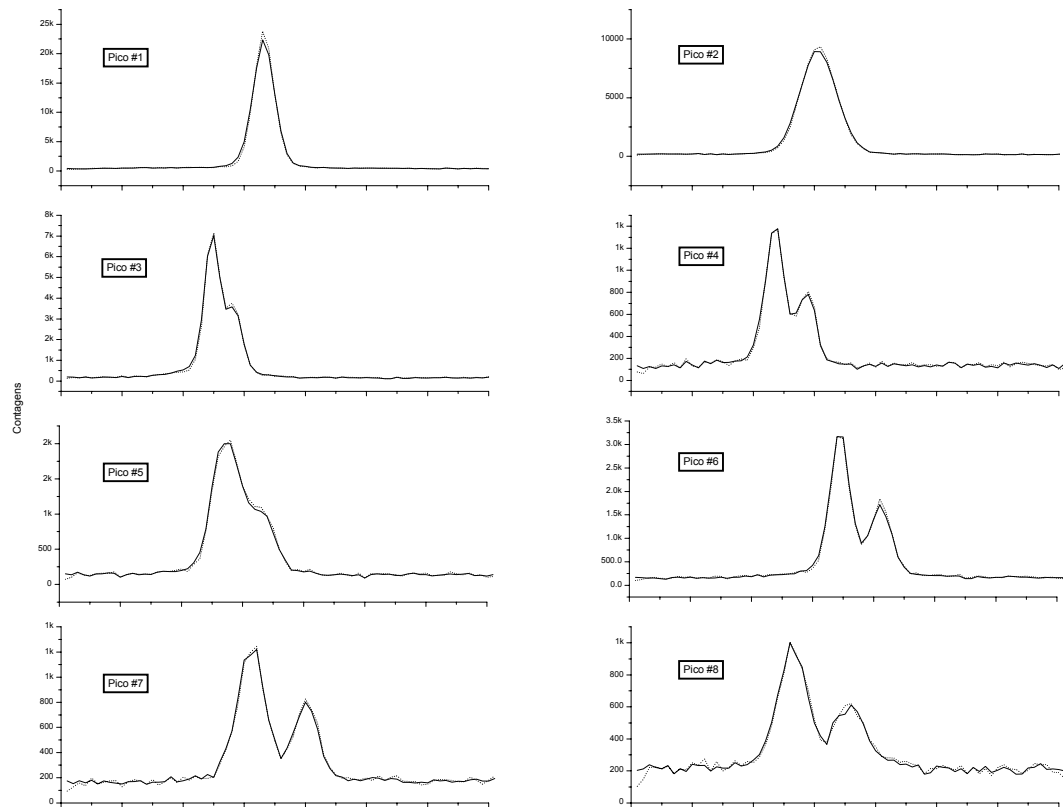


Figura 5.10: Resultado de deconvolução (linha pontilhada) para cada um dos 8 picos do espectro de difração medido (linha cheia) para o silício.

Conclusão

Neste trabalho original, que reúne Física e instrumentação científica, desenvolvemos um método alternativo para realizar as medidas de cristalografia que são feitas com os difratômetros, que foram nosso ponto de partida.

Para realizar estas medidas, construímos um DSP novo, com a característica interessante de ter câmaras de detecção e de localização separadas, facilitando mudanças na eletrônica de leitura. Além disso, esse detector também permite medir posição de incidência de radiação com a resolução necessária para medidas de difração de Raios X. Pudemos melhorar seu desempenho, desenvolvendo e testando um novo pré-amplificador que fornece uma boa relação sinal-ruído, como está explicado no capítulo 2 e no Apêndice C.

Com isso, pudemos fazer a implementação do difratômetro baseado em DSP mostrado na figura CO.1, obtendo boa resolução espacial e mostramos as correções necessárias para levar em conta a geometria ótima do sistema.

Também foi desenvolvido um algoritmo de deconvolução dos dados. Este algoritmo é suficientemente geral para permitir a deconvolução no caso em que a FAP varia a cada ponto da janela do detector, mas não foi necessário utilizar esta possibilidade porque a resolução do detector é suficiente para obter o espectro de difração praticamente sem distorções, uma vez que a distorção do ponto de focalização sobre o círculo de difração é inferior à resolução espacial do detector, como foi mostrado no capítulo 4. Conseguimos obter medidas de parâmetro de rede para a amostra padrão de acordo com os valores obtidos pelo difratômetro comercial

