

1 2 9 0



UNIVERSIDADE D
COIMBRA

Alexandre Manuel da Fonseca Trindade

**CARACTERIZAÇÃO DE MISTURAS DE GASES
NOBRES COM ADITIVOS MOLECULARES
PARA DETEÇÃO DA RADIAÇÃO**

**Tese no âmbito do Doutoramento em Engenharia Física, Ramo de
Instrumentação, orientada pela Professora Doutora Maria
Filomena de Osório Pinto dos Santos e pelo Professor Doutor Rui
Miguel Curado da Silva e apresentada ao Departamento de Física
da Faculdade de Ciências e Tecnologia da
Universidade de Coimbra.**

Dezembro de 2022



UNIVERSIDADE D
COIMBRA

Alexandre Manuel da Fonseca Trindade

**CARACTERIZAÇÃO DE MISTURAS DE GASES
NOBRES COM ADITIVOS MOLECULARES
PARA DETEÇÃO DA RADIAÇÃO**

**Tese no âmbito do Doutoramento em Engenharia Física, Ramo de
Instrumentação, orientada pela Professora Doutora Maria
Filomena de Osório Pinto dos Santos e pelo Professor Doutor Rui
Miguel Curado da Silva e apresentada ao Departamento de Física
da Faculdade de Ciências e Tecnologia da
Universidade de Coimbra.**

Dezembro de 2022

Esta cópia da tese é fornecida na condição de que quem a consulta reconhece que os direitos de autor são pertença do autor da tese e da Universidade de Coimbra e que nenhuma citação ou informação obtida a partir dela pode ser publicada sem a referência apropriada.

A pesquisa realizada nesta tese teve o apoio financeiro da seguinte instituição:

- Bolsa de Doutoramento com a referência SFRH/BD/116825/2016 concedida pela Fundação para a Ciência e Tecnologia.

This copy of the thesis has been supplied on condition that anyone who consults it is understood to recognize that its copyright rests with its author and with the University of Coimbra and that no quotation from the thesis and no information derived from it may be published without proper reference.

The research reported in this thesis was performed with financial support from the following institution:

- PhD grant number SFRH/BD/116825/2016 from Fundação para a Ciência e Tecnologia.



LABORATÓRIO DE INSTRUMENTAÇÃO
E FÍSICA EXPERIMENTAL DE PARTÍCULAS



UNIVERSIDADE DE
COIMBRA



A Deus, Pai

Ao Meu Saudoso Pai

À Minha Esposa, Joana

Aos Meus Filhos
Miriam e Gonçalo

Ana

Gabriel

Miguel

Rafael

Isabel

Joana

Daniela

José

Tiago

Ao Meu Netinho, Benjamim

À Minha Mãe
À Minha Madrinha

Agradecimentos

Um agradecimento muito especial à orientadora desta dissertação, a Professora Doutora Maria Filomena de Osório Pinto dos Santos. Tudo o que escrever vai ser pouco e, de certa forma, injusto pelo que não escrever. Agradeço pela confiança em me propor com este plano de trabalhos com vista ao doutoramento; pelas suas capacidades extraordinárias de orientação; pela transversalidade do seu conhecimento; pelo incentivo nos momentos mais desafiantes; pela força nos momentos de desânimo; pela incansável paciência nas minhas dificuldades; pela imensa compreensão e amizade. Resumindo: “*A pedra que muitos rejeitaram, para mim, tornou-se pedra angular!*”.

Também quero muito agradecer:

Ao co-orientador Doutor Rui Miguel Curado da Silva, pelo acreditar que poderia levar a cabo estes trabalhos e aceitar a co-orientação nesta dissertação. Sem o seu contributo na planificação e submissão do plano de trabalhos é quase seguro que não teria o imprescindível financiamento da FCT para a Bolsa de Doutoramento. Também agradeço a sua confiança no meu trabalho ao longo desta dissertação e na disponibilidade na resolução de problemas.

Ao meu colega Doutor José Escada pelos contributos muito importantes e decisivos a vários níveis: suporte, sempre que era necessário recorrer à simulação pelo método de Monte Carlo; partilha de conhecimento científico em variadíssimos momentos; na incansável disponibilidade; na preciosa ajuda durante a discussão e análise dos resultados; por todos estes anos de amizade. Também com o meu colega Escada poderei estar a *pecar* por omissão.

À minha colega Professora Doutora Filipa Borges, pela constante disponibilidade em me ajudar a superar dificuldades e não me deixar desanimar, pela imensa partilha de conhecimento, pelo enorme contributo na discussão e análise de resultados e, também, por todos estes anos de amizade.

Ao meu colega Mestre Afonso Marques pela sua constante disponibilidade e no desbloquear de diversas situações que foram surgindo ao longo dos trabalhos e pelo *refrescar* de ambiente que ele, juntamente com a minha colega Mestre Joana Mingacho, trouxeram ao laboratório. Agradeço a ambos.

Ao Professor Doutor Jorge Manuel Maia Pereira pela colaboração e disponibilidade, sobretudo no desenvolvimento do sistema para estudar a difusão de eletrões e na discussão e análise dos resultados.

Ao Professor Doutor Carlos Alberto Nabais Conde por ter sido com ele que iniciei este meu percurso na investigação e pela sua ajuda, sobretudo no início destes trabalhos, quando a sua saúde ainda permitia.

Aos diversos trabalhadores das oficinas de Mecânica e de Eletrónica do L.I.P., que ajudaram na conceção dos diversos sistemas experimentais.

Ao LibPhys, sobretudo, nas pessoas do Doutor Fernando Amaro e do Mestre Pedro Silva pela colaboração na realização dos depósitos de filmes finos, necessários nestes trabalhos.

Aos meus familiares, pelo suporte humano, carinho e apoio, mas de uma forma muito especial aos meus filhos, pilares na minha estabilidade emocional e que tanto foram privados da minha presença, e ainda, à Joana, minha esposa, por tudo o que foi atrás referido, pelo amor, incentivo, compreensão pela minha ausência e tanta disponibilidade em me ‘substituir’ para que concluísse esta dissertação.

À Mariana, Miriam, Ana e ao Gabriel pela correção final da escrita.

À minha Comunidade, que rezou e intercedeu por mim em tantos momentos.

A todos, o meu sentido OBRIGADO!

Resumo

Desde a sua origem, os detetores gasosos de radiação têm sido alvo de investigação e objeto de inúmeros melhoramentos, revelando-se ferramentas muito úteis nas mais diversas áreas, desde a medicina, investigação científica, proteção territorial, e mais recentemente, deteção de matéria escura, física de partículas e astrofísica. As suas aplicações têm-se diversificado e com elas surgem novos desafios, decorrentes das novas funcionalidades pretendidas. Estas novas aplicações, embora diferentes nos objetivos e na forma e até no modo de operação, têm alguns requisitos em comum. Tanto em física de partículas (altas energias por isso detetores de grandes dimensões e altas pressões), como em astrofísica (raios X de baixa energia, meios de baixa densidade, detetores de pequenas dimensões), uma das exigências é a necessidade de conhecimento da posição da interação – num caso, de modo a possibilitar a rejeição de fundo, no outro caso, para saber a direção de emissão do fotoelétrão.

Os gases raros, meios de deteção mais comuns em detetores gasosos, têm características que impedem ou dificultam esta exigência: elevados coeficientes de difusão e baixa velocidade de deriva de eletrões. Uma solução proposta para resolver estes problemas é a adição de gases moleculares. Os gases moleculares são conhecidos por arrefecerem os eletrões já que induzem numerosas pequenas perdas de energia nas colisões inelásticas de limiares baixos, enquanto os gases nobres, atômicos, têm limiares inelásticos muito elevados, levando a (grandes) perdas de energia menos frequentes. No entanto, embora alguns aditivos moleculares sejam bem conhecidos e usados nas aplicações mais comuns, e as consequências da sua utilização estejam bem estabelecidas, nestas novas aplicações as novas funcionalidades exigidas requerem propriedades em que a ação dos gases moleculares não é conhecida. Assim, quer seja com novos aditivos quer nos aditivos tradicionais em propriedades menos utilizadas, a viabilidade tem de ser

estabelecida globalmente e não apenas relativamente às novas propriedades requeridas.

Para ajudar a dar resposta a esta falta de informação foram projetados e instalados alguns dispositivos experimentais com vista à “*Caracterização de Misturas de Gases Nobres com Aditivos Moleculares para Detecção da Radiação*”.

Este trabalho pode ser dividido em dois grandes grupos:

- Desenvolvimento (projeto, construção e testes) de diversos dispositivos experimentais, nomeadamente, um Contador Proporcional (CP), um Contador Gasoso de Cintilação Proporcional (CGCP), uma câmara para estudos de absorção/reemissão de luz ultravioleta de vácuo (VUV) e uma câmara para estudos de coeficientes de deriva de eletrões;

- Medidas experimentais e análises de resultados utilizando individualmente xénon, trimetilamina (TMA) e gás metano (CH_4) e em misturas com diferentes concentrações de TMA em Xe, para estudar: ganho de carga, ganho de luz, cintilação primária, mobilidade de iões positivos, transparência da mistura à luz VUV e difusão de eletrões no gás e ainda, no caso de TMA, estudo das energias de aparecimento dos diversos iões por impacto eletrónico a energias entre 7.5 e 70 eV. Por último, medidas experimentais e análise de resultados da difusão de eletrões em gases.

Nesta dissertação descrevem-se as especificações dos dispositivos experimentais desenvolvidos e os resultados obtidos. Estes resultados são um exemplo das possibilidades deste sistema experimental.

Abstract

Ever since their origin, gaseous radiation detectors have been object of investigation and numerous improvements, proving themselves to be quite useful tools in various fields, such as medicine, scientific investigation, territorial protection, and, more recently, dark matter detection, particle physics, and astrophysics. The areas in which gaseous radiation detectors are useful have become more diverse; thus, newly required functions pose new challenges.

These new applications have some common requirements, albeit different in terms of their goals and even their environment and operating conditions. Both in particle physics (high energies require larger detectors and high pressure) and astrophysics (low-energy X-rays, low-density gaseous media, smaller dimension detectors), one of the fundamental requirements is the knowledge of the position of the interaction – in order to allow background rejection in one case, in the other case to find the direction in which the photoelectron is emitted.

Noble gases, the most common detection media used in gaseous detectors, have characteristics that prevent or hinder this requirement: high electron diffusion coefficients and low electron drift velocities. A proposed solution to solve these problems is the addition of molecular gases. Molecular gases are known for causing the electrons to cool down, given that they induce numerous small losses of energy on inelastic collisions with low thresholds, while noble gases have a very high inelastic threshold, which lead to less frequent but high amplitude energy losses. However, despite some molecular additives being well known and used on the most common applications – and the consequences of their use well established – the newly required features demand specific characteristics that must be sought for with the usual or new molecular gases. This being said, be it with new or with traditional additives in less frequently used properties, viability has to be established globally and not only in the newly demanded features.

To find answers to these questions, many experimental devices were projected and installed with the intent of “*Characterizing Mixtures of Noble Gases with Molecular Additives for Radiation Detection*”.

This project can be divided in two large groups:

- Development (project, building, and testing) of various experimental devices, namely a Proportional Counter (PC), a Gas Proportional Scintillation Counter (GPSC), a device to study the absorption/reemission of ultraviolet light (VUV), and an original device to measure the electron drift coefficients;

- Experimental measures and result analysis, with xenon, trimethylamine (TMA), either pure or in mixtures with different concentrations of TMA in Xe and gas methane (CH_4), to assess: charge gain, light gain, primary scintillation, mobility of positive ions, transparency to UV light, and diffusion parameters of electrons in gases; additionally, in the case of TMA, analysis of the appearance energy and ionization energy of ions by electronic impact at electron energies between 7.5 and 70 eV. Finally, experimental measures and result analysis of the diffusion of electrons in gases.

In this dissertation describes the specifications of the experimental devices developed, and the results obtained. These results are an example of the possibilities offered by the whole experimental system.

