



19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 291 162**

51 Int. Cl.:
G01N 23/20 (2006.01)
G01N 23/223 (2006.01)
G21K 1/02 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Número de solicitud europea: **00121064 .0**
86 Fecha de presentación : **27.09.2000**
87 Número de publicación de la solicitud: **1193492**
87 Fecha de publicación de la solicitud: **03.04.2002**

54 Título: **Colimador de microhaz para investigaciones de DRX de alta resolución con difractómetros convencionales.**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
01.03.2008

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
01.03.2008

73 Titular/es: **EURATOM**
1049 Brussels, BE

72 Inventor/es: **Papaioannou, Dimitrios y**
Spino, José-Luis

74 Agente: **Curell Suñol, Marcelino**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Colimador de microhaz para investigaciones de DRX de alta resolución con difractómetros convencionales.

5 La presente invención se refiere a un colimador de microhaz para comprimir haces de rayos X para su utilización en un difractómetro de rayos X y a un procedimiento para llevar a cabo estudios de DRX de alta resolución utilizando el mismo.

10 El documento EP-A-1100092, que es una solicitud de patente europea que se encuentra dentro de los términos del artículo 54 (3) del CPE, da a conocer un colimador de microhaz que presenta unos medios de canal para proporcionar un canal que guía un haz de rayos X, presentando dichos medios de canal una parte de entrada del canal y una parte de salida del canal y estando formado por dos medios de placa opuestos alargados, pulidos, recubiertos con un metal pesado.

15 Además, el documento US-A-5001737 revela un colimador de microhaz tal como se define en el preámbulo de la reivindicación 1, y el documento US-A-5772903 describe la ventaja de utilizar metales pesados en alta reflectividad de rayos X de ángulo crítico.

20 Los concentradores o condensadores que producen haces de rayos X de alta intensidad con el tamaño de micrómetros son herramientas valiosas en muchos campos científicos e industriales. Las aplicaciones de técnicas de microenfoque están notificándose de forma creciente en el refinado de metales, en la industria de los semiconductores y materiales cerámicos, así como en ciencias biológicas y médicas [véase las referencias 1, 2 de la técnica anterior]. También, la utilización de microhaces en varios tipos de técnicas, tales como difracción, espectroscopia o microscopía, mejora su resolución y aumenta su aplicabilidad en muchos casos individuales [véase las referencias 1, 2 de la técnica anterior].

De forma constructiva, la formación de un microhaz de rayos X duro está dominada por muchas limitaciones y dificultades técnicas. Al contrario que la luz visible, la óptica de enfoque de rayos X no puede basarse en lentes convencionales, puesto que el índice de refracción n para la interfase aire/sólido es ligeramente inferior a la unidad. 30 También, debido a esta propiedad, un rayo X que choca con una superficie lisa plana sólo se reflejará si el ángulo incidente permanece por debajo de un θ_c crítico que se calcula en la forma simplificada como $\theta_c = (2\theta)^{1/2}$ y $\delta = (Ne^2 \lambda^2 Z \rho) / (2\pi m c^2 A)$, en la que N = número de Avogadro, e = carga electrónica, λ = longitud de onda de la radiación, Z = número atómico, ρ = densidad del material, m = masa del electrón, c = velocidad de la luz y A = masa atómica [véase las referencias 3, 4 de la técnica anterior]. Puede encontrarse la descripción detallada de estos fenómenos en muchos libros de física fundamental [véase las referencias 5, 6 de la técnica anterior] y por tanto, no se mencionarán más en este texto. 35

La mayoría de los enfoques para la generación de microhaces paralelos se basan entonces en la reflexión total múltiple de rayos X, normalmente dentro de capilares de plomo-vidrio [véase las referencias 1 - 4, 7, 8 de la técnica anterior]. Al dirigir los rayos X de la fuente hacia la entrada del tubo capilar, el haz incidente puede comprimirse, siempre y cuando el ángulo de incidencia para cada reflexión permanezca por debajo del valor θ_c crítico. Para vidrio de plomo y fotones de rayos X de 8 KeV, θ_c no supera los 3 mrad (0,17°) [véase la referencia 9 de la técnica anterior]. Prácticamente, esto quiere decir que un capilar (de vidrio de plomo) cónico de aproximadamente 10 cm de longitud se limitará a una abertura de entrada de aproximadamente 20-50 μm , si se requiere un tamaño de haz de salida de 3 - 11 45 μm [véase las referencias 1, 7 de la técnica anterior]. Por tanto, puede condensarse sólo una cantidad extremadamente pequeña de la radiación incidente, por lo que los experimentos de microhaz de este tipo requieren altas intensidades de rayos X de entrada y se realizan normalmente con fuentes de radiación de sincrotrón de alta energía.

Además, un aspecto importante que se tiene en cuenta es que en las observaciones de DRX de materiales policristalinos utilizando difractómetros de Bragg-Brentano, sólo los granos orientados paralelos a la superficie de la muestra y por tanto coincidentes con la posición cero del aparato contribuyen a la intensidad difractada. Puesto que en los materiales sólidos el tamaño de grano está en general en el intervalo de los micrómetros, es sólo por casualidad que se iluminen los granos orientados favorablemente cuando se utiliza un microhaz transversal de tubos capilares, de manera que en este caso, no sólo la intensidad incidente, sino también la difractada, es muy baja. 50

55 Por tanto, el objetivo de la presente invención es proporcionar un colimador de microhaz para comprimir haces de rayos X para su utilización en un difractómetro de rayos X convencional con la geometría de Bragg-Brentano, de modo que se permita la caracterización de zonas de muestra muy pequeñas sin la necesidad de fuentes de radiación muy grandes (sincrotrón).

60 Este problema técnico se resuelve mediante un colimador de microhaz que presenta las características de la reivindicación 1 y mediante un procedimiento que presenta las características de la reivindicación 18. Se describen otras características de la presente invención en las reivindicaciones dependientes.

65 Una posibilidad de aumentar la cantidad de radiación que puede condensarse es utilizar materiales reflectantes con un θ_c más alto, de manera que el colimador corta una parte más grande del haz incidente. Los materiales ideales para tal fin son los metales pesados con alta densidad electrónica = $(Z \cdot \rho / A)$, en la que Z = número atómico, ρ = densidad del material y A = masa atómica). Además, los metales muestran una resistencia mecánica superior al vidrio, permitiendo

construcciones de tipo capilar más estables y más grandes. Por tanto, puede aumentarse la eficacia del colimador, puesto que cuanto más largo es el capilar y más grande es su orificio de entrada, tanto mayor es la cantidad de radiación que puede capturarse y comprimirse. Estos conceptos se han considerado y se han aplicado satisfactoriamente en la presente invención, que se trata de una construcción de tipo capilar basada en placas reflectantes opuestas alargadas, pulidas fabricadas de o recubiertas con un material seleccionado del grupo constituido por los metales pesados y materiales que presentan propiedades de reflexión total comparables a las de los metales pesados.

Preferentemente, los dos medios de placa están fabricados totalmente de uno de los materiales según la presente invención. Sin embargo, sería suficiente tener sólo un recubrimiento del material respectivo sobre las superficies de los dos medios de placa que están enfrentados entre sí formando así un canal para guiar los haces de rayos X. Preferentemente, se seleccionan níquel, volframio o platino para los medios de placa. Alternativamente, pueden usarse otros metales pesados o materiales tales que presenten propiedades de reflexión total, en particular ángulos críticos de reflexión total, comparables a los de los metales pesados. Ejemplos para los últimos materiales son aleaciones de metales pesados.

Cada uno de los dos medios de placa puede estar fabricado de una pieza o de manera solidaria. Alternativamente, cada una de las placas alargadas u oblongas puede estar fabricada de dos o más secciones de placa que se conectan en sus superficies de extremo de una manera apropiada.

El colimador de microhaz de la presente invención produce microhaces que presentan una sección transversal rectangular de forma lineal o de línea, lo suficientemente delgada en una dirección de manera que pueden detectarse pequeños cambios de estructura barriendo la muestra, pero lo suficientemente larga en la otra dirección de modo que el mayor número de granos esté expuesto para la difracción. Por tanto la invención puede aplicarse particularmente a análisis de difracción de zonas de muestra muy delgadas pero largas, tales como las características del crecimiento de interfase unidireccional (por ejemplo, capas de óxido en tubos o placas metálicas), que requieren una preparación de la muestra específica.

La invención aplica los principios de reflexión total, preferentemente sobre dos placas (espejos) de níquel (Ni) opuestas alargadas, pulidas, flexibles, que condensan o comprimen la radiación principal emitida por un tubo de rayos X de laboratorio de 2 kW con un enfoque normal (ánodo de Cu). La compresión es monodireccional y tiene lugar entre los dos espejos de Ni flexibles, que forman un canal estrecho de perfil longitudinal variable (por ejemplo, convexo o cóncavo). La variabilidad de este perfil está garantizada mediante el espesor reducido de las placas de Ni (elegidas como por ejemplo de 1 mm), de modo que son estables pero lo suficientemente flexibles, permitiendo realizar libremente ajustes del perfil del canal mediante los espaciadores y tornillos adecuados.

Puesto que el ángulo θ_c crítico para el Ni es $0,42^\circ$, es decir, 2,5 veces superior que para el vidrio de plomo, se permite una gran abertura de entrada del canal (aproximadamente 0,5 mm). Por tanto, la dimensión nominal de la entrada del canal es de 0,5 mm x 4 mm. En el otro extremo, la parte de salida del canal está dotada de una sección transversal constante de $30\ \mu\text{m}$ x $4.000\ \mu\text{m}$ a lo largo de una distancia de aproximadamente 37 mm, de manera que se produce un haz de salida cuasiparalelo.

Para detener además la radiación oblicua, se coloca un diafragma antidivergencia (supresor de haz) de $15\ \mu\text{m}$ a la salida del canal. Por tanto, el haz comprimido o de salida presenta dimensiones nominales finales de $15\ \mu\text{m}$ x $4.000\ \mu\text{m}$, con una intensidad medida dos órdenes de magnitud superior a un haz no comprimido con las mismas dimensiones.

Debido a esta alta luminosidad, puede hacerse funcionar el colimador de microhaz en combinación con difractómetros de rayos X comunes para realizar un análisis de estructura de alta resolución de interfases o capas sólidas muy delgadas pero largas. Esta clase especial de geometría de muestra aparece en varias aplicaciones técnicas de materiales, como en la zona del cerco de pastillas de combustible nuclear cortadas longitudinalmente, capas de óxido sobre placas metálicas, capas de unión en sándwich de láminas metálicas, capas de unión en tubos de doble pared, etc.

Para garantizar su manejo seguro, según la presente invención, las dos placas están contenidas en unos medios de soporte o alojamiento preferentemente cilíndricos, preferentemente fabricados de aluminio, montados en una plataforma de microposicionamiento de doble eje que está unido al alojamiento del tubo de radiación. Esta construcción permite la alineación sencilla del colimador de microhaz con respecto al haz fuente.

Resumiendo la presente invención, se ha desarrollado el colimador de microhaz para condensar rayos X duros, proporcionando haces poco divergentes muy delgados pero intensos. La radiación principal se comprime hasta la escala de tamaño de micrómetros mediante reflexiones totales múltiples sobre las superficies internas pulidas de un canal plano metálico de perfil longitudinal ajustable. El haz obtenido en el orificio de salida presenta dimensiones nominales de, por ejemplo, $15\ \mu\text{m}$ x $4.000\ \mu\text{m}$ (sección transversal de forma lineal) y es dos órdenes de magnitud más intenso que la radiación no comprimida que va a través de una rendija del mismo tamaño. Debido a esta alta ganancia de luminosidad, el colimador puede hacerse funcionar incluso con el tubo de radiación convencional de un difractómetro común. Un prototipo, que está montado en un difractómetro theta-theta comercial, ha sido sometido a prueba a fondo para determinar la ganancia de intensidad, divergencia y resolución espacial. Por tanto, de manera sencilla se ha llevado a cabo la obtención de patrones de DRX precisos sobre zonas de la muestra alargadas pero muy delgadas (sólo algunas decenas de micras) en el laboratorio, sin la necesidad de fuentes de radiación de alta energía caras (sincrotrón), tal como se exige en la mayoría de enfoques de la formación de microhaces basados en capilares de vidrio.