A fim de aperfeiçoar este sistema, temos que aprimorar a precisão geométrica do difratômetro, como discutido na seção 4.4. Um aspecto teórico que pode ser aperfeiçoado é o refinamento de Rietveld. Devem ser feitas mais medidas, com utilização mais extensiva de outros programas e estudo mais aprofundado do modelo utilizado. No futuro, também se pode usar o sistema para

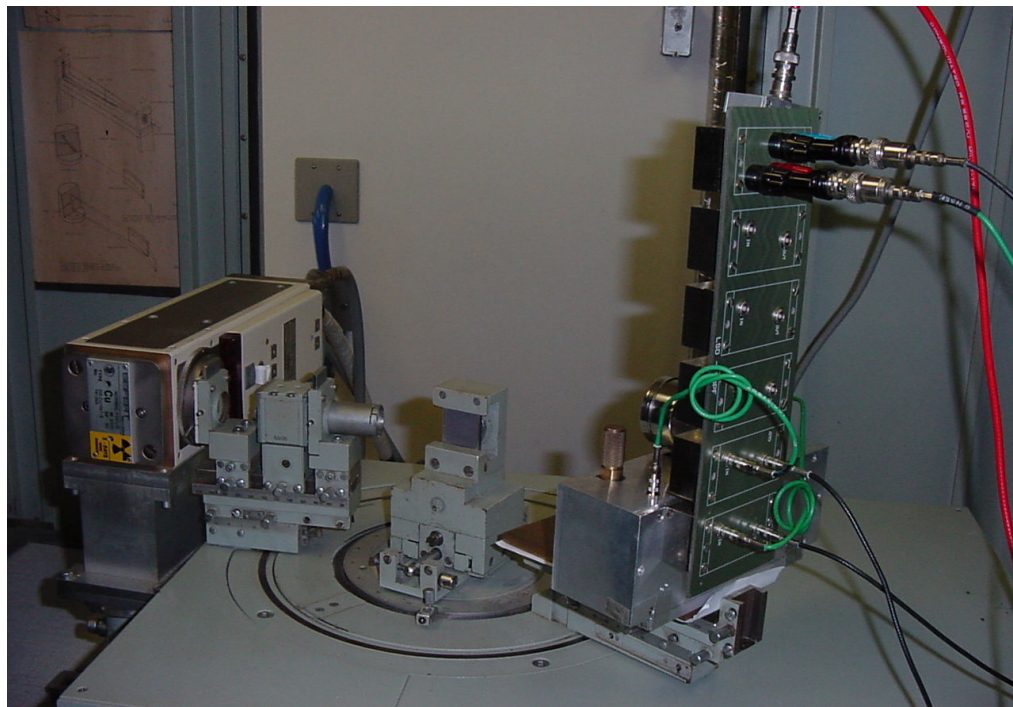


Figura CO.1: Difratorômetro com DSP construído no presente trabalho.

estudar amostras de outros materiais.

Outra perspectiva para este trabalho é a extensão do método de deconvolução para a correção de imagens.

Trabalhos futuros em decorrência desta tese estarão listados na página do LSD na internet [36] e deverão incluir pelo menos dois artigos: um sobre o novo DSP e outro sobre o método de deconvolução, além de material detalhando as técnicas de construção e caracterização de pré-amplificadores utilizadas.

Referências

- [1] E. S. Dana, “*A textbook of mineralogy*”, 4^aed., John Wiley & Sons, 1932
- [2] G. Antonoff, *J. Phys. Chem.* 48, 95 (1944)
- [3] H. P. Klug e L. E. Alexander, “*X-ray diffraction procedures*”, 2^aed., John Wiley & Sons, 1974
- [4] M. M. Woolfson, “*An introduction to x-ray crystallography*”, 2^aed., Cambridge, 1997
- [5] C. Kittel, “*Introduction to solid state physics*”, 5^aed., John Wiley & Sons, 1976
- [6] *The International Union of Crystallography*, “*International Tables for x-ray Crystallography- vol.I*”, 3^aed., Kynoch Press, 1969
- [7] D. Schwarzenbach, “*Crystallography*”, John Wiley & Sons, 1996
- [8] B. D. Cullity, “*Elements Of X-Ray Diffraction*”, 2^aed., Addison-Wesley Publishing Company, Inc., Reading, 1978.
- [9] C. Hammond, “*The Basics Of Crystallography And Diffraction*”, Oxford University Press, New York, 1997
- [10] L. E. Fuentes Cobas, “*Introducción al Método de Rietveld*”, Sociedad Mexicana de Cristalografía, Ciudad México, 2002
- [11] R. Eisberg & Resnick, “*Física Quântica*”, 9^aed., Campus, 1994
- [12] *VEB Freiburger Präzisionsmechanik*, “*Universal X-Ray Diffractometer HZG 4/C*”, manual do fabricante, data da publicação não disponível