Acrónimos e Abreviaturas

ASIC	<i>Application Specific Integrated Circuit</i>
BP	<i>Bandpass</i>
c.d.o.	Comprimento de Onda
CERN	<i>Organisation Européenne pour la Recherche Nucléaire</i>
CGCP	Contador Gasoso de Cintilação Proporcional
CMOS	<i>Complementary Metal-Oxide-Semiconductor</i>
CP	Contador Proporcional
d.d.p.	Diferença de Potencial
DME	Dimetiléter
EL	Eletroluminescência
FWHM	Largura a Meia Altura
GEM	<i>Gas Electron Multiplier</i>
GPD	<i>Gas Pixel Detector</i>
HV	Alta Tensão
IXPE	Imaging X-ray Polarimetry Explorer
LV	Lâmina de Vidro
L.I.P.	Laboratório de Instrumentação e Física Experimental de Partículas
MC	Monte Carlo
MCA	Analisador Multicanal
NIST	<i>National Institute of Standards and Technology</i>

NEXT	<i>Neutrino Experiment with a Xenon TPC</i>
PMT	Fotomultiplicador
R X	Raios X
RGA	Analisador de Gás Residual
TMA	Trimetilamina
TPC	<i>Time Projection Chamber</i>
<i>u.a.</i>	Unidades Arbitrárias
UV	Ultravioleta
VLSI	<i>Very Large-Scale Integration</i>
VUV	Ultra Violeta de Vazio
XIPE	<i>X-ray Imaging Polarimetry Explorer</i>

Índice

Introdução	1
Objetivos.....	5
Estrutura da Tese (Thesis Overview)	6
Contribuição do Autor	7
1 Detetores Gasosos de Radiação	11
1.1 Detetores com Multiplicação de Carga.....	15
1.1.1 Contador Proporcional	16
1.1.2 Multiplicação de Carga com Microestruturas	18
1.1.2.1 Micro-Strip Gas Chambers (MSGC)	18
1.1.2.2 Micro-Gap Chamber (MGC)	19
1.1.2.3 Micro-Dot Chamber (microDot).....	19
1.1.2.4 Micro-Mesh Gaseous Structure (MICROMEGAS)	20
1.1.2.5 Gas Electron Multiplier (GEM)	20
1.1.2.6 Micro-Hole and Strip Plate (MHSP)	24
1.2 Detetores com Produção de Eletroluminescência	24
1.3 Novos Desafios dos Detetores Gasosos	28
1.4 Misturas Gasosas como Meio de Detecção.....	29
1.5 Importância do Presente Trabalho.....	31
2 Sistema Experimental e Estudos das Propriedades Físicas de TMA	33
2.1 Sistema Experimental	33
2.1.1 Sistema de Vácuo e de Enchimento de Gases	36
2.1.2 Sistemas Experimentais	38
2.1.3 Espetrómetro de Massa	39
2.2 Propriedades Físicas de Trimetilamina por Espetrometria de Massa	40
2.2.1 Fator de Correção de TMA no RGA.....	41

2.2.1.1	Metodologia.....	41
2.2.1.2	Resultados Experimentais	43
2.2.1.3	Análise de Resultados e Conclusões.....	44
2.2.2	Limiares de Ionização de TMA por Impacto de Eletrões	45
2.2.2.1	Metodologia.....	45
2.2.2.2	Energias de Aparecimento dos Iões de CH ₄	48
2.2.2.3	Energias de Aparecimento dos Iões de TMA.....	53
2.2.3	Abundância Relativa de Diferentes Iões de TMA	58
2.2.3.1	Metodologia.....	59
2.2.3.2	Abundância Relativa dos Iões de CH ₄	59
2.2.3.3	Abundância Relativa dos Iões de TMA	60
2.2.4	Conclusões	62
3	Propriedades das Misturas Xe – TMA	65
3.1	Porquê? Espectativas.....	65
3.2	Mobilidade Iónica em Xe – TMA.....	66
3.2.1	Método e Sistema Experimental	67
3.2.2	Mobilidade em Xe Puro.....	71
3.2.3	Mobilidade em TMA Puro.....	71
3.2.4	Mobilidade em Misturas Xe – TMA	74
3.2.5	Conclusões	79
3.3	Absorção/Reemissão de luz VUV pela TMA	81
3.3.1	Método e Sistema Experimental	82
3.3.2	Características da Lâmpada	86
3.3.2.1	Espetro de Emissão da Lâmpada	87
3.3.2.2	Variação da Intensidade de Emissão da Lâmpada em Função do Tempo.....	88
3.3.3	Coefficiente de Absorção de Luz VUV pela TMA.....	89
3.3.4	Coefficiente de Reemissão de Luz UV pela TMA	91
3.3.5	Análise dos Resultados	94
3.3.6	Conclusões	96
3.4	Produção de Carga.....	97
3.4.1	Sistema e Método Experimental	98
3.4.2	Resultados em Xe puro e Misturas Xe – TMA	100

3.4.3	Conclusões	102
3.5	Produção de Luz	102
3.5.1	Sistema Experimental	105
3.5.2	Cintilação Primária	107
3.5.2.1	Método Experimental	107
3.5.2.2	Cintilação Primária em Xénon	113
3.5.2.3	Estudo da Cintilação Primária em Misturas Xe – TMA	118
3.5.2.4	Conclusões do Estudo de Cintilação Primária	120
3.5.3	Cintilação Secundária	121
3.5.3.1	Método Experimental	121
3.5.3.2	Resultados Experimentais	122
3.5.4	Conclusões	129
4	Coeficientes de Difusão	131
4.1	Sistema Experimental	132
4.2	Método e Tratamento de Dados	141
4.3	Testes Preliminares	149
4.4	Análise dos Resultados de Coeficientes de Difusão Transversal de Eletrões em Xénon	153
4.5	Análise dos Resultados de Coeficientes de Difusão Transversal de Eletrões em Metano	162
4.6	Conclusões	172
5	Conclusões e Trabalho Futuro	173
	Lista de Figuras	177
	Lista de Tabelas	187
	Bibliografia	189

Introdução

Desde a sua origem (década de 40 do século XX) [1], os detetores gasosos de radiação têm sido alvo de investigação e objeto de inúmeros melhoramentos [2, 3], revelando-se ferramentas muito úteis nas mais diversas áreas desde a medicina, investigação científica, proteção territorial entre outros, e mais recentemente, deteção de matéria escura, física de partículas e astrofísica [4, 5]. Dada a sua versatilidade (tanto a nível de dimensões como de forma), algumas alterações têm permitido adaptá-los às novas aplicações.

Para altas energias a escolha tradicional para meio de deteção nestes detetores tem sido gases nobres em estado líquido com amplificação eletroluminescente, o modo de amplificação mais favorável no que respeita à resolução em energia. Mais recentemente, no entanto, tem sido preferida a alta pressão [2, 6, 7, 8], também com eletroluminescência (EL), já que permite obter resolução em energia próxima da intrínseca, associando-a a boa eficiência de deteção, facilidade de operação (temperatura ambiente e purificação mais simples do que no líquido), ausência de carga espacial (inerente ao modo alternativo de amplificação) e custo relativamente baixo. Tradicionalmente alguns problemas dos meios de deteção têm sido resolvidos ou minimizados com a adição de gases moleculares (*e.g.* como *quencher*s). Recentemente a adição de outros gases em pequenas quantidades, tem surgido como possível solução para algumas características inerentes aos gases raros, cuja utilização é necessária neste modo de amplificação e que podem comprometer o seu uso (difusão de eletrões, mobilidade de iões e eletrões), seja no

modo cintilação, ou mesmo no modo de multiplicação de carga (que recorrem, normalmente, a microestruturas).

Também em alguns campos da astrofísica, os detetores gasosos foram recentemente considerados como os dispositivos mais indicados para observar propriedades importantes da radiação emitida por corpos celestes. Concretamente uma dessas propriedades, a polarimetria, é essencial para o entendimento da geometria e dos processos físicos das fontes de radiação, já que permite aumentar o número de parâmetros (direção e grau de polarização) que caracterizam essas fontes. Apesar da reconhecida importância deste parâmetro – um enorme manancial de informação sobre características (campos magnéticos, processos físicos presentes) de uma fonte de radiação (X ou γ) pode advir da informação sobre o seu estado de polarização – não tem sido devidamente explorado, nomeadamente nas missões enviadas para o espaço, especialmente na gama de raios X até ~ 10 keV, em que a identificação das características produzidas pela polarização requer meios de deteção com propriedades específicas, dadas as características destas energias. Nesta gama de energias de raios X , a interação fotoelétrica, o processo de interação dominante, é extremamente eficaz na identificação da polarização da radiação e determinação do seu grau. Neste processo, a polarização de uma fonte de radiação manifesta-se pela anisotropia do perfil da nuvem eletrónica produzida pelos raios X incidentes, ou seja, o perfil da nuvem eletrónica permite identificar o estado de polarização da radiação incidente. Para que a anisotropia se manifeste, o detetor deverá ter propriedades que a façam realçar, o que normalmente requer a conjugação de propriedades do meio de deteção com sensibilidade do sensor de posição. Durante muito tempo, nos dispositivos disponíveis para esta gama de energias (sobretudo detetores de estado sólido), o comprimento de traço do fotoeletrão não era compatível com as propriedades dos sensores de posição disponíveis. Por volta do ano 2000 um novo detetor GPD (*Gas Pixel Detector*) [5, 9], veio possibilitar esta investigação e abrir as portas à possibilidade de missões espaciais com esse objetivo. Como referido anteriormente, o sucesso do detetor na medida da polarização depende da conjugação das propriedades do meio de deteção e do detetor de posição: tem de haver compatibilidade entre ambos. Interessa por isso que o meio de deteção faculte um caminho de fotoeletrão compatível com os dispositivos medidores de

posição. Os avanços tecnológicos no desenvolvimento de microestruturas vieram recentemente permitir essa compatibilização (tecnologia CMOS de $0.35\ \mu\text{m}$ na 2^a geração e posteriormente numa 3^a geração de $0.18\ \mu\text{m}$ que levou ao desenvolvimento do ASIC que integra o VLSI), conseguindo uma precisão compatível com o traço do fotoeletrão em meios gasosos criteriosamente selecionados. O meio de detecção considerado mais adequado é um gás leve (tipicamente um gás raro, He ou Ne) a pressão total semelhante à atmosférica, com um aditivo que tem sido isobutano ou dimetileter (DME). Nestas misturas o traço do fotoeletrão é da ordem das centenas de micrómetros, compatível, portanto, com a sensibilidade dos novos detetores de posição. O aditivo tem como missão diminuir os elevados coeficientes de difusão de elétrons, típicos dos gases raros, que iriam encobrir o perfil identificativo da existência de polarização na nuvem, tanto mais que o grau de polarização é, na maior parte das vezes, muito baixo (da ordem de 1%). Embora resultem e consigam resultados mensuráveis, estas misturas não estão suficientemente exploradas: não há um estudo exaustivo do comportamento de diferentes composições de cada mistura ou proposta de outras alternativas.

É neste contexto que surge esta dissertação: explorar as propriedades de misturas gasosas baseadas em gás raro.

Ao nosso grupo de investigação foi solicitado por duas colaborações internacionais – *Neutrino Experiment with a Xenon TPC* (NEXT) e *Imaging X-ray Polarimetry Explorer* (IXPE) – a estudar misturas gasosas baseadas em gás raro (xénon no primeiro caso e Néon ou Hélio no segundo) com o intuito de minimizar desvantagens dos gases raros como meio de detecção em detetores gasosos, que surgem em cada uma das aplicações. As duas experiências têm necessidades semelhantes (baixa difusão e elevada velocidade de deriva de elétrons) mas em ambientes e condições de pressão e energia completamente diferentes. Há, portanto, que fazer estudos com o mesmo objetivo, mas separadamente, de acordo com as condições requeridas em cada caso.