ES 2 291 162 T3

Se describe una forma de realización de la presente invención a partir de los dibujos adjuntos y únicamente a título de ejemplo, en el que:

5 la figura 1 muestra una vista en perspectiva que muestra esquemáticamente un aparato de rayos X que emplea el colimador de microhaz según la presente invención;

la figura 2 muestra una vista lateral en alzado que muestra el colimador de microhaz según la presente invención parcialmente en sección;

10 la figura 3 muestra una vista lateral en alzado que muestra el colimador de microhaz según la presente invención sin el alojamiento externo;

la figura 4 muestra una vista en alzado desde arriba del colimador de microhaz mostrado en la figura 3;

15 la figura 5 muestra una vista en alzado desde arriba de la placa superior del colimador de microhaz según la presente invención;

20 la figura 6 muestra una vista en alzado desde arriba de la placa inferior del colimador de microhaz según la presente invención;

la figura 7 muestra una vista lateral en alzado de las placas superior e inferior montadas mostradas en las figuras 5 y 6;

25 la figura 8 muestra una vista en alzado desde arriba que muestra la parte de base y la parte de cubierta montadas de los medios de soporte para recibir las dos placas;

la figura 9 muestra una vista lateral en alzado que muestra la parte de base únicamente de los medios de soporte;

30 la figura 10 muestra una vista en sección transversal según la línea A-A de la figura 9;

la figura 11 muestra una vista en sección transversal según la línea B-B de la figura 9;

la figura 12 muestra una vista en sección transversal según la línea C-C de la figura 9;

35 la figura 13 muestra una vista lateral en alzado que muestra el alojamiento externo del colimador de microhaz según la presente invención;

la figura 14 muestra una vista en sección transversal según la línea D-D de la figura 13;

40 la figura 15 muestra una vista en alzado desde arriba del alojamiento externo mostrado en la figura 13;

la figura 16 muestra una vista en alzado del alojamiento externo observado desde la derecha de la figura 13;

45 la figura 17 muestra una vista en sección transversal según la línea E-E de la figura 13;

la figura 18 muestra un perfil de intensidad del microhaz generado tal como se observa mediante un barrido angular del detector a 205 mm desde la punta de salida del colimador;

50 la figura 19 muestra una disposición experimental para la estimación de la divergencia del microhaz. (a)→(c): aumento progresivo de la anchura de la rendija receptora y medición de la intensidad transmitida;

55 la figura 20 muestra la determinación de la divergencia del microhaz. (a): transmisión de la intensidad (%) al detector como función de la anchura de la rendija receptora. (b) Reorganización de los datos suponiendo la simetría total del haz, es decir, la mitad de la rendija receptora. (c) la 1ª derivada de la curva en (b) y espesor del haz a FWHM. (d) se determina el ángulo de divergencia (0,014°) a partir de la geometría sencilla de la disposición de medición;

60 la figura 21 muestra la determinación de la resolución espacial. (a) El detector no mide ninguna señal difractada. (b) Una parte del punto del haz ilumina el cristal de CaF_2 y se mide la intensidad de la radiación difractada por el detector. (c) La señal difractada alcanza la intensidad máxima;

65 la figura 22 muestra resultados típicos de la prueba de resolución espacial. (a) Intensidad de la radiación difractada (a un ángulo incidente de $34,540^\circ$) como función de la ubicación del punto del haz sobre la interfaz acero/ CaF_2 . (b) la 1ª derivada de la curva en (a) y el espesor del punto del haz a FWHM;

la figura 23 muestra la resolución espacial del colimador de microhaz como función del ángulo incidente del haz;

la figura 24 muestra una aplicación del aparato de micro DRX. (a) Una vista detallada de un corte longitudinal de una muestra de combustible quemado nuclear y (b) los parámetros de la celda unidad (red cristalina) observada como función de la posición radial del punto de haz sobre la muestra.

La figura 1 muestra el difractómetro- θ/θ utilizado con el colimador 1 de microhaz de la presente invención unido a un tubo de radiación 2 y una mesa de posicionamiento de muestra o microposicionador 3 que permite movimientos precisos de la muestra S con respecto al microhaz B por medio de un microtornillo 4. Además, la figura 1 muestra un detector 5 o contador de centelleo, una cabeza goniométrica y medios cardánicos que comprenden un posicionador 7 vertical, una plataforma 8 inclinable y un bastidor 9 angular.

Se ha utilizado todo el sistema mostrado en la figura 1 para caracterizar el haz y para comprobar la aplicabilidad de la técnica en condiciones de funcionamiento realistas. La caracterización del microhaz incluyó mediciones de ganancia de intensidad, así como pruebas de resolución espacial y divergencia. También se realizaron observaciones de DRX representativas y mediciones de parámetros de la red cristalina sobre el corte longitudinal de una pastilla de combustible nuclear usada y tubos de aleación de circonio oxidados, que demostraron la capacidad de la presente invención para proporcionar espectros de difracción absolutamente resueltos (no superpuestos) de las muestras a intervalos espaciales tan bajos como $30\text{ }\mu\text{m}$.

La figura 2 muestra un colimador 1 de microhaz más detallado. En particular, se muestran el posicionador 7 vertical, la plataforma 8 inclinable y el bastidor 9 angular que constituyen los medios cardánicos. Pueden observarse dos placas, la placa superior 10 y la placa inferior 11, que forman el canal para guiar el microhaz B. Se reciben las placas 10, 11 alargadas en unos medios de soporte que están formados por un alojamiento cilíndrico 12 fabricado preferentemente de aluminio. Un tubo externo 13 o un alojamiento externo está conectado mediante rosca en 14 al alojamiento cilíndrico 12 y encierra parcialmente las placas 10, 11 y el alojamiento 12. Un manguito 15 receptor roscado interno soporta el alojamiento cilíndrico 12, las placas 10, 11 y el alojamiento externo 13 de un colimador 1 de microhaz para conectarlo con los medios cardánicos.

La figura 3 muestra un colimador 1 de microhaz sin alojamiento externo 13. Puede observarse que las placas 10, 11 sobresalen hacia la derecha desde el alojamiento 12. En la figura 4 se muestra un colimador 1 de microhaz en una vista en alzado desde arriba.

Las figuras 5, 6 y 7 muestran la placa superior 10, la placa inferior 11 y el conjunto que comprende las placas 10 y 11. En la realización mostrada las placas 10, 11 están fabricadas de níquel (Ni). Las placas 10, 11 presentan una geometría idéntica, concretamente una longitud de $L = 150\text{ mm}$, una anchura de $b = 9\text{ mm}$ y un espesor de $t = 1\text{ mm}$.

Las placas 10, 11 de Ni, con un pulido final en un lado con una suspensión OP-S de sílice coloidal (tamaño de grano de $0,04\text{ }\mu\text{m}$), se colocan con los lados pulidos hacia dentro tal como puede observarse en la figura 7. En la parte de salida del canal (39), se colocan medios de espaciadores en la forma de dos hojas 16 delgadas de banda de metal noble de $30\text{ }\mu\text{m}$ de espesor entre las placas 10, 11 de Ni que se fijan entre sí con una pluralidad de tornillos 17 y unas tuercas 18, formando así una guía de haz de 37 mm de longitud de sección transversal constante de $4\text{ mm} \times 30\text{ }\mu\text{m}$. Pueden usarse hojas 16 delgadas de diferentes espesores dependiendo del espesor requerido para el haz B generado.

Tal como se muestra en la figura 6, la longitud de las hojas 16 delgadas de banda asciende a $L_f = 40\text{ mm}$ conduciendo a una extensión longitudinal de la parte de salida del canal (39) de 37 mm , que está definida por la distancia entre los pares de tornillos y tuercas situados más a la izquierda y el extremo derecho de las placas 10, 11 en las figuras 5, 6 y 7. Preferentemente, la parte de salida del canal (39) que presenta una sección transversal constante presenta una longitud inferior al 50%, más preferentemente inferior al 30%, de la longitud L total de las placas 10, 11.

La anchura del orificio o abertura en la entrada del canal dispuesta a la izquierda de la figura 7 es variable. Puesto que las placas 10, 11 de Ni presentan sólo 1 mm de espesor y mantienen una flexibilidad suficiente, su separación en este punto puede variarse según se desee mediante tornillos 19, 20 de ajuste o espaciadores tal como se muestra en las figuras 2 y 3, de manera que pueden realizarse ajustes del ángulo (crítico) de entrada hasta que se obtiene una intensidad de salida máxima.

Sobre el lateral externo de las placas 10, 11 de Ni, se fijan bloques de bronce pequeños 21, 22 mediante tornillos 23, tal como se muestra en la figura 7, para facilitar su montaje en los medios de soporte o alojamiento cilíndrico 12 ilustrados en particular en las figuras 2 y 3. Puesto que los bloques 21, 22 están fijados a las placas 10, 11 respectivamente e interactúan con los tornillos espaciadores 19, 20, éstos forman una parte de los medios de ajuste para ajustar el perfil longitudinal del canal y/o la anchura de la abertura de la entrada del canal.

En las figuras 8 a 12 se muestra con más detalle los medios de alojamiento cilíndrico 12. Tal como se muestra en la figura 8, los medios de soporte 12 comprenden una parte de base 24 y una parte de cubierta 25. El plano de separación entre la parte de base 24 y la parte de cubierta 25 está desplazado del eje longitudinal de los medios de soporte 12, tal como puede observarse en las figuras 10, 11 y 12. La figura 9 muestra una vista en alzado de la parte de base 24, en la que el plano de separación es idéntico o paralelo al plano del dibujo. Tal como se observa mejor en las figuras 10, 11 y 12, la parte de base 24 presenta un surco 26 que sirve como una cavidad receptora para recibir las placas 10, 11 de Ni. Tras insertar las placas 10, 11 de Ni en el surco 26, se sostienen en la parte de base 24 por medio de tornillos 27, 19 y 20 ilustrados por ejemplo en la figura 3. Entonces, la parte de base 24 está cerrada mediante la parte de cubierta 25.

Utilizando los tornillos 19, 20 no sólo puede variarse la anchura de la abertura de la entrada del canal para el haz, sino también el perfil longitudinal del espacio de canal alargado formado entre las placas 10, 11 de Ni. Presionando los tornillos internos o externos 19, puede formarse un perfil o bien parabólico (convexo) o bien cónico (cóncavo). La compresión de radiación tiene lugar entonces entre las placas 10, 11 de Ni siguiendo reflexiones totales múltiples.

El conjunto de las placas 10, 11 de Ni y los medios de soporte 12 constituye la unidad de condensador del colimador 1 de microhaz, que está colocada entre el tubo de radiación 2 y la muestra S. Para ajustar la posición de esta unidad con respecto al haz principal, se utiliza un sistema cardánico que permite movimientos verticales y de inclinación combinados de la unidad de condensador. El sistema cardánico está constituido por tres elementos; concretamente el posicionador 7 vertical, la plataforma 8 de inclinación y el bastidor 9 angular tal como se muestra en las figuras 1, 2 y 3. La secuencia de montaje es tal como sigue: se inserta la unidad de condensador en el posicionador 7 vertical, se atornilla este último a la placa superior de la plataforma 8 de inclinación, se monta la última en el bastidor 9 angular y finalmente se une este bastidor 9 al alojamiento del tubo de rayos X 2.

El bastidor 9 angular presenta ya un ángulo predeterminado con respecto al plano horizontal (en la presente realización -6°), que corresponde al ángulo de "salida" del haz principal según las indicaciones del proveedor del tubo de rayos X. El posicionador vertical 7 está dotado de un microtornillo (M-619.00 de PI Physik Instrumente GmbH & Co), que permite desplazamientos verticales de la unidad de condensador en etapas controlables tan pequeñas como de $10\text{ }\mu\text{m}$. La plataforma 8 de inclinación es un inclinómetro comercial de tipo M-041.00, suministrado por PI-Physik Instrumente GmbH & Co., Alemania. Esto permite pequeñas variaciones de la orientación del eje del colimador alrededor de un ángulo de salida predeterminado del bastidor 9 angular (-6°), en etapas controlables de $0,005^\circ$. Una vez que se logra una alineación óptima, confirmada obteniendo la intensidad máxima a la salida del colimador, pueden bloquearse en sus posiciones microposicionadores tanto verticales como angulares mediante los tornillos apropiados.

