

MICRODENSITOMETRIA DE FILMES
DE RAIOS-X USANDO RAIOS-X

Lisandro Pavie Cardoso

*Tese apresentada ao Instituto
de Física "GLEB WATAGHIN" da
Universidade Estadual de Cam-
pinas, para a obtenção do Tí-
tulo de Mestre em Ciências.*

ORIENTADOR: Prof. Dr. Stephenson Caticha Ellis

Campinas - São Paulo - Dezembro de 1976

Este trabalho foi realizado no Laboratório de Cristalografia do Instituto de Física "Gleb Wataghin" da Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP) com o apoio do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e do Financiamento para Estudos e Projetos (FINEP).

Em especial, agradeço ao Prof. Dr. STEPHENSON
CATICHA ELLIS, pela escolha deste tema de pesquisa e
orientação dada durante todo o seu desenvolvimento.

A G R A D E C I M E N T O S

Agradeço ao Dr. SHIN LIN CHANG pelas discussões em algumas etapas deste trabalho.

Aos colegas CARLOS KENICHI SUZUKI e ARLINDO ANTONIO SAVI pelo fornecimento de alguns filmes analisados.

A ROBERT BOSCH DO BRASIL, em particular ao Sr. EMILIO SITTAR, pela doação das bombas injetoras de motor Diesel.

Ao colega CICERO CAMPOS pelas discussões durante este trabalho, principalmente na elaboração do monocromador.

Ao colega e amigo CESAR DE OLIVEIRA LOPES pelas discussões e incentivos durante toda esta pesquisa.

A todos os colegas do Grupo de Cristalografia pelo cálido apoio nas várias etapas desta Tese.

A Oficina Mecânica do Instituto de Física "GLEB WATAGHIN" pelos serviços prestados, sem os quais não seria possível a realização desta pesquisa.

A JOSÉ ALFREDO FRAYMANN pela dedicação na preparação das fotografias.

Ao Setor de Desenho do Instituto de Física pela dedicação na preparação de alguns dos diagramas apresentados nesta Tese.

À memória de meu pai,
a minha família,
a Lúcia.

I N D I C E

CAPÍTULOS

I - INTRODUÇÃO E OBJETIVOS	1
II - TEORIA	5
II.1 - MICRODENSITOMETRIA ÓTICA	5
II.2 - MICRODENSITOMETRIA DE RAIOS-X	8
II.2.1 - PRINCÍPIO BÁSICO	8
II.3 - ESTUDO DE FILMES FOTOGRÁFICOS	11
II.3.1 - DESCRIÇÃO E USO DOS FILMES FOTOGRÁ- FICOS	11
II.3.2 - FILMES UTILIZADOS EM RAIOS-X	14
II.4 - ESCOLHA DA RADIAÇÃO	16
II.5 - ESQUEMA GEOMÉTRICO COLIMADORES	23
II.6 - MONOCROMADOR ASSIMÉTRICO DE FANKUCHEN	26
III - PARTE EXPERIMENTAL	29
III.1 - DESCRIÇÃO DO MICRODENSITOMETRO DE RAIOS-X ...	29
III.1.1- SISTEMA DE MONOCROMATIZAÇÃO	32
III.1.1.1 - MONOCROMADOR ASSIMÉTRICO	32
III.1.1.2 - COLIMADORES	33
III.1.1.3 - DISPOSITIVO DE AJUSTE NA POSIÇÃO DOS COLIMADORES	34
III.1.2- DISPOSITIVO DE VARREDURA X-Y DO FILME	38

III.2 - MÉTODO DE ALINHAMENTO E REALIZAÇÃO DAS MEDIDAS	42
III.2.1- ALINHAMENTO	42
III.2.2- REALIZAÇÃO DAS MEDIDAS	44
IV - RESULTADOS DAS MEDIDAS COM O MICRODENSITÔMETRO DE RAIOS-X	45
IV.1 - CURVA CARACTERÍSTICA DO FILME DR-54(KODAK) ..	45
IV.2 - MEDIDAS	51
IV.2.1 - DIAGRAMA DE P \bar{O}	51
IV.2.2 - DIAGRAMA DE PRECESSÃO	57
V - CONCLUSÕES	61

C A P Í T U L O - I

INTRODUÇÃO E OBJETIVOS

As intensidades de raios-X difratadas pela matéria cristalina ou amorfa são detetadas e medidas usualmente mediante a utilização de filmes fotográficos ou de detetores quânticos.

Desde o início do século atual, os espectrografistas e pesquisadores que se ocupavam nas medidas dessas intensidades, usavam o microdensitômetro ótico nas suas análises. Até a década de 50, mais ou menos, muitas das possibilidades deste instrumento já tinham sido exploradas. J. HARTMANN (1889), construiu um dos primeiros microdensitômetros óticos, para medidas de grandeza das estrelas. G.M. DOBSON (1923), desenvolveu o primeiro microdensitômetro ótico de duplo feixe, um para observação direta na placa fotográfica e o outro para medidas das densidades de enegrecimento dos filmes. Dez anos depois, preocupado com as intensidades integradas, B.W. ROBINSON (1933) elaborou um microdensitômetro ótico dotado de um sistema de varredura bidimen-

sional para o filme, e, no qual, a conversão ponto a ponto e integração das curvas eram feitas automaticamente. Portanto, o aparelho permitia obter as intensidades integradas. Em 1945, J.C.M. BRENTANO fez uma contribuição importante propondo o uso de uma cunha ótica em degraus, a qual era empregada como padrão na medida das densidades de enegrecimento. No mesmo trabalho ele expõe um método para medida de intensidades integradas, aplicável ao caso de diagramas de pó, através da determinação do perfil de linha.

Com o desenvolvimento técnico dos detetores quânticos, o emprego dos filmes fotográficos ficou reservado aos casos onde interessava uma visão geral da distribuição de intensidades, por exemplo, em trabalhos de estruturas de substâncias biológicas, e, na distribuição geral de intensidade difusa. Porém, o interesse crescente da pesquisa no campo dos defeitos cristalinos tem reativado o uso do micro densitômetro ótico nas técnicas de raios-X.

Para se obter boa precisão nas medidas microdensitométricas [5% sendo um bom valor conforme WOODSTER (1964)], necessário se torna, que o feixe de luz incidente no filme, seja muito bem estabilizado, e, que o sistema ótico bem como os circuitos de detecção (fotomultiplicadora, amplificadores, etc) possuam estabilidade e resolução bastante boas. Todavia, um microdensitômetro ótico com varredura automática segundo um dos eixos e eletrônica aprimorada, atinge preços elevados, tornando por vezes impraticável sua aquisição, principalmente em laboratórios onde não se requer uma utilização frequente desse aparelho.

As considerações feitas acima justificam inteiramente o esforço para desenvolver um novo método de medir densidades de enegrecimento, em forma mais econômica, que descrevemos neste trabalho.

Os geradores de raios-X encontrados presentemente nos laboratórios de pesquisa, possuem eletrônica aprimorada e o feixe de raios-X produzido, tem boa estabilidade (cerca de 0,01% sendo um valor comum). A idéia básica original deste trabalho, consiste na utilização de um feixe monocromático de raios-X, bem colimado, que pode ser conseguido através de dispositivos mecânicos especialmente construídos, e, com comprimento de onda tal que seja bastante absorvido pela prata do filme. Desta forma, teremos um microdensitômetro, que ao invés do feixe de luz, faz uso de um feixe monocromático de raios-X e bem colimado, pois colimadores com diâmetros bem pequenos podem ser empregados.

O custo deste aparelho é dado apenas pelo gasto na construção dos dispositivos mecânicos, para monocromatizar o feixe de raios-X e movimentar o filme durante a análise microdensitométrica. Este valor é da ordem de 100 vezes menor que o de um microdensitômetro ótico convencional.

Em face ao exposto, nos propomos a desenvolver os seguintes itens:

- 1) Construção do dispositivo de varredura mecânica X-Y para os filmes e do sistema de monocromatização do feixe de raios-X;
- 2) Estudo das condições de operação e escolha da radiação a ser utilizada;

- 3) *Estudo das características do aparelho, em particular resolução e reprodutibilidade;*
- 4) *Comparação com a microdensitometria ótica.*

C A P Í T U L O - I I

T E O R I A

II.1 - MICRODENSITOMETRIA ÓTICA

O microdensitômetro ótico é um aparelho utilizado para medir densidades de enegrecimento, provenientes da incidência de raios-X ou qualquer outra radiação nos filmes fotográficos.

Quando um feixe de raios-X incide em um filme fotográfico, ele ativa os grãos de prata contidos na emulsão sendo que no processo de revelação eles se separam da solução de brometo de prata, para formar partes escurecidas no negativo. Entre certos limites, existe uma relação linear simples entre a densidade de enegrecimento D , e o número de fotons de raios-X que a produziram. O número total de fotons incidentes é proporcional a exposição, ou seja, o produto da intensidade do feixe de raios-X e o tempo durante o qual o feixe incidiu no filme. O produto é então proporcio-

nal a D .

A densidade de enegrecimento D é definida da seguinte maneira:

$$D = \log \frac{I_0}{I}$$

onde I_0 é a intensidade do feixe de luz antes de alcançar o filme e I a intensidade transmitida pelo filme.

O microdensitômetro de uma maneira simples, consiste de uma fonte de luz estabilizada, lentes condensadoras, suporte para o deslocamento do filme a ser analisado e fotomultiplicadora para detecção da intensidade do feixe de luz. O feixe de luz é focalizado no filme e a luz transmitida é novamente focalizada em uma fenda colocada em frente a fotomultiplicadora. Atualmente, os microdensitômetros óticos são bem mais sofisticados. Possuem duplo feixe, um usado para medir as densidades e outro para observação no filme, fonte de luz estabilizada, para eliminar flutuações na intensidade durante as medidas, sistema de fendas continuamente ajustáveis, e, velocidades variáveis para a varredura do filme.

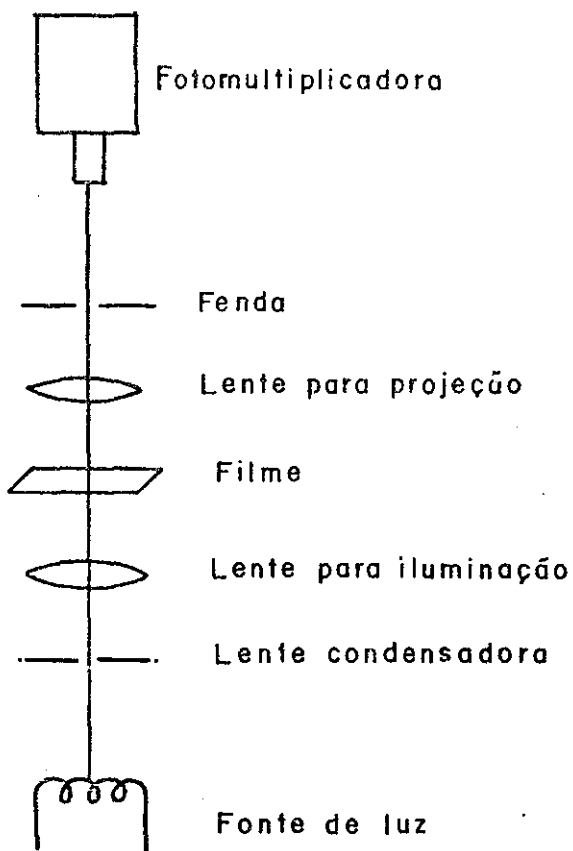


FIG. 1 — Esquema simples do sistema ótico de um Microdensitômetro

II.2 - MICRODENSITOMETRIA DE RAIOS X

II.2.1 - PRINCÍPIO BÁSICO

Seja um feixe monocromático de raios-X, bem colimado e estabilizado, de alguns centésimos de milímetro em diâmetro, incidindo perpendicularmente em um filme fotográfico. A medida da intensidade transmitida desse feixe é feita com um detetor de radiação.

Chamemos as intensidades antes e depois do filme de I_0 e I respectivamente, então:

$$I = I_0 e^{-\mu\delta} \quad (1)$$

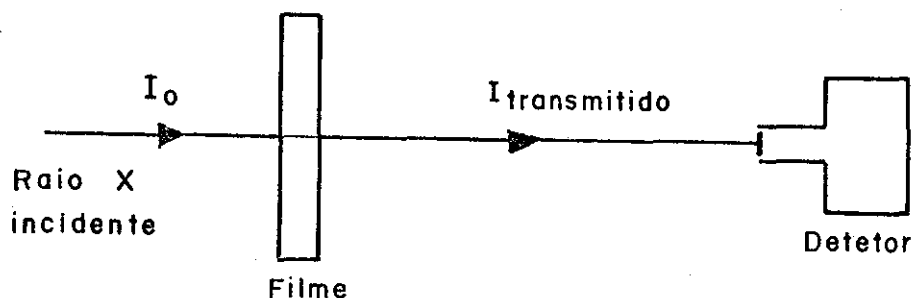


FIG. 2 — Esquema simples do princípio básico do microdensitômetro de raios X.

onde μ é o coeficiente de absorção mássico do filme para a radiação empregada e δ é a densidade superficial do filme. Essas grandezas μ e δ dependem do substrato do filme e da prata precipitada na emulsão sensível à luz e aos raios-X, depois do processo de revelação.

Definindo:

$$\delta_s = \text{densidade superficial do substrato}$$

$$\delta_{Ag} = \text{densidade superficial da prata precipitada}$$

$$\mu_s = \text{coeficiente de absorção mássico do substrato}$$

$$\mu_{Ag} = \text{coeficiente de absorção mássico da prata precipitada}$$

Então, teremos as duas relações seguintes:

$$\mu\delta = \mu_s \delta_s + \mu_{Ag} \delta_{Ag} \tag{2}$$

e
$$\delta = \delta_s + \delta_{Ag} \tag{3}$$

A equação (1) torna-se, pela substituição de (2)

$$I = I_0 e^{-\mu_s \delta_s - \mu_{Ag} \delta_{Ag}} \tag{4}$$

μ_s é uma constante para um filme particular e um dado comprimento de onda, enquanto que, δ_s é uma constante para aquele filme particular, tal que o fator $e^{-\mu_s \delta_s}$ é uma constante para toda a experiência; I_0 , que vem do gerador de raios-X, tem valor bem estabilizado.

Logo,

$$I = J_0 e^{-\mu_{Ag} \delta_{Ag}} \tag{5}$$

onde

$$J_0 = I_0 e^{-\mu_s \delta_s} . \tag{6}$$

J_0 pode ser determinado a partir de uma experiência realizada fora da mancha medida no filme, um procedimento que serve para corrigir o background.

De (5),

$$\mu_{Ag} \delta_{Ag} = \text{Log} \frac{J_0}{I} ,$$

onde I é medida para diferentes pontos do filme.

A contribuição da prata do filme para o valor do coeficiente de absorção mássico (μ), é proporcional à sua concentração no filme, de modo que o valor da intensidade (I) depende em forma simples da concentração δ_{Ag} da prata, a qual, por sua vez, é proporcional dentro de limites ao número de ftons de raios-X que incidiram no filme nesse ponto. Portanto, do mapeamento de I sobre o filme, pode-se, em princípio obter o mapeamento da intensidade de raios-X espalhada pela amostra.

II.3 - ESTUDO DE FILMES FOTOGRÁFICOS

II.3.1 - DESCRIÇÃO E USO DOS FILMES FOTOGRÁFICOS

Um filme fotográfico comum usado para luz visível e raios-X, é constituído por uma base transparente com espessura da ordem de $200\mu\text{m}$ e uma camada de emulsão fotosensível em ambos os lados da base. Esta emulsão é formada por uma suspensão de grãos ou pequenos cristais de brometo de prata embebidos em gelatina. A espessura aproximada da camada de emulsão é de $20\mu\text{m}$. Filmes com apenas uma camada de emulsão depositada sobre a base, são também utilizados em alguns casos, e, possuem além da base e da emulsão, uma camada de gelatina para proteção de mais ou menos $10\mu\text{m}$ em espessura.

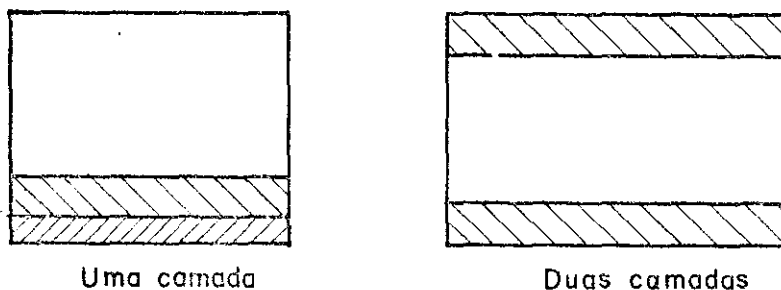


FIG. 3 — Modelo aproximado de filmes fotográficos.

Depois de exposto a radiação, o filme fotográfico é submetido ao processo de revelação, através do qual os grãos expostos separam-se da emulsão contendo brometo de prata e escurecem o filme, permitindo obter uma imagem em negativo, que é um pontilhado constituído de grãos negros de prata metálica.

Usam-se os seguintes filmes, de acordo com o tipo de radiação empregada:

- 1) Luz visível e raios-X, filmes comuns com gelatina e brometo de prata;
- 2) Radiações ultravioletas, filmes com substâncias fluorescentes a essa radiação, depositadas sobre a camada de gelatina;
- 3) Radiações vermelhas até infravermelhas, filmes com sensibilizadores, que são matérias corantes, acrescentadas à emulsão comum;

Entre as vantagens que se obtêm quando da utilização de filmes na detecção de radiações, estão as seguintes, que interessam neste trabalho:

- a) Pode-se acumular por várias horas a ação das radiações, o que permite detetar intensidades muito fracas;
- b) O filme conserva o registro preciso e permanente da ação das radiações;
- c) A medida das densidades de enegrecimento pode ser feita posteriormente ao registro.

III.3.2 - FILMES UTILIZADOS EM RAIOS-X

O filme comumente usado para fotografias obtidas com raios-X, conforme MORIMOTO e UVEDA(1963), possui sua espessura total entre 210-280 μm e é constituído por uma base transparente de (170-230) μm e camadas de emulsão de ambos os lados da base de (15 a 30) μm de espessura. Estes valores apresentados, referem-se ao estudo de 41 tipos de filmes normalmente utilizados. Eles também estudaram um tipo de filme com camada sensível de μm lado só (FUJI FG), que possuía espessura total de 165 μm , base com 140 μm , camada de emulsão de 15 μm , e uma camada protetora com 10 μm de espessura. Foi determinada a quantidade de prata nos filmes estudados (concentração), e, seu valor variou de 0.8 a 4.0 mg/cm^2 .

Os filmes para raios-X podem classificar-se em duas categorias, de acordo ao tamanho dos grãos.

- a) Filme de grão fino
- b) Filme de grão grosso

No caso a), o diâmetro médio dos grãos varia entre 0.2 e 2.0 μm . Esse é o tipo de filme recomendado para estudos microdensitométricos, e todos os demais trabalhos em laboratório, nos quais a precisão das medidas de intensidade seja importante.

No caso b), o diâmetro médio de cada grão varia entre 2.0 e 5.0 μm . Utiliza-se esse filme para traba - lhos onde não é necessária a medida de intensidades, como por exemplo, a orientação de cristais. A vantagem desse uso é que, esse tipo de filme necessita menor exposição porém apresenta alto valor para o background.

Uma característica importante dos filmes foto - gráficos normalmente usados em estudos de difração de raios-X, é a sua capacidade de registrar densidades de enegrecimento até um valor $D \sim 3.0$ (AZAROFF & BUERGER, 1958). Quando um filme exposto apresenta densidades desta ordem, a proporcionalidade entre D e a exposição não mais é verifi - cada, existindo saturação. Isso é claro, pois quase todos os grãos de prata foram precipitados, portanto a radiação adicional que incidir nessas regiões não aumentará muito o valor da densidade. Normalmente as medidas são feitas na zona linear o que obriga a limitar o tempo de exposição ou a intensidade do feixe.

II.4. - ESCOLHA DA RADIAÇÃO

Para utilizarmos o novo microdensitômetro de raios-X, tivemos que escolher a radiação a ser empregada. Analisamos em primeiro lugar a sensibilidade das medidas, que é dada por:

$$S = \left| \frac{dI}{d\delta_{Ag}} \right|$$

Conforme a equação (5) em II.1,

$$I = J_0 e^{-\mu_{Ag}\delta_{Ag}}$$

onde $J_0 = I_0 e^{-\mu_s\delta_s}$

Então,

$$S = J_0 \mu_{Ag} e^{-\mu_{Ag}\delta_{Ag}} = \mu_{Ag} I \quad (7)$$

Procuramos escolher μ_{Ag} de modo que a sensibilidade da medida seja máxima. Como μ_{Ag} depende do comprimento de onda da radiação usada, escolher μ_{Ag} significa também escolher a radiação.

$$\frac{dS}{d\mu_{Ag}} = I_0 \left[1 - \mu_{Ag} \left(\delta_{Ag} + \delta_s \frac{d\mu_s}{d\mu_{Ag}} \right) \right] e^{(\mu_s \delta_s + \mu_{Ag} \delta_{Ag})} \quad (8)$$

que apresenta um extremo em

$$1 = \mu_{Ag} \left(\delta_{Ag} + \delta_s \frac{d\mu_s}{d\mu_{Ag}} \right) \quad (9)$$

que efetivamente é um máximo, pois $\frac{d^2S}{d\mu_{Ag}^2}$ é negativa quando (9) é verificada.

Numa tentativa de determinar a ordem de grandeza da radiação a ser usada, utilizamos o critério de otimizar a medida das densidades médias de prata no filme, ou seja:

$$\mu_{Ag} = \frac{1}{\left\langle \delta_{Ag} + \frac{d\mu_s}{d\mu_{Ag}} \delta_s \right\rangle}$$

No cálculo da derivada $\frac{d\mu_s}{d\mu_{Ag}}$, usamos o fa

to de que o substrato do filme é feito de celulose, e portanto, sua composição é:

$C_6 H_{10} O_5$, com peso molecular igual a 172 g/mol.

Conseqüentemente,

$$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_s = 0.42\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_C + 0.12\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_H + 0.47\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_O$$

Tomamos,

$$\frac{d\mu_s}{d\mu_{Ag}} = \frac{d\mu_s}{d\lambda} \bigg/ \frac{d\mu_{Ag}}{d\lambda} \approx \frac{\Delta\mu}{\Delta\lambda} \bigg/ \frac{\Delta\mu_{Ag}}{\Delta\lambda} \text{ trabalha-}$$

mos com os valores dados nas International Tables, Vol. III, e obtivemos

$$\frac{d\mu_s}{d\mu_{Ag}} = 0.044 \quad (\text{quase constante no intervala-})$$

$1.90 \text{ \AA} \leq \lambda \leq 2.40 \text{ \AA}$, variação total da ordem de 10%).