A experiência NEXT, destinada a estudar a possibilidade de o neutrino ser uma partícula de Majorana, optou pela EL (característica dos gases raros) em detrimento da multiplicação de carga como método de amplificação, recorrendo a uma *Time Projection Chamber* (TPC) ótica com xénon a alta pressão. Xénon

tem simultaneamente o papel de meio de detecção e fonte de radiação por enriquecimento no isótopo 136 , emissor beta duplo. No entanto, a baixa taxa desta emissão requer eficiente rejeição de fundo. A eficiência de rejeição de fundo pode ser comprometida pelos elevados coeficientes de difusão dos gases nobres em geral, e concretamente do xénon. Uma hipótese aventada [7] para a redução destes é a adição de gases moleculares – nomeadamente trimetilamina (TMA) – que poderia ainda servir como conversor de comprimento de onda (c.d.o.) para a radiação ultravioleta de vázuo (VUV) emitida pelos gases raros, de difícil transmissão e detecção (perdas elevadas) [10]. A condição para a escolha do aditivo, para além de cumprir o objetivo já referido, é que não comprometa significativamente a cintilação produzida – primária e secundária (ambas importantes na experiência). Interessa ainda conhecer os iões formados e respetivas mobilidades para avaliar a possível influência na formação do sinal. O estudo de misturas gasosas é considerado de alta relevância pela experiência NEXT e a ideia é encontrar uma situação de compromisso que possa ser aceitável e que consiste em admitir alguma perda de resolução em energia (através, nomeadamente, da perda de eficiência de EL), desde que esta se traduza na diminuição significativa dos coeficientes de difusão e aumento da velocidade de deriva dos eletrões. Há ainda que garantir que a cintilação primária se mantém, em quantidades detetáveis. Foi este o compromisso a que nos propusemos: procurar e estudar algumas misturas gasosas, baseadas em gases nobres com aditivos moleculares.

No âmbito da astrofísica (colaboração IXPE), tratando-se de estudos com raios X de baixa energia, as misturas de gases nobres leves, de baixo Z , (néon e/ou hélio), com aditivos moleculares, são apontados como meios de detecção ideais. Pretende-se, aqui, também uma diminuição dos coeficientes de difusão dos eletrões para conseguir avaliar o estado de polarização da radiação e medir o seu grau. Estas misturas, que incluem frequentemente dimetileter (DME) ou isopropano ou ainda outros compostos orgânicos, não estão suficientemente estudados. Pretende-se um traço de fotoeletrão grande (meio de detecção de baixa densidade) e baixa difusão de eletrões (para não mascarar a direção de emissão), mas há muitos outros aspetos destas misturas pouco estudados. Interessa por isso estudá-las de um modo mais profundo e sistemático e possivelmente explorar alternativas interessantes que possam ter outras vantagens. O que se pretende saber, em

primeira análise, são os coeficientes de difusão de elétrons, concretamente o de difusão transversal.

Não existindo no grupo dispositivos experimentais para a realização deste trabalho, foi necessário projetar e desenhar um dispositivo experimental com as características necessárias para o trabalho.

Objetivos

O plano de trabalho tinha como objetivo a caracterização de misturas de gases nobres com aditivos moleculares como meio de detecção da radiação em aplicações de física de altas energias/partículas e astrofísica. Para ser possível este trabalho foi necessário projetar, desenhar, testar e construir dispositivos apropriados para cada uma das vertentes do estudo pretendido. Assim, numa primeira parte no âmbito da física de altas energias/eventos raros foram desenvolvidos os sistemas experimentais capazes de estudar propriedades de gases e misturas gasosas no processo de detecção da radiação. Instalou-se uma linha de vácuo com diversos sistemas experimentais, ligada a uma linha de admissão de gases, e sistema de evacuação de modo a permitir o enchimento dos dispositivos com os gases puros e misturas gasosas a estudar. Concretamente os sistemas desenvolvidos foram: um contador proporcional, um contador gasoso de cintilação proporcional, uma câmara para o estudo da absorção/reemissão de luz VUV do gás de enchimento e um sistema experimental para estudar o coeficiente de difusão transversal e velocidade de deriva de elétrons. As condições de trabalho seriam pressão atmosférica ou superior e meios de detecção de elevado número atômico.

Posteriormente, obtiveram-se resultados experimentais com todos esses sistemas, com xénon gasoso puro e misturas de TMA em pequenas concentrações (<1%). Este estudo teve como objetivo comparar as características do gás puro com as misturas na detecção da radiação, nomeadamente no que respeita à cintilação produzida (primária e secundária), multiplicação de carga, absorção de luz VUV e eventual conversão de comprimento de onda da cintilação e ainda parâmetros de difusão dos elétrons. Utilizando outros dispositivos experimentais

já existentes, estudou-se também mobilidade reduzida dos iões positivos em algumas das misturas atrás referidas e fez-se a identificação dos iões de TMA determinando-se as respetivas energias de aparecimento por impacto eletrónico.

Ainda no âmbito do estudo de misturas gasosas como meio de deteção, mas em condições diferentes e mais focados no conhecimento dos coeficientes de difusão e velocidades de deriva dos eletrões, planeou-se e construiu-se um dispositivo novo que permitisse medir essas propriedades em diferentes meios, em função da posição, tendo como parâmetros a pressão e o campo elétrico. Este estudo foi realizado no âmbito de aplicações de astrofísica, para a gama de raios X de baixa energia, de modo a determinar misturas gasosas adequadas para a deteção do estado e grau de polarização de fontes celestes nesta gama de energia.

Estrutura da Tese (Thesis Overview)

A escrita desta tese dividiu-se em cinco capítulos.

O primeiro capítulo descreve, de modo genérico, os tipos mais importantes de detetores gasosos de radiação, que podemos considerar divididos em dois grupos: Detetores com multiplicação de carga e detetores com produção de eletroluminescência. Descrevem-se os processos físicos envolvidos na deteção da radiação, as potencialidades de cada modo de operação e os desenvolvimentos de que têm sido alvo.

No segundo capítulo descreve-se o sistema de vácuo e a linha de vácuo/admissão de gases, bem como os vários dispositivos experimentais desenvolvidos e instalados. Também neste capítulo é descrito o estudo realizado com TMA, com um espectrómetro de massa analisador de gás residual (RGA). Atendendo a que o gás TMA é um gás pouco utilizado, cujas características não constam da biblioteca do espectrómetro, foi necessário fazer a determinação do fator de correção de gases para TMA, um parâmetro necessário para o funcionamento correto do RGA. Seguidamente, descrevem-se o estudo das energias de aparecimento dos iões de TMA por impacto de eletrões com energias

compreendidas entre 7.5 e 70 eV, bem como as abundâncias relativas de cada espécie iônica nesta mesma gama de energias.

No terceiro capítulo é descrito o projeto, construção e instalação dos diversos dispositivos experimentais, necessários no decorrer dos trabalhos, nomeadamente uma câmara para estudar a absorção/reemissão de luz VUV pela mistura gasosa, de um detetor contador proporcional e de um detetor contador gasoso de cintilação proporcional. São ainda apresentados os estudos realizados em Xe, com TMA como aditivo, em diversas concentrações, inferiores a 1%. Foi estudada a mobilidade iônica, o eventual processo de absorção/reemissão de luz VUV de EL de Xe, por TMA, produção de carga, de cintilação primária e secundária, em diversas misturas.

No quarto capítulo descreve-se o projeto, construção e instalação de um dispositivo destinado a medir os coeficientes de difusão transversal dos eletrões, sob efeito de campos elétricos, em gases (puros ou misturas). Neste mesmo capítulo, apresentam-se ainda os resultados dos coeficientes de difusão transversal para xénon e CH₄.

No quinto e último capítulo analisa-se o trabalho realizado e é dada uma ideia de trabalho futuro.

Contribuição do Autor

Publicações em Revistas Científicas

- A.M.F. Trindade, P.M.C.C. Encarnação, J. Escada, A.F.V. Cortez, P.N.B. Neves, C.A.N. Conde, F.I.G.M. Borges, F.P. Santos, “Experimental studies on ion mobility in xenon-trimethylamine mixtures”, J. Instrum. 12 (2017) P07007. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/07/P07007>

- A.M.F. Trindade, J. Escada, A.F.V. Cortez, F.I.G.M. Borges, F.P. Santos, and NEXT collaboration, “Study of the loss of xenon scintillation in xenon-trimethylamine mixtures”, Nucl. Inst. Meth. A, 905 (2018) pg. 22-28.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.07.020>

- A.M.F. Trindade, J. Escada, M. Rajado Silva, F.I.G.M. Borges, F.P. Santos, “Determination of Ionizing Threshold of Trimethylamine Ions with a High Resolution RGA Mass Spectrometer”, J. Instrum. 17 (2022) P02031.
<https://doi.org/10.1088/1748-0221/17/02/P02031>

- A.M.F. Trindade, J. Escada, J.M. Maia, R.M. Curado da Silva, F.I.G.M. Borges and F.P. Santos, “A New Experimental System for Electron Transverse Diffusion Measurements”, Nucl. Inst. Meth. A 1045 (2023) 167603.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.167603>

- A.M.F. Trindade, J. Escada, M. Rajado Silva, F.I.G.M. Borges, F.P. Santos, “Absolute Primary Scintillation Yield in Gaseous Xenon and in Xenon-Trimethylamine Mixtures”, Nucl. Inst. Meth. A, 1049 (2023) 168038.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2023.168038>

- A.M.F. Trindade, J. Escada, J.M. Maia, R.M. Curado da Silva, A.P. Marques and F.P. Santos, “Development of a Device to Measure the Electron Transverse Diffusion in Gas Media”, IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 70, Issue 3 (2023).
<https://doi.org/10.1109/TNS.2023.3244361>.

- A.M.F. Trindade, F.I.G.M. Borges, F.P. Santos, “Experimental Assessment of Xe – TMA mixtures in CP and CGCP”, a submeter.

Comunicações Orais

- A.M.F. Trindade, R.M. Curado da Silva, F.P. Santos, “Caracterização de Misturas de Gases Nobres com Aditivos Moleculares para Detecção da Radiação”, Jornadas LIP 2020, February 14-16, 2020, Universidade do Minho, Braga, Portugal.
- A.M.F. Trindade, J. Escada, J.M. Maia, R.M. Curado da Silva and F.P. Santos, “A New Experimental System for Electron Transverse Diffusion Measurements”, Comunicação oral convidada no âmbito da Colaboração RD51 do CERN. Junho de 2022, CERN, Suíça.

Apresentação de Posters

- A.M.F. Trindade, R.M. Curado da Silva and F.P. Santos, “Caracterização de Misturas de Gases Nobres com Aditivos Moleculares para Detecção da Radiação”, Encontro Ciência 2019, 8-10 de julho 2019, Centro de Congressos de Lisboa, Lisboa Portugal.
- A.M.F. Trindade, R.M. Curado da Silva and F.P. Santos, “Characterization of Mixtures of Noble Gases with Molecular Additives for Radiation Detection”, 2nd International Workshop on Soft X-ray single-order Diffraction Grating Technology and Application, October 16-20, 2019, Universidade de Coimbra, Coimbra, Portugal. <http://dx.doi.org/10.13140/RG.2.2.23949.82405>
- A.M.F. Trindade, J. Escada, J.M. Maia, R.M. Curado da Silva and F.P. Santos, “A New Experimental System for Electron Transverse Diffusion Measurements”, 15th Pisa Meeting on Advanced Detectors, May 22-28, 2022, La Biodola, Isola d’Elba, Italy. <http://dx.doi.org/10.13140/RG.2.2.15980.64643>

Outras Publicações

- A.M.F. Trindade, J. Escada, M. Rajado Silva, F.I.G.M. Borges, F.P. Santos, “Determination of Ionizing Threshold of Trimethylamine Ions with a High Resolution RGA Mass Spectrometer”, publicado na revista da empresa Hiden Analytical, em 2 de Fevereiro de 2023.
<https://www.hidenanalytical.com/research/determination-of-ionizing-threshold-of-trimethylamine-ions/>

1 Detetores Gasosos de Radiação

Atualmente já existem diversos métodos de detecção radiação. Podemos encontrar detetores cujo meio de detecção está no estado gasoso, líquido ou sólido. Nesta dissertação, como iremos trabalhar em meio gasoso, este capítulo apresenta a informação necessária a uma melhor compreensão da física envolvida na detecção de radiação neste meio.

A interação da radiação num meio gasoso, resulta num depósito da energia (total ou parcial) da radiação no meio absorvente. Dessa interação podem ocorrer diversos fenómenos físicos, dos quais se destaca o efeito fotoelétrico, o efeito Compton, difusão de Rayleigh ou ainda a produção de pares. A probabilidade de ocorrência destes fenómenos depende do meio gasoso, do tipo e da energia da radiação incidente. No caso de radiação X de baixa energia (até 50 keV), a radiação incidente não tem energia suficiente para que ocorra a produção de pares, para a qual a energia necessária é superior a 1 MeV.