Un tubo externo 13 que sirve como alojamiento externo encierra parcialmente la unidad de condensador, tal como se muestra en la figura 2. El tubo externo 13 está ilustrado en las figuras 13, 14 y 15 con más detalle. Presenta una doble función, concretamente proteger las placas 10, 11 de Ni de fuerzas físicas externas y soportar un diafragma 28 de rendija que sirve como medio antidivergencia a la salida del camino del microhaz con el fin de eliminar la radiación oblicua. Se conoce bien a partir de los capilares de vidrio que pequeñas imperfecciones en las paredes reflectantes internas o ligeros defectos de alineación de la abertura de entrada con respecto al haz principal producen variaciones de intensidad significativas en los haces concentrados, tales como rasgos helicoidales u otros rasgos no centrosimétricos [véase la referencia 8 de la técnica anterior] y producen haces divergentes perturbadores (satélites). En la presente invención, para cortar la radiación oblicua perturbadora y mantener sólo el núcleo central del haz concentrado, se sitúa una rendija antidivergencia de $15\text{ }\mu\text{m}$ en la parte delantera del orificio de salida de la unidad de condensador.

El diafragma 28 de rendija (supresor de haz) comprende dos bloques 29 y 30, con superficies pulidas (rugosidad hasta $0,04\text{ }\mu\text{m}$) en la parte interior del haz, que están fijados entre sí mediante tornillos 31 y están unidos a una tapa extrema 32 que forma una parte del alojamiento externo 13, tal como se muestra en las figuras 13, 16 y 17. La tapa extrema 32 redonda que lleva el diafragma 28 de rendija está insertada en la parte delantera de un tubo protector 33, siendo posible bloquearla apretando los tornillos 34 tras ajustar el orificio de la rendija para ser paralelo al orificio de la placa de Ni.

Para formar el orificio de la rendija deseado, se colocan dos anillos espaciadores preferentemente en forma de hojas delgadas alrededor de los tornillos 31 y por tanto entre los bloques 29 y 30. El espesor de los anillos espaciadores es aproximadamente de $15\text{ }\mu\text{m}$. En consecuencia, el orificio de diafragma de rendija es la mitad del orificio de las placas 10, 11 de Ni en la parte de salida del canal 39. Para ajustar el diafragma 28 de rendija en el plano medio del microhaz B, pueden realizarse movimientos ascendentes y descendentes de los bloques 29 y 30 sobre dos clavijas 35 girando el tornillo 36 contra la acción de muelles 37, tal como se muestra mejor en la figura 17.

A continuación, se presentarán datos experimentales con respecto a la presente invención:

1. Instrumentación

Se ha empleado el aparato que se muestra en la figura 1 para caracterizar y someter a prueba el microhaz B de esta invención. Está constituido por un difractómetro de modo θ/θ (Seifert DRX-3000) equipado con un tubo de radiación de 2 KW convencional con un ánodo de Cu de enfoque en línea y un contador de centelleo (Seifert SZ 20/SE) de doble colimación (es decir, con rendijas contra la dispersión y receptoras). Se utiliza un filtro de Ni colocado sobre el alojamiento del tubo para eliminar las longitudes de onda de Cu- K_β , permitiendo sólo que se guíe Cu- K_α ($8,05\text{ KeV}$) en el colimador. Para todos los experimentos la potencia aplicada al tubo de radiación fue de 46 KV y 38 mA.

El colimador 1 de microhaz de rayos X está montado sobre el alojamiento del tubo de radiación 2. Manteniendo tanto la fuente de radiación como los brazos del detector en la posición cero del goniómetro, el condensador está orientado en el camino de haz principal, buscando la máxima intensidad transmitida mediante movimientos de los sistemas de microposicionamiento vertical y de inclinación. Se realiza entonces un barrido del perfil de intensidad del microhaz B formado haciendo oscilar el contador de centelleo alrededor de la posición cero. Para mediciones directas de este tipo, el contador de centelleo debe protegerse por un atenuador de intensidad para evitar su saturación. Esto se logra normalmente colocando varias hojas delgadas metálicas en la parte delantera del detector, de algunas decenas o cientos de micrómetros de espesor dependiendo de la intensidad de entrada. Durante la alineación también

se optimizan las posiciones verticales y angulares de la rendija antidivergencia en el extremo del tubo protector (33). Además, se ajustan la abertura de entrada de las placas de Ni y el perfil del canal encerrado por las mismas utilizando los tornillos (19) y (20), para obtener la máxima intensidad transmitida.

5 2. *Ganancia de intensidad y características de funcionamiento*

Se ha determinado la ganancia de luminosidad midiendo la intensidad que sale del colimador con y sin presentar en su interior placas de Ni, es decir, con y sin compresión de haz. Ambas mediciones se han realizado en las mismas condiciones experimentales, es decir, manteniendo constantes los parámetros del generador y tras el ajuste del sistema para una máxima intensidad transmitida en la posición cero del goniómetro, con hojas delgadas de acero inoxidable de 50 μm de espesor como atenuador de intensidad en la parte delantera del detector. En estas condiciones, la disposición con placas de Ni proporcionó una intensidad de 4×10^4 cuentas/s, mientras que sin las placas de Ni la intensidad máxima no superó 2×10^2 cuentas/s. Sin duda, la intensidad 200 veces más alta obtenida con las placas de Ni verifica la eficacia del sistema de compresión de haz presentado, que puede utilizarse para rayos X duros en el intervalo de 5-30 keV. Para comparación, concentradores de un único capilar de vidrio que se hicieron funcionar con fuentes de radiación Cu $K\alpha$ convencionales alcanzaron sólo una ganancia de intensidad de aproximadamente 28 [véase la referencia 7 de la técnica anterior].

El perfil de intensidad medido a una distancia de 205 mm desde la salida del colimador, con hojas delgadas de acero inoxidable de 350 μm en la parte delantera del detector se muestra en la figura 18 como una función de la salida del detector desde la posición angular cero. Puede observarse que en el sistema presentado en la presente memoria proporciona un haz de rayos X muy bien definido y compacto (en forma de aguja), sin picos “satélite” perturbadores significativos o aumento de la radiación de fondo. Por tanto, debido al perfil de haz estrecho e ideal, no solo puede definirse la posición central (cero) del instrumento de forma muy precisa (una desventaja conocida de los haces concentrados de capilares de vidrio es la posición cero difusa [véase la referencia 8 de la técnica anterior]), sino que también los picos de Bragg obtenidos a partir de muestras estudiadas están libres de deformaciones y son muy estrechos. Esto contribuye también a obtener mediciones de parámetros de red cristalina muy precisas.

En comparación con las construcciones de capilares de vidrio, el concentrador presentado muestra también algunas ventajas adicionales. Por ejemplo, la intensidad del haz generado durante su funcionamiento es constante, mostrándose que el sistema no es sensible a efectos de calentamiento, que en el caso de los capilares de vidrio influyen negativamente en el rendimiento y perturban la señal transmitida [véase la referencia 7 de la técnica anterior]. Además, puesto que el concentrador de la invención está fabricado de metal, con un coeficiente de absorción mayor, no hay prácticamente “escape” de radiación a través de las paredes reflectantes como en el caso de capilares de vidrio [véase la referencia 2 de la técnica anterior]. Finalmente, no se han detectado daños por radiación en las placas de Ni reflectantes tras varios meses de funcionamiento continuo, diferente de los capilares de vidrio que muestran oscurecimiento de las paredes después de un determinado tiempo [véase la referencia 7 de la técnica anterior], que podría afectar a la eficacia y disminuir la potencia de reflexión.

40 3. *Divergencia del haz*

En la disposición mostrada en la figura 1, la distancia entre la rendija antidivergencia a la salida del colimador y la rendija receptora en el detector, cuando tanto la fuente de radiación como el detector se llevan hasta la posición cero, se fija a 205 mm. Por tanto se ha llevado a cabo una sencilla medición para estimar la divergencia del haz, colocando diferentes rendijas receptoras de orificios crecientes (figura 19), hasta que se registró una intensidad de saturación máxima. Claramente, se logra un valor de saturación máximo de intensidad transmitida cuando la anchura de la rendija receptora supera la anchura del haz en su lugar de corte, es decir, después de que todo el haz se introduzca en la ventana del detector. Se muestran los resultados de las intensidades medidas como una función de las anchuras de las rendijas receptoras en la figura 20a. En la figura 20b se representan los mismos resultados suponiendo una simetría total del haz, es decir, se supone que la mitad de la intensidad del haz pasa a través de la mitad de la rendija receptora. En la figura 20c se muestra la 1ª derivada de la curva de la figura 20b. De forma similar a las referencias [véase las referencias 2, 8 de la técnica anterior], se asigna una anchura característica al microhaz como la “anchura a la mitad de la altura” (FWHM) del pico de la figura 4c, lo que implica una anchura de 120 μm del haz a una distancia de 205 mm desde la rendija antidivergencia. A partir de una geometría sencilla puede calcularse fácilmente que la divergencia angular correspondiente es sólo de 0,014°. Este valor, definitivamente bastante menor que el valor de 0,32° medido para concentradores de un único capilar de vidrio en condiciones similares [véase las referencias 7, 8 de la técnica anterior], indica la alta compacidad del microhaz presentado en la presente memoria.

Debe observarse también que el valor dado de 0,014° es la divergencia angular más alta posible en nuestro caso. Esto es debido a que cualquier defecto de alineación de la posición de la rendija receptora del plano ideal perpendicular al eje del haz conduce a la medición de ángulos de divergencia más altos que los reales. Puesto que en las mediciones descritas anteriormente no se realizó ninguna optimización de la posición de la rendija receptora, la dependencia angular derivada implica por tanto un valor límite conservativo (alto).

La baja divergencia del haz implica otra ventaja del sistema presentado con respecto a los capilares de vidrio, puesto que permite colocar el dispositivo de microhaz a distancias mayores desde la superficie de la muestra sin pérdida sensible de resolución espacial. En la siguiente prueba de resolución espacial, que confirma definitivamente la alta compacidad del haz formado, se coloca la salida del colimador a una distancia cómoda de 17 mm desde la muestra,

lo que facilita toda la manipulación experimental. Como comparación, condicionadas por la mayor divergencia de haz, se realizaron mediciones similares con capilares de vidrio con la salida del capilar casi en contacto con la muestra [véase la referencia 8 de la técnica anterior], es decir a una distancia de 2 mm o inferior de la superficie de la muestra.

5 4. Resolución espacial

Se ha determinado experimentalmente la resolución espacial del colimador de microhaz en las mismas condiciones de funcionamiento de las mediciones de rutina con el difractómetro de la figura 1. Con este fin, se ha preparado una muestra específica, constituida por una unión de dos materiales diferentes, se fijaron entre sí una placa de acero inoxidable y un monocristal de CaF_2 formando un borde de interfase recto bien definido. Se realizó la inspección sobre la muestra tras un pulido fino, colocándola sobre la plataforma de traslación (M-105.10 PI Physik Instrumente GmbH & Co.) del sistema de posicionamiento de muestras. Se describe el procedimiento de medición esquemáticamente en la figura 21; se colocaron los brazos del goniómetro a un determinado ángulo θ preseleccionado con respecto a la superficie de la muestra, de manera que se obtuvo un pico difractado para el monocristal de CaF_2 . Entonces se colocó inicialmente el punto del haz sobre la placa de acero inoxidable y se desplazó la muestra cuidadosamente en la dirección horizontal en etapas de $5 \mu\text{m}$. Entonces se evaluó el espesor de la zona iluminada (tamaño del punto) a partir del desplazamiento total de muestra requerido, de modo que la intensidad difractada varió desde el nivel de fondo hasta un máximo. (Sólo debe comentarse que porque la superficie de la muestra preparada no era perfectamente paralela al plano de crecimiento del cristal de CaF_2 utilizado, los ángulos θ de difracción medidos correspondieron exactamente con los ángulos de Bragg tabulados para el CaF_2).