- [13] Rich, Seifert & Co., “*Description and Operation Manual - Iso-DEBYEFLEX 3000*”, manual do fabricante, data da publicação não disponível
- [14] A.F. Barbosa, A. Gabriel, A. Craievich, *Rev. Sci. Instrum.* 60(7) 1989.
- [15] D. Ritson, “*Techniques of high-energy physics*”, Interscience, 1961
- [16] W. R. Leo, “*Techniques for nuclear and particle physics experiments*”, Springer-Verlag, 1987
- [17] P. R. B. Marinho, “*Projeto e Construção de um Detector de Raios Cós-
micos* ”, Tese de Mestrado, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, 2001
- [18] W. Greiner and J. Reinhardt. *Quantum Eletrodynamics*. Springer-Verlag. Berlin, Heidelberg, New York, 1994
- [19] “*XCOM: Photon Cross Sections Database*”, acessado em julho de 2005 no endereço:
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/XCOM.html>
- [20] G. F. Knoll, “*Radiation Detection and Measurement*”, 2^aed., John Wiley & Sons, 1989
- [21] F. Sauli, “*Principles of Operation of Multiwire Proportional and drift chambers*”, CERN 77-09, 1977
- [22] A. F. Barbosa e Roberto da Silva, *Nucl. Instr. Meth. A* 555 (2005).
- [23] A. F. Barbosa e Roberto da Silva, *Nucl. Instr. Meth. A* 555 (2005), versão digital disponível na página da editora, no endereço:
<http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2005.09.012>
- [24] A. F. Barbosa *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. A* 420 (1999)
- [25] Documento *LM6165/LM6265/LM6365 High Speed Operational Amplifier*, extraído da página da National Semiconductor na internet em maio de 2004: <http://www.national.com>
- [26] A. Barna e D. I. Porat, “*Operational Amplifiers - second edition*”, John Wiley & Sons, 1989

- [27] Documento “*OPA657 Datasheet*”, visto na página da Texas Instruments na internet em abril de 2005: <http://www-s.ti.com/sc/ds/opa657.pdf>
- [28] “*BFR93A NPN 6GHz wideband transistor datasheet*”, Philips Semiconductors, 1997.
- [29] Documento “*142IH Amplifier*”, acessado na página da ORTEC na internet em novembro de 2003: <http://www.ortec-online.com/electronics/preamp/142ih.htm>
- [30] Página da Phillips Scientific na internet, acessada em março de 2005: <http://www.phillipsscientific.com>
- [31] Manual disponível em página do fabricante, visto em março de 2005: <http://www.ortec-online.com/electronics/disc/584.htm>
- [32] Manual disponível em página do fabricante, visto em março de 2005: <http://www.ortec-online.com/electronics/tac/566.htm>
- [33] H. P. Lima Jr. *et al.*, “*A Fast Multichannel-Analyzer for Radiation Detection Applications*”, IEEE Trans. Instrum. Meas., vol. 53, no 2, Abril de 2004.
- [34] Sítio do fabricante na internet acessado em agosto de 2003: <http://www.xilinx.com>
- [35] Sítio do fabricante na internet acessado em agosto de 2003: <http://www.analog.com>
- [36] Página na internet do Laboratório de Sistemas de Detecção / CBPF vista em fevereiro de 2006: <http://www.cbpf.br/~lsd>
- [37] “*Developer’s Guide - Borland Delphi 5 for Windows 98, Windows95, & Windows NT*”, Inprise Corporation, 1999
- [38] Página do fabricante na internet vista em novembro de 2005: <http://www.philips.com/>
- [39] “*The blade chamber : a solution for curved gaseous detectors*”, J.Ballon, V.Comparat & J.Pouxe, acessado em janeiro de 2006 na internet no endereço <http://www.inel.fr>