Quando a energia da radiação é inferior a 100 keV, o fenómeno mais provável é o efeito fotoelétrico. A figura seguinte, (adaptação da figura 1.4 de [11]) apresenta a secção eficaz dos processos de interação de radiação X com Xe puro como meio gasoso de detecção, para energias compreendidas entre 100 eV e 100 keV.

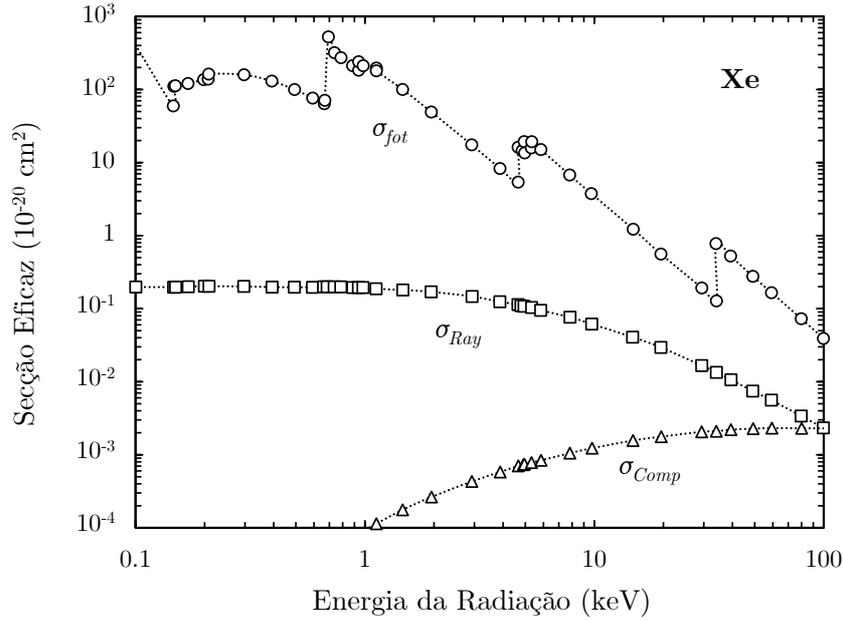


Figura 1 – Secção eficaz de fotoionização σ_{fot} (círculos), secção eficaz de dispersão Rayleigh σ_{Ray} (quadrados) e secção eficaz de efeito Compton σ_{Comp} (triângulos) para raios X em Xe [11].

No caso de ocorrer fotoionização, o fóton com energia E_f é absorvido pelo átomo do gás, sendo emitido um fotoelétrão com a energia E_e dada por:

$$E_e = E_f - E_{lig} \quad (1.1)$$

onde E_{lig} representa a energia de ligação do elétron ao átomo. Desta interação, além da emissão de um fotoelétrão, geralmente resulta também um ião num estado excitado, pois desde que o fóton tenha energia suficiente, o fotoelétrão emitido tem maior probabilidade de ser proveniente de uma das camadas mais internas do átomo.

O ião excitado decai para o estado fundamental num processo em cascata em que são emitidos quer fótons de fluorescência, quer elétrons, por efeito Auger, Coster-Kronig, e “shake-off” [12, 13]. A figura seguinte apresenta de forma esquematizada os processos envolvidos após a emissão de um fotoelétrão com proveniência em camadas eletrônicas interiores do átomo.

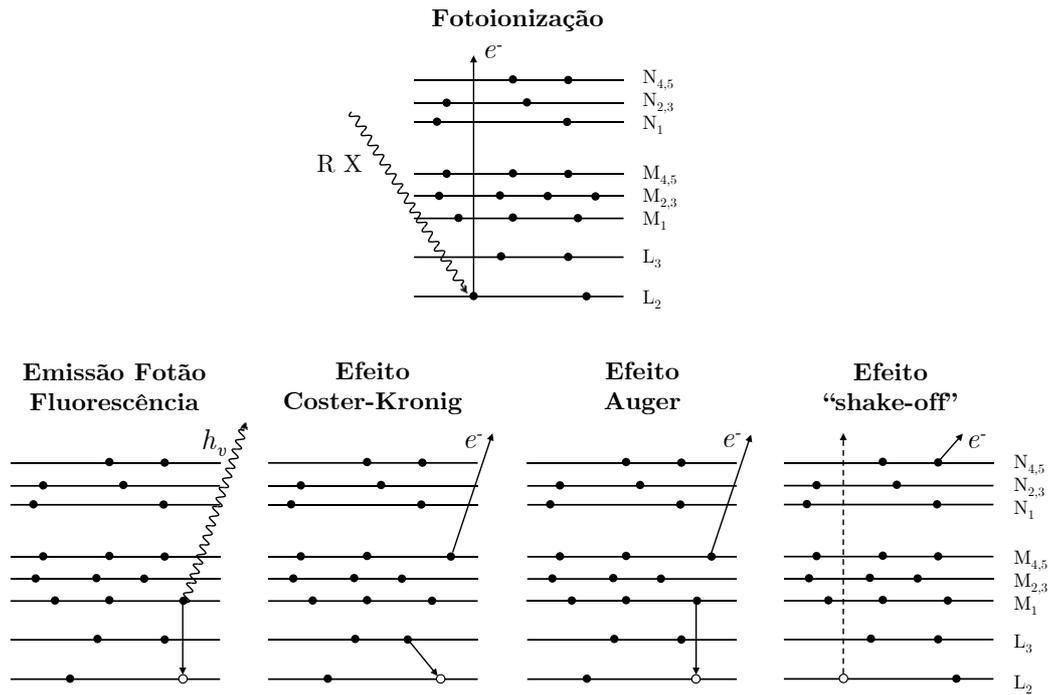


Figura 2 – Representação esquemática dos processos de fotoionização de um átomo e decaimento do íon resultante por emissão de radiação ou por emissão de elétrons (efeito Coster-Kronig, Efeito Auger e efeito “shake-off”).

Após o decaimento em cascata e íon resultante no estado fundamental, a carga do íon pode ser múltipla, após a emissão de múltiplos elétrons [14]. Estes íons, mesmo no estado fundamental, podem ainda dar origem a novas emissões de elétrons através de processos de transferência de carga com um átomo neutro [15, 16, 17].

Os elétrons originados por estes processos podem ter energia suficiente para excitar ou ionizar outros átomos do gás. A colisão de um átomo excitado com um átomo neutro pode dar origem a elétrons adicionais através de ionização associativa, também conhecida por Hornbeck-Molnar [18, 19]:



Também os fótons emitidos podem excitar e ionizar átomos do gás, através dos processos atrás apresentados. Esta sequência de processos só termina quando a energia de todos os elétrons for inferior ao do potencial de excitação do gás.

Todos estes fenômenos que podem ocorrer após absorção da radiação pelo átomo levam à emissão quer de fotoelétrons (dos quais resulta a nuvem de elétrons primária), quer de fótons designada por cintilação primária.

Há dois mecanismos distintos que levam à produção de cintilação: excitação atômica por impacto direto de eletrões e recombinação ião-eletrão [20].

Por impacto direto de eletrões em Xe puro a emissão de luz ocorre através dos mecanismos:



A emissão de luz, por recombinação de um ião de Xe com um eletrão, ocorre através de:



Em ambas as situações há emissão de um fóton com a mesma energia, proveniente do mesmo excímero (dímero excitado) de Xe_2 [21–24].

A recombinação é mais provável para grandes densidades de carga, como é o caso dos detetores de estado líquido [25], ou com campos elétricos muito baixos, no caso dos detetores gasosos. No entanto, à pressão atmosférica, mesmo quando existe uma grande densidade de carga produzida pela interação de uma partícula alfa, por exemplo, o processo de recombinação pode ser desprezado quando o campo elétrico de deriva é superior a $0.05 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ [23, 26].

Esta cintilação primária tem sido desprezada, uma vez que tem uma intensidade muito baixa e é de difícil detecção. No entanto, para pressões elevadas e partículas detetadas da ordem de alguns MeV, tem vindo a ser usada para, por exemplo, indicar o instante de interação inicial [4, 7].

A energia da radiação incidente E_f e o número médio de eletrões produzido por fóton \bar{n} , dá-nos a energia média necessária para formar um par eletrão-ião w , através da relação [1]:

$$w = \frac{E_f}{\bar{n}} \quad (1.10)$$

A variância do número médio de elétrons produzidos por cada fóton absorvido σ_n^2 é definido pelo produto $F \bar{n}$, em que F é denominado por fator de Fano que é característico do gás [1]:

$$F = \frac{\sigma_n^2}{\bar{n}} \quad (1.11).$$

Em gases raros F toma o valor entre 0.15 e 0.40 [27].

Na detecção de radiação, uma característica muito importante é a resolução em energia do detector. O valor da resolução em energia tem dependência direta de diversos fatores que não estão ligados à radiação absorvida. Se considerarmos apenas o processo de absorção da radiação, a resolução em energia do detector está limitada pelas flutuações inerentes à formação da nuvem primária em cada gás. Esse limite de resolução é comumente designado por resolução intrínseca do detector R_{int} e pode ser expressa por [1]:

$$R_{int} = 2.35 \sqrt{\frac{F}{\bar{n}}} = 2.35 \sqrt{\frac{F w}{E_f}} \quad (1.12)$$

A resolução intrínseca é o limite mínimo de resolução, pois é apenas uma parcela entre vários fatores que contribuem para a resolução do detector.

Sendo o efeito fotoelétrico o predominante a baixas energias, os detectores de radiação X utilizam esse efeito (nuvem de elétrons primários) para a detecção da radiação e, recentemente, quando necessário, a cintilação primária para determinação do instante em que ocorreu a absorção. Formada a nuvem de elétrons primária, e sendo o número de elétrons produzido nesta gama de energias manifestamente baixo para detecção direta, são desenvolvidas várias técnicas de amplificação (vários modelos de detectores) para detecção da radiação: multiplicação da carga e EL produzida ao longo da deriva, sob ação de campos elétricos adequados, desta nuvem de elétrons.

1.1 Detectores com Multiplicação de Carga

Como acima referido, a interação da radiação com o meio produz ionizações criando a nuvem de elétrons primária. Nos primeiros modelos de detector gasoso esta carga produzida era simplesmente recolhida – estes detectores são as câmaras

de ionização e apenas conseguem trabalhar com fótons gama, que produzem um sinal de amplitude superior ao ruído. Dada a natureza do sinal produzido diretamente pela interação inicial, e a exiguidade da carga produzida para energias na gama de raios X, faria sentido multiplicar a carga de modo a conseguir medir esse sinal. O modo de multiplicar a carga mais simples é a aplicação de um campo elétrico. Surgem então os detetores gasosos de ionização proporcional que utilizam a multiplicação de carga como técnica de amplificação para viabilizar o estudo da radiação X de baixa energia – o modelo mais comum é o detetor gasoso de avalanche produzido pela aplicação de um campo elétrico de geometria cilíndrica.

Através da aplicação de um campo elétrico no gás, os elétrons adquirem uma velocidade de deriva na direção do campo elétrico. Se o campo elétrico for suficientemente elevado, podem ocorrer colisões inelásticas que levarão a excitações e ionizações. As ionizações originam novos pares elétron-íon. Estes elétrons são também acelerados pelo campo elétrico, podendo também eles colidir com as moléculas do gás, criando ionizações adicionais. Este processo de multiplicação de carga em cascata (*Townsend avalanche*), cria uma nuvem de elétrons, com um número de elétrons superior ao da nuvem primária, designada por nuvem de elétrons secundária. A multiplicação da carga inicial diretamente proveniente do depósito de energia da radiação incidente surge da necessidade de elevar a amplitude do sinal acima do nível do ruído eletrónico.

Esta técnica inclui detetores como o Contador Proporcional (CP) – o primeiro a ser desenvolvido e tecnicamente o mais simples – as câmaras multifios (MWGC's – *Multiwire Gas Chambers*) e as câmaras com microestruturas.