Se proporciona un resultado representativo obtenido con el microhaz colocado a un ángulo incidente $\theta=34,540^\circ$ en la figura 22(a). Mediante diferenciación de la intensidad frente al desplazamiento de la curva de la figura 22(a), se definió la resolución espacial como el intervalo de desplazamiento correspondiente a la anchura a la mitad de la altura (FWHM) del pico mostrado en la figura 22 (b). Entonces se obtuvieron tales perfiles de intensidad para todos los ángulos θ incidentes que conducen a picos difractados del cristal de CaF_2 , representándose gráficamente las resoluciones espaciales medidas como una función del ángulo incidente tal como se representa en la figura 23.

La disminución exponencial de la resolución espacial sigue la dependencia esperada de la proyección de la anchura del haz sobre la superficie de la muestra con el ángulo incidente, que es igual a la anchura del haz en sección transversal dividida por $\sin\theta$. Obviamente, a $\theta=0^\circ$, la anchura proyectada se vuelve infinita, mientras que en la extrapolación a $\theta=90^\circ$ se acerca a la anchura del haz en sección transversal, que en nuestro caso es $21,2 \mu\text{m}$ (figura 23).

La anchura del haz como una función de la distancia desde la punta del colimador puede calcularse, por supuesto, por el ángulo de divergencia conocido ($0,014^\circ$). Teniendo en cuenta que el orificio de la rendija antidivergencia es de $15 \mu\text{m}$ y que en la configuración elegida está colocado a 17 mm de la superficie de la muestra, la anchura del haz en sección transversal en μm es $15+2,17 \times 10^3 \cdot \tan(0,014^\circ)=23,3 \mu\text{m}$. El valor resultante concuerda muy bien con el obtenido experimentalmente ($21,2 \mu\text{m}$) y confirma una vez más la alta compacidad del microhaz creado.

40 5. Análisis de DRX de alta resolución

Se ha utilizado el aparato de DRX de la figura 1 equipado con el colimador de microhaz y la plataforma de microposicionamiento de muestras para llevar a cabo análisis cristalográficos de alta resolución sobre la muestra de combustible nuclear usado de la figura 24(a). La muestra, un corte longitudinal en el centro de un pequeño segmento (disco) de una varilla de combustible, se colocó sobre la plataforma de traslación del goniómetro. Desplazándola horizontalmente, se obtuvieron una serie de espectros de DRX a varias posiciones en la superficie de la muestra. Se proporciona la constante (parámetro) de celda unidad calculada a partir de cada espectro individual de DRX en la figura 24 (b) como una función de la posición radial relativa (r/r_0) del punto del haz sobre la superficie de la muestra. En el mismo gráfico se muestra también el parámetro promedio de celda unidad ($a=5,4768 \text{ \AA}$) tal como se observa utilizando el colimador convencional, que iluminó toda la superficie de la muestra. Más acerca del significado físico de los cambios estructurales entre los radios de la muestra inspeccionada pueden encontrarse dentro de poco en la referencia [véase referencia 10 de la técnica anterior]. Se presentan los resultados de la figura 24(b) en esta sección como un ejemplo de los resultados de DRX de alta resolución obtenidos utilizando el concentrador de microhaz de rayos X.

Tal como es evidente a partir de la descripción anterior, la presente invención proporciona las siguientes ventajas:

- Construcción estable frente a fuerzas físicas externas.
- Longitudes de construcción más altas permitiendo mayores aberturas de entrada para capturar la mayoría de la radiación disponible para la compresión.
- No existe escape de radiación a través de las paredes del condensador debido a la alta densidad del material de Ni.
- No hay efectos de calentamiento que afectan a la intensidad transmitida.
- Alta estabilidad frente a daños por radiación.

ES 2 291 162 T3

- Canal plano de salida de sección transversal constante que proporciona un haz de salida cuasiparalelo.
- Anchura de salida nominal variable del haz formado mediante la utilización de diferentes hojas delgadas espaciadoras entre las placas de espesor controlable.
- Perfil de sección transversal variable del canal formado entre las placas de Ni con configuraciones parabólicas o cónicas para una intensidad transmitida máxima.
- Anchura de rendija variable mediante la utilización de diferentes hojas delgadas espaciadoras, ligeramente inferior a la anchura de la salida del canal metálico en el condensador de rayos X.
- Absorción de la radiación más divergente y perturbadora y formación final de un microhaz poco divergente con perfil de intensidad estrecho compacto.
- Definición precisa de la posición cero del sistema debido a la alta compacidad del haz.
- Debido a la compacidad del haz incidente, se obtienen haces (picos) difractados muy delgados y bien definidos que permiten determinaciones cristalográficas de alta precisión.
- Debido a la baja divergencia del haz formado, hay una distancia cómoda entre la punta del colimador y la muestra, al menos 17 mm, sin pérdida de resolución espacial.
- Debido a la alta resolución espacial, hay posibilidad de obtener espectros de difracción no superpuestos precisos de las muestras a intervalos ligeramente superiores a 20 μm .

Referencias de la técnica anterior

1. D. Bilderback, S. A. Hoffman y D. Thiel, *Science*, 263, (1994).
2. Naoki Yamamoto, *Rev. Sci. Instrum.*, 67 (9), (1996).
3. P. Dhez, P. Chevallier, T. B. Lucatorto y C. Tarrío, *Rev. Sci. Instrum.*, 70, (4), (1999).
4. D. H. Bilderback, D. J. Thiel, *Rev. Sci. Instrum.*, 66 (2), (1995).
5. H. Klug y L. Alexander, "X-ray diffraction procedures", John Wiley & Sons, Inc., New York (1954).
6. A. H. Compton y S. K. Allison, "X-rays in Theory and Experiment", D. Van Nostrand Company, Inc., (1935).
7. D. J. Thiel, D. H. Bilderback y A. Lewis, *Rev. Sci. Instrum.*, 64 (10), (1993).
8. I. C. Noyan, P.-C. Wang, S. K. Kaldor, J. L. Jordan-Sweet y E. G. Liniger, *Rev. Sci. Instrumen.*, 71 (5), (2000).
9. C. A. MacDonald, S. M. Owens y W. M. Gibson, *J. Appl. Cryst.*, 32, 160-167, (1999).

REIVINDICACIONES

1. Colimador de microhaz para comprimir haces de rayos X para su utilización en un difractómetro de rayos X, en el que dicho colimador (1) presenta unos medios de canal para proporcionar un canal que guía dichos haces de rayos X, presentando dicho canal una parte de entrada del canal (38) y una parte de salida del canal (39),
estando formados dichos medios de canal por dos medios de placa opuestos, alargados, pulidos (10, 11),
caracterizado porque
dichos medios de placa (10, 11) son flexibles y están fabricados o recubiertos con un material seleccionado de entre el grupo constituido por los metales pesados y materiales que presentan propiedades de reflexión total comparables a las de los metales pesados, y presentando dicho colimador unos medios de ajuste (19, 20, 21, 22) para ajustar el perfil longitudinal de dicho canal y/o la anchura de abertura de dicha parte de entrada del canal (38) doblando dichos medios de placa (10, 11).
2. Colimador de microhaz según la reivindicación 1, **caracterizado** porque dicho grupo está constituido por níquel, wolframio y platino.
3. Colimador de microhaz según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado** porque dicho canal presenta una sección transversal constante en dicha parte de salida del canal (39) de modo que se produce un haz de rayos X de salida cuasiparalelo.
4. Colimador de microhaz según la reivindicación 3, **caracterizado** porque dicha parte de salida del canal (39) presenta una longitud inferior al 50% de la longitud (L) total de dicho canal.
5. Colimador de microhaz según la reivindicación 3, **caracterizado** porque dicha parte de salida del canal (39) presenta una longitud inferior al 30% de la longitud (L) total de dicho canal.
6. Colimador de microhaz según una de las reivindicaciones 3 a 5, **caracterizado** porque se intercalan unos medios espaciadores (16) en dicha parte de salida del canal (39) entre dichos medios de placa (10, 11) para separar los mismos.
7. Colimador de microhaz según la reivindicación 6, **caracterizado** porque dichos medios espaciadores son dos hojas (16) de banda de metal noble.
8. Colimador de microhaz según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado** porque se reciben dichos medios de placa (10, 11) en unos medios de soporte (12) que presentan una cavidad (26) receptora.
9. Colimador de microhaz según la reivindicación 8, **caracterizado** porque dicha cavidad (26) receptora presenta una anchura creciente en la dirección desde dicha parte de salida del canal (39) hasta dicha parte de entrada del canal (38).
10. Colimador de microhaz según la reivindicación 8 ó 9, **caracterizado** porque dichos medios de ajuste comprenden dos medios de bloque (21, 22), estando fijados cada uno de ellos en dicha parte de entrada del canal (38) a la salida de cada uno de dichos medios de placa (10, 11) y una pluralidad de tornillos de ajuste (19, 20) montados en dichos medios de soporte (12) y que interactúan con dichos medios de bloque (21, 22).
11. Colimador de microhaz según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado** porque unos medios anti-divergencia (28) están situados a la salida del canal para detener la radiación oblicua.
12. Colimador de microhaz según una de las reivindicaciones anteriores, en combinación con la reivindicación 8, **caracterizado** porque están previstos unos medios de alojamiento externo (13) que pueden conectarse a dichos medios de soporte (12) para encerrar al menos parcialmente dichos medios de placa (10, 11) y dichos medios de soporte (12).
13. Colimador de microhaz según la reivindicación 12 y 11, **caracterizado** porque dichos medios antidivergencia (28) están montados en una parte extrema (32) de dichos medios de alojamiento externo (12).
14. Colimador de microhaz según la reivindicación 13, **caracterizado** porque dicha parte extrema está formada por una tapa extrema (32) que puede conectarse de manera separable a la parte restante (33) de dichos medios de alojamiento externo (13).
15. Colimador de microhaz según una de las reivindicaciones 11, 13 ó 14, **caracterizado** porque dichos medios antidivergencia (28) comprenden dos bloques de diafragma (29, 30) que forman una rendija entre sí.
16. Colimador de microhaz según la reivindicación 15, **caracterizado** porque unos medios espaciadores adicionales están dispuestos entre dichos bloques de diafragma (29, 30) para ajustar la anchura de dicha rendija.

ES 2 291 162 T3

17. Colimador de microhaz según la reivindicación 15 ó 16, **caracterizado** porque se proporcionan unos medios de alineación (35, 36, 37) para alinear dicha rendija con dicha parte de salida del canal (39).

5 18. Procedimiento para llevar a cabo estudios de DRX de alta resolución, **caracterizado** porque se utiliza un colimador (1) de microhaz según una de las reivindicaciones anteriores con un difractómetro equipado con unos medios de microposicionamiento (3) para posicionar una muestra (S) que va a someterse a barrido.