Substituindo na equação (9), temos:

$$1 = \mu_{Ag} (\delta_{Ag} + \delta_s 0.044)$$

Para filmes com espessura de aproximadamente

1/4 mm, temos: $\delta_s \approx \frac{1}{40} \text{ g/cm}^2$

resultando,

$$\mu_{Ag} = \frac{1}{(\delta_{Ag} + 1.1) \times 10^{-3}} \quad \text{onde } \delta_{Ag} \text{ est\aa em mg/cm}^2.$$

De acordo com MORIMOTO e UVEDA (1963), a densidade superficial de prata nos filmes virgens varia en

entre 0.8 a 4.0 mg/cm² com média da ordem de 2.0 mg/cm².

No filme exposto e revelado a densidade será bem inferior a esses valores como efetivamente foi verificado nas medidas realizadas e que são descritas posteriormente. Dessas medidas deduzimos $\langle \delta_{Ag} \rangle \sim 0.9$ mg/cm²

Então, fazendo uso desse valor médio:

$$\mu_{Ag} = \frac{1}{(0.9+1.1) \times 10^{-3}} = 500 \text{ cm}^2/\text{g},$$

que está entre o valor de μ_{Ag} para as radiações MnK α (478 cm²/g) e CrK α que é de 586 cm²/g.

Sendo que não existe na prática um tubo de manganês, a eleição do cromo é a indicada.

Na realização do trabalho foram testadas as radiações de CuK α , FeK α e CrK α encontrando-se que a última apresentou as maiores vantagens, confirmando assim, o resultado da análise apresentada acima, apesar da absorção no ar (≈ 30 cm de percurso) que chega a produzir perdas de intensidade de 60%.

Para a radiação CrK α como $\mu_{Ag} = 586$ cm²/g então a densidade ótima, ou seja, a que seria medida com a maior sensibilidade é:

$$1 - \mu_{Ag} (\delta_{Ag} + 1.1) = 0$$

$$\therefore \delta_{Ag} = \frac{10^3}{586 \text{ cm}^2/\text{mg}} - 1.1 \text{ mg/cm}^2 = 0.6 \text{ mg/cm}^2.$$

Este valor de δ_{Ag} é da ordem do deduzido

através das medidas realizadas $\langle \delta_{Ag} \rangle \sim 0.9 \text{ mg/cm}^2$.

A fig.4 representa a sensibilidade S da medida em função da densidade superficial de prata, tendo μ_{Ag} como parâmetro, ou o que é o mesmo o comprimento de onda λ .

Como se observa nessa figura para um valor dado de δ_{Ag} parece que sempre seria mais conveniente usar um λ maior na medida. Isso não é assim, como resulta de imediato considerando os erros estatísticos na medida. Com efeito, a intensidade do feixe de raios-X que chega ao detetor é:

$$I = I_t e^{- (\mu_s \delta_s + \mu_{Ag} \delta_{Ag})} e^{-\mu_{Ar} \ell}$$

e,

$$I_0 = I_t e^{-\mu_{Ar} \ell}$$

onde I_t é a intensidade na janela do tubo de raios-X

I_0 é a intensidade do feixe ao entrar no filme.

Considerando o desvio padrão das medidas das intensidades, tem-se:

$$\Delta I = \sqrt{I} = I_t^{1/2} e^{-1/2 (\mu_s \delta_s + \mu_{Ag} \delta_{Ag} + \mu_{Ar} \ell)}$$

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{1}{\sqrt{I}} = I_t^{-1/2} e^{1/2 (\mu_s \delta_s + \mu_{Ag} \delta_{Ag} + \mu_{Ar} \ell)}$$

Para I_t constante, queremos que $\frac{\Delta I}{I}$ seja pequeno

o que levaria a procurar radiações tais que μ_s, μ_{Ag} e μ_{Ar} fossem as mais baixas possíveis, ou seja, λ pequenos, o que é contrário a condição para otimizar S .

Ve-se assim que se tentamos aumentar S , somos levados a aumentar λ , mas isso conduz a erros maiores. A solução final é de compromisso. Experimentalmente, achamos conveniente usar, como já explicamos, a radiação $CrK\alpha$.

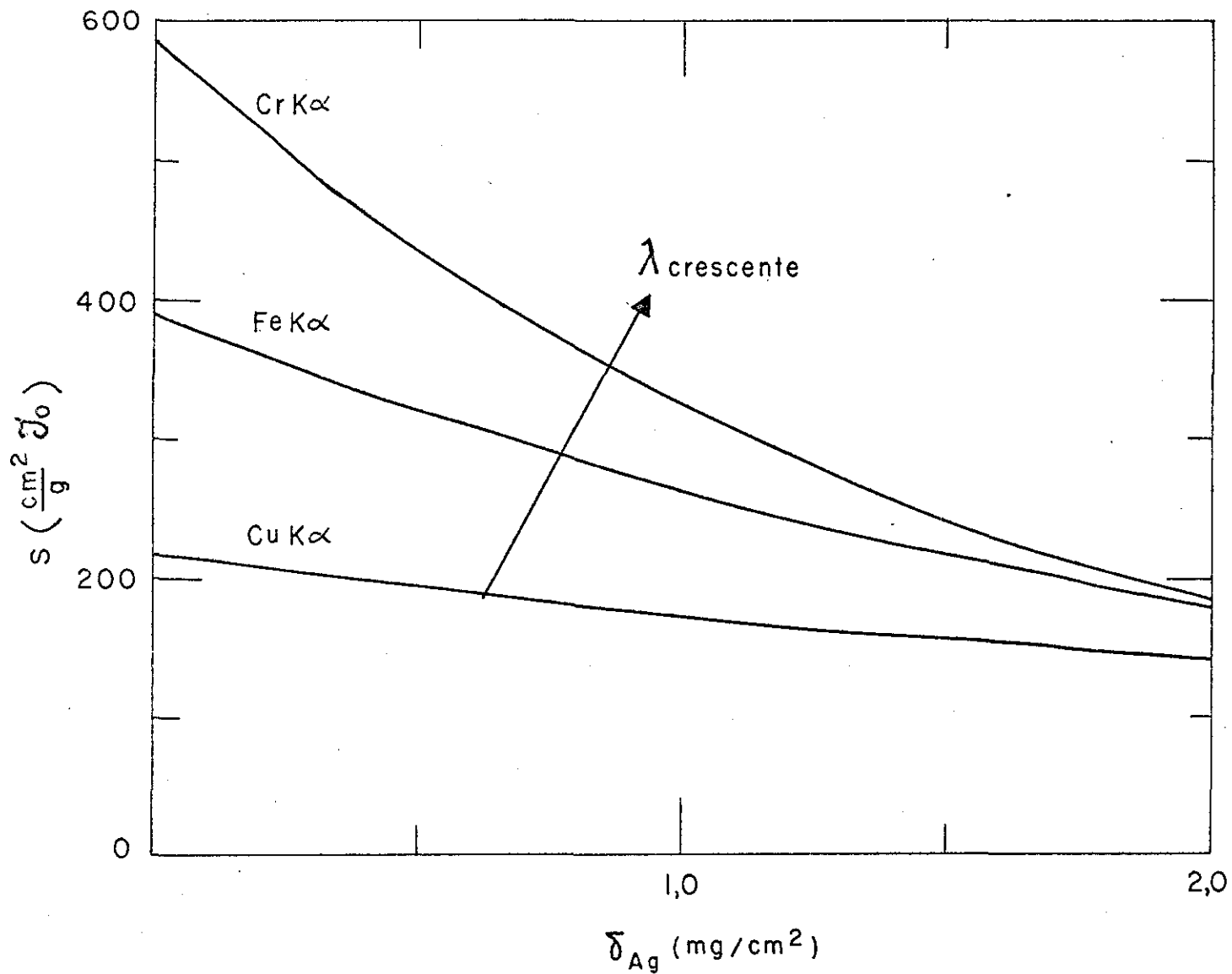


FIG.4 - Sensibilidade em função da densidade superficial de prata para diferentes comprimentos de onda.

II.5 - ESQUEMA GEOMÉTRICO. COLIMADORES

Analísaremos a seguir o esquema geométrico usado no microdensitômetro de raios-X. A descrição detalhada dos componentes deste esquema será feita no Capítulo III.

A figura 5 mostra a posição relativa do tubo de raios-X, monocromador com o colimador de entrada, os colimadores que limitam a divergência do feixe, o filme e finalmente o detetor.

Este esquema geométrico permite que o feixe de raios-X, ao alcançar o filme seja bastante monocromático e possua uma seção pequena, como veremos depois. Os colimadores de 200 μ m e 50 μ m são necessários para se obter uma boa colimação.

O colimador de entrada do monocromador foi posicionado de modo que a intensidade fosse a maior possível, o que foi obtido com um ângulo de saída ("take-off") de 69°. Esse colimador deixa passar um feixe incidente no monocromador que possui divergências $\delta_H = 1,9^\circ$ e $\delta_V = 2,4^\circ$, horizontal e vertical respectivamente.

A Tabela 1 resume os dados dos colimadores, usados em nossa experiência. Da Tabela, pode-se notar que o uso dos dois colimadores de diâmetros iguais a 50 μ m acarreta maiores vantagens, pois a divergência será menor. No entanto, foi verificado experimentalmente que nesse caso a intensidade do feixe de raios-X decai demais tornando impraticável as medidas, devido a estatística das contagens.

Com os colimadores de 200 μ m e 50 μ m respectivamente, apesar da divergência influir, aumentando a área iluminada pelo feixe de raios-X no filme, o microdensitômetro de raios-X apresentou boa resolução, pois as linhas de difração e spots normalmente analisados com esta técnica, possuem larguras da ordem de 7 a 8 vezes maiores que o diâmetro do feixe de raios-X incidente no filme. Com efeito, o diâmetro total da área iluminada sobre o filme é de 0.08mm no primeiro caso e de 0.13mm no segundo.

TABELA I

DADOS GEOMÉTRICOS DOS COLIMADORES

COLIMADORES		Divergência	Diâmetro do feixe no filme	Diâmetro do feixe no detetor
1º	2º			
50 μ m	50 μ m	0.038°	0.08 mm	0.09 mm
200 μ m	50 μ m	0.095°	0.13 mm	0.15 mm

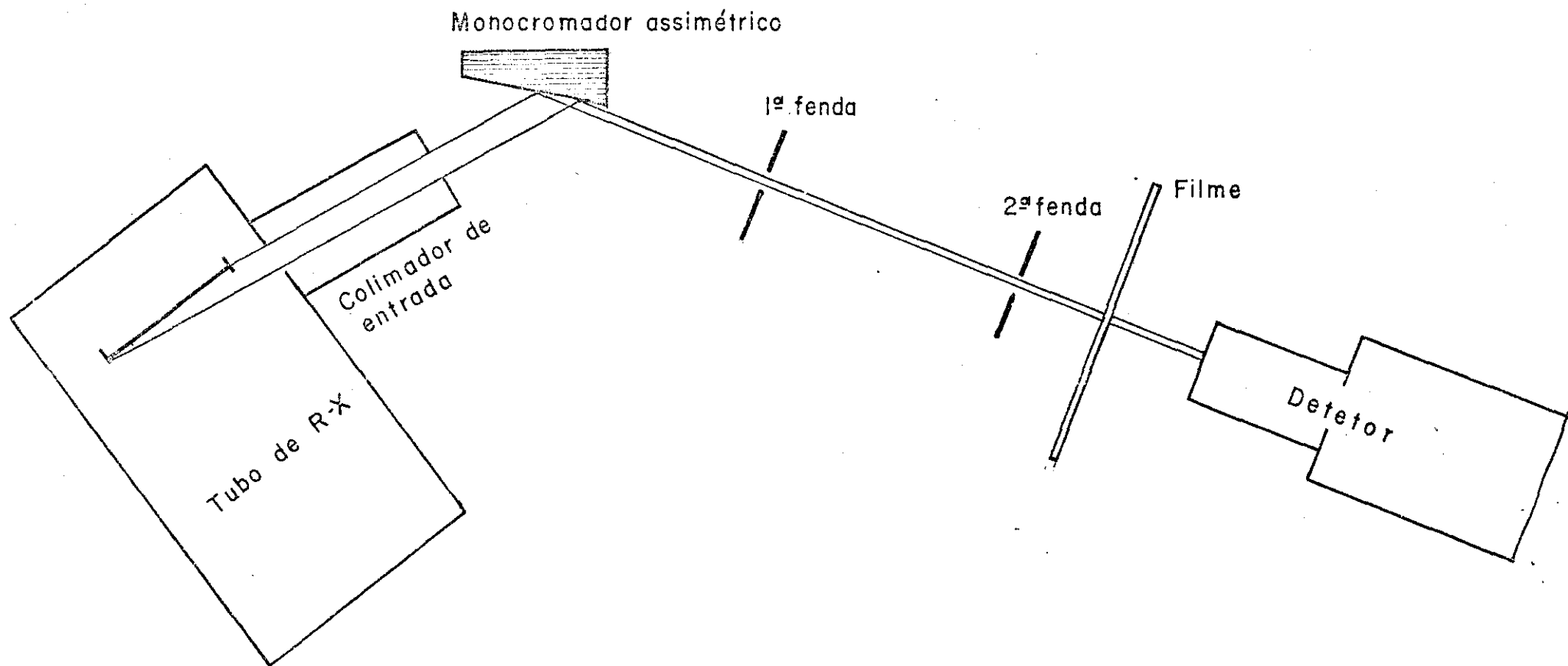


FIG. 5 - Esquema geométrico do microdensitômetro de raios X

II.6 - MONOCROMADOR ASSIMÉTRICO DE FANKUCHEN

Para a monocromatização do feixe de raios-X usamos um monocromador assimétrico do tipo idealizado por Isidor FANKUCHEN(1937). O cristal utilizado é de Germânio e o plano de reflexão o (111) que forma um ângulo α com a superfície do cristal. Este foi cortado, como explicamos no Capítulo III, com ângulo $\alpha=13.6^\circ$ (menor que θ) e a sua superfície polida de modo a possuir uma refletividade bastante alta. A reflexão no planos (111) produz então, como se observa na Fig.6, uma concentração do feixe que fica quase estritamente paralelo e cuja área depende de α e do ângulo de Bragg que definem o chamado coeficiente de assimetria b :

$$b = \frac{S'}{S} = \frac{\text{sen}(\theta-\alpha)}{\text{sen}(\theta+\alpha)}$$

Segundo Evans et al(1948), a intensidade do feixe de raios-X refletido pelo monocromador de Fankuchen segue a variação indicada na Fig.7, que mostra que ela cresce com o ângulo α atinge um máximo e cai a zero para $\alpha = \theta_B$. Entretanto o aumento máximo de intensidade não sobrepassa, segundo esses autores, o máximo de

2 o que fica muito aquêm do que poderia ser esperado do ponto de vista geométrico.

As conclusões de Evans et al não nos parecem inteiramente justificadas, já que tivemos certa evidência experimental que deverá ser objeto de verificação posterior, de aumentos superiores a 2.

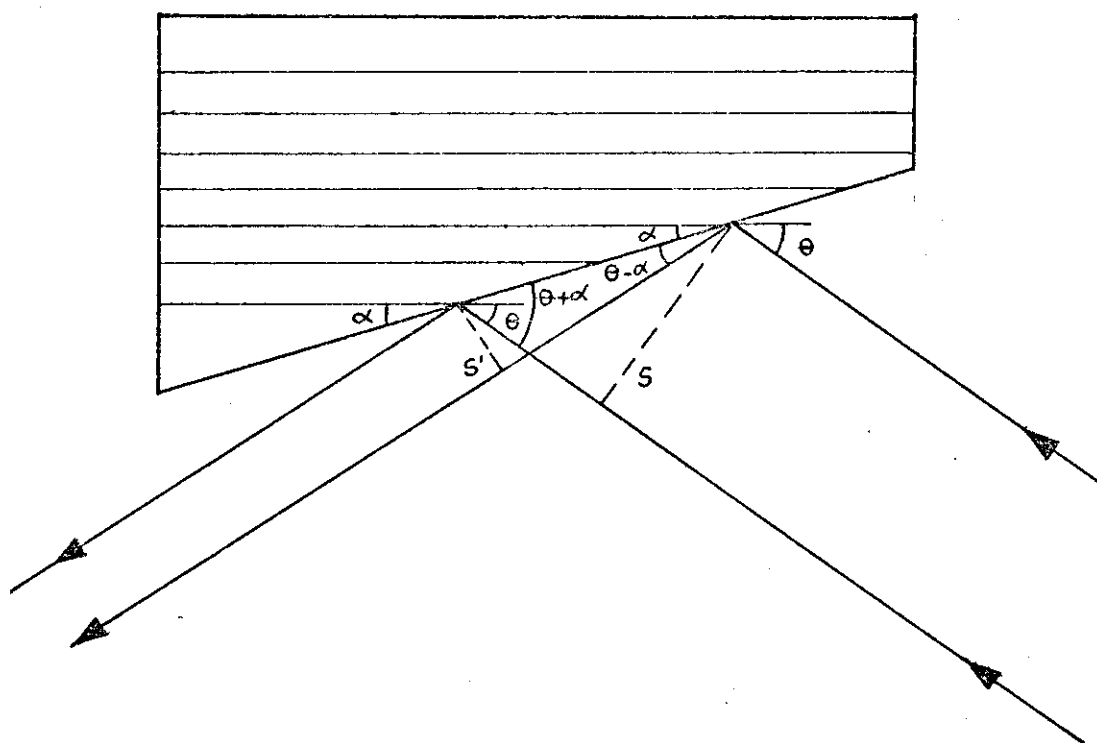


FIG. 6 — Geometria do monocromador assimétrico de FANKUCHEN.

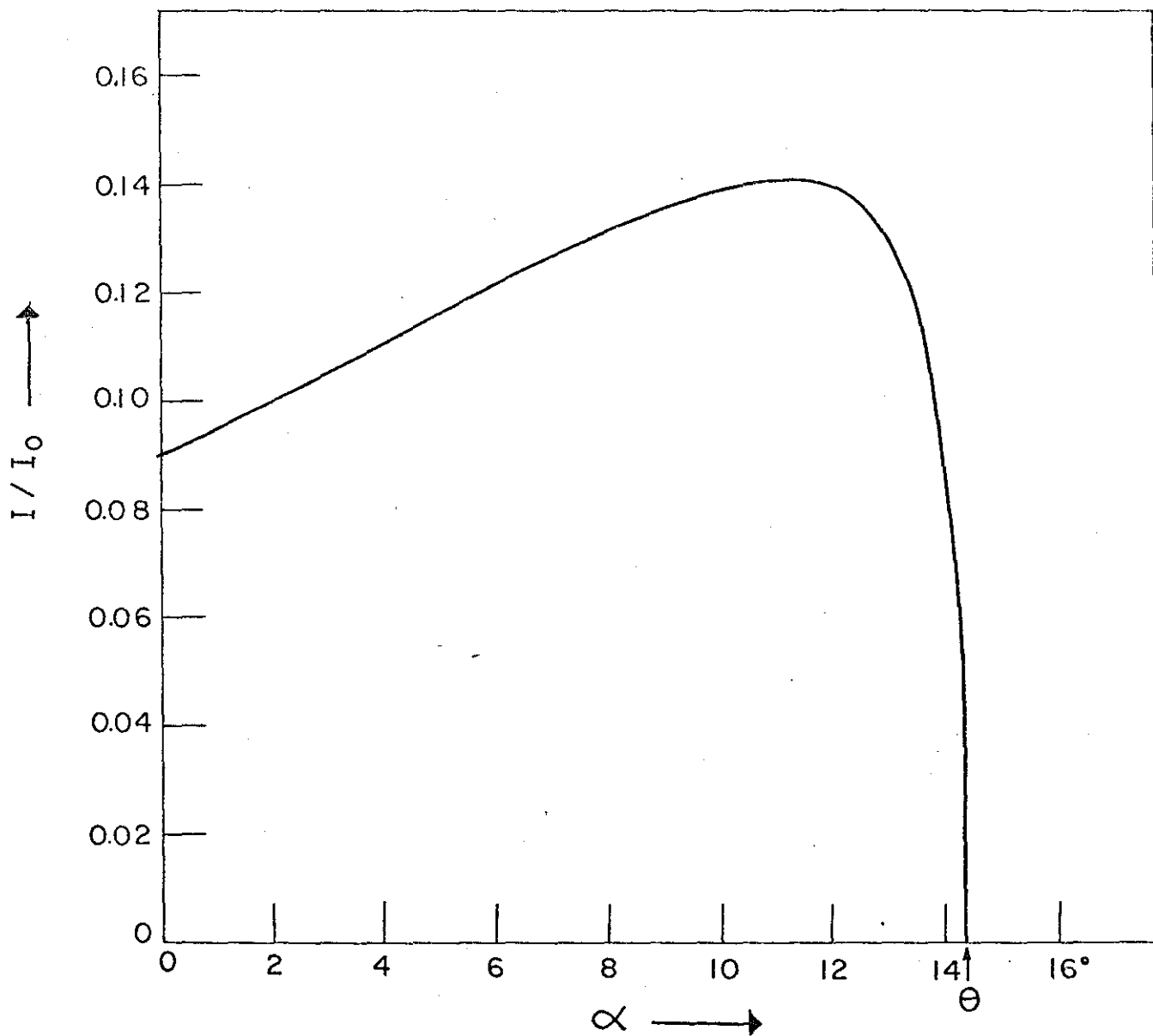


FIG. 7 — Variação de I/I_0 com α para a reflexão $20\bar{2}2$ da calcita.
Radiação: $\text{Cu K}\alpha$ — $\theta = 14^\circ 43'$

C A P Í T U L O - III

PARTE EXPERIMENTAL

III.1 - DESCRIÇÃO DO MICRODENSITÔMETRO DE RAIOS-X

O microdensitômetro de raios-X cujo projeto e construção formam a parte fundamental desta Tese, será descrito em detalhes neste Capítulo. O esquema de princípio geral já foi mostrado no Capítulo anterior (Fig. 5); a Fig.8 mostra a disposição das diferentes partes do mesmo que são:

- 1) Conjunto do monocromador e colimadores
- 2) Sistema de varredura X-Y do filme
- 3) Detetor

O feixe de raios-X é gerado por um aparelho PHILIPS PW 1140, com estabilização de 0.01%. O conjunto do monocromador está montado sôbre um leque, construído em chapa de ferro de 3/8 de polegada de espessura para garantir uma boa estabilidade mecânica, o qual fica solidário ao tubo de raios-X. O sistema de varredura vai

montado sôbre um goniômetro horizontal PHILIPS PW 1380, e, o detetor no braço do goniômetro que permite posicioná-lo com precisão de modo que o feixe seja perpendicular ao filme. Esse posicionamento pode ser feito com precisão de 1°, mas a posição pode ser lida com precisão de 0.01°.