- [40] Manual disponível em página do fabricante, visto em dezembro de 2005: <http://www.ortec-online.com/pdf/474.pdf>
- [41] R. A. Young, “*The Rietveld Method*”, Oxford University Press, 1995
- [42] *National Institute of Standards & Technology*, “*Standard Reference Material 640C*”, setembro de 2000
- [43] J. Rodriguez-Carvajal, “*An Introduction to the program Fullprof 2000 - version july 2001*”, CEA-CNRS, França
- [44] “*TOPAS, General Profile and Structure analysis software for Powder Diffraction Data*”, V.2.0, Bruker AXS GmbH, Karlsruhe, Alemanha
- [45] “*PCPDFWIN 2.01 - Powder Diffraction File - CD Database*”, ICDD, 1998
- [46] W. H. Press *et al.*, “*Numerical Recipes In C: The Art Of Scientific Computing*”, 2^aed., Cambridge University Press, 1992
- [47] Página do programa BGMN na internet acessada em abril de 2006: <http://www.ccp14.ac.uk/ccp/web-mirrors/bgm/index.html>
- [48] Página do fabricante na internet acessada em junho de 2005: <http://www.borland.com/br/products/cbuilder>
- [49] J. A. Lake *et al.*, *Acta Cryst.* (1967), 23, 191
- [50] O. Nachtmann, “*Elementary Particle Physics - Concepts and Phenomena*”, coleção “Texts and Monographs in Physics”, Springer-Verlag, 1990
- [51] S. Gasiorowicz, “*Física Quântica*”, Guanabara Dois, 1979
- [52] F. Halzen e A. D. Martin, “*Quarks And Leptons: An Introductory Course In Modern Particle Physics*”, John Wiley & Sons, 1984
- [53] Roberto da Silva, “*Análise de Interações $e^+e^- \rightarrow Z^0(\gamma) \rightarrow \tau^+\tau^-(\gamma)$ no experimento DELPHI a $\sqrt{s}=172$ GeV*”, Tese de Mestrado, Universidade do Estado do Rio de Janeiro, 2000 disponível em versão digital no endereço: <http://delphiwww.cern.ch/~delphd/thesis/rdasilva/rdasilva.ps.gz>

- [54] J. D. Jackson, “*Classical Electrodynamics*”, segunda edição, John Wiley & Sons, 1975

Apêndice A

Geometria Euclideana em Difratômetros de pó

Pode-se demonstrar facilmente que, para um triângulo qualquer delimitado por segmentos de reta de comprimentos L_1, L_2 e L_3 , sob ângulos α_1, α_2 e α_3 , como mostrado na Fig. A.1, valem as seguintes relações de igualdade:

$$\frac{L_1}{\text{sen}\alpha_1} = \frac{L_2}{\text{sen}\alpha_2} = \frac{L_3}{\text{sen}\alpha_3} \quad (\text{A.1})$$

A expressão acima é conhecida como “Lei dos Senos”.

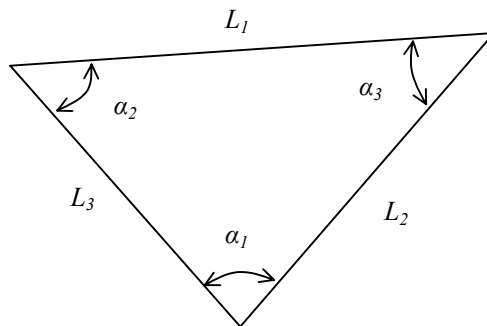


Figura A.1: Um triângulo e seus parâmetros.

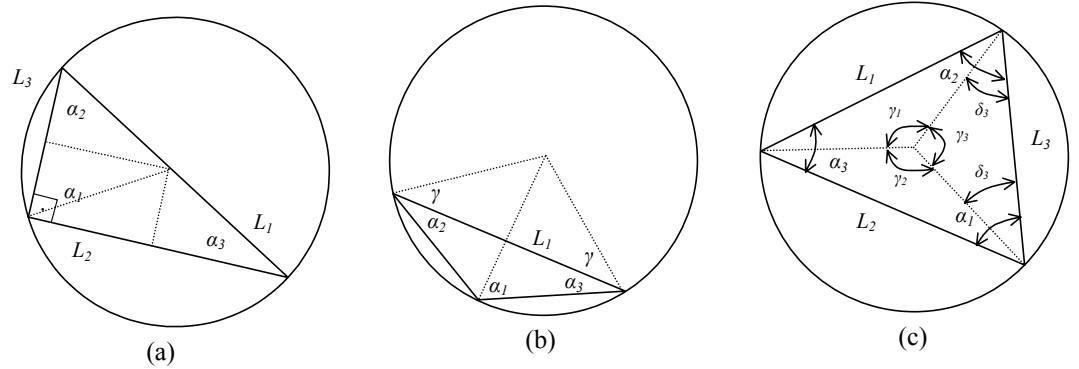


Figura A.2: Triângulos inscritos: retângulo (a), obtusângulo (b) e acutângulo (c).

Suponha-se que os vértices do triângulo estejam localizados sobre o perímetro de um círculo, de modo que a distância do centro deste círculo a cada um dos vértices seja o próprio raio R . Importa conhecer a relação entre os parâmetros do círculo e do triângulo neste caso específico.