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

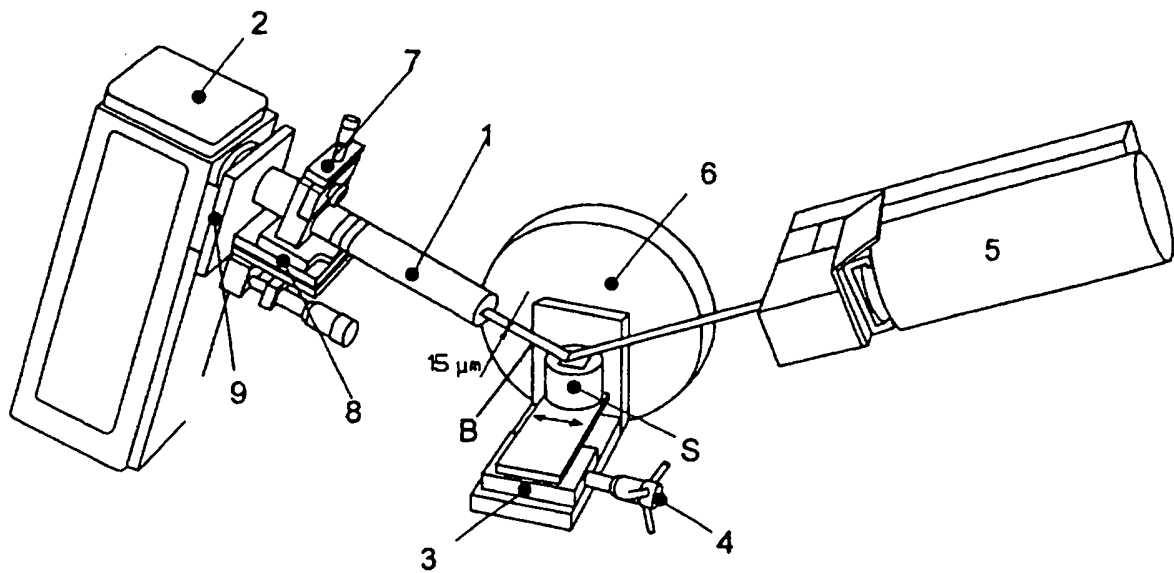
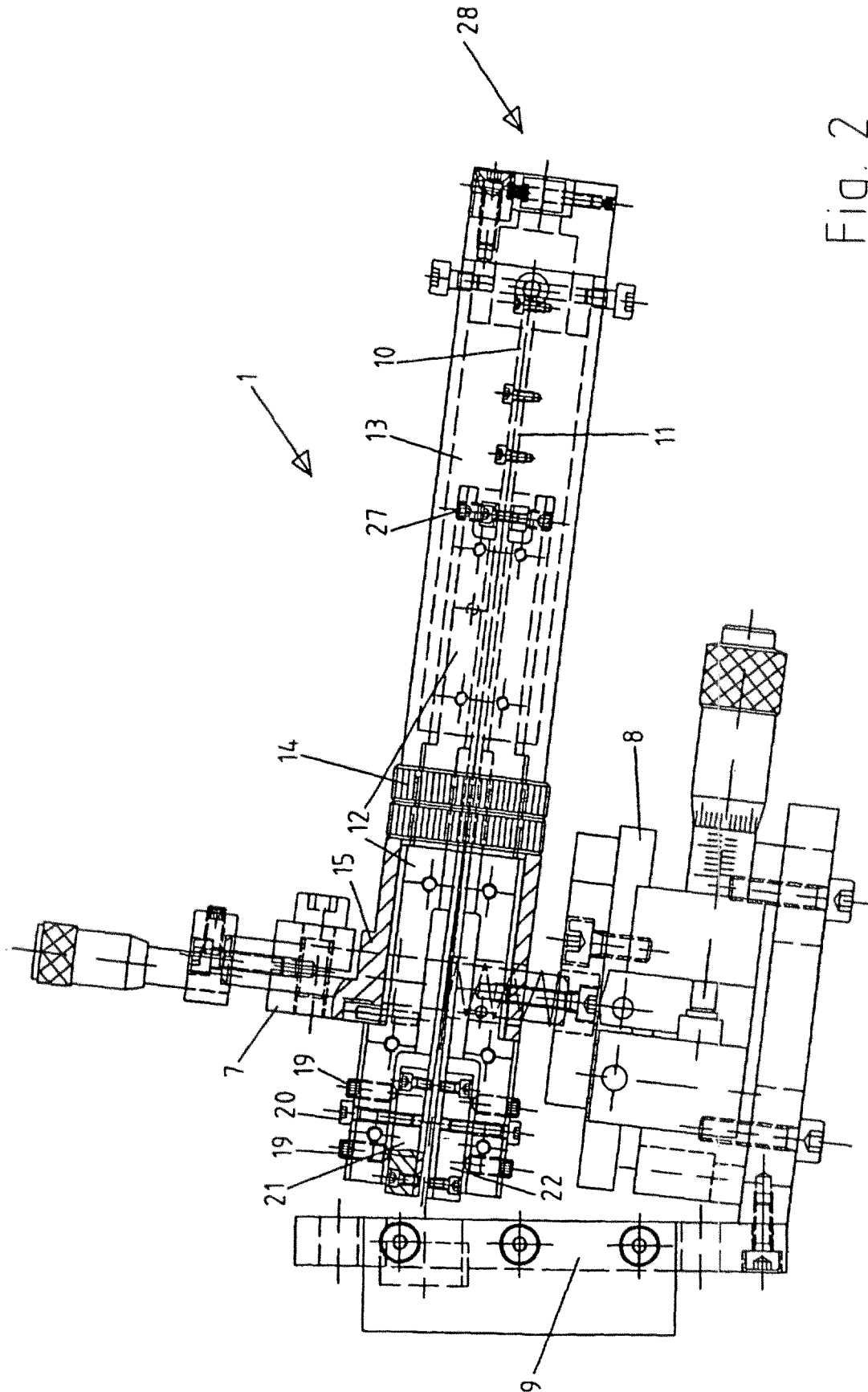
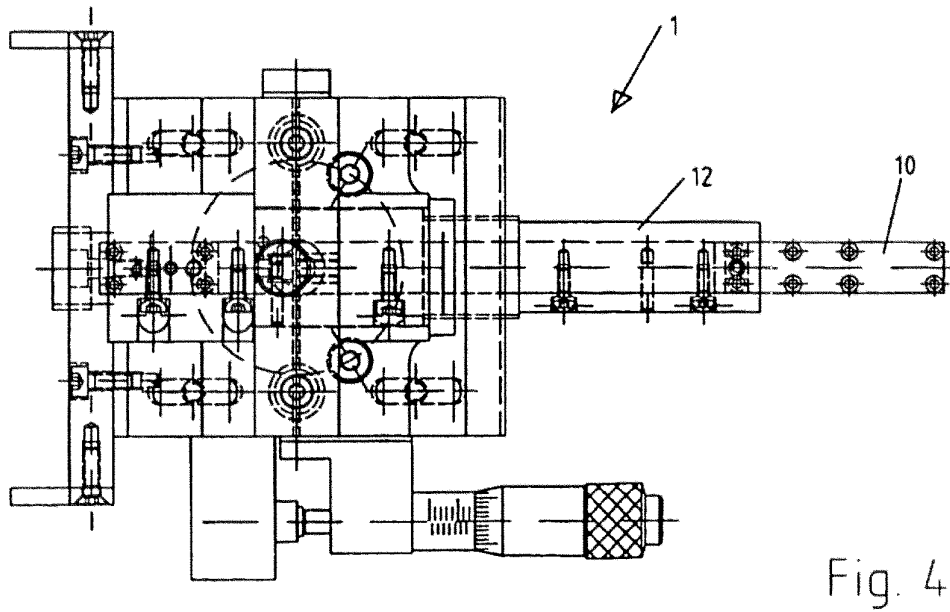
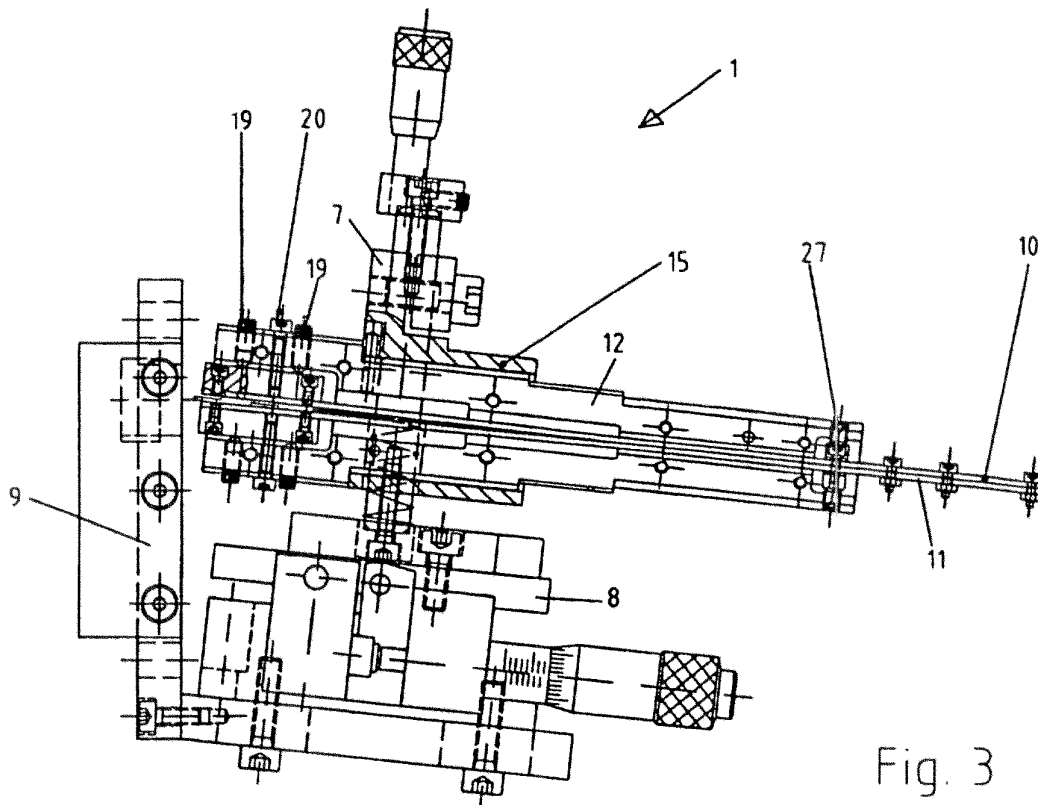