O detetor é de cintilação PHILIPS PW - 1964/30. A resposta do detetor é registrada usando o painel eletrônico de medidas PHILIPS, formado pelas unidades:

Registrador -	PW 4247/00
Timer -	PW 4262
Ratemeter -	PW 1362
Fonte de alta voltagem -	PW 1375
Amplificador/Analizador -	PW 4280

A seguir, descrevemos em detalhes os componentes do microdensitômetro em si, que foram projetados e construídos durante este trabalho.

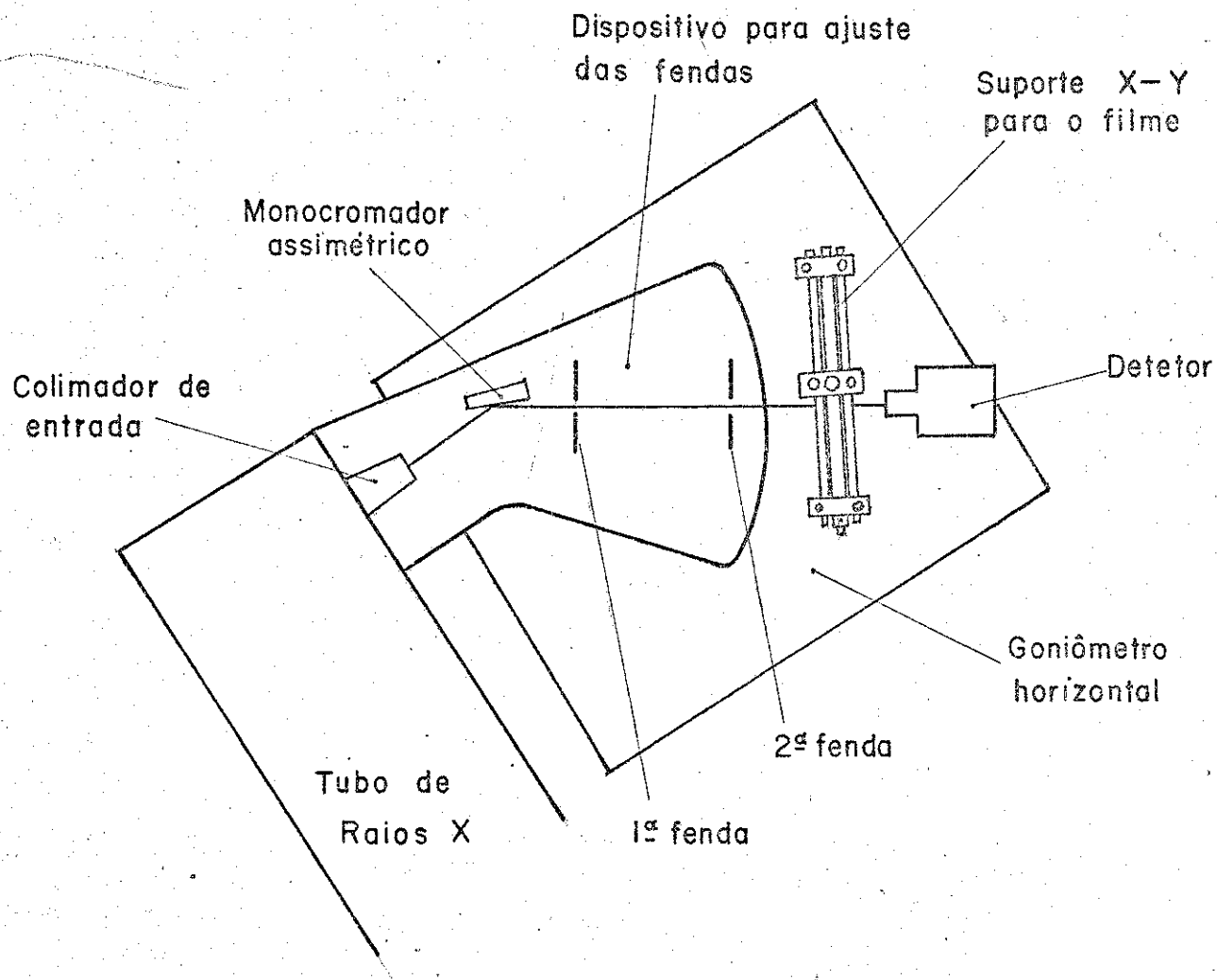


FIG. 8 — Configuração geral do Microdensitômetro de Raios X

III.1.1 - SISTEMA DE MONOCROMATIZAÇÃO

O sistema de monocromatização é formado por uma cristal monocromador e os colimadores de entrada e saída. Inicialmente foi usado um monocromador plano de Germânio com a superfície paralela aos planos (111), cuja reflexão foi a usada. Resultou evidente que nesta forma o feixe monocromático era demasiado fraco, o que nos levou a utilizar um monocromador assimétrico, tipo Fankuchen que analisamos no parágrafo III.1.1.1.

III.1.1.1 - MONOCROMADOR ASSIMÉTRICO

O monocromador foi construído, cortando um cristal de Ge com um ângulo α de $(13.6 \pm 1.0)^\circ$ com relação ao plano (111), ângulo este que foi medido em forma aproximada.

O ajuste do ângulo de Bragg é feito com precisão da ordem de 0.004° , e seu valor para a radiação $\text{CrK}\alpha$ é de:

$$\theta_{(111)} = 20.53^\circ.$$

O fator de assimetria b é de 0.22 .

A escolha do ângulo α foi baseada no aumento da intensidade, de acordo com a teoria de Evans et al (1948), que previa um aumento não superior ao valor 2. Entretanto, conseguimos encontrar experimentalmente incrementos de até 3 vezes. Esse resultado, se for confirmado, mostraria que vale a pena revisar a teoria mencionada.

III.1.1.2 - COLIMADORES

O colimador de entrada do monocromador é um colimador comum de 35 mm de comprimento e diâmetro de 1.4 mm, que fica em contato com a janela do tubo de raios-X. O feixe incidente no monocromador possui então, as divergências já citadas em II.5. O suporte é constituído por dois cilindros coaxiais, que permitem os ajustes necessários ao seu alinhamento, ou sejam, translações (vertical e horizontal) e rotação.

Os colimadores na saída do monocromador possuem duas funções: a) limitar a divergência do feixe e em consequência o tamanho da mancha iluminada sobre o fil

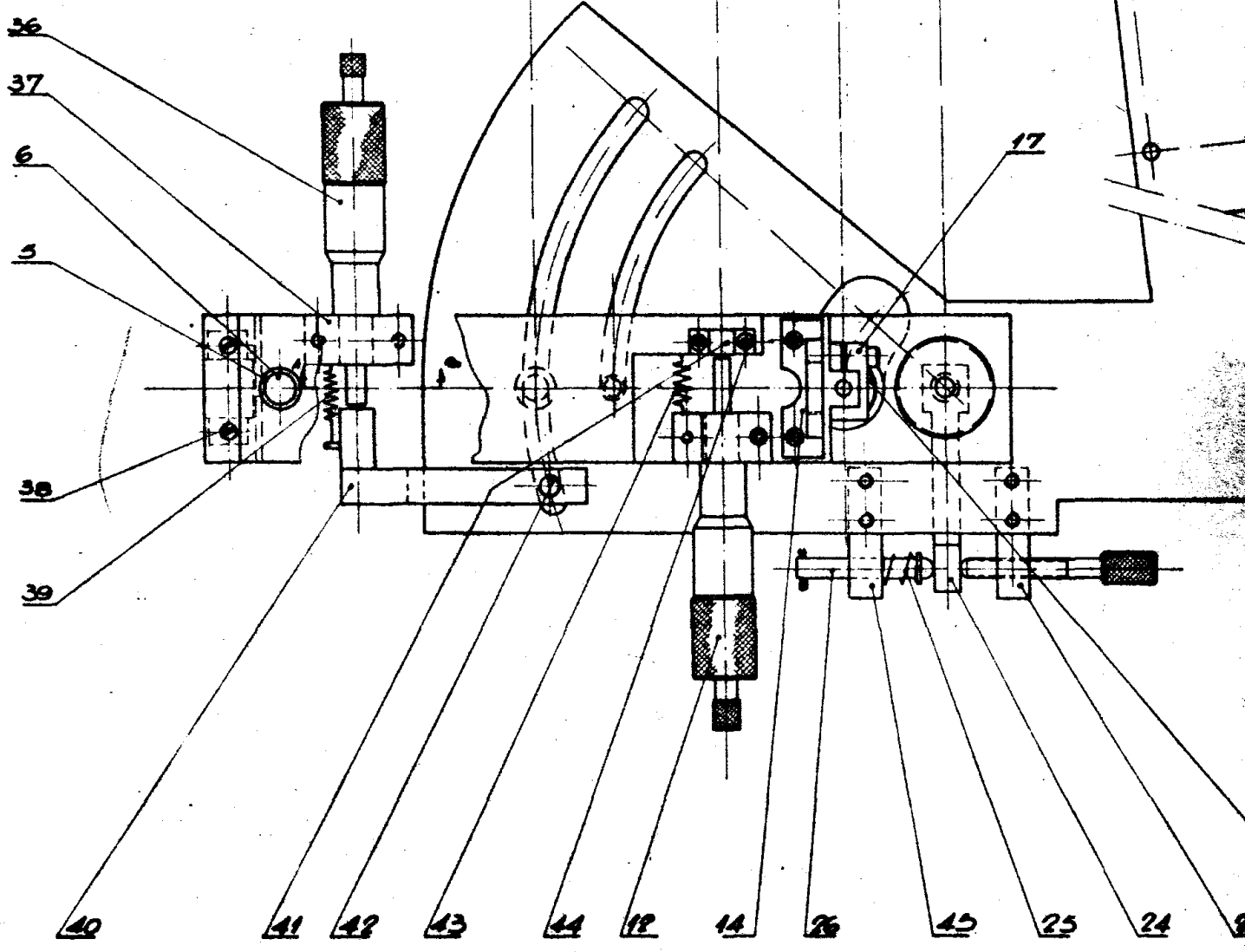
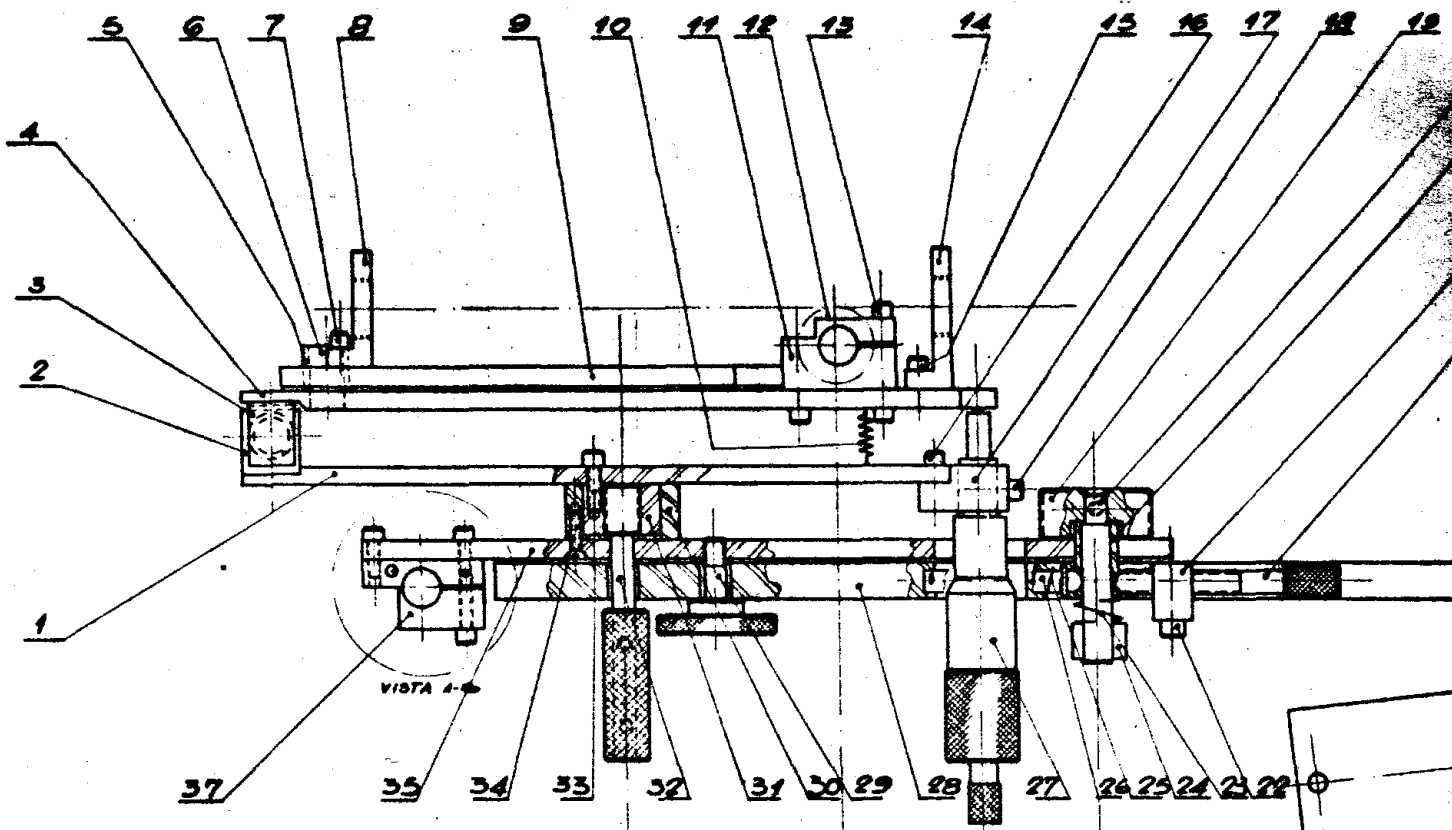
me e b) controlar a monocromaticidade.

Na Tabela 1, foram dadas as dimensões e divergências do feixe de raios-X, para duas configurações do sistema.

Os colimadores de saída de diâmetros pequenos (50 μm ou menos) são feitos com muita precisão sobre lâminas de ouro pela Rigaku Denki Ltd. O seu posicionamento deve ser feito também, com alta precisão sendo essa a razão para se ter construído um dispositivo, descrito mais abaixo, que permite fazê-lo com precisão da ordem do micron.

III.1.1.3 - DISPOSITIVO DE AJUSTE DA POSIÇÃO DOS COLIMA DORES

A Fig.9 é o desenho desse dispositivo que permite ajustar a altura do conjunto de fendas, altura de uma fenda relativa a outra, deslocar as duas fendas no plano horizontal para ajustá-las ao ângulo $2\theta_B$, e ajustar a segunda fenda independentemente da primeira. A precisão necessária para o ajuste da segunda fenda é da ordem do micron. No entanto, como foi dito no objetivo deste trabalho, o custo total do aparelho não poderia ser alto e a solução encontrada para a obtenção da



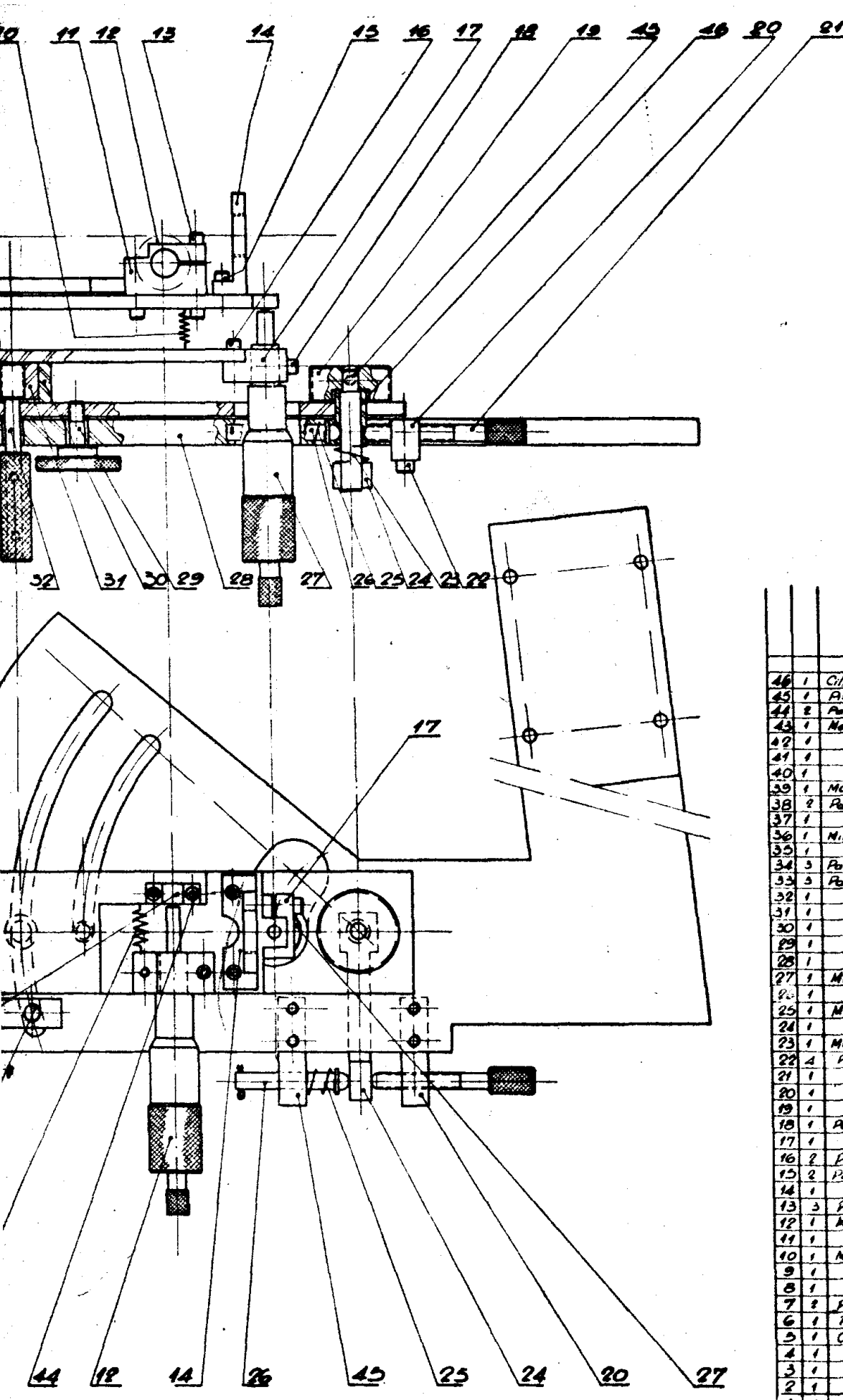


FIG. 9-A

46	1	Cilindro conf. no 1418 020 013 Bosch
45	1	Paraf. conf. no 1418 225 007 Bosch
44	2	Paraf. Allen 1/8" wth.
43	1	Mola experimental 3" int. x 0.5" dia x 10
42	1	Aço 3/8" x 7.5
41	1	Aço 1/2" x 15 x 23
40	1	Aço 26 x 32 x 20
39	1	Mola experimental 3" int. x 0.5" dia x 9
38	2	Paraf. funda 1/8" wth.
37	1	Aço 18 x 21 x 3"
36	1	Micrômetro horizontal inferior (M. tutoyo 0.01)
35	1	Aço 50 x 220 x 3/16 esp.
34	3	Paraf. Allen 1/8" wth.
33	3	Paraf. Allen 1/8" wth.
32	1	Aço 15 x 75
31	1	Aço 17 x 23"
30	1	Aço 18 x 33"
29	1	Aço 1 1/2" x 30
28	1	1010 300 x 30 dia x 3/8"
27	1	Micrômetro vertical (M. tutoyo 0.01)
26	1	Aço 3/8" x 4"
25	1	Mola experimental 7" int. x 0.5" dia x 16
24	1	Aço 17 x 30 x 7.4
23	1	Mola experimental 3" int. x 0.5" dia x 14
22	4	Paraf. Allen 1/8" wth.
21	1	Aço 3/8" x 6.5
20	1	Aço 13 x 18 x 4.5
19	1	Aço 238" wth x 50
18	1	Paraf. Allen 1/8" wth.
17	1	Aço 15 x 26 x 27
16	2	Paraf. Allen 1/8" wth.
15	2	Paraf. Allen 1/8" wth.
14	1	Aço 15 x 42 x 45
13	3	Paraf. Allen 1/8" wth.
12	1	Micrômetro horizontal superior (M. tutoyo 0.01)
11	1	Aço 18 x 22 x 3.5
10	1	Mola experimental 3" int. x 0.5" dia x 10
9	1	Aço 50 x 165 x 3/16 esp.
8	1	Aço 13 x 35 x 4.5
7	2	Paraf. Allen 1/8" wth.
6	1	Paraf. conf. no 1418 125 096 Bosch
5	1	Cilindro conf. no 1418 020 891 Bosch
4	1	Aço 50 x 205 x 3/16 esp.
3	1	Aço 15 x 20 x 10
2	1	Aço 18 x 20 x 21
1	1	Aço 50 x 195 x 3/16 esp.