Há três possibilidades genéricas, ilustradas na Fig. A.2, que permitem classificar quaisquer outras.

A.1 Caso Retângulo

Se o triângulo circunscrito é retângulo, nota-se que o centro do círculo está localizado no meio da hipotenusa, já que, traçando-se segmentos de reta perpendiculares ao centro dos catetos, obtém-se (ver Fig. A.2 (a)):

$$\frac{L_1}{2} = \sqrt{\left(\frac{L_2}{2}\right)^2 + \left(\frac{L_3}{2}\right)^2} = R \quad (\text{A.2})$$

E esta igualdade leva-nos a:

$$\frac{L_1}{\text{sen}\alpha_1} = \frac{L_2}{\text{sen}\alpha_2} = \frac{L_3}{\text{sen}\alpha_3} = \frac{L_1}{\text{sen}\left(\frac{\pi}{2}\right)} = 2R = D \quad (\text{A.3})$$

A.2 Caso obtusângulo

Para este caso, o ângulo γ definido entre o raio e o lado maior, L_1 , é tal que (ver Fig. A.1 (b)):

$$\alpha_1 = (\gamma + \alpha_2) + (\gamma + \alpha_3) = \gamma + (\alpha_2 + \alpha_3) \quad (\text{A.4})$$

Como $\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 = \pi$, concluímos que:

$$\gamma \equiv \alpha_1 - \frac{\pi}{2} \quad (\text{A.5})$$

Por outro lado, vemos também da Fig. A.2(b) que

$$2R \cos \gamma = L_1 = 2R \cos \left(\alpha_1 - \frac{\pi}{2} \right) = 2R \text{sen} \alpha_1 \quad (\text{A.6})$$

Donde

$$\frac{L_1}{\text{sen}\alpha_1} = 2R = D \quad (\text{A.7})$$

Portanto, temos novamente

$$\frac{L_1}{\text{sen}\alpha_1} = \frac{L_2}{\text{sen}\alpha_2} = \frac{L_3}{\text{sen}\alpha_3} = D \quad (\text{A.8})$$

A.3 Caso acutângulo

Um triângulo agudo inscrito pode ser subdividido em 3 sub triângulos, cada um com dois lados iguais ao raio do círculo, definidos por ângulos γ e δ tais que (ver Fig. A.2 (c)):

$$\frac{\gamma_i}{2} + \delta_i + \frac{\pi}{2} = \pi \implies \delta_i = \frac{\pi - \gamma_i}{2} \quad (\text{A.9})$$

Notamos também que $\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 = 2\pi$, e que, para cada um dos três sub triângulos (i, j, k) podemos escrever:

$$\begin{aligned} \gamma_i + (\alpha_j - \delta_j) + (\alpha_k - \delta_k) &= \pi \\ \gamma_i + (\alpha_j + \alpha_k) - (\delta_j + \delta_k) &= \pi \\ \gamma_i + (\pi - \alpha_i) - \left(\frac{\pi - \gamma_j}{2} + \frac{\pi - \gamma_k}{2} \right) &= \pi \\ \gamma_i + (\pi - \alpha_i) - \left[\pi - \frac{2\pi - \gamma_i}{2} \right] &= \pi \\ &\implies \frac{\gamma_i}{2} = \alpha_i \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Como os sub triângulos têm dois lados iguais a R , temos:

$$2R \operatorname{sen} \left(\frac{\gamma_i}{2} \right) = L_i = 2R \operatorname{sen} \alpha_i = D \operatorname{sen} \alpha_i \quad (\text{A.11})$$

Portanto:

$$\frac{L_1}{\operatorname{sen} \alpha_1} = \frac{L_2}{\operatorname{sen} \alpha_2} = \frac{L_3}{\operatorname{sen} \alpha_3} = D \quad (\text{A.12})$$

Concluimos finalmente que a relação acima é válida para qualquer triângulo circunscrito.

A.4 Caso da geometria de um difratômetro

Em um difratômetro de raios X, o gerador de radiação e o detector se movimentam sobre um círculo centrado na superfície de um porta-amostras, como mostrado na Fig. A.3. Vemos, pelo acima exposto, que os ângulos φ e φ' são iguais, já que:

$$\frac{L}{\sin\varphi} = D = \frac{L}{\sin\varphi'} \implies \sin\varphi = \sin\varphi' = \frac{L}{D} \implies \varphi = \varphi' \quad (\text{A.13})$$

Em conseqüência, qualquer cristalito (grão da amostra policristalina) orientado sob ângulo θ relativamente ao feixe de incidência - quando o ângulo entre este e a superfície da amostra também é θ - pode originar reflexão de Bragg. Os feixes refletidos por todos os cristalitos nestas condições convergem para um único ponto de focalização, sobre o qual é disposto o detector. O círculo que contém a fonte pontual de raios X, a superfície do porta-amostras e o ponto de focalização é por isto denominado "círculo de focalização". Note-se que o raio deste círculo varia com θ , mas o círculo do difratômetro é fixo, de modo que para cada valor de θ é mantida a focalização do feixe difratado sobre o detector.