Fig. 1





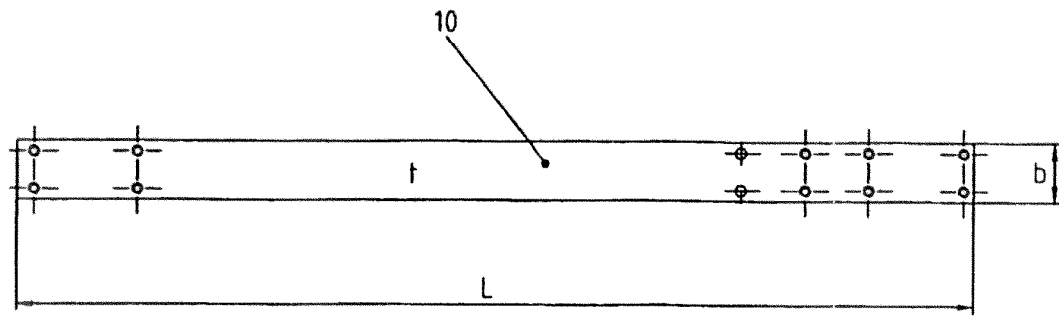


Fig. 5

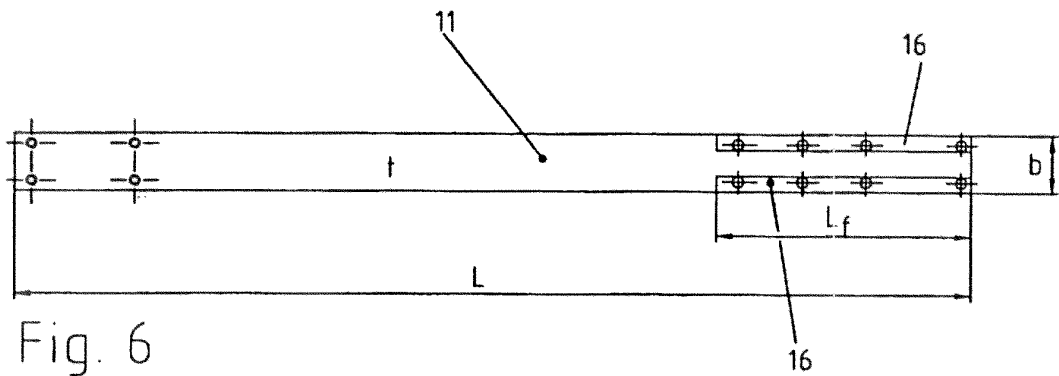


Fig. 6

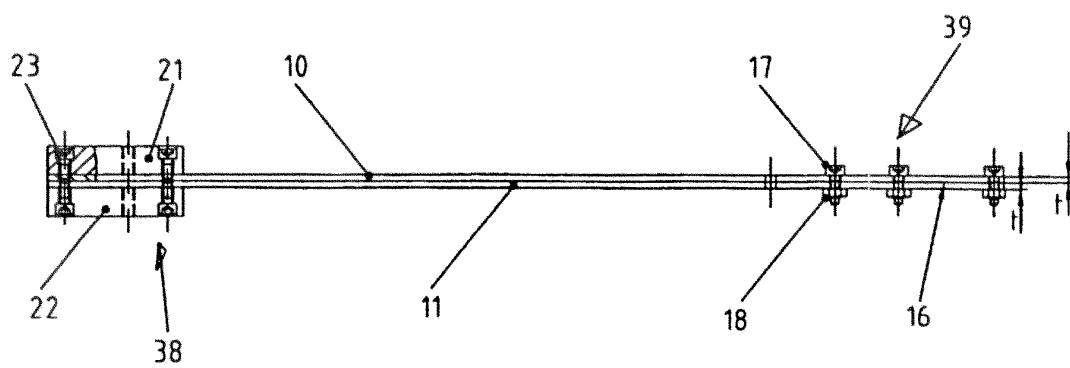


Fig. 7

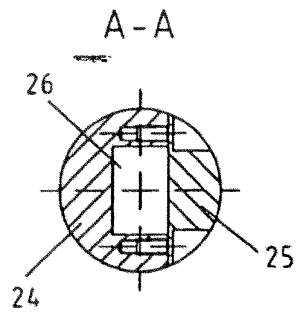


Fig. 10

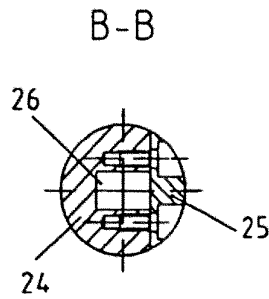


Fig. 11

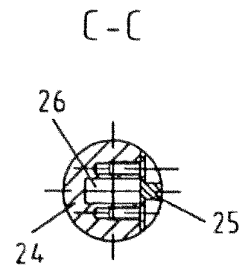


Fig. 12

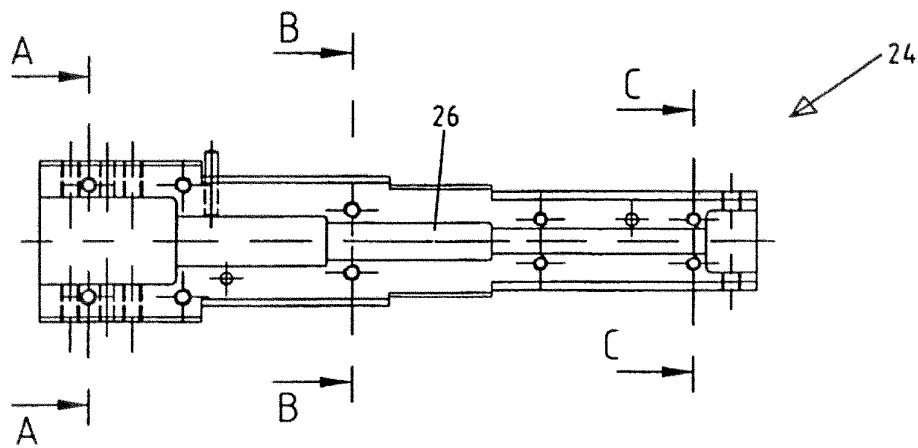


Fig. 9

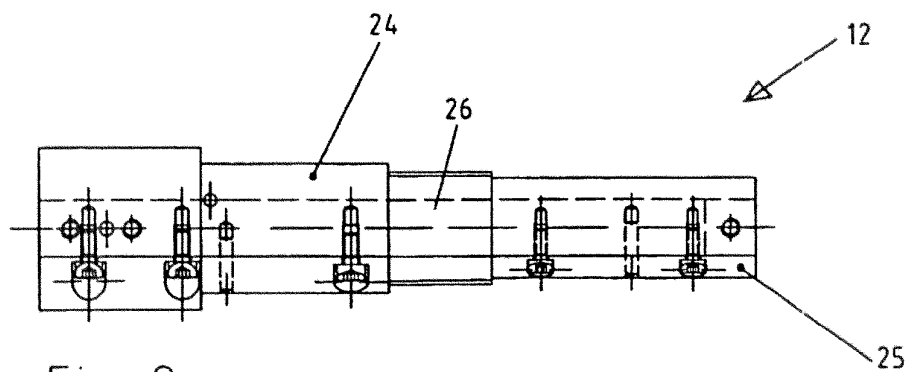
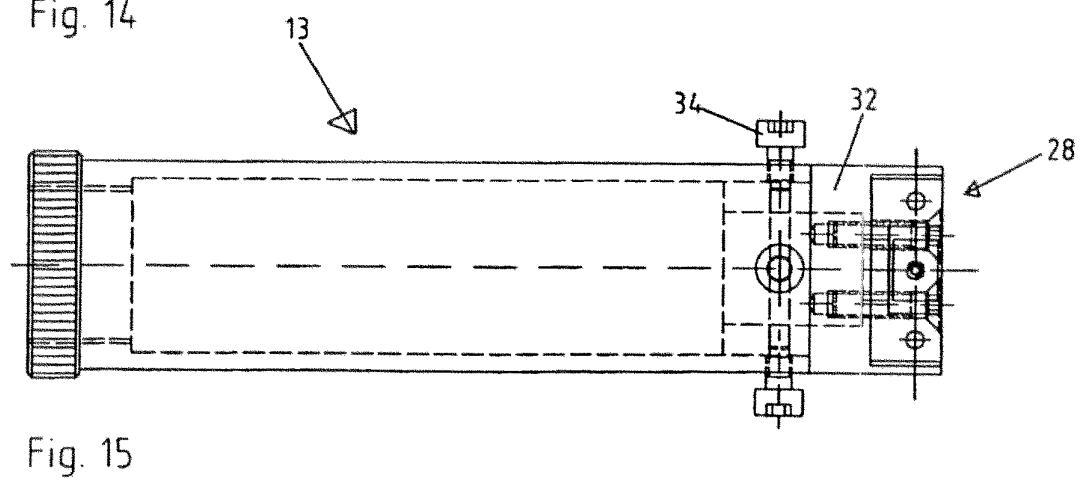
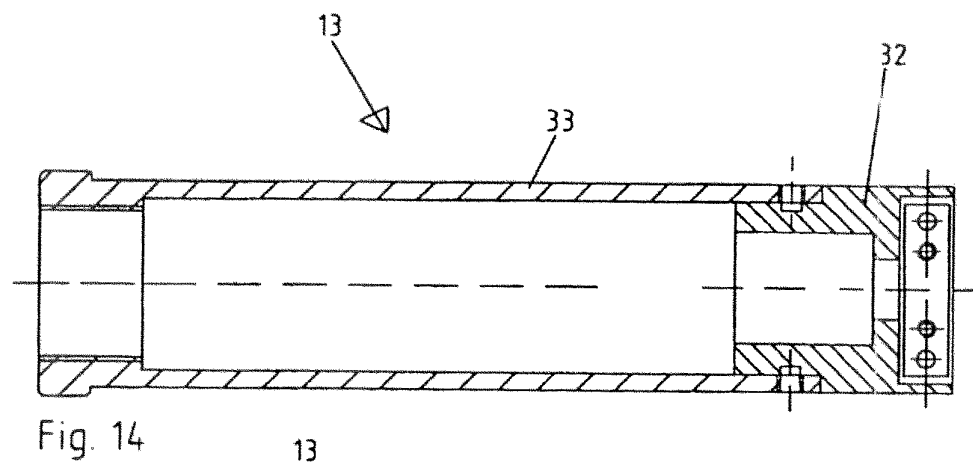
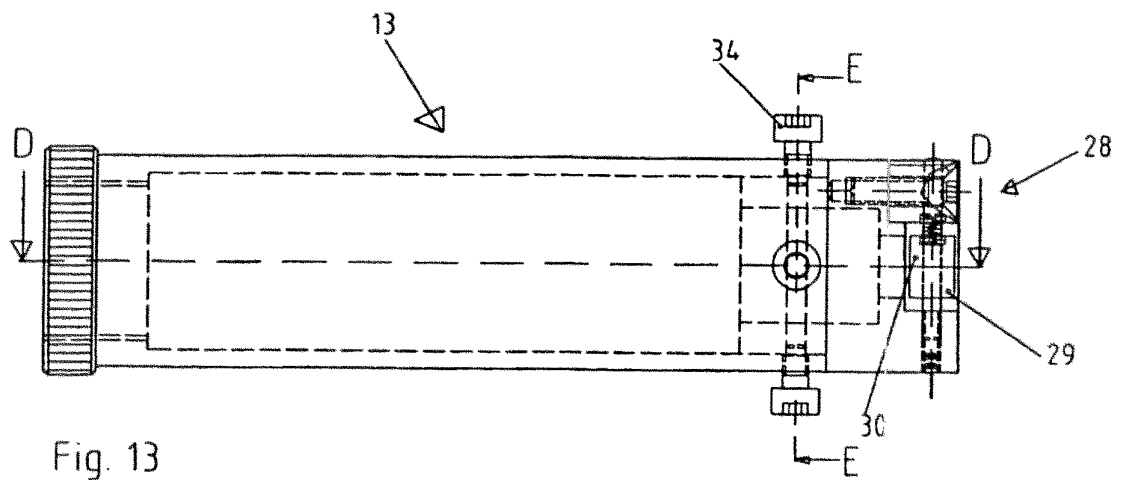
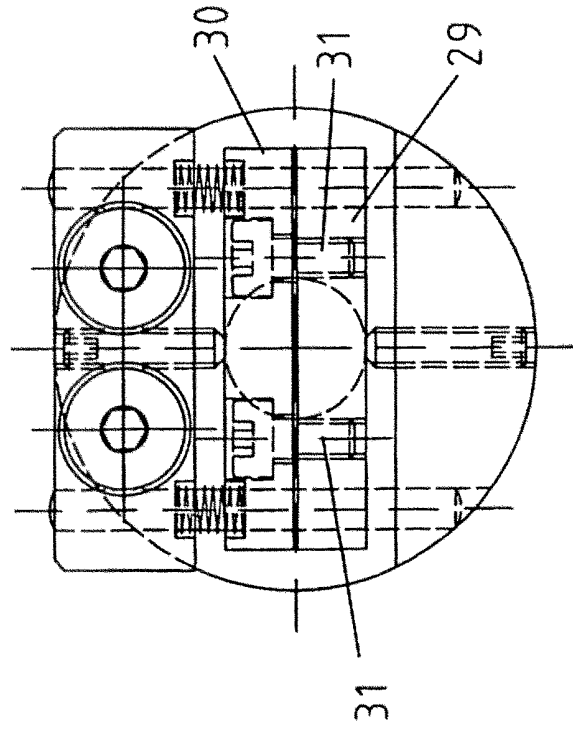
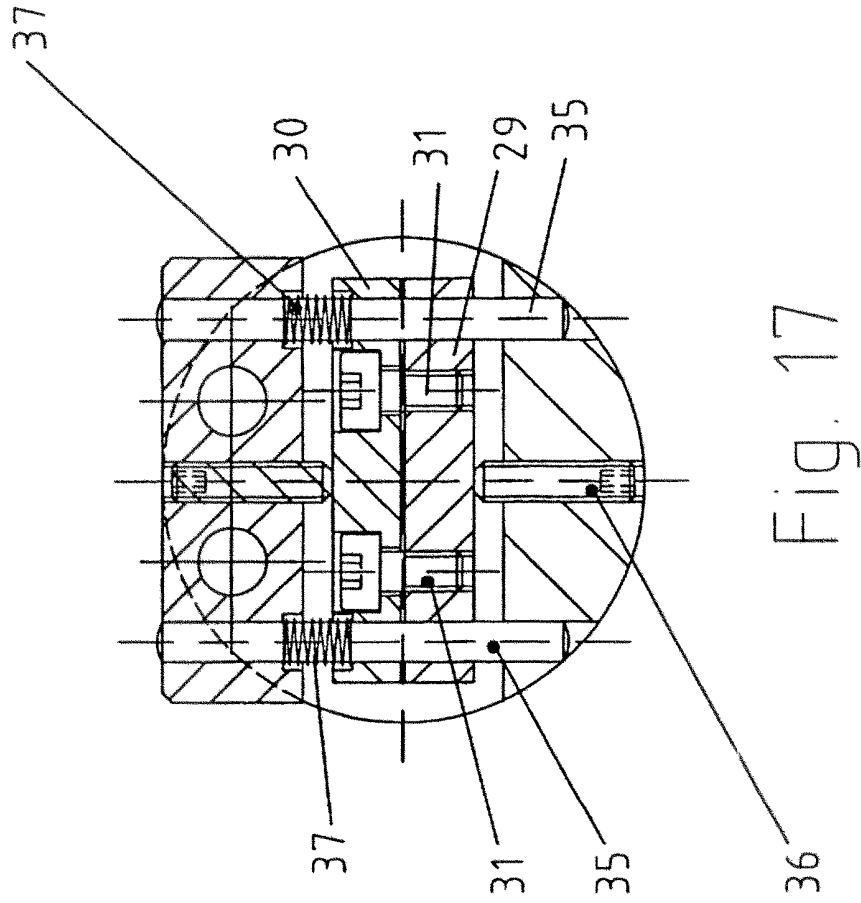