DET.	QTD.	MATERIAL NORMALIZADO	MATERIAL, E DIMENSÕES	QTD.
DATA	DI	DI	DI	DI
<p>SUORTE DO MONO- CROMADOR E COLIMA- DORES</p>				<p>UNICAMP INST. DE FÍSICA "LEO WATASHI"</p>

Superfície externa na planta

Desenho de peças em grau - total 10°

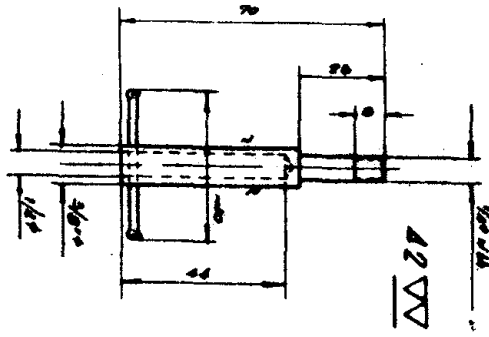
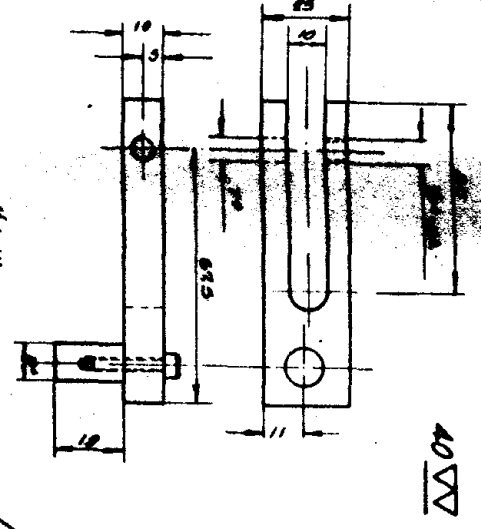
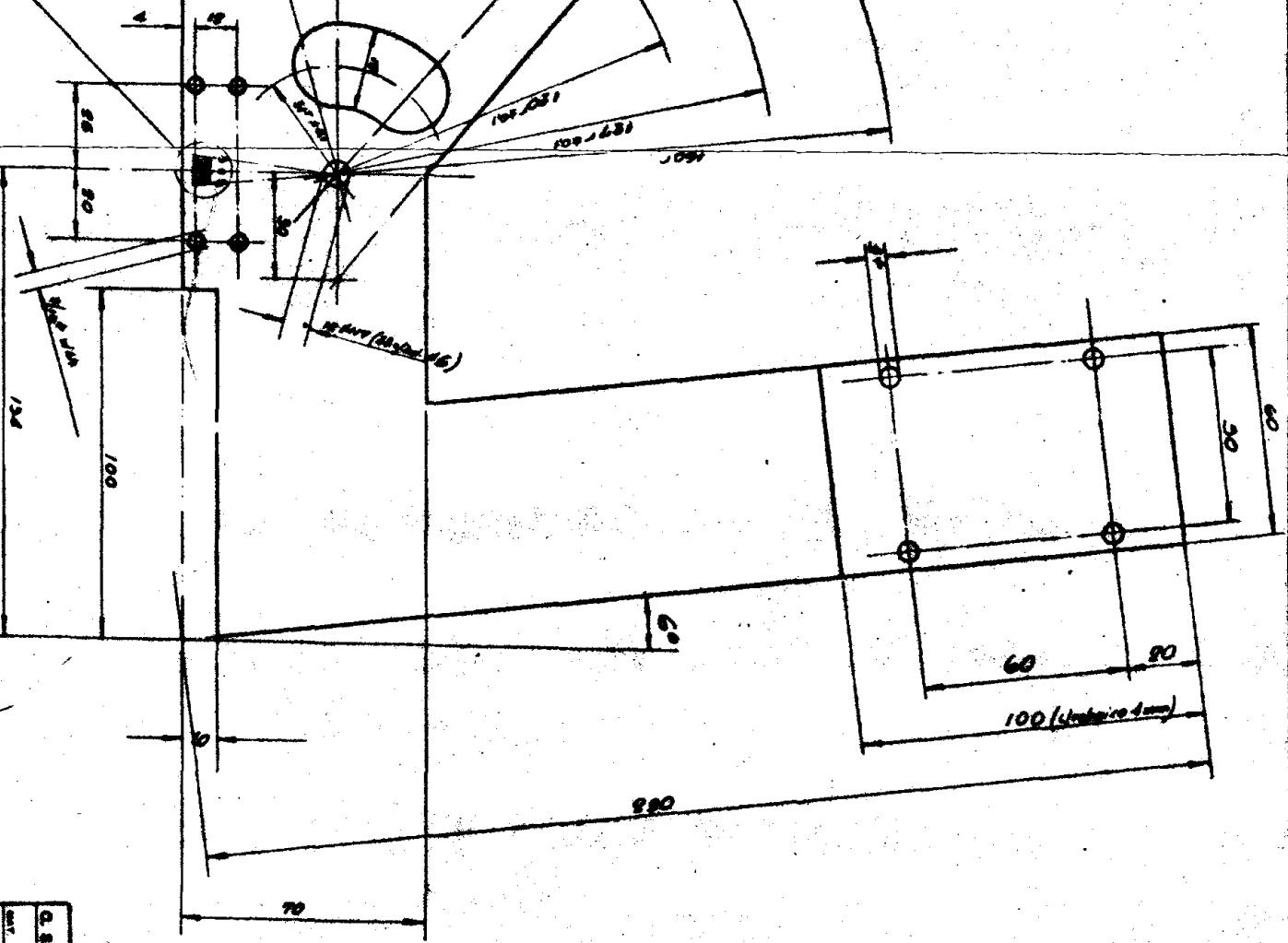
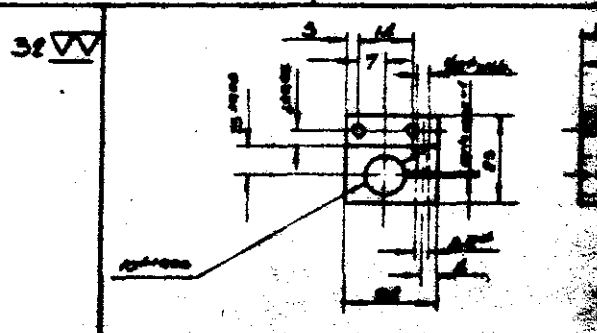
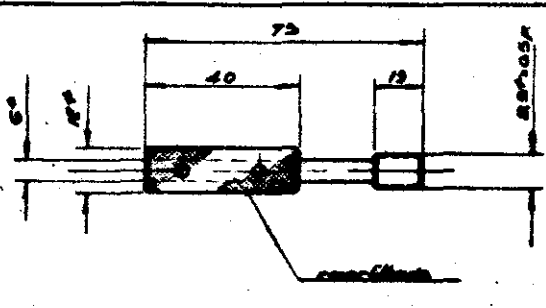
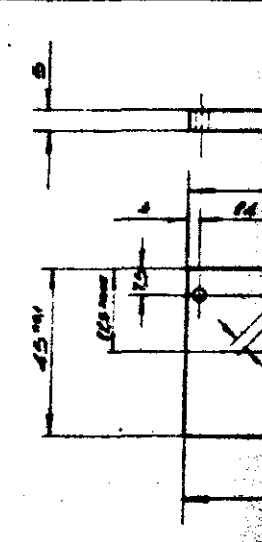
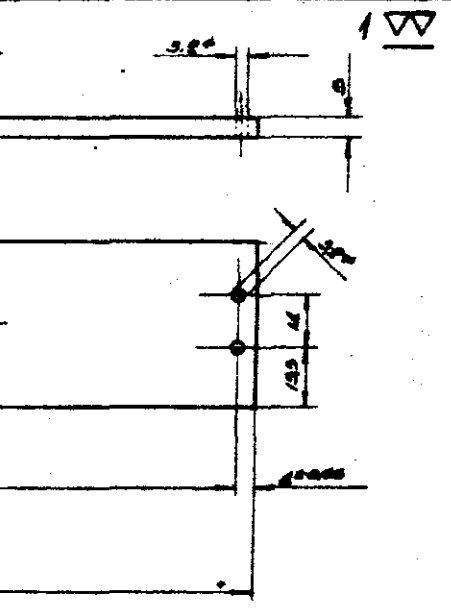
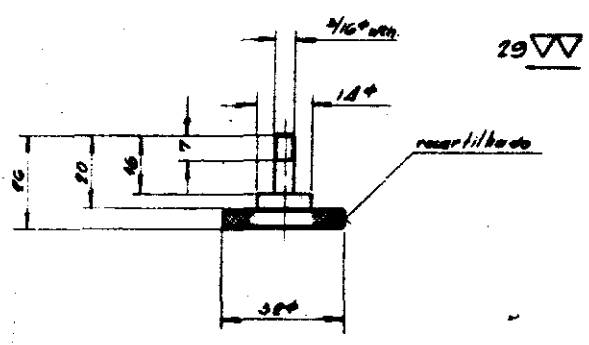
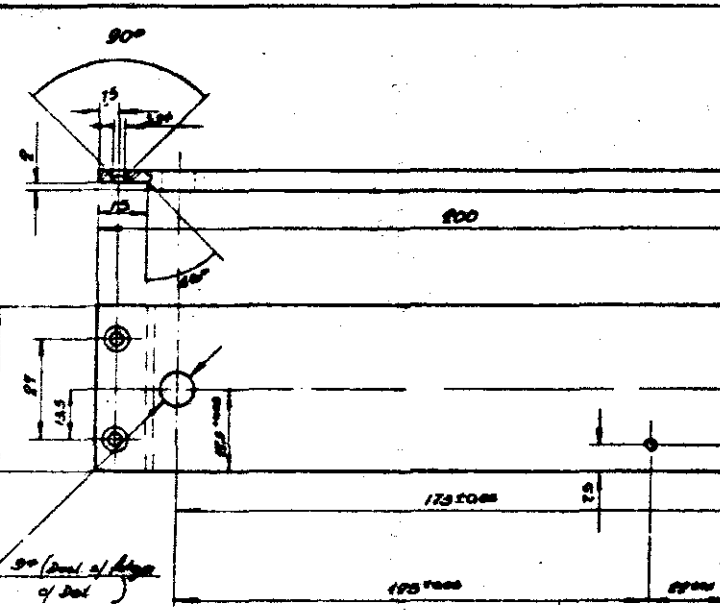
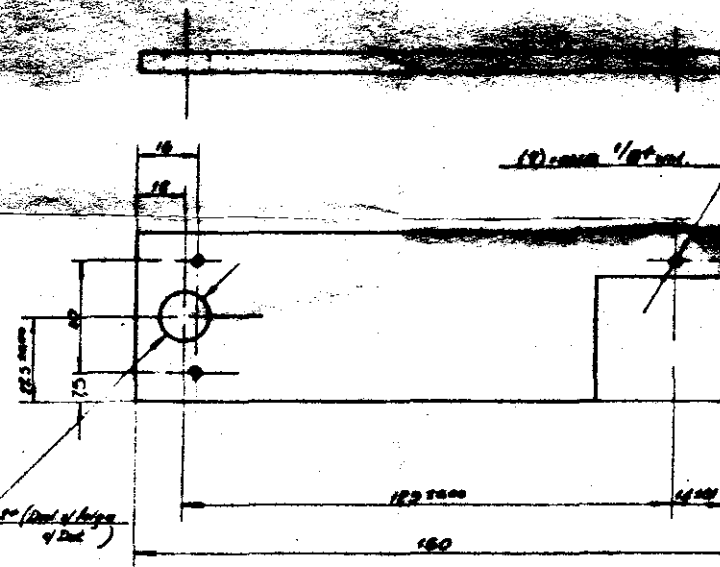
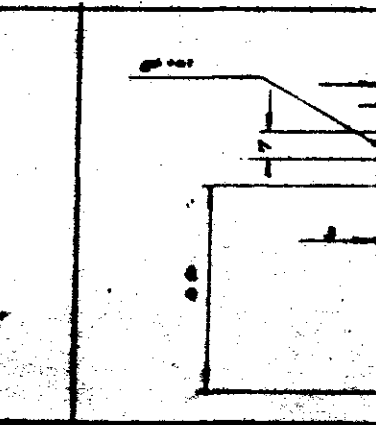
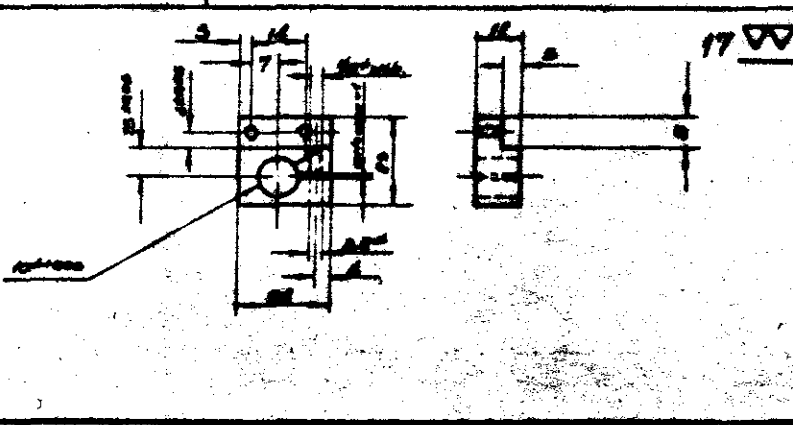
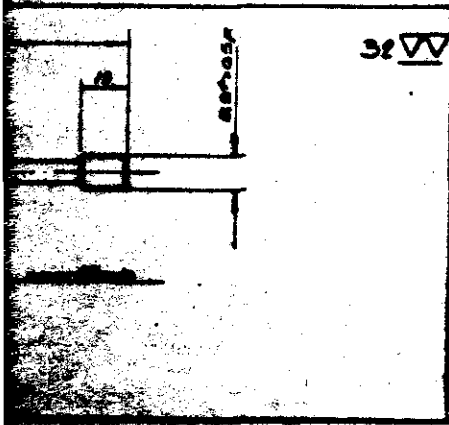
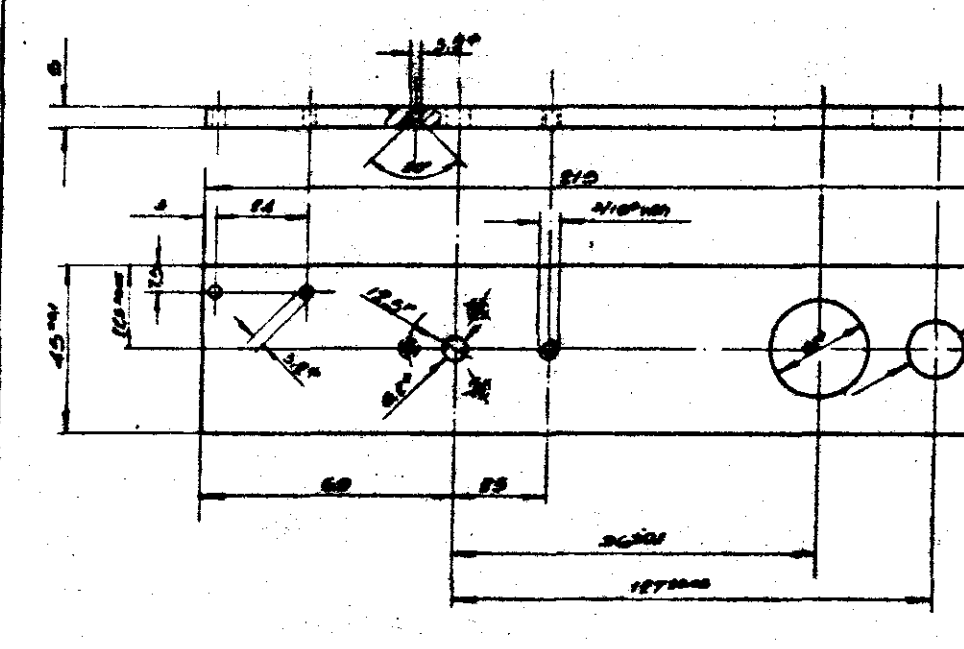
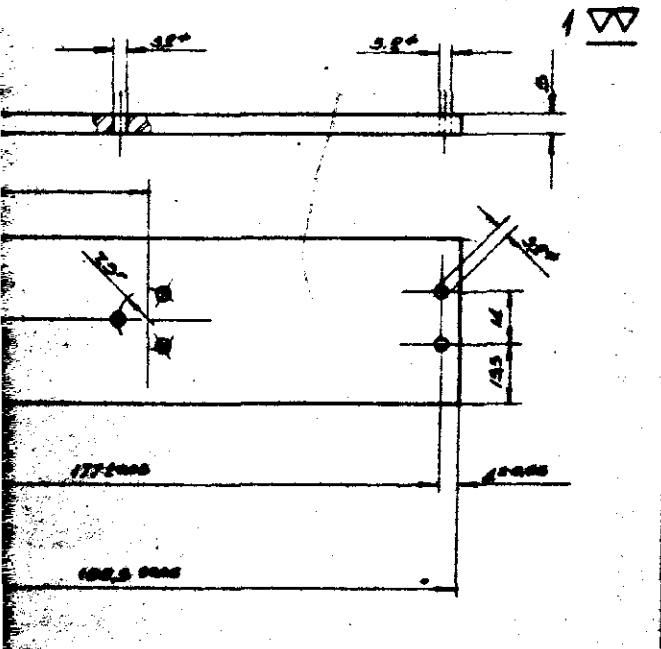
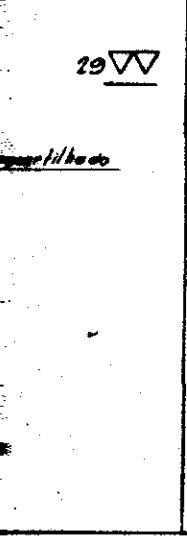
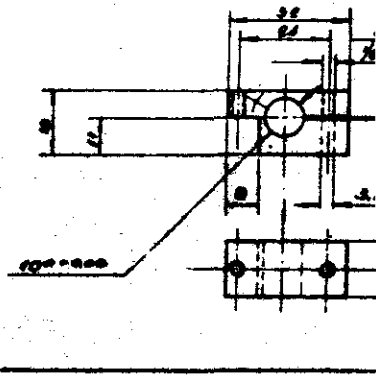
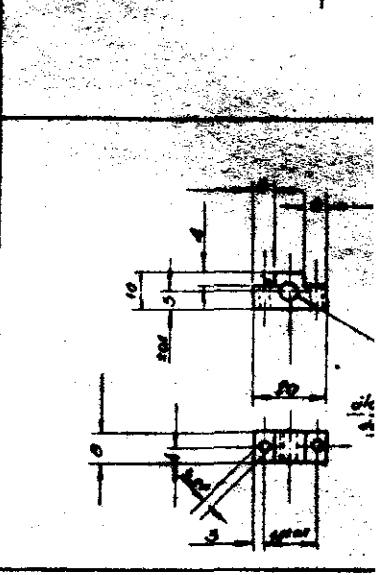
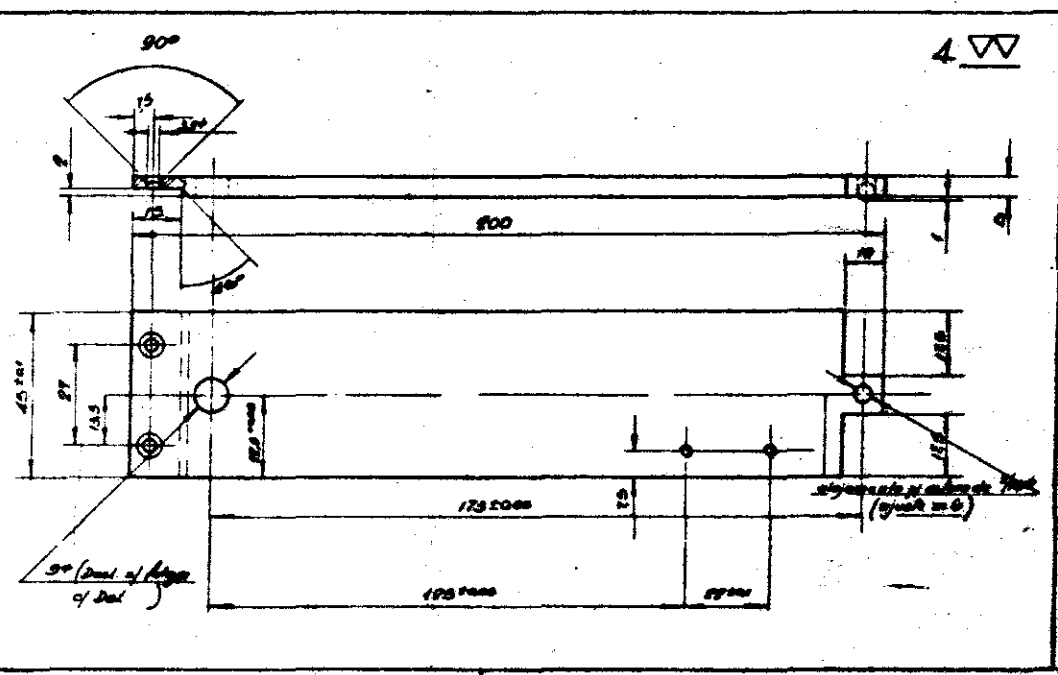
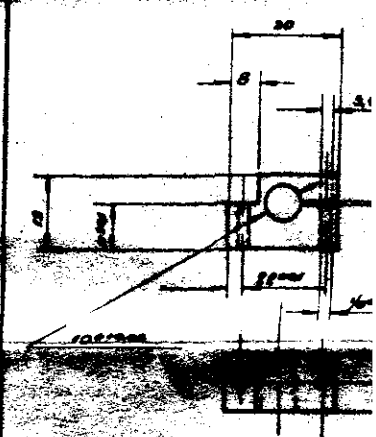
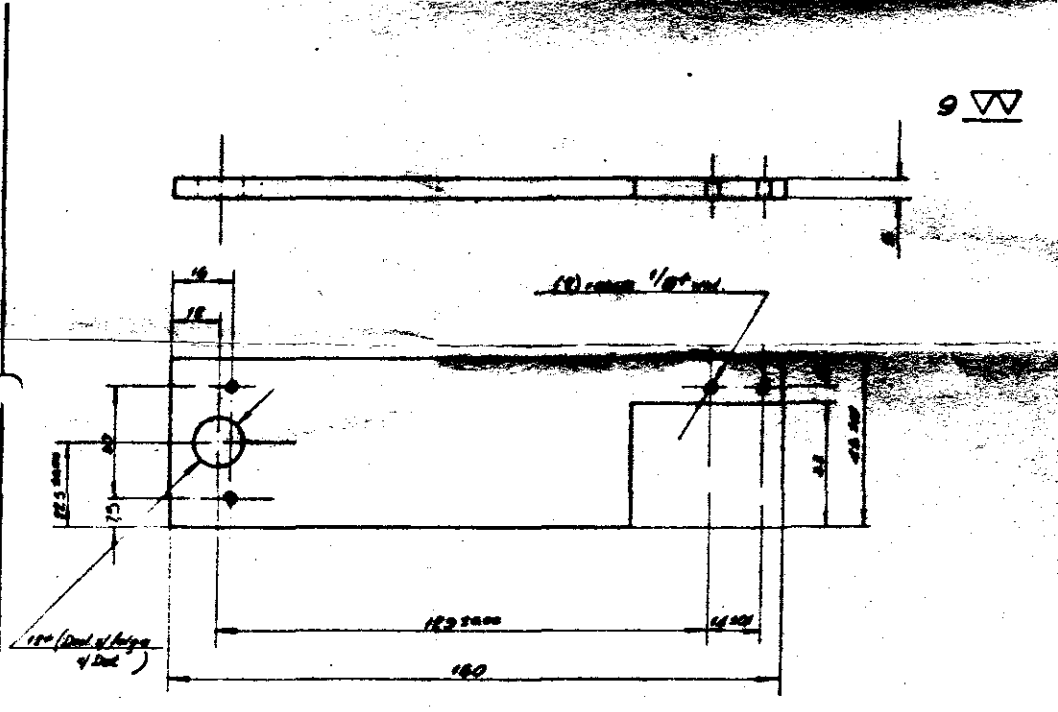
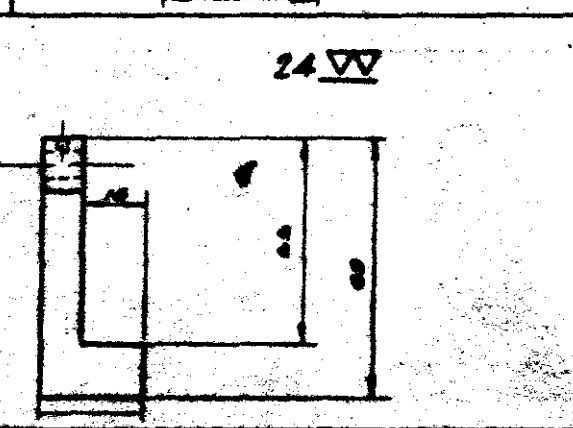
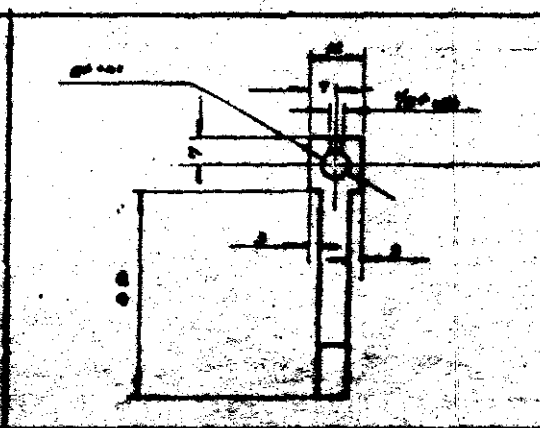
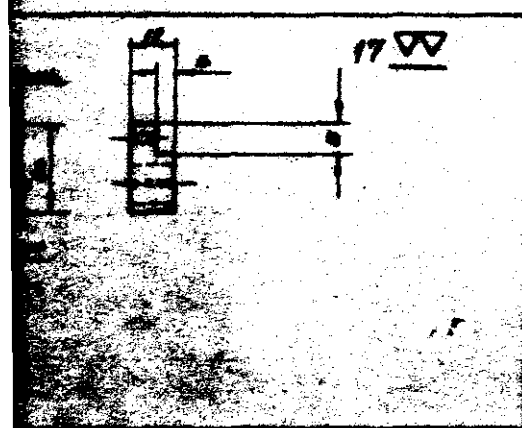
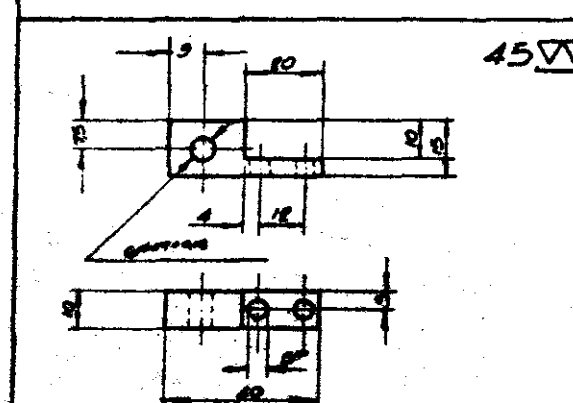
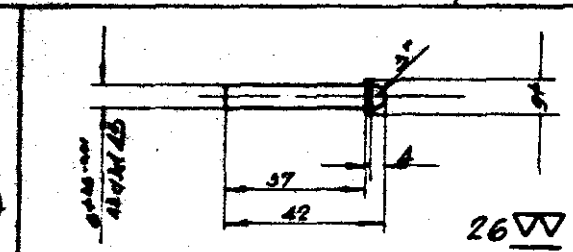
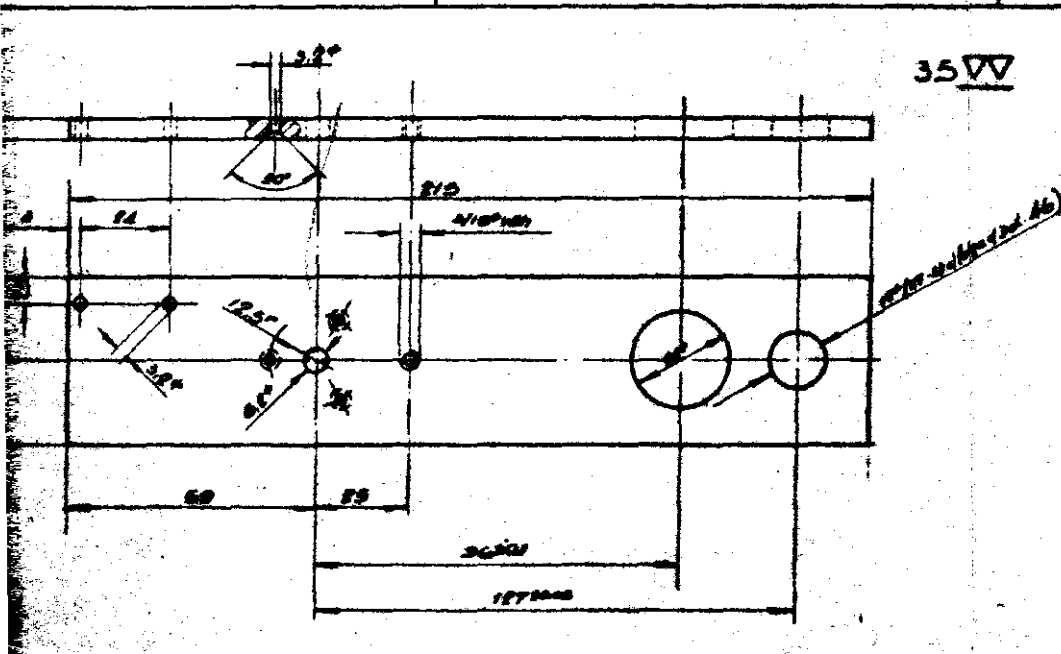
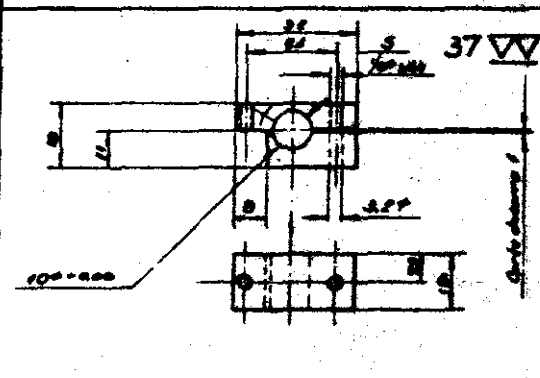
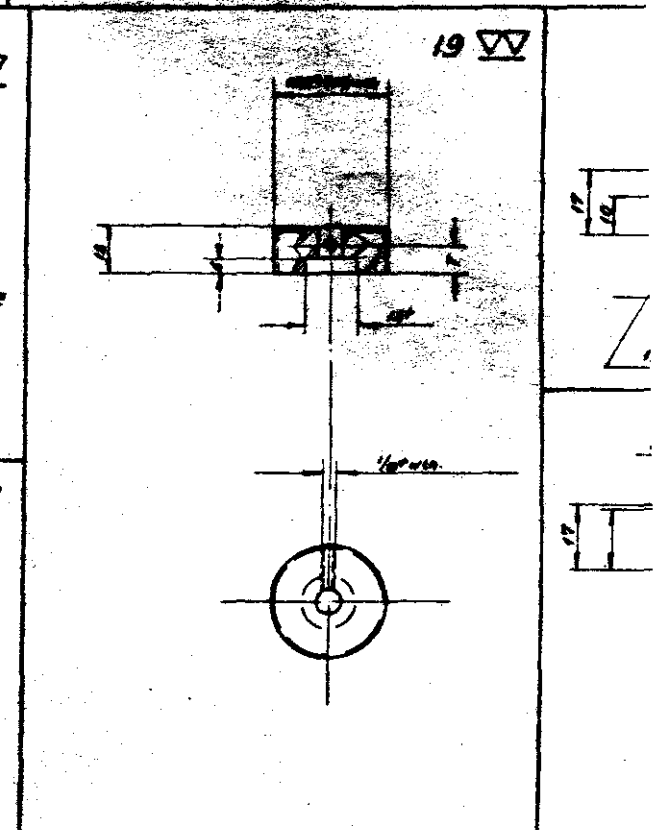
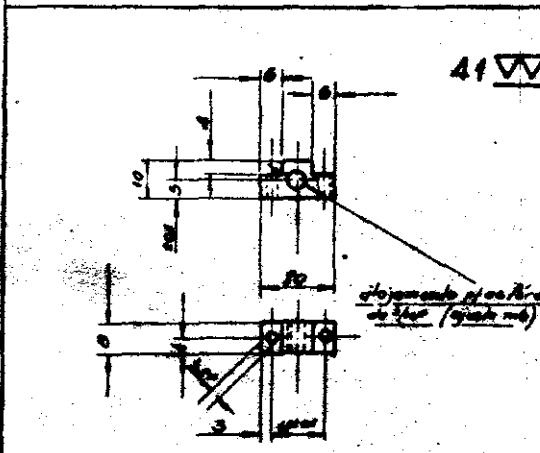
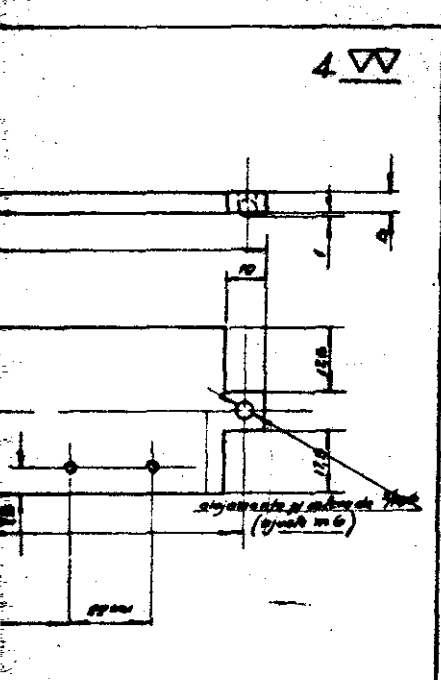
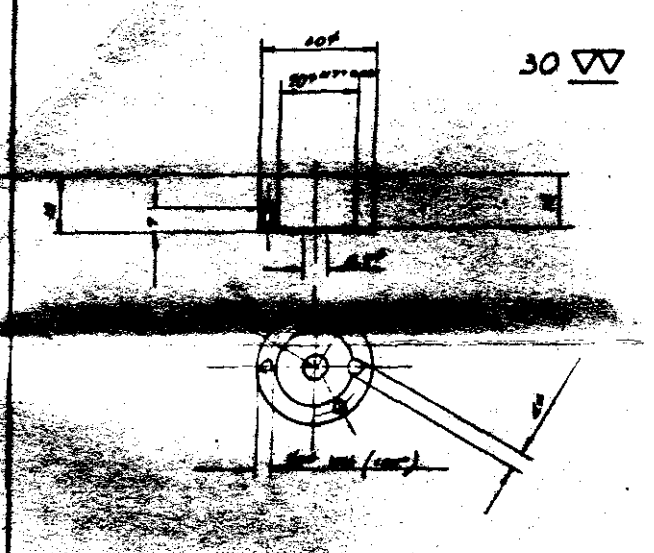
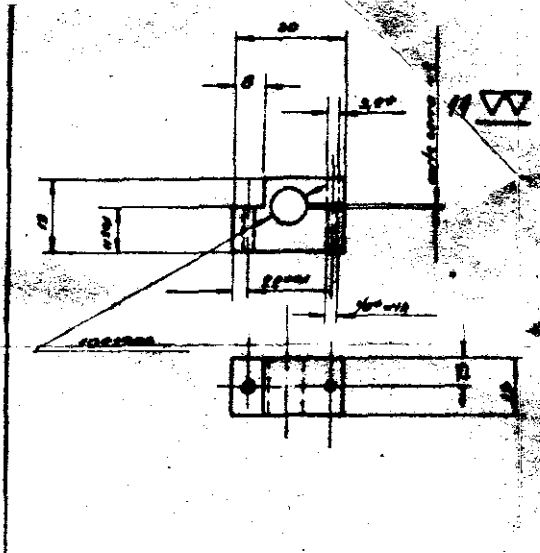
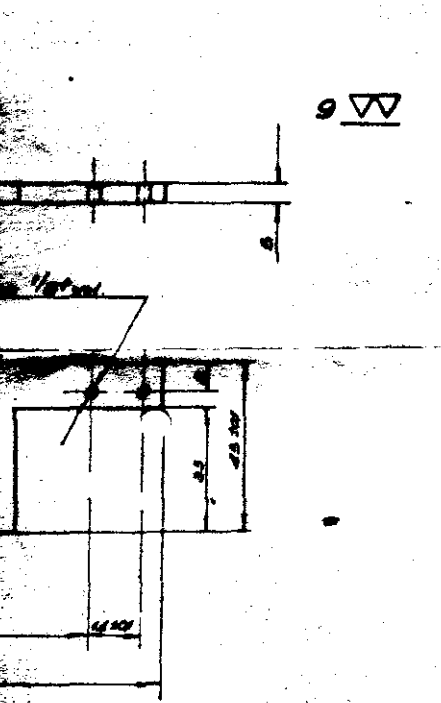