1.1.1 Contador Proporcional

O CP foi o primeiro detetor gasoso a ser desenvolvido na década de 40 do século passado, que veio permitir o estudo da radiação X de baixa energia [1]. Um esquema de um CP convencional de geometria cilíndrica é apresentado na figura seguinte.

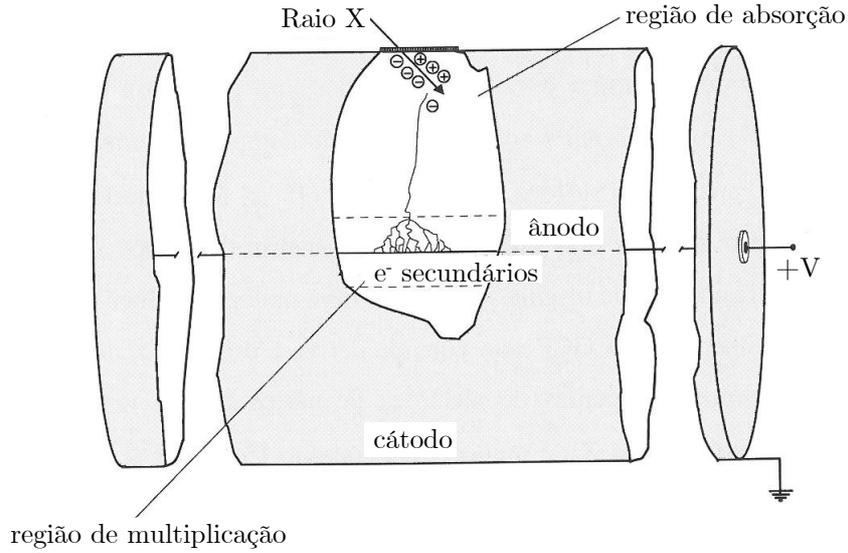


Figura 3 – Esquema de um contador proporcional de geometria cilíndrica. Adaptação da figura 1.1b de [28].

Um CP convencional é constituído por um cátodo (cilindro externo de raio c) e por um ânodo de raio a (tipicamente com dezenas de micrómetros). A nuvem primária de elétrons deriva em direção ao ânodo sob ação de um campo elétrico radial E_r de intensidade:

$$E_r = \frac{V}{r \ln(c/a)} \quad (1.13)$$

onde r é a distância ao centro do ânodo e V a diferença de potencial entre o cátodo e o ânodo.

Na deriva da nuvem de elétrons primária ocorrem colisões com os átomos do gás. Numa região próxima do ânodo (alguns micrómetros), esses elétrons ganham energia suficiente, entre colisões, para ionizar os átomos do gás, dada a intensidade do campo elétrico. Esses ‘novos’ elétrons ganham também eles energia para produzirem novas ionizações, originando o processo de avalanche. A carga total recolhida, o sinal medido no ânodo, é proporcional à energia depositada pela radiação no meio gasoso, i.e., à energia da radiação incidente.

Uma descrição mais aprofundada pode ser encontrada em [1, 29, 30].

Quando a determinação do local de interação da radiação com o gás é necessária, o CP de geometria cilíndrica não tem essa capacidade. Uma solução para esta necessidade foi encontrada com o contador proporcional multifios (MWPC – *Multi-Wire Proportional Counter*). O MWPC foi desenvolvido por G.

Charpak em 1968 [31]. Em síntese, um MWPC é composto por vários fios anódicos paralelos entre si, com diâmetros de poucas dezenas de micrómetros, colocados entre dois planos paralelos (cátodos), num meio gasoso. Neste modelo, uma das coordenadas pode ser determinada através do fio que recolhe a carga do sinal. A outra coordenada pode ser determinada através de cátodos composto por pistas paralelas entre si e perpendiculares aos fios anódicos. Assim, através da carga induzida nas pistas do cátodo é determinada a segunda coordenada, que permite saber a localização da interação da radiação num plano. Uma descrição mais aprofundada pode ser encontrada em [32, 33].

1.1.2 Multiplicação de Carga com Microestruturas

Usando o mesmo conceito de multiplicação de carga como método de amplificação do sinal produzido pela radiação incidente através de técnicas de fotolitografia, foram desenvolvidas microestruturas cuja função é também a multiplicação de carga. Este novo conceito de detetores CP foi introduzido por A. Oed na década de 80 do século XX com as *microfitas* em câmaras gasosas (*Micro-Strip Gas Chamber* – MSGC) [34] e a partir daqui abriu-se a porta a um enorme manancial de modelos de microestruturas para CP.

Muito resumidamente serão apresentados modelos de microestruturas. Um pouco mais pormenorizadamente será apresentada a estrutura GEM (*Gas Electron Multiplier*), uma vez que é utilizada no trabalho desenvolvido nesta dissertação. Estas microestruturas são apresentadas por ordem cronológica.

1.1.2.1 *Micro-Strip Gas Chambers* (MSGC)

Como referido, a precursora das microestruturas na deteção da radiação foi a *Micro-Strip Gas Chambers* (MSGC), introduzida por A. Oed no ano de 1986 [34, 35]. A MSGC é composta por dois planos metálicos separados por um material isolador. Um dos planos metálicos é composto por pistas paralelas, isoladas eletricamente, que são, alternadamente ânodos e cátodos. O outro plano metálico define o campo elétrico nas regiões próximas das pistas (ânodos e cátodos).

Através de campos elétricos, a nuvem de elétrons primária deriva na direção do ânodo e a multiplicação da carga ocorre em regiões próximas do ânodo. As dimensões dos ânodos são tipicamente de $10\ \mu\text{m}$ e distam dos cátodos $50\text{-}100\ \mu\text{m}$. Com esta geometria os íons positivos são rapidamente recolhidos nos cátodos ($100\text{-}200\ \text{ns}$) [36], evitando problemas de carga espacial, e conferindo ao dispositivo a capacidade de processamento de elevadas taxas de contagem $> 10^6\ \text{Hz mm}^{-2}$.

As principais características do desempenho destes detetores estão descritas em [35, 37], entre essas características são de destacar:

- Ganhos $\sim 10^4$;
- Alta taxa de contagens $> 10^6\ \text{Hz mm}^{-2}$;
- Resolução espacial de $\sim 50\ \mu\text{m rms}$.

1.1.2.2 *Micro-Gap Chamber* (MGC)

A microestrutura *Micro-Gap Chamber* (MGC) foi introduzida por Angelini em 1993 [38]. Esta microestrutura consiste em finos ânodos paralelos, apoiados sobre o cátodo e separados por um substrato isolador. A obtenção da posição a duas dimensões é conseguida tendo não apenas um cátodo, mas vários cátodos paralelos entre si e perpendiculares aos ânodos. Com esta geometria, a carga recolhida no ânodo é semelhante à do cátodo [39], podendo assim determinar-se a duas dimensões a posição da interação da radiação no meio. Tem possibilidades de recolher sinais com taxas de contagens superiores à configuração com MSGC e melhor resolução temporal [36, 40].

As principais características do desempenho destes detetores são:

- Ganhos $\sim 10^3$;
- Alta taxa de contagens $> 10^7\ \text{Hz mm}^{-2}$;
- Resolução espacial $< 50\ \mu\text{m rms}$.

1.1.2.3 *Micro-Dot Chamber* (microDot)

No ano de 1995 é apresentado por Biagi uma nova microestrutura: microDot [41]. Esta microestrutura apresenta uma geometria baseada CGMF, mas os cátodos são coroas circulares e os ânodos pontos no centro dos cátodos. Os ânodos

estão espaçados tipicamente a 200 μm e têm um diâmetro de 20 μm . Os cátodos têm raios internos na ordem de 150 μm . Os cátodos estão ligados entre si na superfície da estrutura, ao passo que os ânodos estão ligados por elétrodos que atravessam o interior (material isolador) da estrutura.

As principais características do desempenho destes detetores com esta microestrutura são apresentadas em [42, 43], das quais:

- Ganhos até 10^6 ;
- Rápida resposta;
- Detecção de *single-electron* [44, 45].

1.1.2.4 *Micro-Mesh Gaseous Structure* (MICROME GAS)

Giomataris, em 1996, introduziu o detetor gasoso *Micro-Mesh Gaseous Structure* (MICROME GAS) [46]. É um detetor composto por uma microestrutura, mas também por uma microgrelha. A microestrutura é um conjunto de fitas de ânodos com ~ 100 μm de largura depositadas num material isolador. A multiplicação da carga dá-se entre a microgrelha e a microestrutura. Dado o ânodo ser composto por fitas, possibilita a deteção de posição.

As principais características deste detetor gasoso aqui resumidas, estão apresentadas em [47, 48, 49]:

- Ganhos até $10^5 - 10^7$;
- Alta taxa de contagens $> 10^7$ Hz mm^{-2} ;
- Resolução espacial de < 50 μm *rms*;
- Resolução temporal < 5 ns *rms*;
- Resolução em energia de $\sim 13\%$ *FWHM* para raios X de 5.9 keV.

1.1.2.5 *Gas Electron Multiplier* (GEM)

O GEM (*Gas electron Multiplier*) foi apresentada por Sauli no ano de 1997 [50]. O GEM é constituído por uma placa com dois elétrodos planares, separados por uma película isoladora com espessura de dezenas de micrómetros, o qual é microperfurado com técnicas de circuito impresso, formando uma espécie de grelha dupla (duas grelhas separadas por um material isolador). Os microburacos são

bicônicos e os diâmetros, nas faces, são da ordem de dezenas de micrómetros. No interior da estrutura estes microburacos são mais estreitos. A nuvem de elétrons primária resultante da interação da radiação com o gás é guiada por campos elétricos para o GEM. Através de uma diferença de potencial aplicada nos dois eletrodos (muito próximos) do GEM, é criado um campo elétrico de grande intensidade em que há multiplicação de elétrons. À saída dos microburacos do GEM, os elétrons seguem as linhas de campo elétrico que são simétricas em relação às da entrada.

Os primeiros GEMs funcionavam como um primeiro estágio de amplificação, devido ao reduzido ganho (ganho ~ 6 [50]). No entanto, com o aperfeiçoamento do conceito, os ganhos passaram a ser significativamente superiores [51] e permitiram a utilização do GEM sem necessidade de amplificação adicional.

A figura seguinte é retirada de [52] e mostra as linhas equipotenciais e de campo elétrico para um GEM com isolador de $50 \mu\text{m}$ de espessura e $18 \mu\text{m}$ de material condutor em cada uma das faces. A diferença de potencial entre eletrodos é de 360 V e os campos de deriva (anterior e posterior ao GEM) são de 4 kVcm^{-1} .

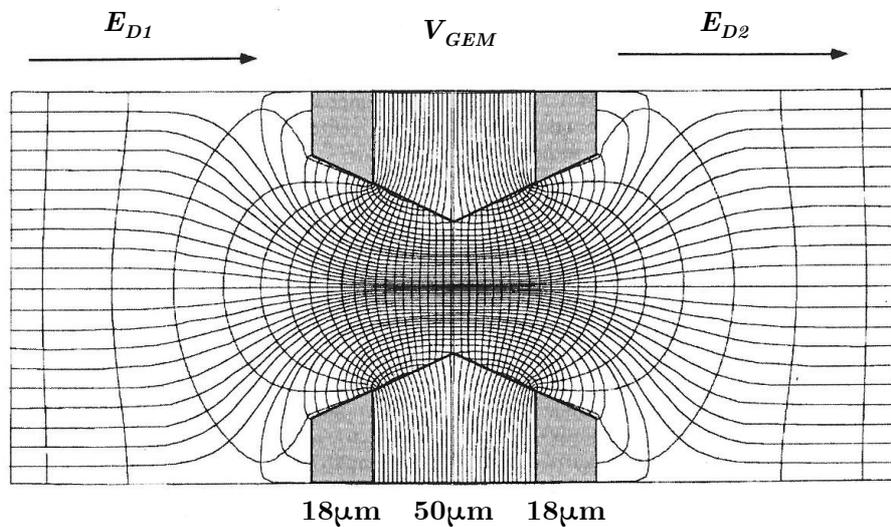


Figura 4 – Representação das linhas equipotenciais e de campo elétrico para um GEM com uma diferença de potencial entre eletrodos de 360 V e campos de deriva em ambos os lados de 4 kVcm^{-1} . As espessuras são de $50 \mu\text{m}$ para o material isolador e de $18 \mu\text{m}$ para os eletrodos (Fig. 2 de [52]).