Fig. 8





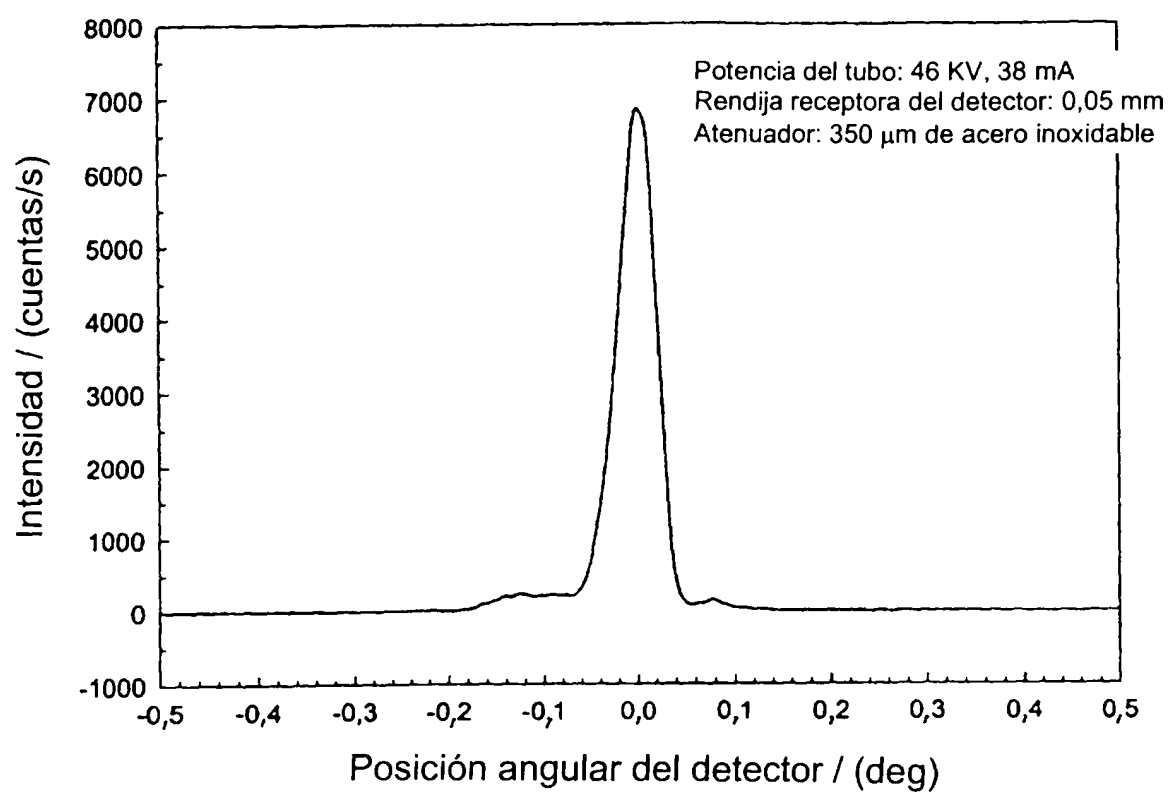


Fig. 18

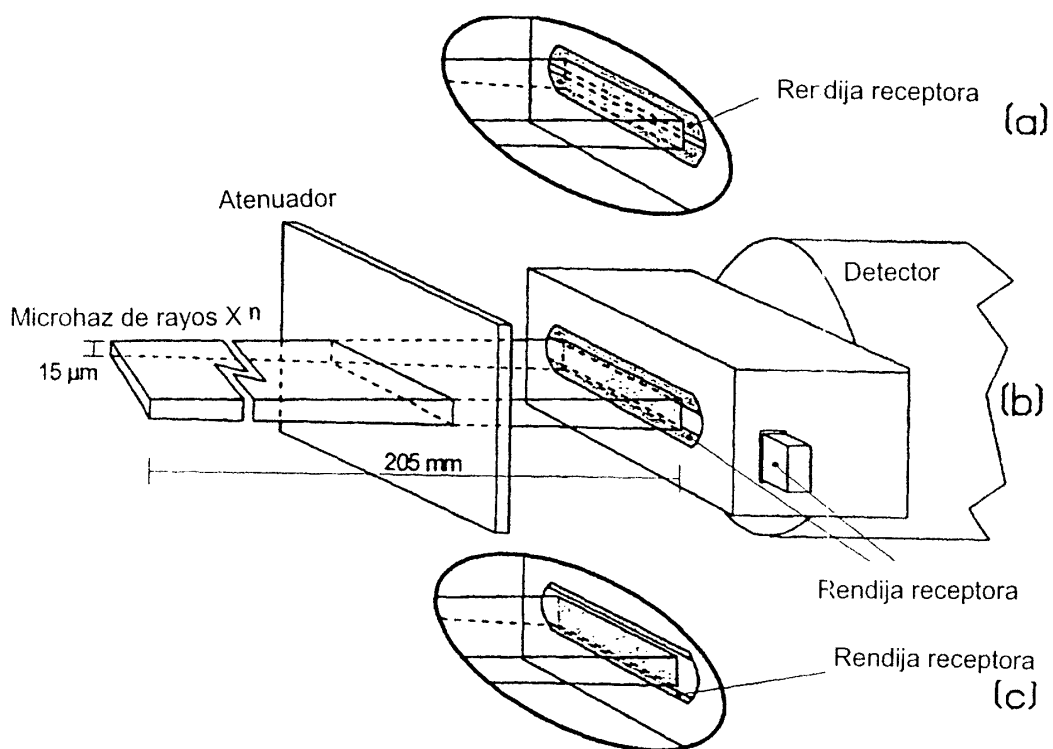


Fig. 19

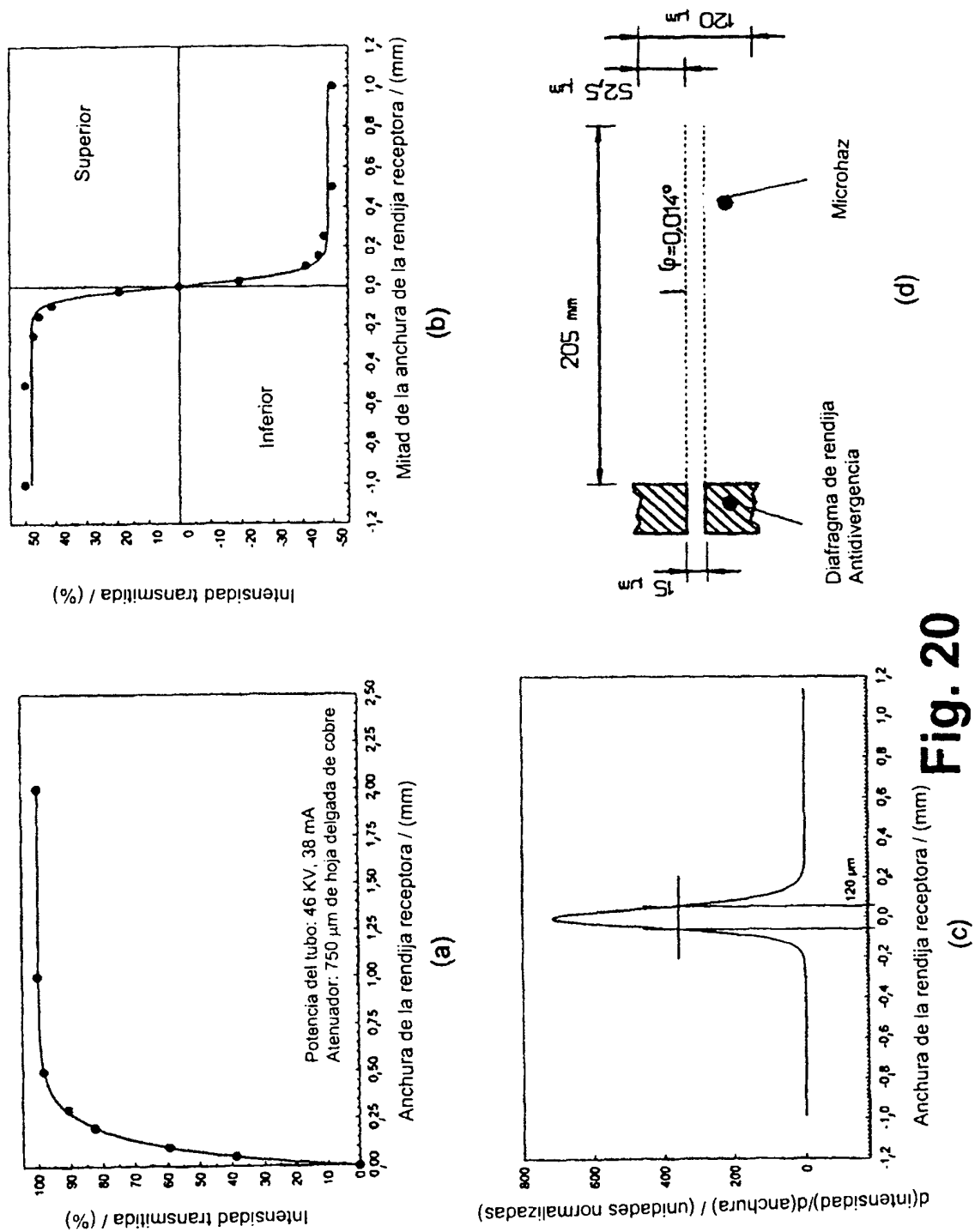


Fig. 20

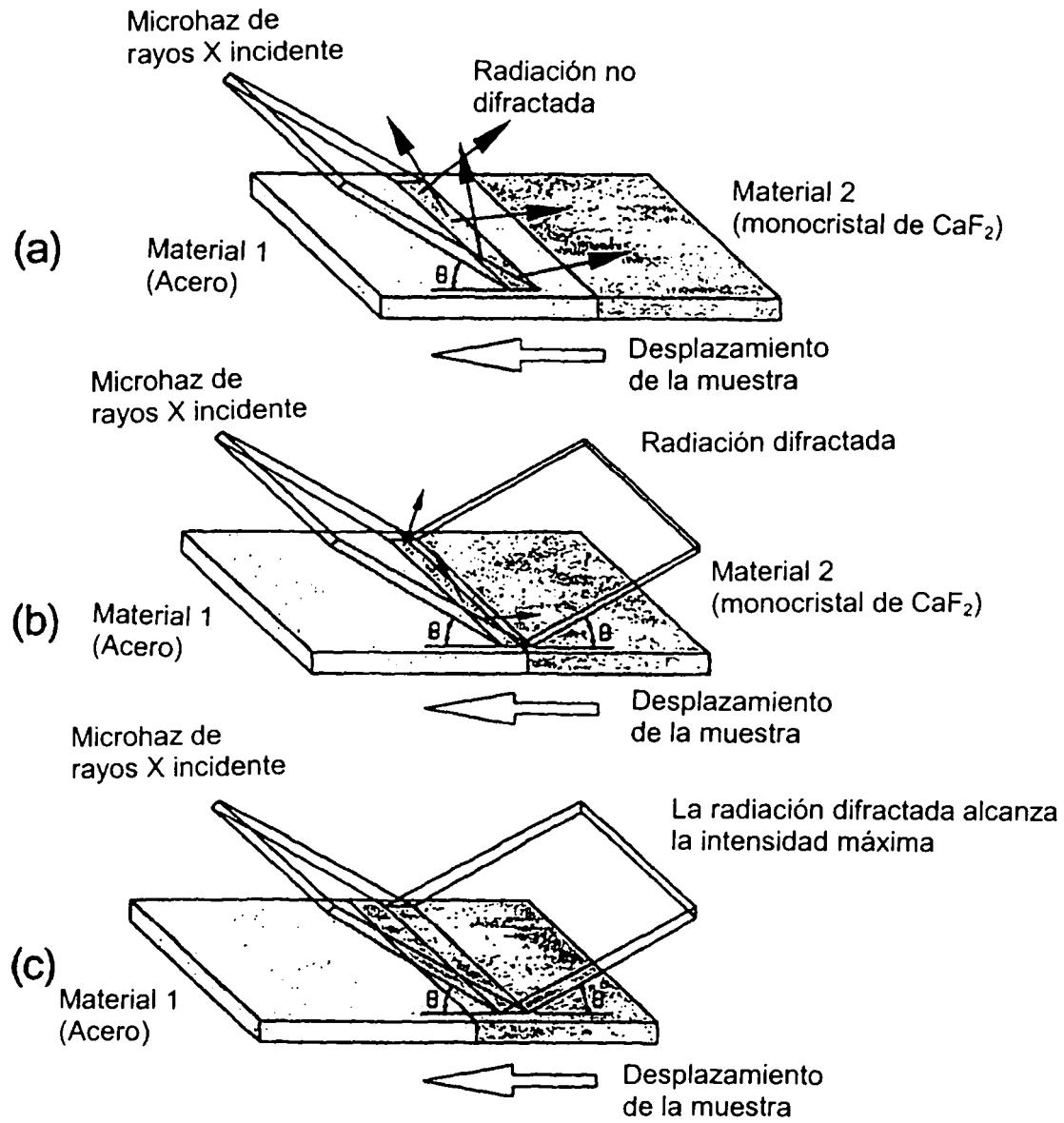


Fig. 21