FIG. 9-B

NO. 1	NO. 2	NO. 3	NO. 4	NO. 5	NO. 6	NO. 7	NO. 8	NO. 9	NO. 10







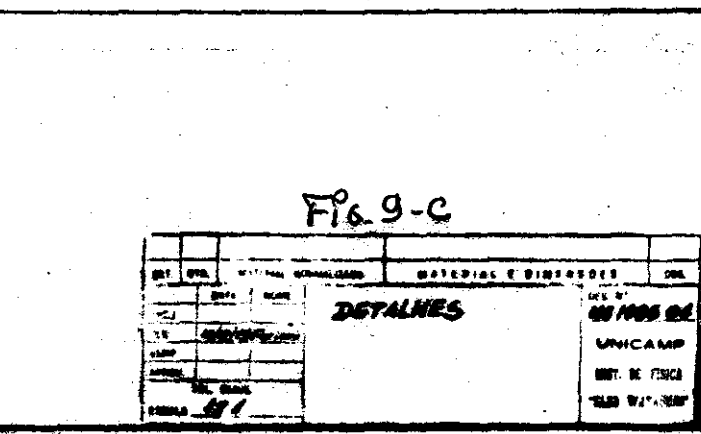
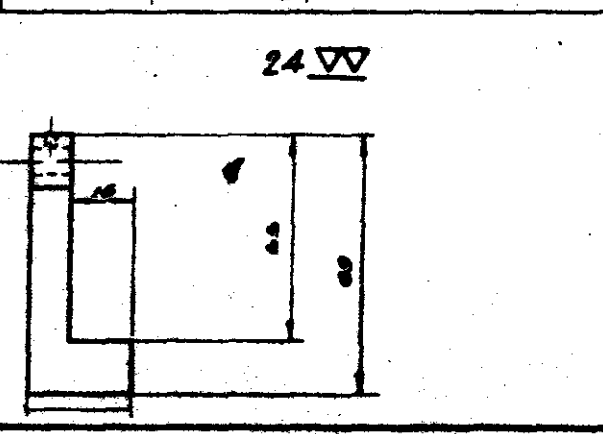
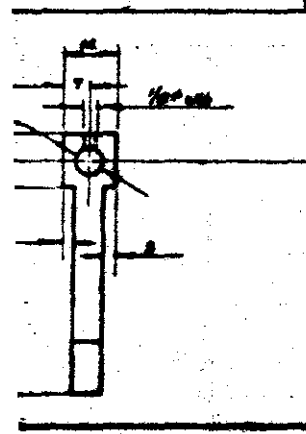
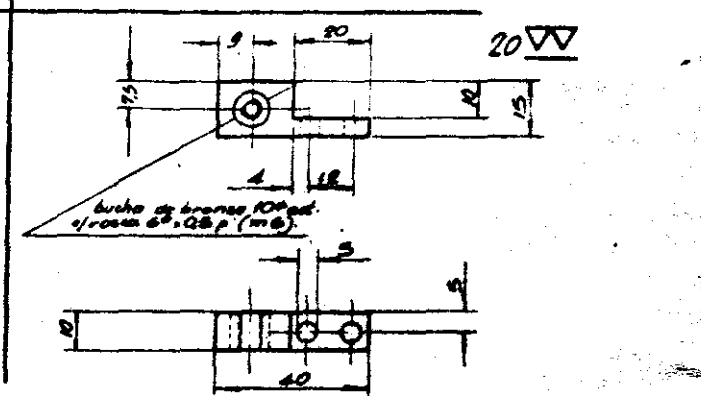
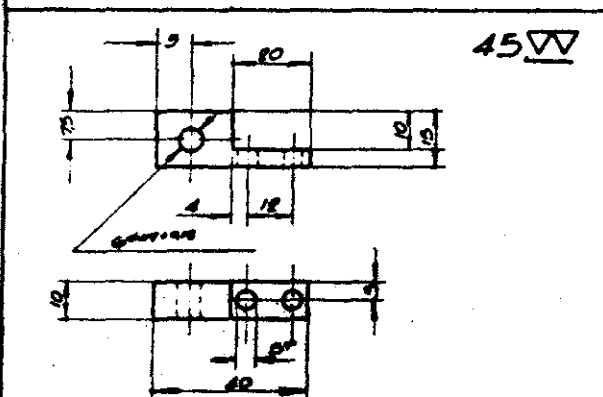
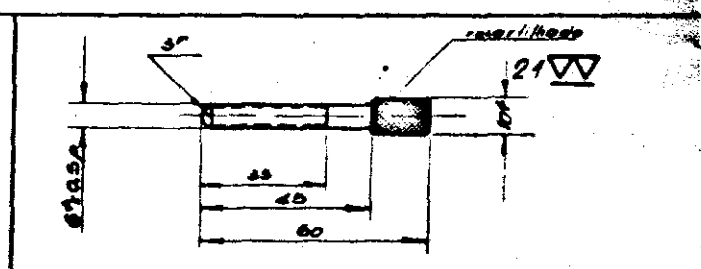
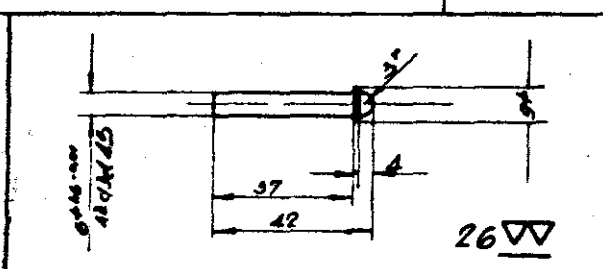
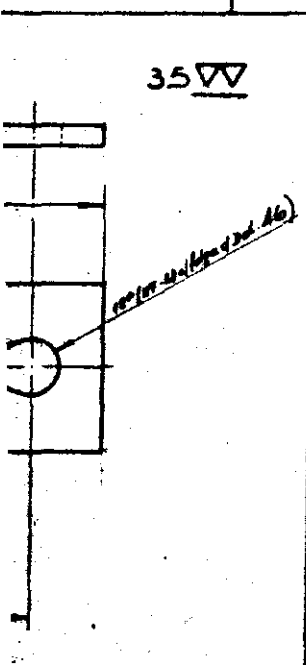
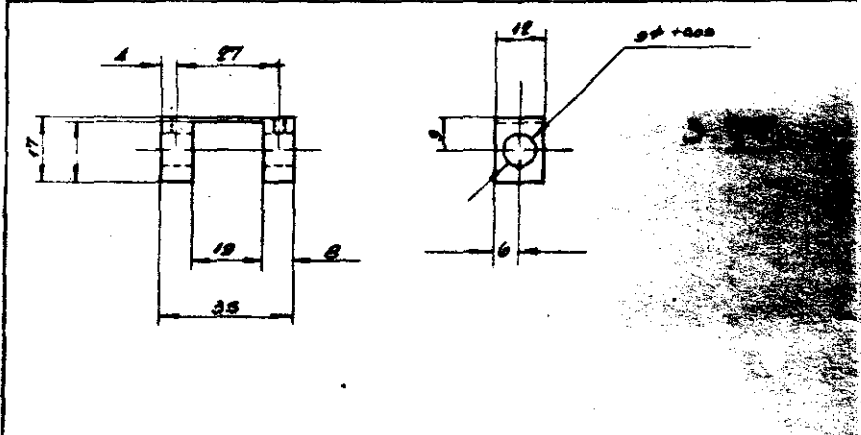
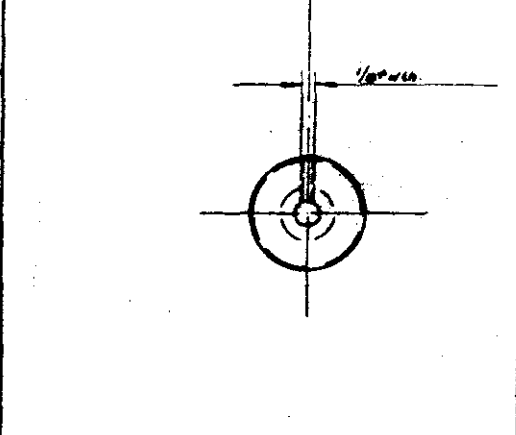
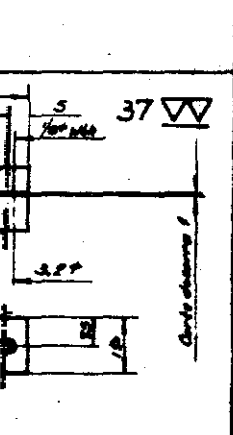
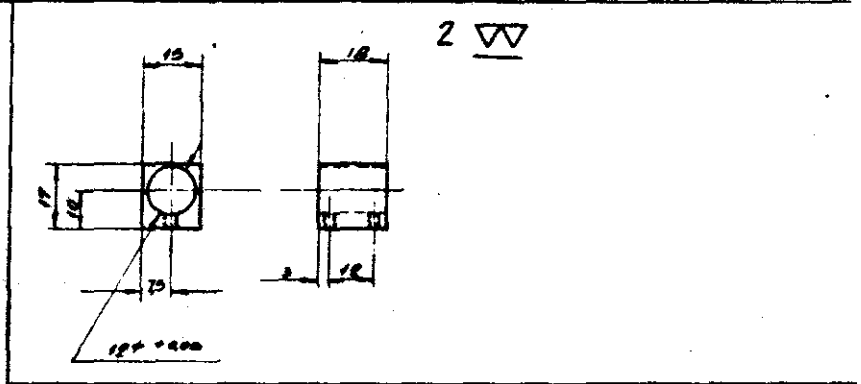
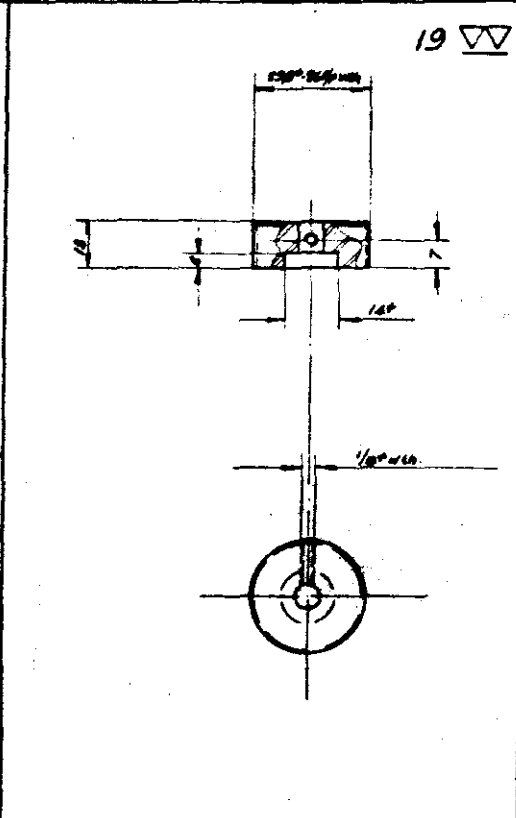
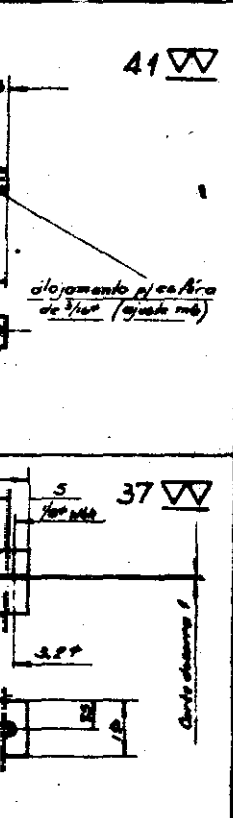
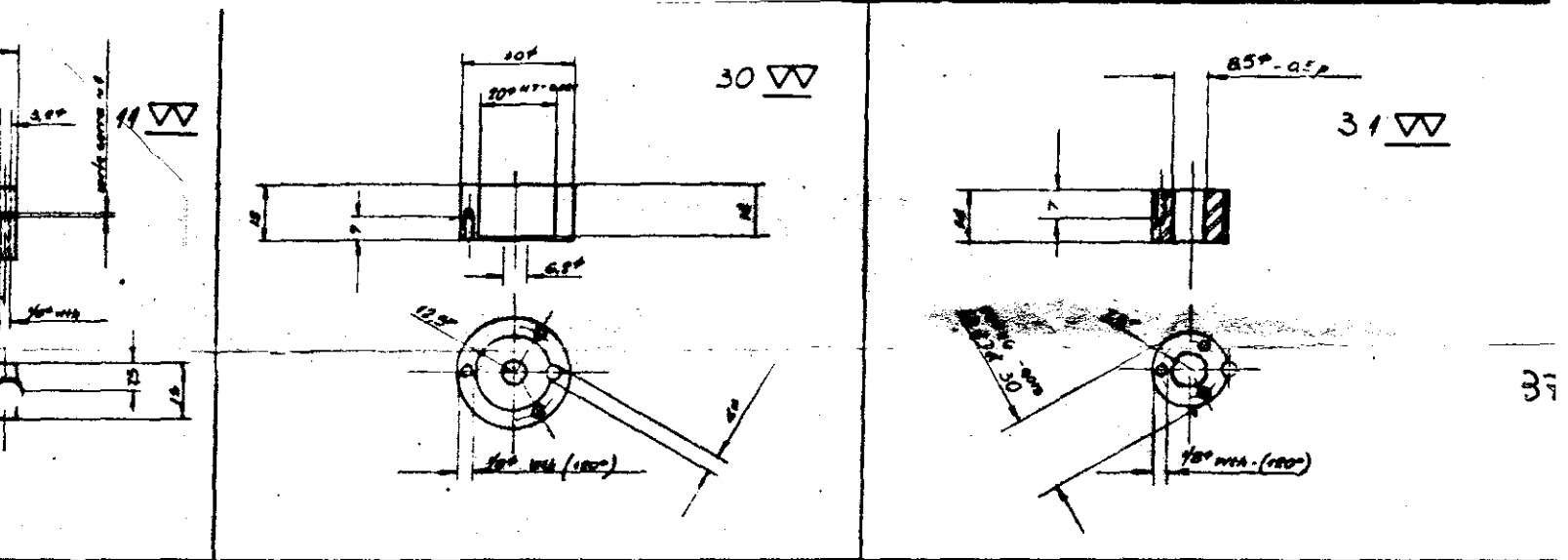