A figura seguinte é retirada de [53] e apresenta-nos uma fotografia microscópica de um GEM com micro buracos bicônicos de $70 \mu\text{m} - 50 \mu\text{m}$, com espaçamento

entre centros de $140\ \mu\text{m}$. A espessura do material isolador é de $50\ \mu\text{m}$ e dos eletrodos $5\ \mu\text{m}$. Do lado direito observa-se a fotografia de perfil de um desses buracos.

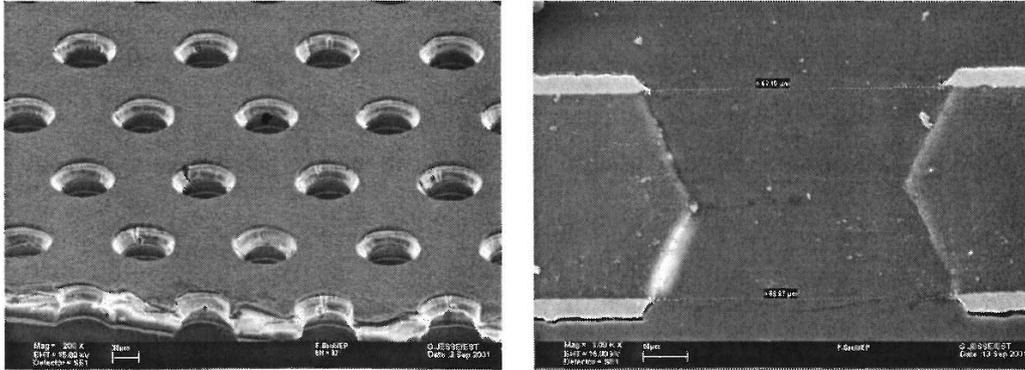


Figura 5 – Fotografia microscópica de um GEM com micro buracos bicônicos de $70\ \mu\text{m} - 50\ \mu\text{m}$, com espaçamento entre centros de $140\ \mu\text{m}$. Isolador com $50\ \mu\text{m}$ de espessura. À direita, está a fotografia de perfil de um desses buracos [53].

A nuvem de elétrons primária, através de campos elétricos adequados, é conduzida ao topo de GEM (através da região de deriva). A aplicação de uma diferença de potencial entre eletrodos leva à criação de um campo elétrico intenso (tipicamente $> 50\ \text{kVcm}^{-1}$, dependendo do gás) [54], onde ocorre a multiplicação da carga. Após a multiplicação da carga, a nuvem de elétrons é conduzida para o estágio seguinte, através de campos elétricos de deriva.

A utilização de GEMs como multiplicador de carga, dá a possibilidade de outros estágios de multiplicação de carga (novamente GEM ou outra microestrutura). Dessa forma os ganhos podem ser multiplicados de modo fracionado melhorando a eficiência de detecção sem perigo de descargas. Em [53] são apresentados resultados do ganho em função da diferença de potencial entre os eletrodos do GEM e a probabilidade de descarga elétrica quando a nuvem de elétrons primária é produzida pela interação de radiação α com $5\ \text{MeV}$, nas configurações de GEM único, duplo GEM e triplo GEM. Adaptação da figura 2 de [53].

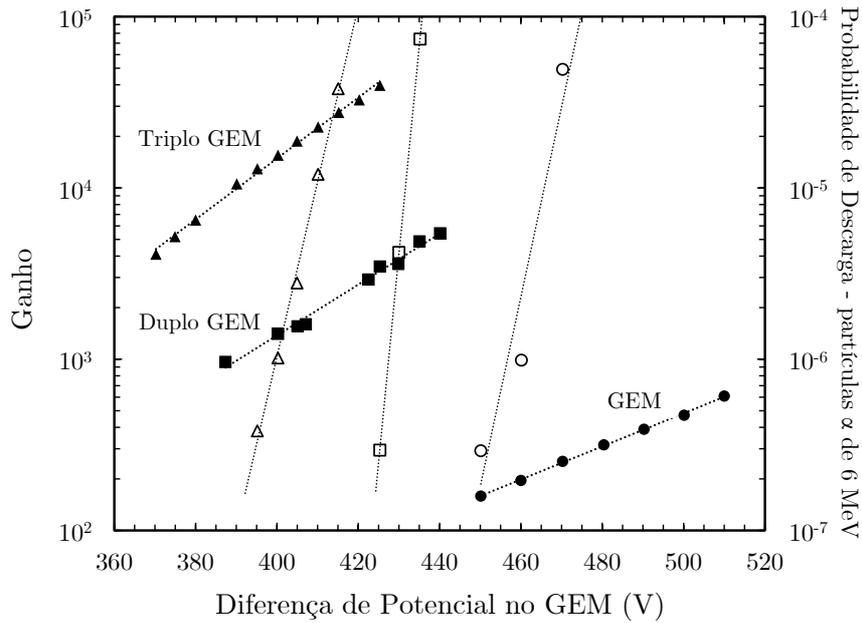


Figura 6 – Ganho total das configurações com um único GEM, duplo GEM e Triplo GEM, em função da diferença de potencial aplicada aos elétrodos do GEM (símbolos a cheio). Probabilidade de descarga numa interação de partícula α de 6 MeV (símbolos abertos). Figura adaptada de [53].

Uma outra característica do GEM é, usando campos elétricos apropriados e geometrias favoráveis (espaçamento e dimensões dos buracos) e utilizando múltiplos GEMs, reduzir substancialmente a indução de carga pelos iões e que a emissão de fótons não inicie novas avalanches de eletrões (*photon feedback*) [55].

As principais características de detetores baseados em GEMs estão apresentadas em [53] e aqui resumidamente apresentadas:

- Ganhos entre 10^4 e 10^7 usando GEM único ou multi-GEMs;
- Taxa de contagens até 10^5 Hz mm⁻²;
- Resolução espacial < 100 μm rms;
- Reduzido *feedback* de iões e fótons.
- Possibilidade de minimizar descargas elétricas;
- Boa resolução em energia;

1.1.2.6 *Micro-Hole and Strip Plate* (MHSP)

No ano 2000, J. Veloso propôs a combinação entre o GEM e a MSGC num único elemento: a *Micro-Hole and Strip Plate* (MHSP) [56]. Utiliza as duas técnicas de multiplicação de carga numa única estrutura, onde no topo se encontra uma geometria semelhante ao GEM [50] e na base a geometria da MSGC [34].

Esta configuração permite ganhos maiores o que possibilita a operação a menores tensões, diminuindo a probabilidade de descarga elétrica. Por outro lado, também diminui os efeitos de *feedback* de fótons e iões (problemática referida em [57, 58]), permitindo maiores ganhos, mantendo a proporcionalidade entre a carga recolhida e a energia da radiação incidente.

A multiplicação de carga, no entanto, é um processo que tem grande variância. Essa variância deriva de vários fatores: por um lado a origem da avalanche não é bem definida; por outro lado, para os campos elétricos envolvidos há dois processos inelásticos possíveis (ionização e excitação) e competição entre eles. Desta competição decorre uma grande variância no número de eletrões produzido por cada eletrão primário. Estes dois fatores vão dar origem a um termo na expressão da resolução em energia significativamente maior do que o termo intrínseco, ou seja, a uma resolução em energia pobre.

1.2 Detetores com Produção de Eletroluminescência

Como atrás referido, a interação da radiação com o meio produz ionizações criando a nuvem de eletrões primária e, em certos meios, através da desexcitação, emissão de luz – cintilação primária.

Uma das modalidades para deteção da radiação usa a emissão controlada de luz como técnica de amplificação do sinal, ao contrário da multiplicação de carga antes referida. Os detetores que utilizam esta técnica são designados detetores gasosos de cintilação proporcional (CGCP).

Os CGCP são introduzidos por Conde e Policarpo em 1967 [59]. Resumidamente, o CGCP após a absorção da radiação no meio gasoso com a formação de uma nuvem de elétrons primários, recorre a uma característica específica dos gases raros, a cintilação proporcional, em vez da multiplicação de carga que acontece nos CPs. Esta característica está relacionada com a estrutura atômica dos gases raros que, tendo as camadas atômicas completas, têm os limiares de ionização elevados (da ordem da dezena de eV) e bem distintos dos limiares de excitação. Deste modo é possível aplicar numa dada região do detetor, geralmente designada por zona de cintilação secundária, campos elétricos onde os elétrons adquirem energia suficiente, entre colisões, apenas para excitar os átomos do gás. No processo de desexcitação é emitido um fóton com um c.d.o. característico do gás. Ao atravessar a zona de cintilação, um elétron pode produzir várias centenas destes fótons, convertendo a energia recebida do campo elétrico em cintilação, designada por cintilação secundária, de modo a distingui-la da que resulta da absorção inicial da radiação no gás (cintilação primária). Dada a ausência de processos de perda de energia alternativos, esta conversão de energia em eletroluminescência é extremamente eficiente e, dentro dos limites de campo elétrico adequados, proporcional à sua intensidade.

Desde a origem, estes detetores, que utilizam a emissão de luz como método de amplificação do sinal, têm sido testados em várias geometrias. A primeira geometria foi introduzida por Conde e Policarpo em 1967. Nesta, para além do cátodo, o CGCP era constituído por um único fio (ânodo) – seguindo a geometria cilíndrica tradicional usada no CP [59]. A principal diferença consistia na intensidade do campo elétrico aplicado que terá de ser abaixo do limiar de ionização do gás. Seguiram-se várias outras geometrias: ânodo esférico [60, 61], dois ânodos com geometria de campo elétrico esférico [62] e, finalmente, geometria de campo elétrico uniforme [63, 64].

A geometria de campo elétrico uniforme é, atualmente, a mais utilizada uma vez que tem a melhor resolução em energia. Com esta geometria de campo elétrico, Smith (1987) e Simons (1989) introduziram uma variante de CGCP sem campo de deriva (“*driftless*”), com o propósito de minimizar as perdas de elétrons primários, fator importante sobretudo para raios X de baixa energia [65, 66].

Como referido, este modelo de detetores de radiação utiliza a EL como método de amplificação do sinal. O número de fótons de cintilação secundária produzidos por cada eletrão primário depende do campo elétrico aplicado e da dimensão da região de cintilação. O rendimento de EL reduzido, Y/N é número de fótons de cintilação secundária emitidos por unidade de comprimento e por unidade de densidade atômica do gás. Y/N , dentro de limites bem definidos de campo elétrico (dependentes do gás), cresce linearmente com o campo elétrico reduzido aplicado. A 800 Torr de Xe, e para raios X de 5.9 keV o crescimento é linear até campos de 6-7 Vcm⁻¹Torr⁻¹ [28]. Para campos superiores deixa de haver linearidade porque a energia ganha pelos eletrões entre colisões é suficiente para ionizar o gás e, eventualmente, entrar num processo de avalanche. O rendimento de EL reduzido também pode ser definido por Y/p , onde p é a pressão embora, nesse caso, dependa da temperatura.

Considerando que um eletrão durante o percurso na região de cintilação produz N_f fótons, a variância associada $\sigma_{N_f}^2$ é dada por $J\overline{N}_f$, onde J é definido de forma análoga ao fator de Fano F . J depende do gás e toma valores inferiores à unidade para o caso dos gases raros. No caso específico de Xe, $J = 0.03$ [67, 68].

Como os processos de formação da nuvem de eletrões primária e de produção de cintilação secundária são independentes, a variância do sinal obtido é a soma das variâncias associadas a cada um dos processos. Assim, a resolução em energia R de um CGCP, considerando as flutuações associadas ao processo de produção de eletrões primários e associadas ao processo de eletroluminescência, é dada por [1, 68]:

$$R = 2.35 \sqrt{\frac{F}{\bar{n}} + \frac{1}{\bar{n}} \frac{J}{N_f}} \quad (1.14)$$

onde \bar{n} é o número médio de eletrões primários gerados por fóton incidente.