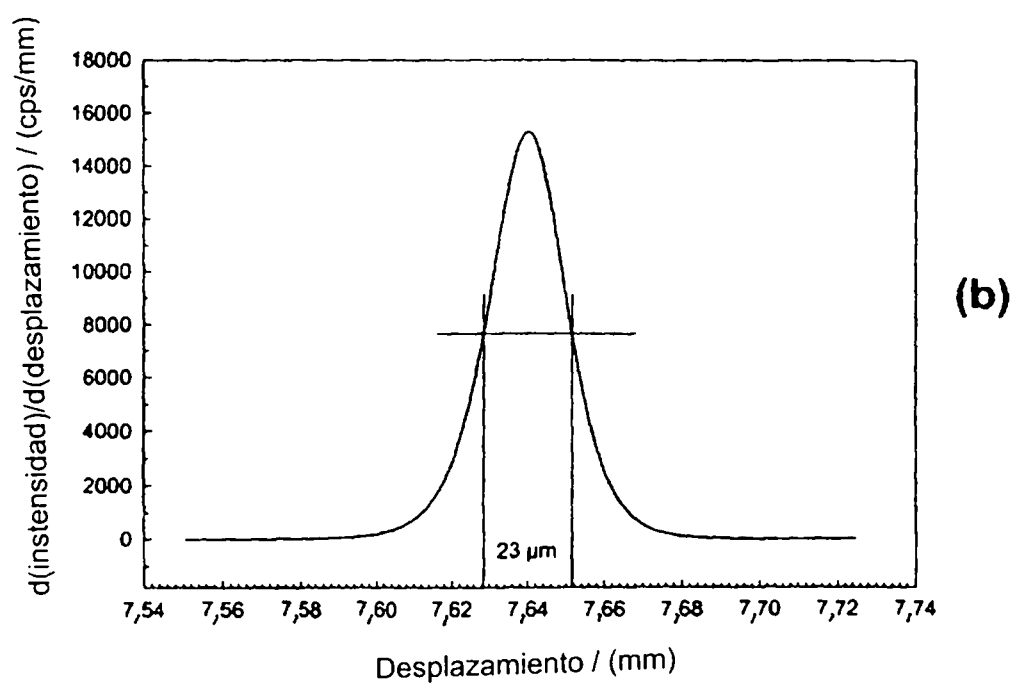
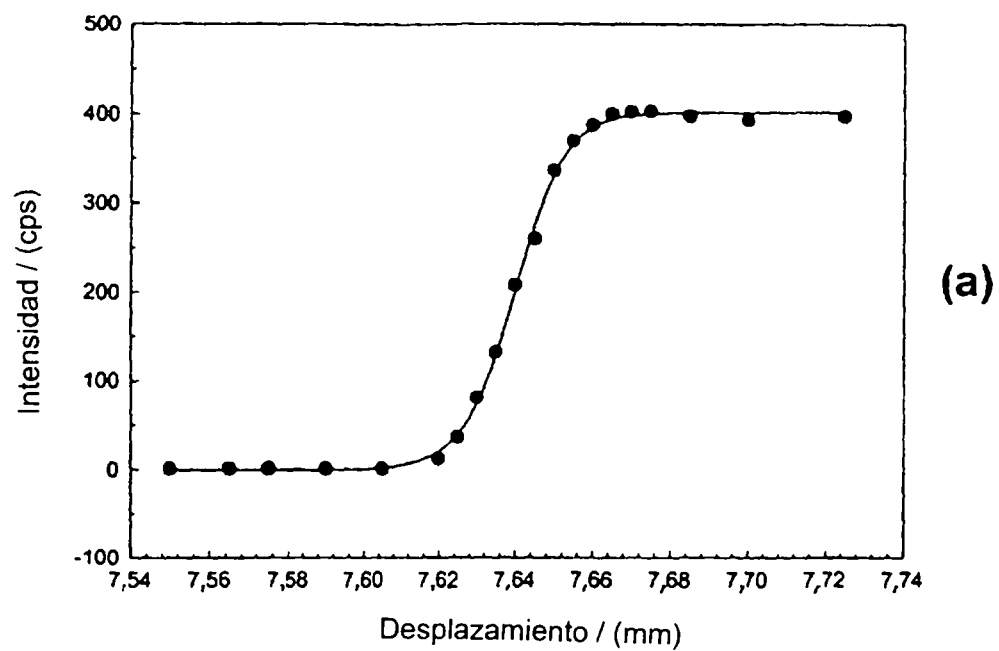


Fig. 22

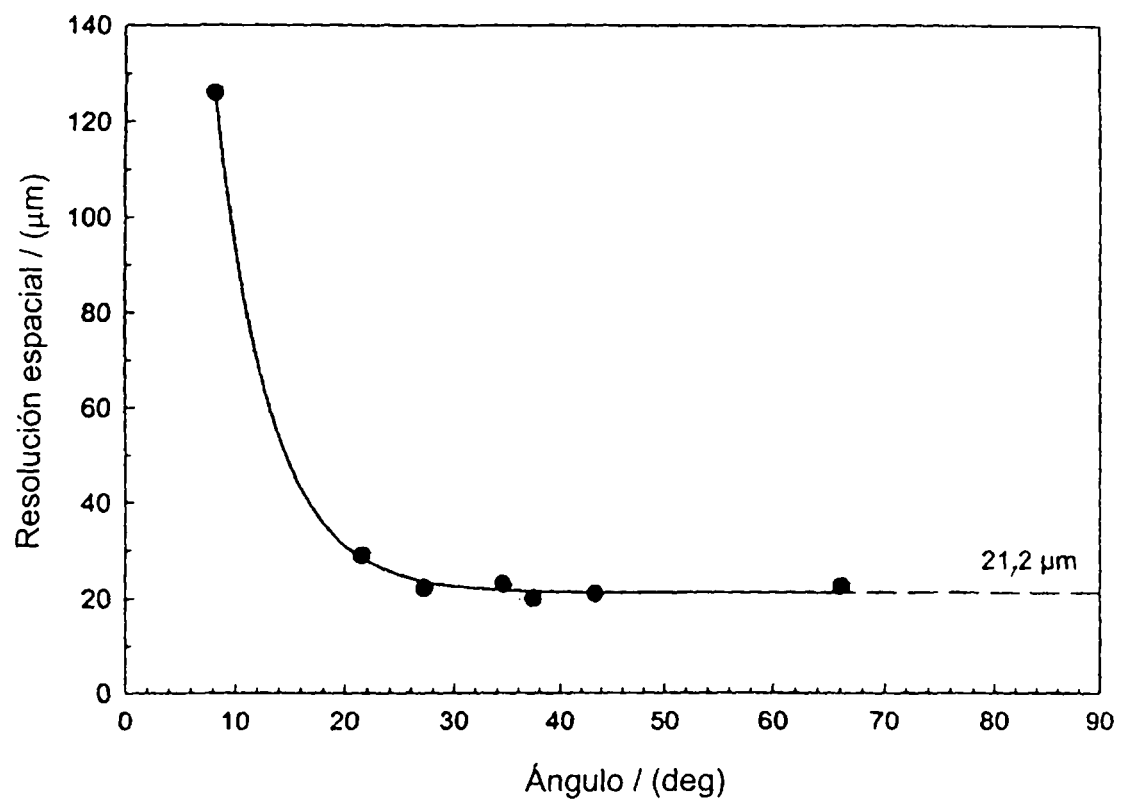


Fig. 23

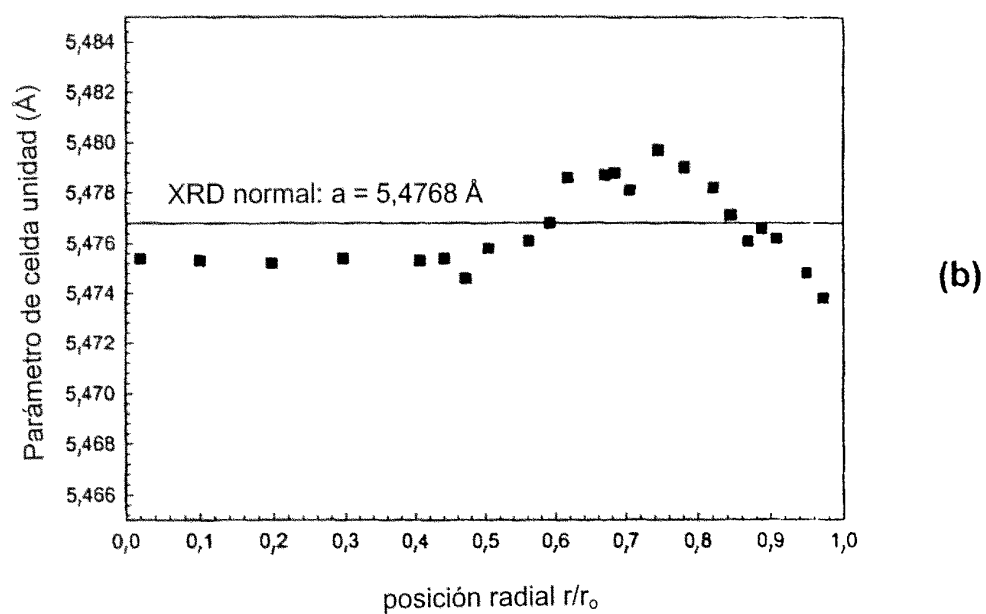
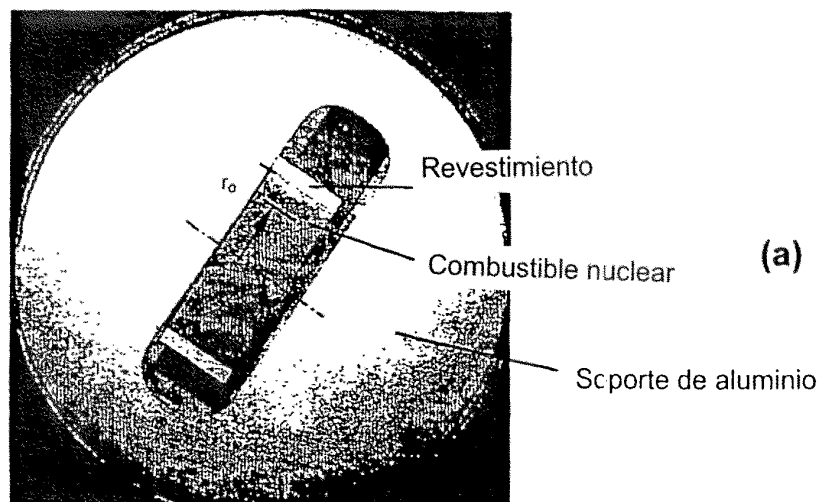


Fig. 24