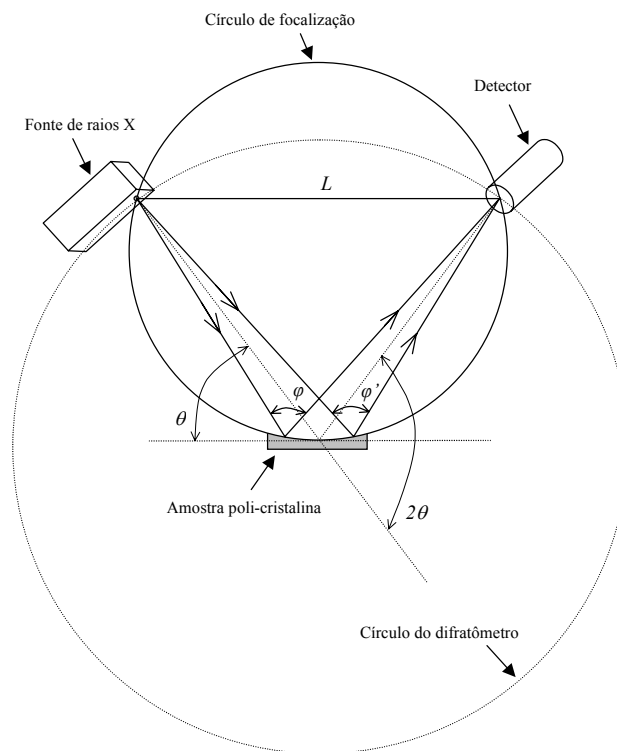


Figura A.3: Geometria e elementos básicos de um difratômetro de pó.

Apêndice B

Seção de Choque

Neste apêndice são apresentados mais detalhes sobre o conceito de seção de choque e de como calcular seus valores.

B.1 Definição

A seção de choque é um conceito importante para se descrever uma interação entre partículas, pois a partir dela é possível calcular a probabilidade de ocorrência. A definição para a seção de choque σ relativa a uma determinada interação, na qual um feixe de partículas incide em um alvo (que pode ser uma única partícula, ou uma chapa fina ou um bloco de material), é dada por:

$$\sigma = \frac{\mathcal{W}}{F} = \frac{N_{int}}{FN_M} \quad (\text{B.1})$$

onde \mathcal{W} é a taxa de interações ocorridas por unidade de tempo, N_{int} é o número de interações ocorridas por unidade de tempo, F é o fluxo, ou seja, o número de partículas incidentes por unidade de área por unidade de tempo, e N_M , o número total de partículas do alvo que foram atingidas pelo feixe.

Portanto, esta quantidade tem dimensão de (comprimento)², ou seja, de área. Na verdade, as quantidades empregadas na definição geralmente variam com a posição e, a rigor, na equação B.1 devem ser empregados seus valores médios. Por isso, é usual trabalhar com a seção de choque diferencial $\frac{d\sigma}{d\Omega}$, dada por:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{F} \frac{d\mathcal{W}}{d\Omega} \quad (\text{B.2})$$

Deste modo, a seção de choque total σ é dada, simplesmente, por $\sigma = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega$.

Para o caso particular de um feixe de N_0 partículas atravessando uma placa fina¹ de material com espessura δx e N partículas-alvo por unidade de volume, a probabilidade P de espalhamento é dada por:

$$P = \frac{N_{int}}{N_0} = \frac{N_{int}}{FA} = \frac{\sigma FN_M}{FA} = \frac{\sigma N_M \delta x}{V} = \sigma n \delta x \quad (\text{B.3})$$

onde A é a área do feixe incidente, $V = A \delta x$ é o volume das partículas atingidas no alvo e $n = \frac{N_M}{V}$ é a densidade de partículas espalhadoras no alvo.