Como num CGCP, N_f é da ordem das centenas e $J \ll F$, pode dizer-se que a resolução em energia é:

$$R \cong 2.35 \sqrt{\frac{F}{\bar{n}}} \quad (1.15)$$

ou seja, próximo da resolução intrínseca de um CGCP. Pode, portanto, dizer-se que a resolução num CGCP depende fundamentalmente das flutuações no processo de formação da nuvem primária, já que o termo correspondente às

flutuações do número de fótons de cintilação secundária é desprezável, quando comparadas com o termo intrínseco.

Para a detecção da cintilação no CGCP é necessário um fotosensor sensível à luz emitida (VUV). Existem várias alternativas, tais como fotodíodos de estado sólido e fotomultiplicadores (PMT). Os fotosensores operam convertendo fótons em fotoelétrons num fotocátodo e multiplicando-os depois para amplificar o sinal. Nesta secção será apenas referido o PMT dado que foi o fotosensor utilizado nesta dissertação. No entanto, atualmente há fotossensores cujo desempenho se vem aproximando progressivamente do dos PMTs, com a vantagem de serem mais robustos, mais compactos, de menor consumo e mais radiopuros. Os fotodíodos de silício (*silicon photodiodes* – SiPM) [69] são um bom exemplo desta nova gama de fotosensores, usados em algumas experiências como [6, 70].

Os fótons de cintilação são emitidos isotropicamente. Isso leva a que muitos dos fótons emitidos no gás não sejam detetados pelo fotosensor. A fração dos fótons recolhidos é a fração correspondente ao ângulo sólido Ω subtendido pelo PMT. A janela do PMT tem ainda uma transmissão T , função do c.d.o.. A sensibilidade do PMT está também diretamente relacionada com a transmissão da janela. Além destes parâmetros, também existe a eficiência quântica EQ do fotocátodo do PMT, função do material do fotocátodo e do c.d.o. da cintilação. Assim, o número médio de fotoelétrons produzidos no fotocátodo do PMT $\overline{N_{fe}}$ é dado por:

$$\overline{N_{fe}} = \bar{n} \overline{N_f} T EQ \Omega \quad (1.16)$$

Estes fotoelétrons são acelerados e multiplicados num processo de avalanche nos dínodos (tipicamente 10 dínodos). Um PMT tem ganhos da ordem de $10^5 - 10^6$. Como os processos de formação dos fotoelétrons e multiplicação nos dínodos do PMT são independentes, a variância total pode ser obtida pela soma das variâncias de cada um dos processos. Desse modo, segundo [1, 28] a resolução em energia de um CGCP que utilize um PMT como fotosensor é aproximadamente:

$$R \cong 2.35 \sqrt{\frac{F}{\bar{n}} + \frac{2}{\overline{N_{fe}}}} \quad (1.17)$$

Assim concluímos que a resolução de um CGCP que utilize um PMT como fotosensor depende de diversos fatores relacionados com o gás de enchimento e com a geometria do detetor e com o PMT utilizado, nomeadamente:

- Fator de Fano F do gás;
- Número médio de eletrões primários por energia da radiação incidente \bar{n} ;
- Número médio de fotões emitidos na região de cintilação por eletrão primário \bar{N}_f ;
- Ângulo sólido Ω subtendido pelo PMT;
- A transparência T da janela do PMT;
- A eficiência quântica EQ do PMT para o c.d.o. emitido.

Além destes fatores, outros fatores adicionais podem contribuir para a resolução em energia do detetor, tais como:

- Ruído eletrónico introduzido pelas fontes de tensão utilizadas;
- A não uniformidade do fotocátodo;
- A não uniformidade do campo elétrico de cintilação.

1.3 Novos Desafios dos Detetores Gasosos

Desde a sua origem, os detetores gasosos de radiação, têm vindo a ser adaptados a novas solicitações provenientes da evolução do conhecimento, inerentes às dificuldades crescentes desta investigação. Essas exigências são no sentido de dar resultados mais precisos, estender a gama de energias abrangida em ambos os sentidos, aumentar a sensibilidade, etc.

As características fundamentais dos detetores gasosos fazem com que sejam especialmente apelativos a novos desafios. A adaptabilidade no que respeita a forma, dimensões, natureza, propriedades e pressão do gás de enchimento, permite a configuração de acordo com diferentes tipos de experiências. Por outro lado, a facilidade de operação e manuseamento patente na simplicidade na purificação do gás, na operação a temperatura ambiente, no comparativamente baixo custo de fabrico e manutenção, possibilidade de recuperação do gás de deteção, especialmente no caso de grandes volumes e alta pressão, fazem destes dispositivos

nos quais vale a pena investir para melhorar os aspetos menos ajustados às necessidades.

Com efeito a evolução da investigação levou à necessidade de trabalhar a altas energias, área em que os detetores gasosos tradicionalmente não eram uma escolha preferencial, de aumentar a sensibilidade para poder trabalhar com eventos raros, de ter identificação de posição para poder rejeitar acontecimentos de fundo ou avaliar propriedades da radiação, mantendo, no entanto, as principais vantagens de entre as quais se pode destacar a boa resolução em energia e a robustez.

É certo que há concorrência, mas todos os candidatos têm desvantagens em alguns pontos. Um concorrente direto, e durante algum tempo preferido, é o detetor em que o meio gasoso está liquefeito. As principais desvantagens desta versão são a pior resolução em energia, devido ao fator de Fano geralmente mais elevado, que traduz a existência de mais processos de perda de energia para além da multiplicação de carga ou produção de luz, a necessidade de baixa temperatura e dificuldade aumentada na purificação do meio, que resultam num custo de manutenção e operação bem superior à da versão gasosa. Do outro lado temos os detetores de semicondutor. Estes detetores, embora tenham uma resolução em energia melhor dos que os detetores gasosos, têm um custo muito superior, um grau de adaptabilidade muito menor e, na sua maioria, são criogénicos.

Assim, os detetores preferencialmente escolhidos para estas novas experiências têm sido cada vez mais os detetores gasosos e, de entre estes, a versão eletroluminescente, também designada por ótica, em que o método de amplificação do sinal é a eletroluminescência do meio de deteção, em detrimento da versão multiplicação de carga. Esta modalidade confere a melhor resolução em energia e a versatilidade permite ajustes de acordo com as necessidades específicas de cada experiência.

1.4 Misturas Gasosas como Meio de Deteção

A escolha do gás de enchimento mais adequado para um determinado detetor gasoso deve ser criteriosa e ter em conta o tipo de radiação a detetar, e qual a informação que se pretende obter relativamente à partícula detetada,

nomeadamente a sua energia, a posição de interação, o método de amplificação a utilizar, para nomear algumas.

Concretamente, na versão eletroluminescente, o uso de gases raros como meio de deteção é obrigatório, pelas razões já referidas na secção 1.2. Um dos requisitos da maioria das experiências recentes ou em desenvolvimento é o conhecimento da posição da interação. Esta é uma competência que os detetores gasosos eletroluminescentes tradicionalmente não têm e que teve de ser implementada. Especificamente os gases raros têm características (elevada difusão de eletrões e baixa velocidade de deriva) que dificultam ou podem comprometer opções, em princípio, viáveis para a determinação da posição da interação. As soluções para estes problemas, por outro lado, não são isentas de efeitos colaterais, cuja dimensão tem de ser avaliada, com exercícios de estimativa de custos-benefícios no ambiente da experiência.

Normalmente gases moleculares (genericamente designados por impurezas) se presentes para além dos gases raros, em detetores gasosos de radiação, têm efeitos indesejáveis. Isto acontece porque estas moléculas possuem estados vibracionais e rotacionais, para além de estados excitados, que permitem que os eletrões que com elas colidem percam energia sem emissão de cintilação. Além disso, também são responsáveis pela inibição da emissão de eletroluminescência pelos átomos excitados com os quais eventualmente colidem. Nos CGCPs, isto leva a uma redução da emissão de fotões de EL causando uma degradação da resolução em energia. Também podem levar à perda de eletrões primários por captura, caso sejam moléculas eletronegativas. Contudo, a introdução criteriosa de gases moleculares (nesse caso designados por aditivos) possibilita a diminuição dos coeficientes de difusão dos eletrões e aumenta a velocidade de deriva de eletrões [71, 72] e iões [73, 74, 75], devida a perdas de energia mais eficientes que, no caso dos eletrões, é devida à ocorrência de processos de excitação vibracional e rotacional das moléculas do aditivo (arrefecimento) que substituem as poucas perdas de grande amplitude (gases raros) por muitas perdas de pequena amplitude. No caso dos iões, as razões do aumento da velocidade de deriva serão abordadas na secção 3.2.

Alguns aditivos podem ainda absorver os fotões de EL emitidos. Neste caso, o seu uso pode ser inviabilizado. No entanto, há a possibilidade de a absorção dos

fotões ser seguida de reemissão num outro c.d.o.. Nesse caso, a aparente desvantagem pode transformar-se numa vantagem, produzindo o efeito de um conversor de c.d.o.. Essa possibilidade, não completamente explorada à data, levou ao estudo feito com misturas de Xe com TMA.

1.5 Importância do Presente Trabalho

A utilização de um meio gasoso como meio de detecção, sobretudo em aplicações novas e com exigências específicas, exige um estudo aprofundado e cuidadoso desse meio. A possibilidade de utilização de aditivos aos meios gasosos de detecção tradicionais (nomeadamente aos gases raros), implica um leque de avaliações das características das misturas resultantes (coeficientes de difusão, mobilidade de elétrons e iões, fator de multiplicação de carga e de eletroluminescência, a transmissão da mistura à eletroluminescência, conversão de c.d.o.) e ainda a composição percentual ideal da própria mistura.

O trabalho descrito nesta dissertação pode ser dividido em 4 partes:

- Desenvolvimento de um sistema experimental com as vertentes necessárias para a cabal avaliação das características das misturas em estudo;
- Estudo exaustivo das diferentes características relevantes do gás TMA como aditivo de xénon, tendo em vista a sua possível utilização na experiência NEXT [10];
- Estudo das características físicas da molécula de TMA: energia de aparecimento dos diversos iões, por impacto de elétrons, abundância relativa de cada um dos iões em função da energia dos elétrons e coeficiente de absorção para o c.d.o. emitido por xénon.
- Desenvolvimento de um novo sistema experimental para estudar o coeficiente de difusão transversal dos elétrons sob a ação de campos elétricos, em gases.

Os capítulos seguintes apresentam o trabalho realizado no âmbito desta dissertação.

2 Sistema Experimental e Estudos das Propriedades Físicas de TMA

2.1 Sistema Experimental

Como descrito no plano de trabalho, diversos dispositivos necessários à realização da componente experimental foram projetados, construídos e ligados a uma linha de vácuo/enchimento de gases ela própria também desenvolvida no âmbito desta tese. Assim projetou-se, construiu-se e instalou-se a linha de vácuo e de enchimento de gases para a instalação dos diferentes dispositivos experimentais. Toda a linha de vácuo/enchimento foi construída de novo.

Na figura 7 está representado o conjunto dos sistemas experimentais, a linha de vácuo, a linha de enchimento/mistura de gases, os purificadores de gases, os medidores de pressão e quatro dos cinco dispositivos experimentais desenvolvidos no âmbito deste programa de trabalhos: Contador Proporcional (CP), Contador Gasoso de Cintilação Proporcional (CGCP), câmara para estudo de absorção de luz VUV por misturas gasosas, e câmara para estudo de difusão de elétrons em meio gasoso.