FIG. 9-C

DEL. Nº	DATA	REVISÃO	MATERIAL	QUANTIDADE	DEL. Nº
DETALHES					
UNICAMP					
INSTITUTO DE FÍSICA					
RUA WILSON					

precisão desejada foi utilizar parafusos micrométricos de menor precisão, e fazer uso da geometria mostrada na Fig.10. Além disso, como eixo de rotação foi empregada uma bomba injetora de motor Diesel fabricada com tolerância de 1 μm .

III.1.2 - DISPOSITIVO DE VARREDURA X - Y DO FILME

A Fig.11 é o desenho do dispositivo de varredura X-Y do filme, que consta de um carro transladado por um parafuso com rosca sem fim e passo milimétrico, no sentido horizontal. O movimento segundo este sentido foi automatizado com o uso de um motor, cujo eixo gira a 1 rpm. Foram adaptadas engrenagens planas a esse eixo e ao dispositivo, de forma a fornecer ao filme a velocidade desejada. Algumas das velocidades típicas com que pode-se trabalhar são:

0.25; 0.3; 0.4; 0.5; 0.6; 1.0; 2.0; 4.0 mm/min

O deslocamento vertical é feito manualmente, com um parafuso de rosca também milimétrica.

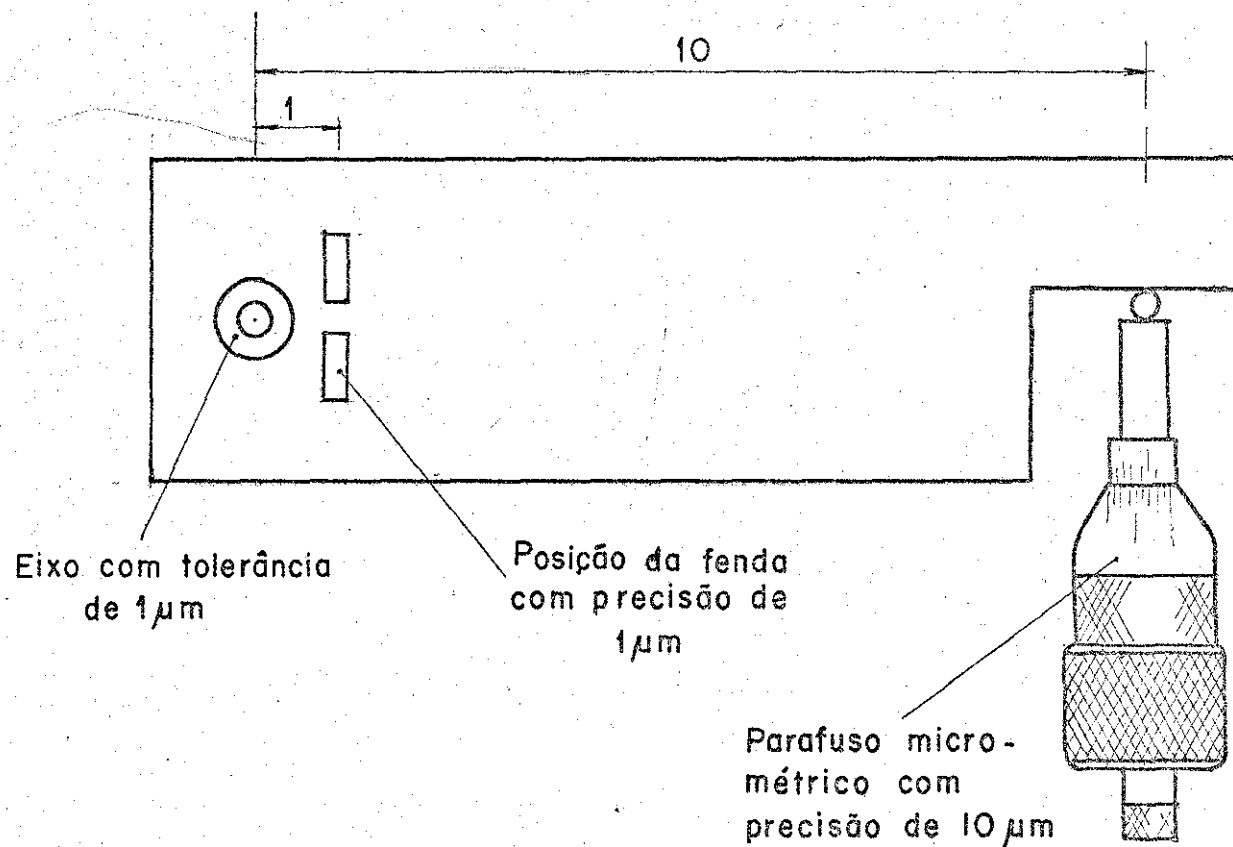


FIG. 10 - Esquema para obtenção da alta precisão no ajuste da segunda fenda.

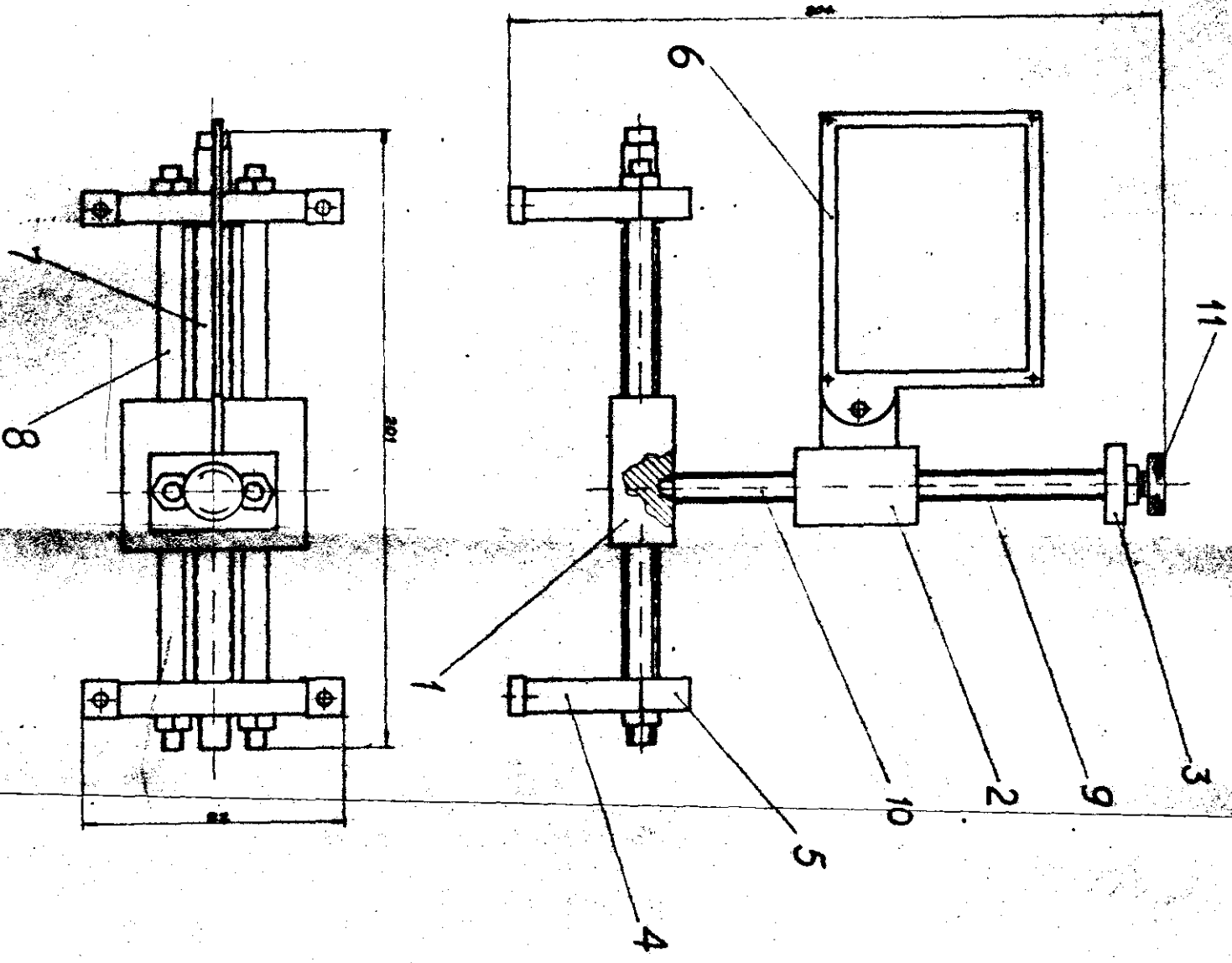
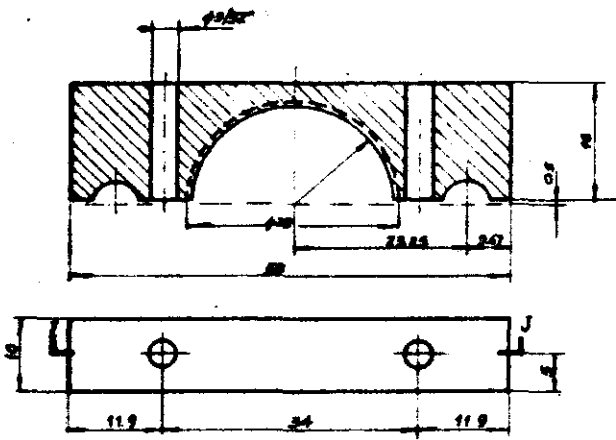


FIG. 11-A

FIG. NO.	DESCRIPTION	MATERIAL & QUANTITIES	DATE
11-A	DRS POSITIONING WHEEL ASSEMBLY FOR DIFFRACTION	STEEL 1	
DESIGNED BY			
CHECKED BY			
APPROVED BY			
SCALE	1:1		

CORTE IJ

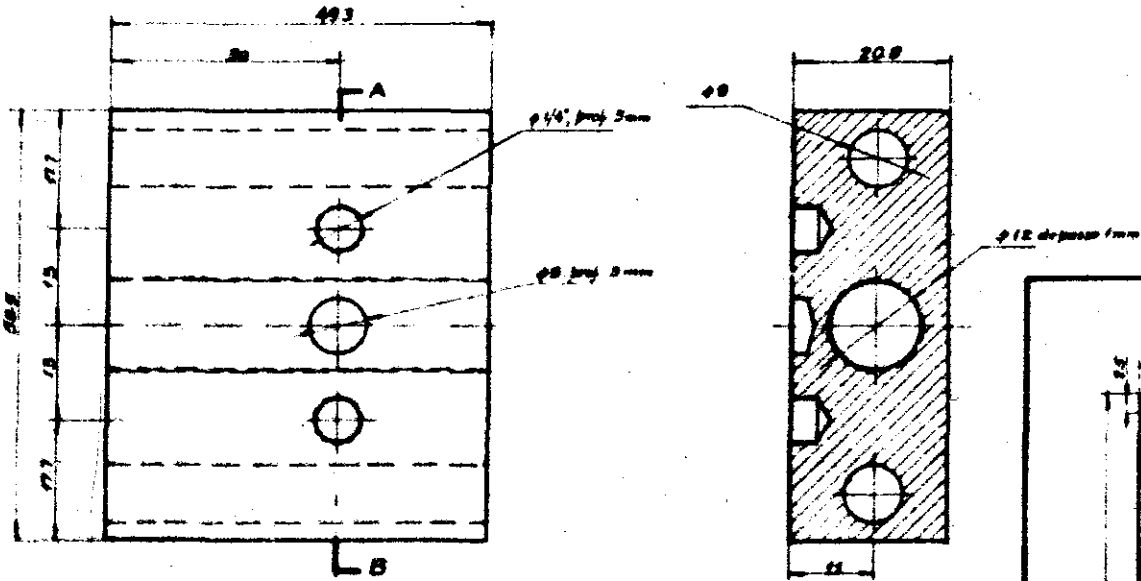


5

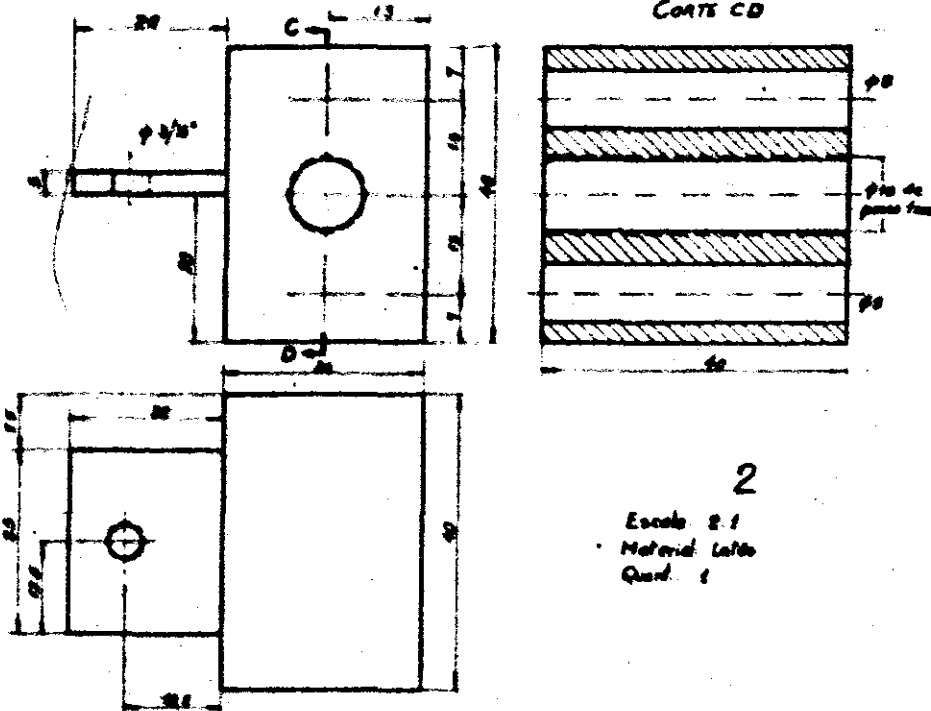
Escala: 2:1
 Material: Latão
 Quant: 2 conforme especificação

1

Escala: 2:1
 Material: Latão
 Quant: 1



CORTE CD

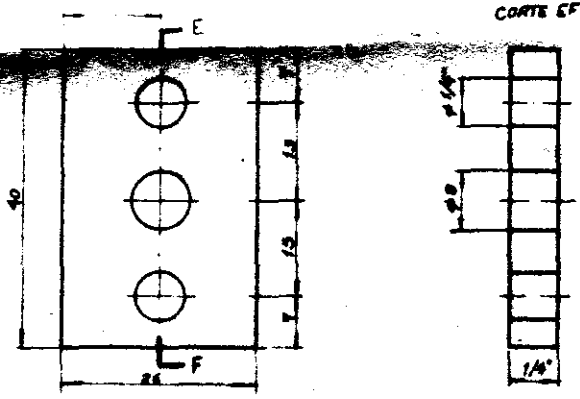


2

Escala: 2:1
 Material: Latão
 Quant: 1

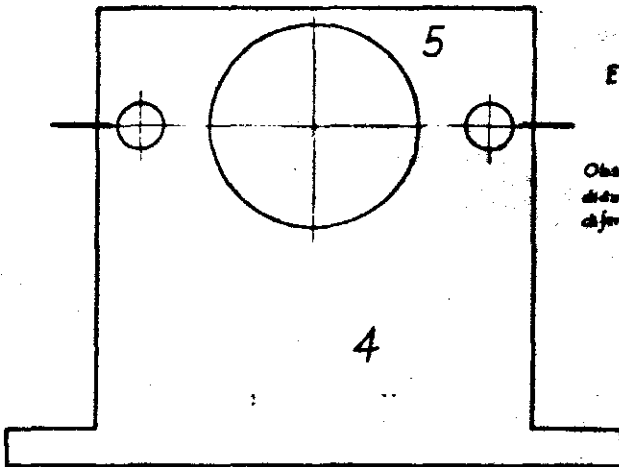
5

Esc: 2:1
Material: Latão
Quant: 2 conforme especificação



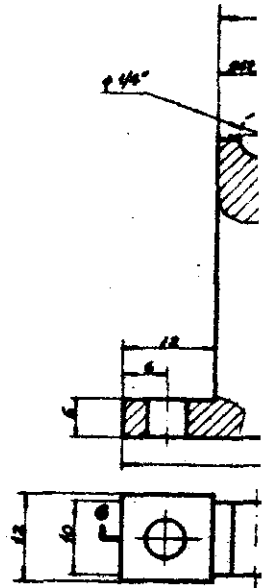
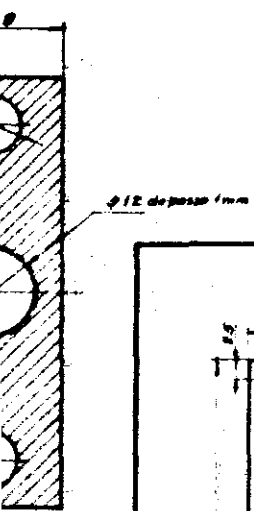
3