No caso de um bloco espesso de material de espessura X , basta aplicar a equação B.3 a camadas de espessuras infinitesimais dx do alvo, levando em conta que as partículas que interagem são removidas do feixe, resultando em uma variação dN no número N de partículas:

$$\frac{dN}{N} = -\sigma n dx \quad (\text{B.4})$$

Integrando, obtém-se:

$$N = N_0 \exp(-n\sigma x) = N_0 \exp(-\mu x) \quad (\text{B.5})$$

onde N é o número de partículas que sobram no feixe depois que ele atravessa o alvo e μ é denominado coeficiente de absorção.

Assim, a seção de choque (ou pelo menos um valor médio) para a interação de determinado tipo de partícula com o material de um alvo pode ser obtida fazendo um feixe incidir sobre um bloco de espessura conhecida e medindo o número de partículas que o atravessa. Inversamente, calculando a seção de choque relativa a determinado tipo de interação, é possível saber qual a

¹Segundo esta condição, L tem que ser suficiente pequeno para que nenhum centro espalhador impeça os demais de serem atingidos pelas partículas do feixe incidente.

contribuição desse processo para a absorção das partículas que atravessam um material.

Para o cálculo da seção de choque de um processo, é necessário saber uma expressão exata ou aproximada para o potencial (ou para os campos) da interação envolvida. Para as medidas deste trabalho, só é relevante estudar interações a energias abaixo de 100 keV, como explicado no capítulo 2. Cálculos de seções de choque para interações de partículas de altas energias podem ser encontrados em outras referências[52, 53].

A seguir, discute-se o cálculo da seção de choque para um dos processos importantes para este trabalho, mencionado no capítulo 2, a seção de choque do espalhamento Thomson, obtida através do eletromagnetismo clássico.

B.2 Espalhamento Thomson

Para calcular a seção de choque relativa à interação da radiação eletromagnética com elétrons livres, considera-se uma onda incidente com o campo elétrico associado \vec{E}_0 :

$$\vec{E}_0 = E_0 \exp(ik\hat{n}_0 \cdot \vec{x})\hat{\varepsilon}_0 \quad (\text{B.6})$$

A razão entre a seção de choque infinitesimal e um elemento infinitesimal de área dS é igual à razão f entre o fluxo de energia irradiada e o de energia eletromagnética associada ao campo incidente:

$$d\sigma = fdA = fr^2d\Omega \quad (\text{B.7})$$

onde dA está dado em coordenadas esféricas e f pode ser expresso em termos dos valores médios (sobre períodos idênticos) das potências associadas:

$$f = \frac{\langle \frac{dP}{d\Omega} \rangle}{\langle \frac{dP_0}{d\Omega} \rangle} \quad (\text{B.8})$$

A energia eletromagnética incidente por unidade de tempo por unidade de área é dada pelo valor médio do vetor de Poynting para o campo incidente [54]:

$$\left\langle \frac{dP_0}{r^2 d\Omega} \right\rangle = \frac{c}{8\pi} |E_0|^2 \quad (\text{B.9})$$

Já o fluxo de energia por unidade de tempo relativo à onda espalhada é dado pelo vetor de Poynting \vec{S} , com:

$$\vec{S} = \frac{c}{4\pi} \vec{E} \times \vec{B} = \frac{c}{4\pi} |E|^2 \hat{n} \quad (\text{B.10})$$

onde \vec{E} é o campo espalhado.

O campo \vec{E} pode ser obtido considerando-se um elétron com momento de dipolo $\vec{p} = e\vec{r}(t)$ [54]:

$$\vec{E} = \frac{1}{c^2 r} \left(\ddot{\vec{p}} \times \hat{r} \right) \times \hat{r} \implies |\vec{E}|^2 = \left(\frac{e}{c^2 r} \right)^2 |\ddot{\vec{a}}|^2 \sin^2 \alpha \quad (\text{B.11})$$

onde $\ddot{\vec{a}} = \ddot{\vec{r}}(t)$ é a aceleração do elétron e α é o ângulo entre \hat{a} e \hat{r} .

Para encontrar a aceleração do elétron pelo campo incidente \vec{E}_0 , basta aplicar a segunda lei de Newton:

$$\vec{a} = \frac{\vec{F}}{m} = \frac{e\vec{E}_0}{m} = \frac{eE_0 \exp(ik\hat{n}_0 \cdot \vec{x})}{m} \hat{\varepsilon}_0 \quad (\text{B.12})$$

Logo:

$$\left\langle \frac{dP}{r^2 d\Omega} \right\rangle = \left\langle \vec{S} \right\rangle = \frac{c}{4\pi} \left(\frac{e}{c^2 r} \right)^2 \left(\frac{e}{m} \right)^2 E_0^2 \sin^2 \alpha \quad (\text{B.13})$$

Substituindo as equações B.9 e B.13 na equação B.7, obtém-se:

$$d\sigma = \frac{\left\langle \frac{dP}{d\Omega} \right\rangle}{\left\langle \frac{dP_0}{d\Omega} \right\rangle} r^2 d\Omega \quad (\text{B.14})$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{e^2}{m_e c^2} \right)^2 \sin^2 \alpha \quad (\text{B.15})$$

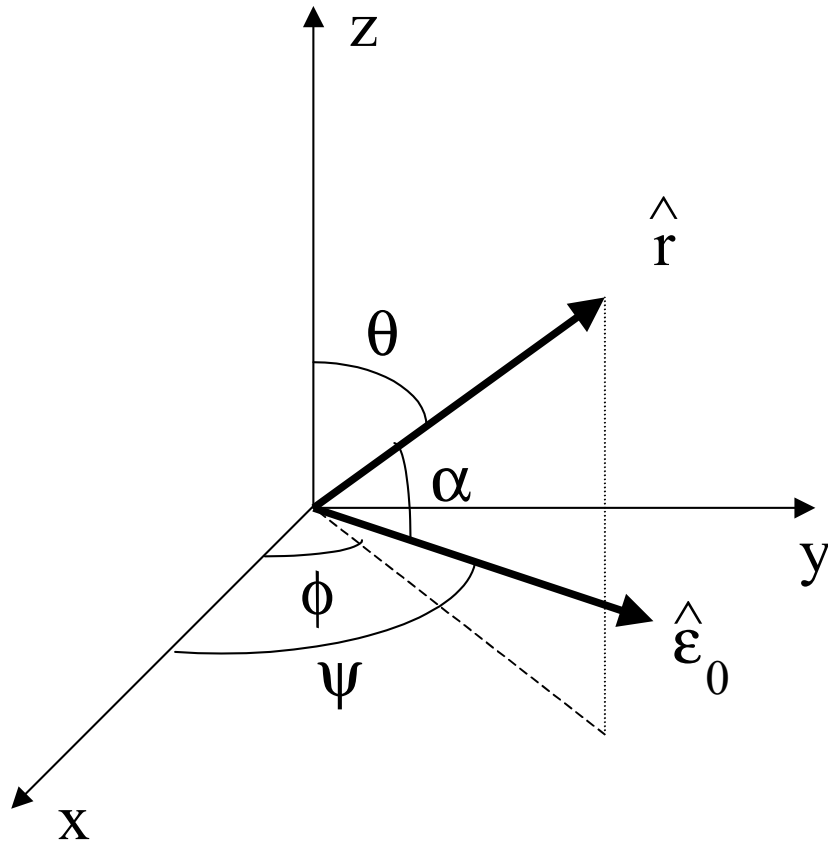


Figura B.1: Sistema de coordenadas para o espalhamento Thomson.

Para obter $\sin\alpha$, usa-se o sistema de coordenadas mostrado na figura B.1, onde $\hat{n}_0 = \hat{z}$. Deste modo, $\hat{\varepsilon}_0$ está no plano xy , sendo expresso como:

$$\hat{\varepsilon}_0 = \cos\psi\hat{x} + \sin\psi\hat{y} \quad (\text{B.16})$$

Além disso, \hat{r} é dado por:

$$\hat{r} = \sin\theta \cos\phi\hat{x} + \sin\theta\sin\phi\hat{y} + \cos\theta\hat{z} \quad (\text{B.17})$$

Para obter α , basta obter o produto escalar destes vetores unitários, pois:

$$\hat{r} \cdot \hat{\varepsilon}_0 = \cos \alpha = \operatorname{sen} \theta \cos(\psi - \phi) \quad (\text{B.18})$$

Para uma onda incidente não polarizada, considera-se a polarização média, de forma que:

$$\cos^2 \alpha = \frac{1}{2} \operatorname{sen}^2 \theta \implies \operatorname{sen}^2 \alpha = \frac{1}{2} (1 + \cos^2 \theta) \quad (\text{B.19})$$

Assim, a seção de choque diferencial é:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2} \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 (1 + \cos^2 \theta) \quad (\text{B.20})$$

De onde se obtém a fórmula de Thomson, através da integração em todos os ângulos sólidos:

$$\sigma = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 = \frac{8\pi}{3} r_e^2 \quad (\text{B.21})$$

onde r_e é o raio clássico do elétron. Para elétrons, $\sigma = 0,665 \times 10^{-28} \text{m}^2$.

Apêndice C

Artigo publicado

Segue a versão integral impressa do artigo [22] publicado em periódico internacional como resultado do trabalho desta tese. A versão digital está disponível em [23].