Esc: 2:1
Material: Latão
Quant: 1



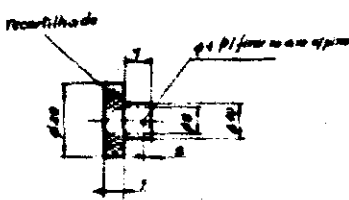
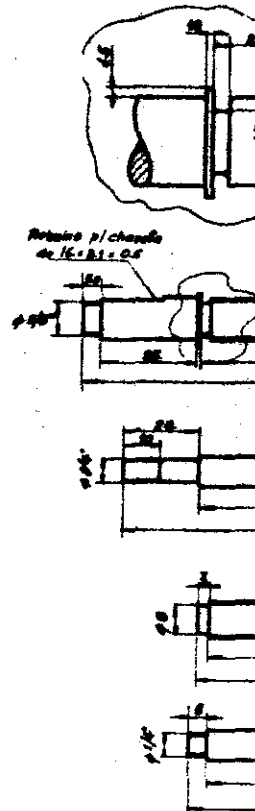
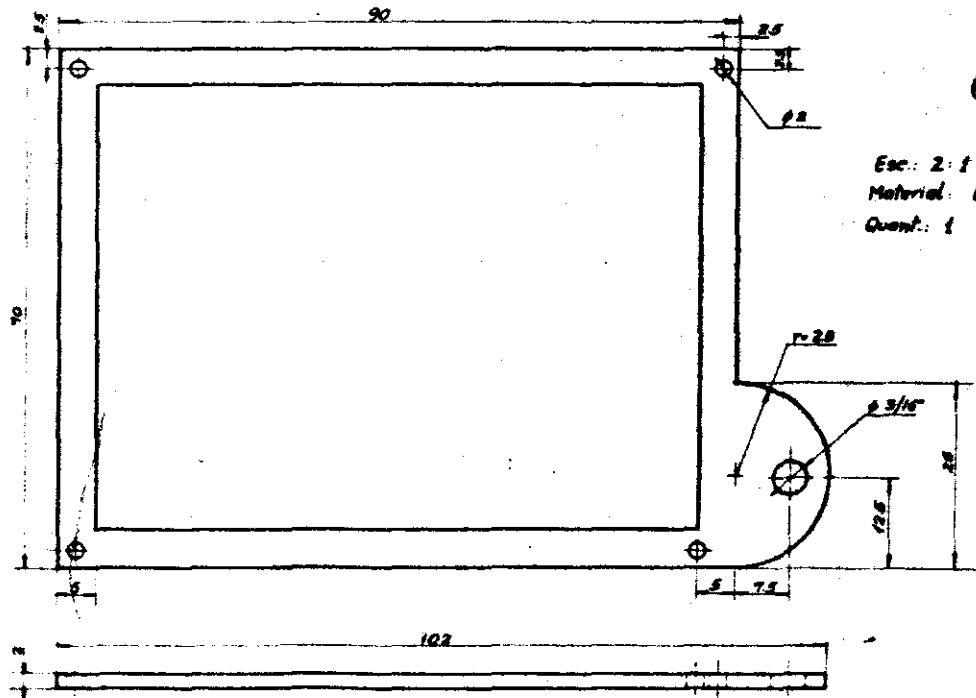
Escala: 2:1

Obs: são 2 peças, com diâmetros de furo maior diferentes: $\phi 28$ e $\phi 26$



6

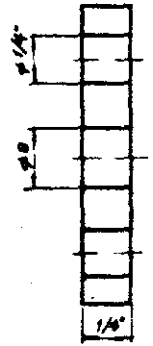
Esc: 2:1
Material: Latão
Quant: 1



11

Escala: 1:1
Material: Latão
Quant: 1

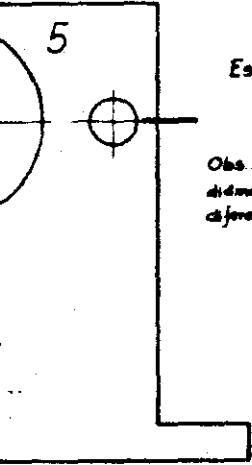
CORTE EF



3

Escala: 2:1
Material: Latão
Quant.: 1

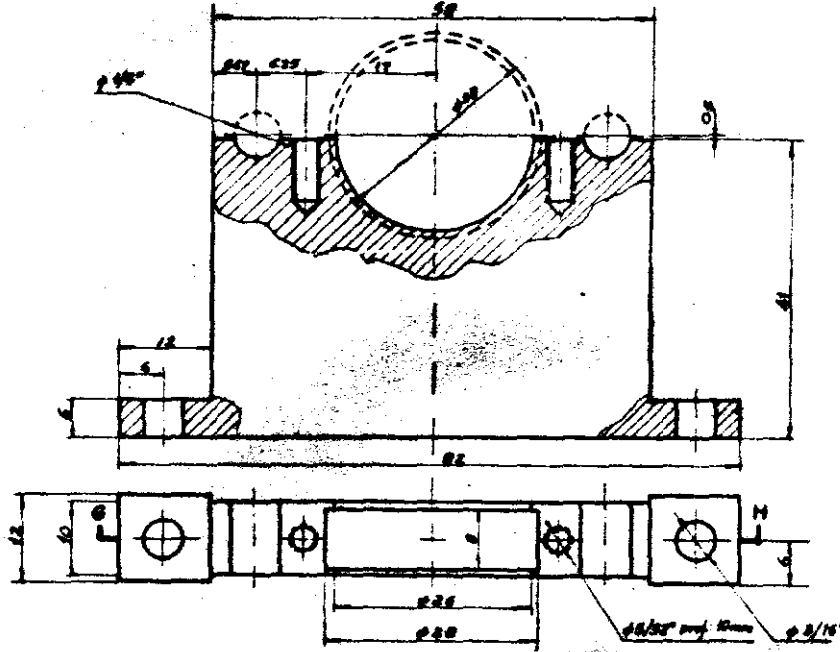
5



Escala: 2:1

Obs. são 2 peças com diâmetros de furo maior adjacentes: $\phi 29$ e $\phi 26$

CORTE GH

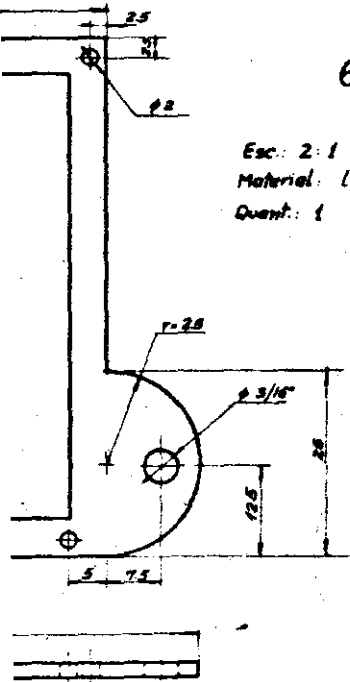


4

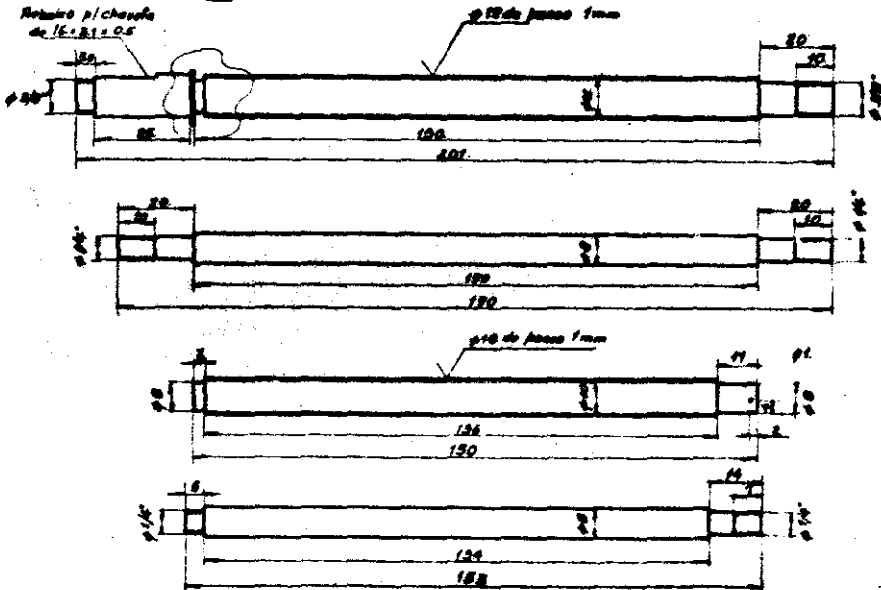
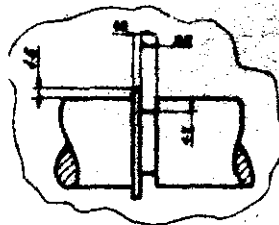
Escala: 2:1
Material: Latão
Quant.: 2, conforme especificação

6

Escala: 2:1
Material: Latão
Quant.: 1



Escala: 1:1
Material: aço inox



7

Quant. 1

8

Quant. 2

9

Quant. 1

10

Quant. 2

11

Escala: 1:1
Material: Latão
Quant.: 1

FIG. 11-B

PROJETO	DESCRIÇÃO	MATERIAL E DIMENSÕES	QTD
PROJ.	DETALHES		2
REV.			
APR.			
ESCALA:	1:1		

III.2 - MÉTODO DE ALINHAMENTO E REALIZAÇÃO DAS MEDIDAS

III.2.1 - ALINHAMENTO

O alinhamento do microdensitômetro de raios X foi feito de acordo ao seguinte procedimento:

1) Alinhamento do colimador de entrada do monocromador: é feito usando-se uma tela fluorescente a fim de determinar aproximadamente o máximo da intensidade. Coloca-se voltagem e corrente suficientes para observação visual na tela. O detetor durante todo esse processo permanece protegido com chumbo, para evitar danos.

2) Alinhamento preliminar do monocromador, feito ainda com a tela fluorescente. O feixe de raios X emergente do colimador de entrada, incide na superfície do monocristal que é ajustado até formar o ângulo desejado, ou seja, $(\theta + \alpha)$. O feixe refletido é observado com a tela, fazendo-o passar pelo segundo colimador. Para esta parte, usa-se um segundo colimador de 3.0 mm de diâmetro, para facilitar o alinhamento. O detetor continua

protegido.

3) A potência do tubo é diminuída para o mínimo, mantendo a tensão de aceleração um pouco maior que o valor da tensão crítica de excitação para o anticátodo. Com anticátodo de Cr, a tensão de excitação é aproximadamente 6 KV. Alinha-se o detetor, tirando previamente a proteção de chumbo, de forma a se obter a máxima intensidade.

4) Alinhamento do segundo colimador. Este colimador é ajustado usando-se as translações e rotações permitidas pelo sistema de ajuste.

5) Na posição do primeiro colimador é colocada uma fenda de 3.0 mm de diâmetro, alinhando-se os dois colimadores, com todos os ajustes possíveis, sempre tentando conseguir a máxima intensidade.

6) Os dois colimadores são substituídos por outros dois de diâmetro menor (2.0mm e 0.8mm), seguindo-se o mesmo procedimento, até finalmente chega-se aos colimadores de 200 μm o primeiro e 50 μm o segundo.

7) O conjunto é fixado. Apesar de que a estabilidade mecânica é muito boa, é necessário realizar frequentes verificações do alinhamento.

8) Com o braço do goniômetro gira-se o conjunto X-Y até que o filme fique perpendicular ao feixe de raios-X, o que é reconhecido observando que a leitura da intensidade passa por um máximo. A precisão desse posicionamento é de ao redor de 1°.

III.2.2 - REALIZAÇÃO DAS MEDIDAS

Com a radiação escolhida e após feito o alinhamento, pode-se fazer a medida seguindo o procedimento abaixo:

1) Coloca-se o filme no suporte do sistema de varredura onde é fixado mediante molas de fita de aço.

2) Verifica-se que o feixe de raios-X incida na zona do filme a ser medida. O percurso sobre o qual é feita a medida deve ser marcado com muito cuidado, para que ela seja reprodutível, ou seja feita com outro instrumento para fins de comparação.

3) As intensidades são obtidas no registrador, e deve-se antes do início das medidas, escolher as escalas adequadas de acordo ao máximo e o mínimo enegrecimento.

4) Eventualmente podem ser feitas medidas de intensidades ponto a ponto, para melhorar a precisão na determinação do perfil de linha.

5) A medida da intensidade I_0 na borda não exposta do filme permite obter a absorção do substrato ($e^{-\mu_s \bar{x}}$). Obtido o traçado do perfil de linha, pode determinar-se o background, a intensidade máxima, a intensidade integrada, etc., seguindo os procedimentos habituais.

C A P Í T U L O - I V

RESULTADOS DAS MEDIDAS COM O MICRODENSITÔMETRO DE RAIOS-X

Neste Capítulo são apresentados os resultados das medidas feitas com o microdensitômetro de raios-X. Discute-se o campo de utilização do mesmo, isto é, o intervalo de intensidades em que o seu uso é recomendável. Analisam-se os erros cometidos nas medidas. Os mesmos filmes foram medidos com um microdensitômetro ótico para realizar uma comparação preliminar entre os dois métodos.

IV.1 - CURVA CARACTERÍSTICA DO FILME DR-54 (KODAK)

Geralmente dá-se como característica de um filme a curva de D em função do $\log E$. Nem sempre é reconhecido que essa curva, chamada característica, depende do comprimento de onda usado na medida. Em princípio dois microdensitômetros óticos usando diferentes comprimentos de onda para as medidas, produzem curvas características diferentes para um mesmo filme. No caso do microdensitômetro de

raios-X, onde a radiação está muito longe da visível a curva característica resultante é muito diferente da obtida por qualquer microdensitômetro ótico.

A determinação da curva característica é fundamental para o uso do aparelho. A análise dela permitirá também estabelecer os limites de aplicação do instrumento. A seguir descrevemos o processo usado na sua determinação.

Esse processo consiste essencialmente em preparar uma escala onde a intensidade varia linearmente, e medir os enegrecimentos, traçando logo um gráfico de D em função do $\text{Log } E$.

Para preparar a escala de intensidades, usouse um feixe de raios-X de intensidade constante incidindo sobre um filme, protegido por uma chapa de chumbo, através de uma fenda (de dimensões $10 \times 0.3 \text{ mm}$). Foram feitas várias exposições com tempos diferentes, deslocando o filme entre exposições sucessivas (vide figura 12). Aos efeitos de aumentar os tempos de exposição de modo a decrescer os erros na sua medida, foi interposto antes do filme um atenuador de alumínio (formado por 50 folhas de papel de alumínio com uma espessura da ordem de 0.025 mm). Os tempos de exposição variaram de 5 a 1080 segundos.

A curva característica obtida das medidas da escala padrão de intensidades está representada na figura 13. A mesma escala foi medida com um microdensitômetro ótico Rigaku-Denki, modelo MP-3 que utilizada luz azul para as medidas, estando a curva representada na mesma figura 13.

Os traçados registrados em ambos casos estão reproduzidos na figura 12.

Observa-se na figura 13, que o valor da densidade de enegrecimento máxima na medida ótica é maior que o correspondente valor medido com raios-X, isto é de se esperar, pois o coeficiente de absorção do filme para a luz é muito maior do que para os raios-X. Ou seja:

$$I_{\text{luz}} = I_{0\text{luz}} \cdot e^{-\mu_{\text{luz}} \cdot \delta_{\text{Ag}}}$$

sendo o enegrecimento:

$$D_{\text{luz}} = \text{Log}_{10} \frac{I_{0\text{luz}}}{I_{\text{luz}}} = \mu_{\text{luz}} \cdot \delta_{\text{Ag}} \cdot \text{Log}_{10} e .$$

Analogamente teremos:

$$D_{\text{RX}} = \mu_{\text{RX}} \cdot \delta_{\text{Ag}} \cdot \text{Log}_{10} e$$

$$\therefore D_{\text{luz}} / D_{\text{RX}} = \mu_{\text{luz}} / \mu_{\text{RX}} > 1 \quad (\text{da ordem de } 5 \text{ para } \text{CrK}\alpha \text{ e luz azul.})$$

Na figura 13 observamos que a zona linear para o aparelho ótico acaba ao redor de $\text{Log}_{10} E \cong 1.4$, que é também aproximadamente o início da zona linear para o microdensitômetro de raios-X, a que acaba aproximadamente para $\text{Log}_{10} E = 2.4$. A densidade superficial de prata no início da saturação da curva ótica é obtida de; $\text{Log}_{10} E = 1.4$, $D_{\text{RX}} = 0.10 = \text{Log}_{10} \frac{I_0}{I} = \mu_{\text{Ag}} \cdot \delta_{\text{Ag}} \cdot \text{Log}_{10} e .$

Resulta $\delta_{Ag}^{\delta\alpha} \cong 0.4 \text{ mg/cm}^2$. (Saturação Ótica)

Analogamente o início da saturação para os raios-X, fica em :

$$\text{Log}_{10} E \cong 2.4, \quad D_{RX} = 0.55$$

ou seja, $\delta_{Ag}^{\delta-RX} \cong 2.2 \text{ mg/cm}^2$, (saturação RX)

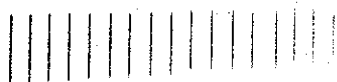
o que indica que para iniciar a saturação com radiação $\text{CrK}\alpha$ é necessária uma densidade de prata 5 (cinco) vezes maior que para iniciar a saturação com luz azul.

Os valores correspondentes de E, mostram que o microdensitômetro de raios-X pode ser usado para medir filmes com exposições de até 10 vezes maiores que aquelas que poderiam ser medidas com luz azul dentro da zona linear.

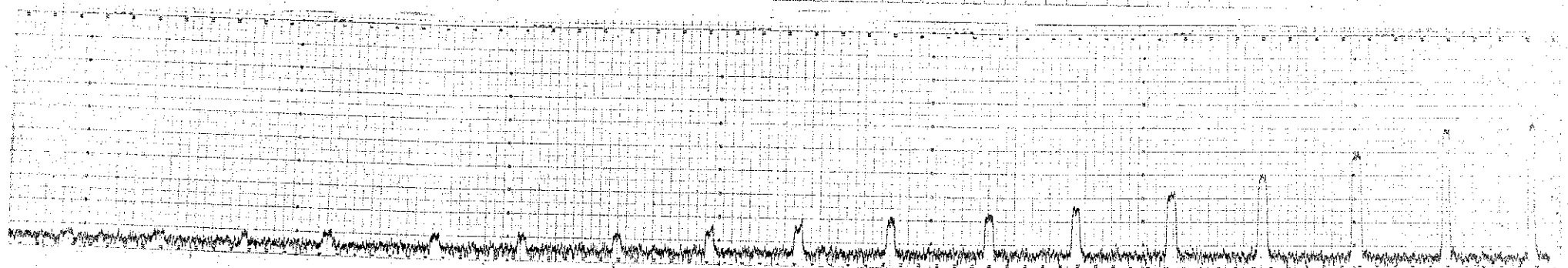
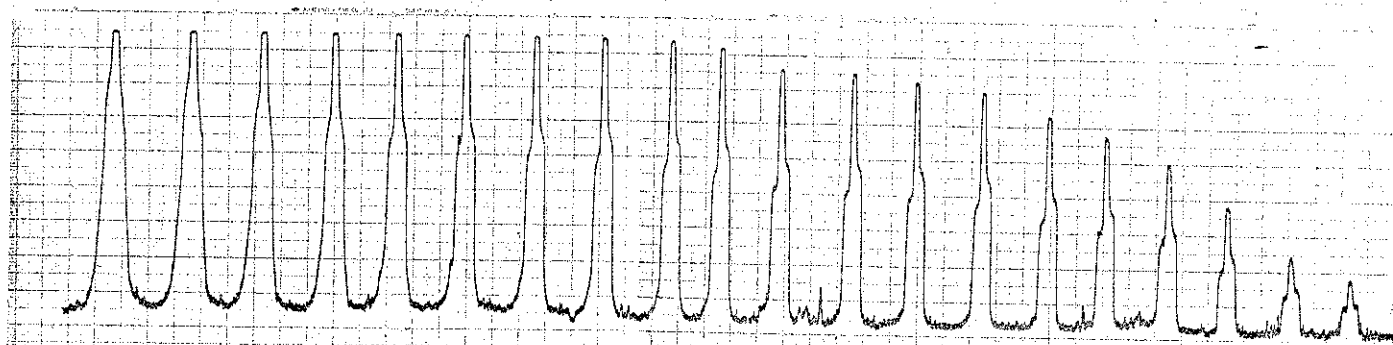
As respectivas zonas de utilização dos instrumentos ótico e de raios-X foram indicados na figura 13. Resulta assim que ambos aparelhos são complementares pois a zona de utilização de um começa onde acaba a do outro, sendo que a dos raios-X corresponde a um intervalo de exposições 10 (dez) vezes maior, onde o aparelho ótico não pode obter nenhuma informação.

A seguir, com o intuito de fazer uma comparação entre os dois instrumentos foram feitas medidas de filmes de $\text{p}\bar{\text{o}}$, e de precessão. As condições experimentais para a obtenção dos diagramas analisados e para as análises microdensitométricas, vão mostradas nas Tabelas 2 e 3, no fim do Capítulo.

ESCALA DE INTENSIDADES



ANÁLISE
ESCALA DE INTENSIDADES
MICRODENSITÔMETRO ÓTICO



30s 40s 50s 60s 70s 80s 90s 120s 150s 180s 210s 240s 300s 420s 600s 900s 1080s

Fig. 12

ANÁLISE ESCALA DE INTENSIDADES
MICRODENSITÔMETRO DE RAIOS-X

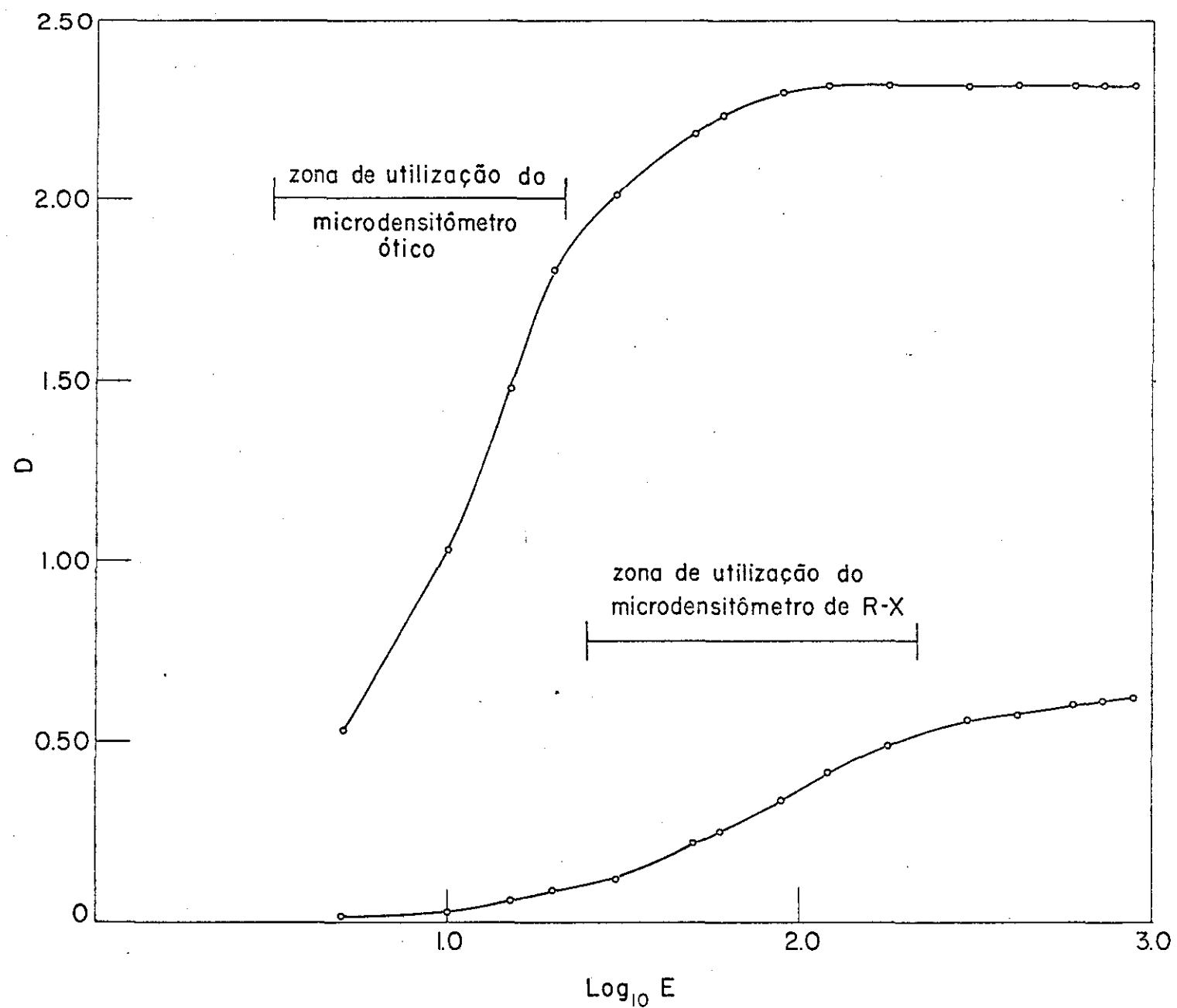


FIG.13 — Curvas características para os microdensitômetros ótico e de raios X para o filme DR-54 (KODAK)

IV.2 - MEDIDASIV:2.1 - DIAGRAMA DE P \bar{o}

Foi medido um diagrama de p \bar{o} de LiF, determinando-se três fatores de estrutura que foram comparados com os valores teóricos. Os resultados obtidos figuram na Tabela 4, e o diagrama com a análise na Fig. 14.

Fator de "reliability"
para intensidades: $R_2 = \frac{\sum ||F_{obs}|^2 - |F_{calc}|^2|}{\sum |F_{calc}|^2} = 0.035$

Fator de "reliability"
para fator de estrutura: $R_1 = \frac{\sum ||F_{obs}| - |F_{calc}||}{\sum |F_{calc}|} = 0.0171$

Este resultado é bastante bom, embora esteja baseado em s \bar{o} três medidas. Neste exemplo, os valores de $|F_{obs}|^2$ foram obtidos integrando a área dos picos registrados e corrigidos pelo fator de Lorentz-polarização.

A análise com o microdensitômetro ótico não foi realizada no mesmo filme, porque o mesmo estava saturado, ficando as intensidades fora da região útil de medidas deste aparelho. Essa medida foi feita num filme colocado junto com o descrito acima, usando a técnica de "film package" ou "film series" de Robertson.

O resultado obtido nessas medidas aparece na Tabela 5.

Fator de "reliability" para intensidades: $R_2 = 0.040$

Fator de "reliability" para fatores de estrutura: $R_1 = 0.0191$

A análise realizada com o microdensitômetro ótico segue na Fig. 15.

Os fatores de reliability calculados a partir das Tabelas acima, indicam que a precisão das medidas obtidas com o microdensitômetro de raios-X é equivalente ou melhor do que as obtidas com o ótico. Isto indica que o novo aparelho pode ser usado em lugar do ótico, sem alterar a precisão nos resultados sempre que as densidades estejam na zona adequada de utilização marcada na Fig. 13. Para se ter certeza da validade desta conclusão seria necessário fazer um número muito maior de medidas. Contudo, ela nos parece válida devido à análise feita anteriormente.

TABELA 4

INTENSIDADES MEDIDAS E CALCULADAS PARA O LIF (Pó)
MICRODENSITÔMETRO DE RAIOS X

REFLEXÃO	$ F_{calc} ^2$	$ F_{obs} ^2$	$\epsilon \cdot F_{obs} ^2$	$ F_{calc} $	$ F_{obs} $
111	408	349	414	20.20	20.35
200	973	791	939	31.19	30.64
220	538	476	565	23.19	23.77
ΣI	1919	1616	—	74.58	74.76

$$\epsilon = 1.1875$$

222
311 220 200, 111

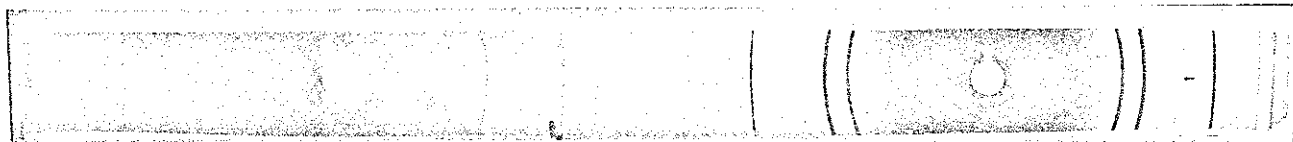
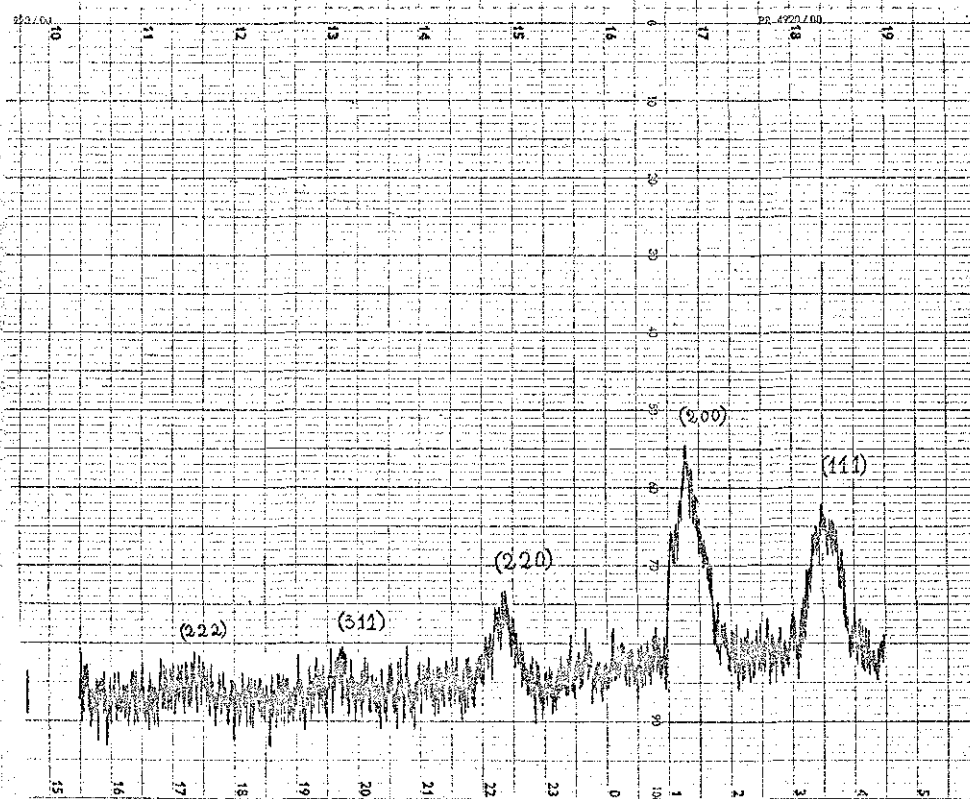


DIAGRAMA DE PÓ-LiF



A NÁLISE DO DIAGRAMA PÓ(LiF)
MICRODENSITÔMETRO DE RAIOS-X

Fig. 14

TABELA 5

INTENSIDADES MEDIDAS E CALCULADAS PARA O LIF (Pó)
MICRODENSITÔMETRO ÓTICO

REFLEXÃO	$ F_{calc} ^2$	$ F_{obs} ^2$	$\epsilon F_{obs} ^2$	$ F_{calc} $	$ F_{obs} $
111	408	1256	410	20.20	20.25
200	973	2861	935	31.19	30.58
220	538	1757	574	23.19	23.96
ΣI	1919	5874	—	74.58	74.79

$$\epsilon = 0.3267$$

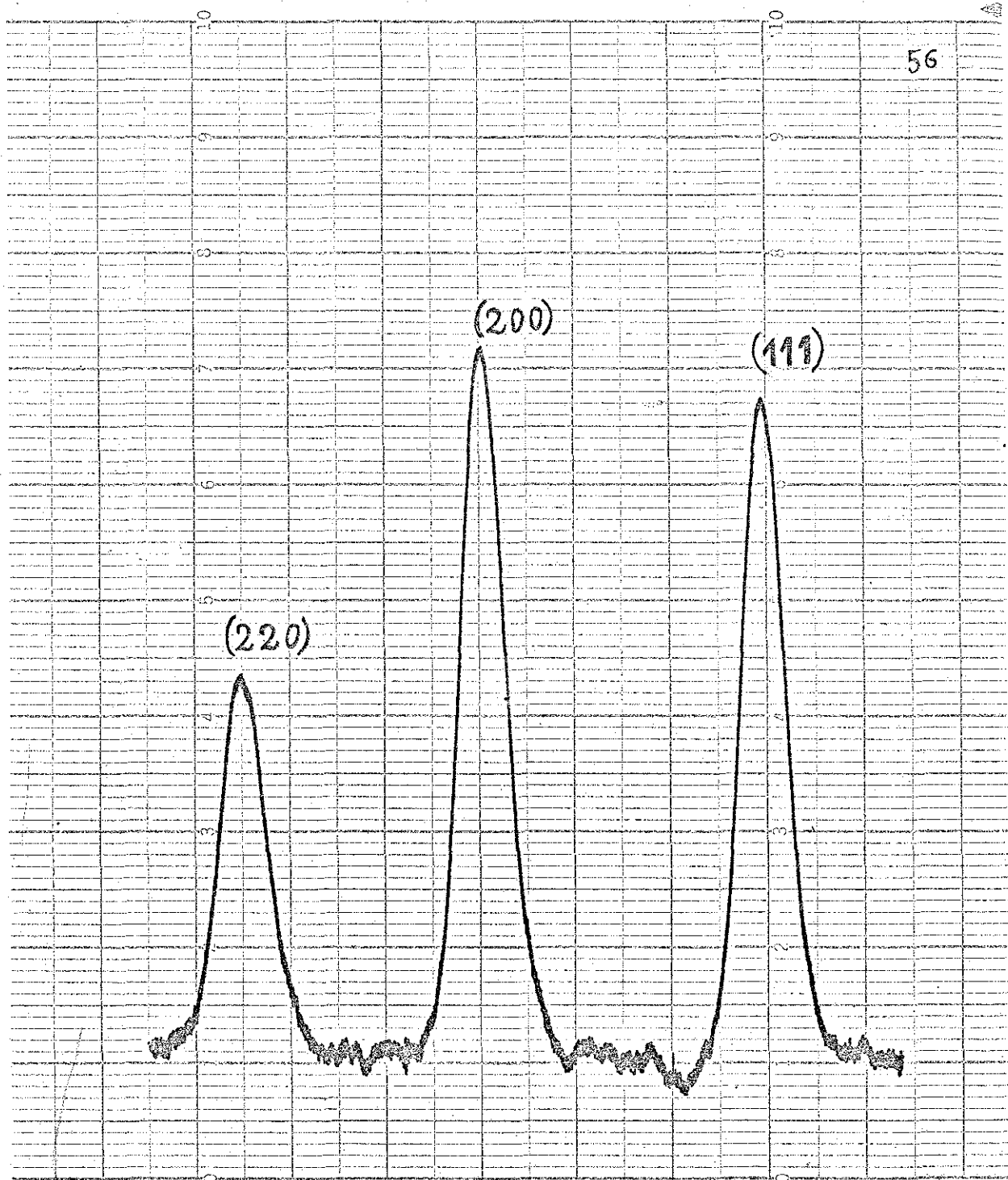


FIG.15 - ANÁLISE DO DIAGRAMA DE PÓ (LIF) - "2º FILME"
MICRODENSITÔMETRO ÓTICO

IV.2.2 - DIAGRAMA DE PRECESSÃO

O diagrama de precessão analisado foi obtido com a câmara de Buerger, por SUZUKI (1974), para uma amostra de LiF irradiado.

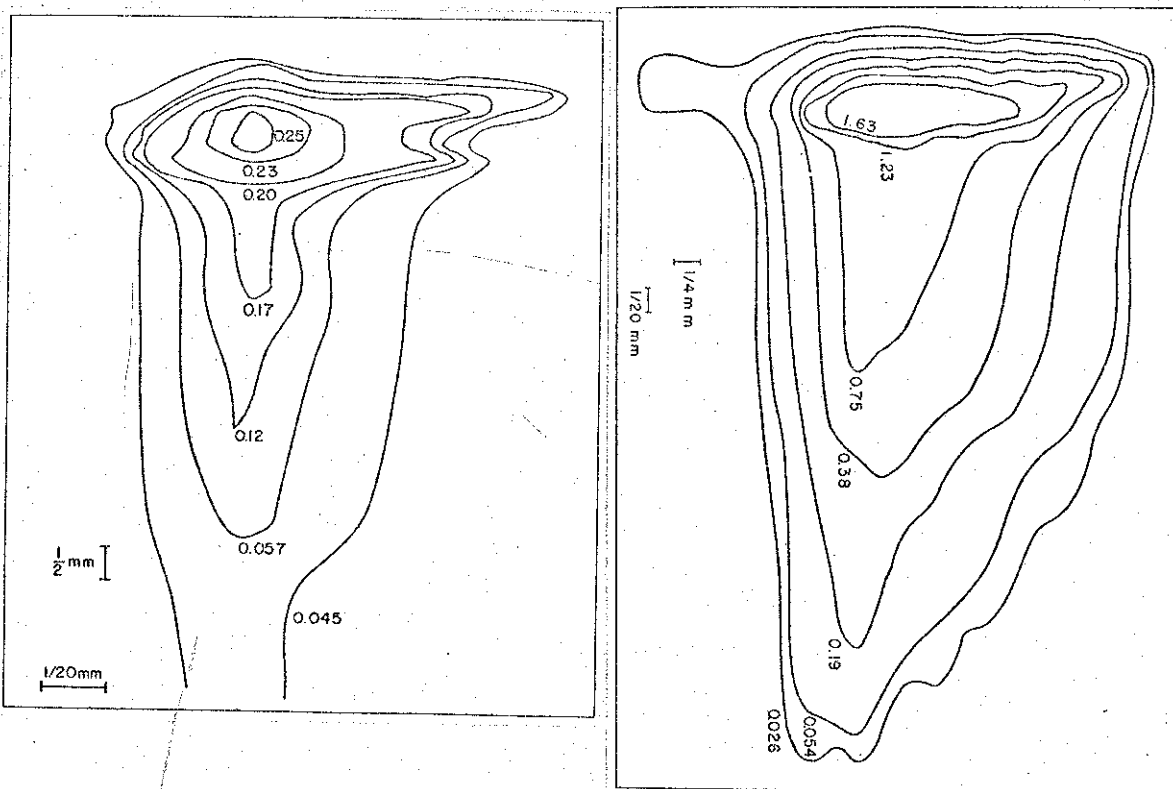
Medimos a distribuição de intensidades no $n\bar{o}$ (200) num diagrama de precessão (hko) com o microdensitômetro de raios-X. Para esse fim, foram feitas varreduras sobre linhas paralelas distantes de 0,25 mm entre si. Na Fig. 16 a distribuição de intensidades medidas foi representada por meio de curvas de isodensidades. Ela mostra claramente a presença de "rabinhos" de intensidade difusa, que foi medida diretamente com um difratômetro de monocristal por SUZUKI (1974).

Para fins de comparação foram feitas medidas da mesma mancha com um microdensitômetro ótico fabricado por Rigaku Denki Co. Ltd., modelo MP-3: A distribuição de intensidades também é representada na mesma Fig. 16.

A mancha medida estava saturada para o aparelho ótico mas não para o de raios-X, sendo esta uma das razões que explica a maior riqueza de detalhes na figura obtida por este último método.

DIAGRAMA DE PRECESSÃO

LiF IRRADIADO



a-

b-

A NÁLISE DO DIAGRAMA PRECESSÃO

LiF IRRADIADO

MICRODENSITÔMETROS: a- RAIOS - X

b- ÓTICO

Fig. 16

TABELA 2

CONDIÇÕES EXPERIMENTAIS PARA A OBTENÇÃO DAS AMOSTRAS ANALISADAS

AMOSTRA	FILME	V (KV)	I (mA)	RADIAÇÃO, USADA	FILTRO	TEMPO DE EXPOSIÇÃO
ESCALA DE INTENSIDADES	DR - 54 (KODAK)	20	5	$Cu K\alpha$	—	VARIANDO DE 5seg a 1030seg.
DIAGRAMA DE PÓ (LiF)	AA - 54 (KODAK)	40	20	$Cu K\alpha$	Ni	40 horas
DIAGRAMA DE PRECESSÃO (LiF irradiado)	AA - 54 (KODAK)	40	30	$Mo K\alpha$	Zr	30 horas

TABELA 3

CONDIÇÕES EXPERIMENTAIS PARA A ANÁLISE MICRODENSITOMÉTRICA

Microdensitômetro de Raios - X

Todos os resultados foram obtidos com as mesmas condições experimentais:

$$V = 40 \text{ KV}$$

$$I = 38 \text{ mA}$$

Constante de tempo = 2,0 seg

Escala = 1×10^3 p/seg

Radiação = $C_r K\alpha$

Monocromador = Ge (III)

$V_{\text{papel}} = 5 \text{ mm/min}$

Deslocamento do zero = 1/4

1º colimador = 200 μm

2º colimador = 50 μm

Microdensitômetro Ótico

Mesmas condições experimentais, variando apenas a largura e altura da fenda, que delimita as medidas.

$$V = 800 \text{ V}$$

$$I = 2 \text{ mA}$$

Sensibilidade = 9

Multiplicador = $\times 10$

$V_{\text{papel}} = 5 \text{ mm/min}$

$V_{\text{varredura}} = 1/4 \text{ mm/min}$

FIGURA	Largura da fenda (mm)	Altura da fenda (mm)
(Escala de Intensidades)	0.03	3.0
(Diagrama de / Pó) (LIF)	0.03	3.0
(Diagrama de / Precessão) LIF irradiado	0.11	2.0

C A P Í T U L O - V

CONCLUSÕES

Os estudos dos filmes enegrecidos por raios-X, com os microdensitômetros de raios-X e ótico, permitem chegar às seguintes conclusões:

1) Neste trabalho projetamos, construímos e fizemos os testes preliminares do funcionamento de um microdensitômetro de raios-X. O resultado da pesquisa é então inteiramente original e não tem precedentes publicados.

2) O uso do aparelho é tão simples quanto o do microdensitômetro ótico, embora o seu alinhamento seja um pouco mais difícil.

3) O aparelho é feito aproveitando-se facilidades normalmente existentes num laboratório de Cristalografia, tais como, feixe de raios-X altamente estabilizado e eletrônica de detecção aprimorada.

4) O resto do aparelho pode ser construído com relativa facilidade na oficina mecânica.

5) O custo do mesmo foi muito baixo (ao redor de US\$ 100.00).

6) O conjunto total para microdensimetria de raios-X poderia ser construído como um aditamento do difratômetro de raios-X.

7) A região de medida do microdensitômetro de raios-X começa praticamente onde acaba a do aparelho ótico (pelo menos no filme KODAK DR-54). O novo aparelho é útil para medidas de altas densidades de enegrecimento. Pode-se medir exposições da ordem de 10 vezes maiores que as usadas em medidas com o ótico (no filme KODAK DR-54).

8) As medidas realizadas com o microdensitômetro de raios-X, apresentaram precisão levemente superiores ou equivalentes às obtidas com o ótico. Erros da ordem de 3,5% nas intensidades parecem ser típicos.

9) A radiação escolhida, $\text{CrK}\alpha$, foi a que permitiu medidas de maior precisão. Um comprimento de onda maior daria teoricamente mais sensibilidade. Entretanto, o seu uso não é prático pela absorção no substrato, que não pode ser eliminada, e pelo ar (vide concl. 12).

10) O uso do monocromador assimétrico permitiu obter um incremento de intensidade no feixe de $\text{CrK}\alpha$, sem o qual, a intensidade resultava fraca demais para obter resultados com baixo erro estatístico em tempos razoáveis.

11) A técnica usada aqui na medida do diagrama de pó, é realmente uma nova aplicação do velho método de pacote de filmes (film packages) de Robertson, que permite estabe

lecer uma ponte entre as zonas de aplicação de ambos os micro
densitômetros.

12) Novas extensões do método desenvolvido neste trabalho poderão tratar de melhorar fatores tais como:

a) a perda de intensidade no ar, usando por exemplo um caminho em vácuo, ou com Hélio, o que sem dúvida melhoraria a precisão por causa da melhor estatística de con
tagem.

b) A otimização do monocromador assimétrico que deverá ser objeto de uma pesquisa especial pois as nossas medidas indicam que a teoria desenvolvida por Evans, Hirsch e Kellar, pode estar subestimando o fator de concentração do feixe.

B I B L I O G R A F I A

1. ARNDT, V.W. and WILLIS, B.T.M., "Single Crystal Diffraction", Cambridge at the University Press (1969).
2. AZAROFF, L.V. - "Elements of X-Ray Crystallography", International Student Edition, Mc Graw Hill (1968).
3. AZAROFF, L.V. and BUEGER, M.J. - "The Powder Method", Mc Graw Hill (1958).
4. BRENTANO, J.C.M., J.Op. Soc. Am. 35, 382 (1945).
5. BRENTANO, J.C.M., The J. Phot. Sc. 2, 150 (1954).
6. CULLITY, B.D. - "Elements of X-Ray Diffraction", Addison Wesley Publ. Company, Inc. (1967).
7. DAINTY, J.C. and SHAW, R. - "Image Science", Academic Press (1974).
8. DOBSON, G.M.B., Proc. Roy.Soc.A., 54, 248 (1923).
9. EVANS, R.C., HIRSCH, P.B. and KELLAR, J.N., Acta Cryst., 1, 124 (1948).
10. FANKUCHEN, I., Nature Lond., 139, 193 (1937).
11. HARTMANN, J., Zeits f. Instrumentenk, 19, 97 (1899).
12. MORIMOTO, H. and UYEDA, R., Acta Cryst., 16, 1107 (1963).
13. PEISER, H.S., ROOKSBY, H.P. and WILSON, A.J.C. - "X-Ray Diffraction by Polycrystalline Materials", Physics in Industry Series, Chapman and Hall Ltd., London (1960).

14. PRASAD, S.C. and WOOSTER, W.A., *Acta Cryst.*, 9, 38 (1956).
15. SMITS, W. and WIEBENGA, E.H., *Acta Cryst.*, 9, 520 (1956).
16. SOUTHWOLD, N.K. and WATERS, W.G., *The J. Phot. Sc.*, 7, 153 (1959).
17. SUZUKI, C.K. - *Tese de Mestrado* (1974).
18. WOOSTER, W.A. and FASHAM, J.A.L., *J. Sci. Instrum.*, 35, 153 (1958).
19. WOOSTER, W.A., *Acta Cryst.*, 17, 878 (1964).