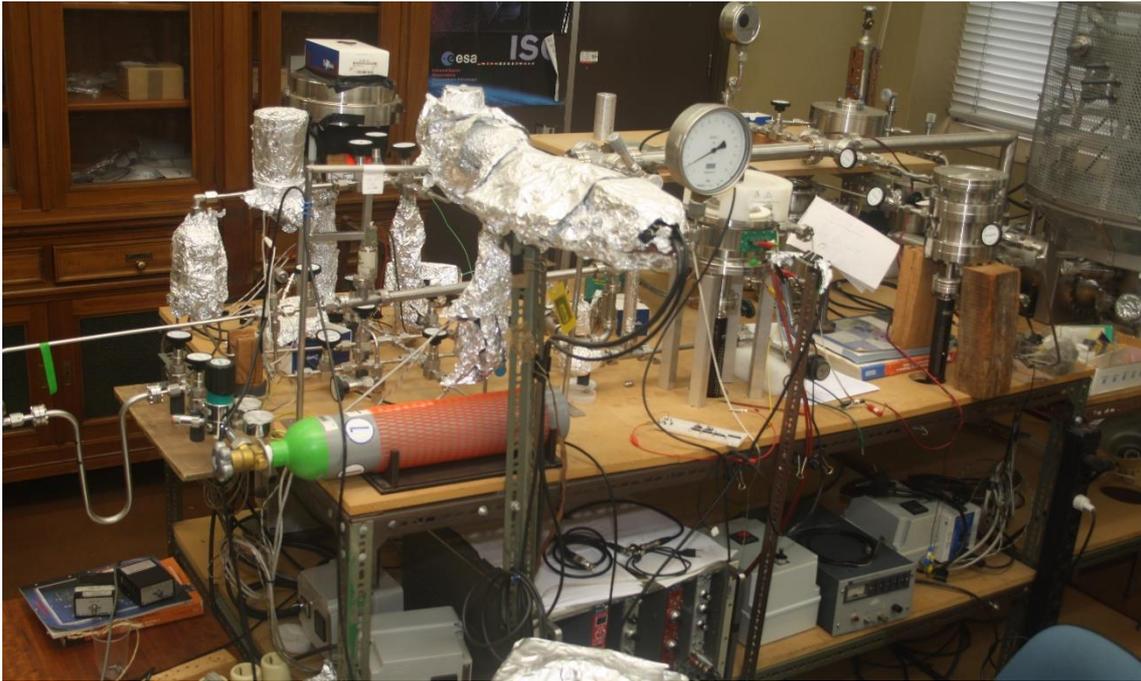


Figura 8 – Foto da Bancada Principal (frente/direita).

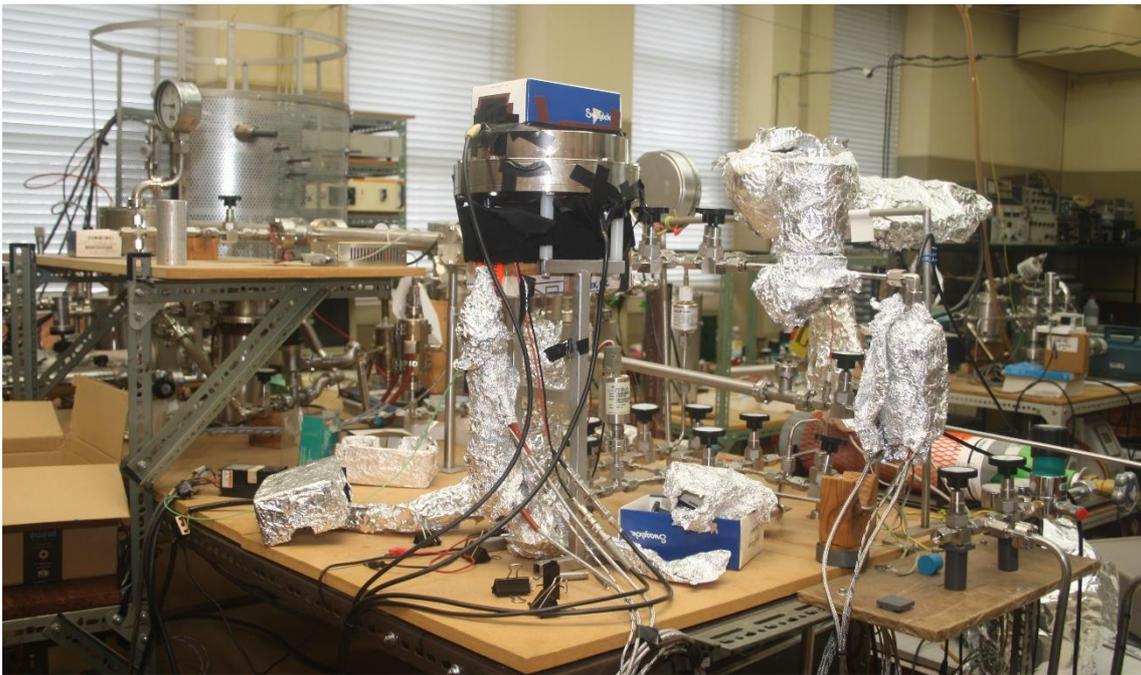


Figura 9 – Foto da Bancada Principal (frente/esquerda).

A figura 10 é uma fotografia da bancada onde está instalado o sistema experimental de mobilidade de íons positivos.

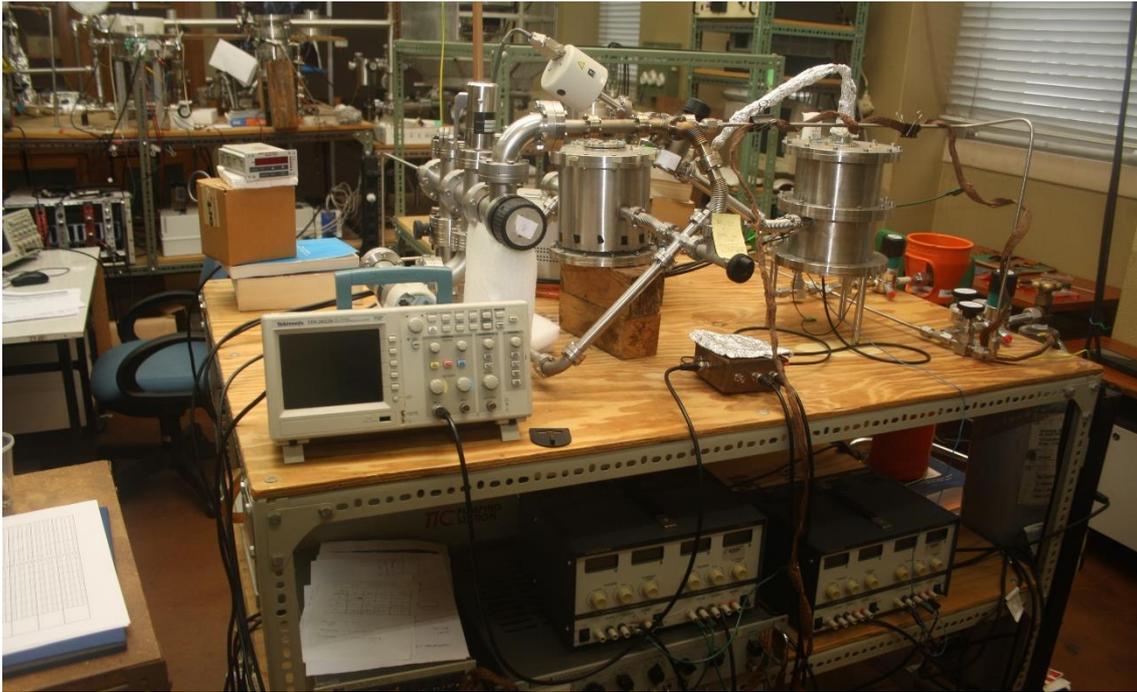


Figura 10 – Fotografia da bancada onde está o sistema experimental de mobilidade de iões positivos.

2.1.1 Sistema de Vácuo e de Enchimento de Gases

Existia, no laboratório, um sistema de vácuo constituído por uma bomba rotativa da marca Varian[®], modelo DS302 1Ph (para o vácuo primário) com velocidade de bombeamento $3.2 \text{ dm}^3\text{s}^{-1}$ e pressão última de 2×10^{-3} Torr, e uma bomba turbomolecular Leybold[®], modelo Turbovac 151 (para o alto vácuo) com velocidade de bombeamento de $145 \text{ dm}^3\text{s}^{-1}$ e pressão última de 1×10^{-10} Torr. Neste sistema de vácuo estão instalados três vacuómetros: um do tipo *Pirani* da marca Varian[®], modelo 0536 e dois do tipo *Penning* da marca Varian[®], modelo 525. A unidade de leitura de pressão é da marca Varian[®], modelo CC2 senTorr.

É desta base, montada por mim fora do âmbito desta dissertação, que foi instalada a linha de vácuo para todos os sistemas experimentais e a linha de enchimento de gases para a admissão dos gases nos sistemas experimentais. Esta linha de enchimento de gases tem dois pontos de ligação a garrafas de gás para poder efetuar o enchimento com um gás ou com misturas de dois gases.

Nesta linha de vácuo/enchimento de gás foi colocado um medidor de pressão MKS Baratron[®], modelo 722A (até 5000 Torr e precisão 0.5%) e um medidor de Pressão WIKA (até 15 bar e precisão de 0.05 bar).

Para poder fazer purificação contínua dos gases, foram instalados dois tipos de purificadores: um para gases nobres e outro para gases nobres e moleculares, nomeadamente CH₄, CF₄, TMA, etc. Para estes dois purificadores foi prevista a possibilidade de serem utilizados, individualmente em modo alternativo, sem ser necessário retirá-los da linha de vácuo ou expô-los ao ar. Para esse efeito foram desenhados dois caminhos paralelos e independentes para cada um dos purificadores. Para a purificação de gases nobres utilizaram-se purificadores SAES[®] getters ST707 [76] e, para o meio contendo gás molecular optou-se por purificadores SAES[®] getters MC1-702-F [77]. A circulação do gás assegura a purificação contínua. Para agilizar essa circulação foram instaladas, em locais estratégicos da linha, resistências para aquecimento das tubagens e dos gases, para gerar convecção. Ambos os purificadores purificam os gases ou misturas gasosas relativamente às principais impurezas: H₂O, O₂, CO₂.

Todos os sistemas experimentais (exceto o que estuda a mobilidade dos iões) foram instalados na mesma linha de vácuo e estão ligados entre si, garantindo assim que o mesmo gás circula em todos eles. No entanto, cada sistema experimental tem possibilidade de operar de forma individual, sendo possível isolá-lo dos outros mantendo-o ligado a qualquer das purificações. Esta versatilidade de utilização tornou muito mais complexa a sua idealização e instalação, mas mostrou-se extremamente útil no decorrer do trabalho, pois qualquer avaria ou alteração num dos sistemas não impediu o trabalho nos restantes sistemas. O aumento faseado do sistema levou a várias alterações que, dada a modularidade, nunca comprometeram a operacionalidade dos dispositivos já montados.

O sistema para o estudo da mobilidade dos iões está instalado numa linha de outro sistema de vácuo. Este sistema de vácuo, também construída por mim fora do âmbito deste doutoramento, é constituído por uma bomba rotativa da marca Edwards[®], modelo XDD1, com uma velocidade de bombeamento de 1.4 m³.h⁻¹, uma bomba turbomolecular também da marca Edwards[®], modelo EXT75DX, com uma velocidade de bombeamento de 75 l.s⁻¹. Para medição de pressão foi instalado um vacuómetro *Wide Range Gauge* da marca Edwards[®], modelo WRG-S-NW35.

2.1.2 Sistemas Experimentais

Numa primeira fase foram projetados, contruídos e instalados o CGCP e o CP. Posteriormente foi projetado, construído e instalado o sistema para estudar os coeficientes de absorção de luz VUV e eventual reemissão de luz noutra c.d.o.. Este sistema foi desenvolvido sobretudo para o estudo com misturas Xe – TMA, uma vez que tinha sido considerada a hipótese de a molécula de TMA servir como conversor do c.d.o. da luz de cintilação de xénon (~172 nm) [21] para outros c.d.o. maiores (entre 260 e 350 nm) [78]. Por último foi projetado, contruído e instalado um sistema para estudar os coeficientes de deriva de eletrões em função do campo elétrico.

O RGA, instalado na linha de vazio também foi usado, não só para aferição da composição efetiva das misturas e testes de vazio (utilização habitual do RGA), mas também para o estudo de algumas propriedades físicas da molécula de TMA, tais como energia de ionização e de aparecimento de diferentes iões de TMA, por impacto de eletrões.

Foi utilizada ainda a câmara para estudos de mobilidade de iões positivos em gases, desenvolvida e construída por P.N.B. Neves, no âmbito do seu Doutoramento [79]. Este sistema foi o único que não foi desenvolvido por mim e que não foi instalado na mesma linha de vácuo de todos os outros, por já estar instalado numa linha de outro sistema de vácuo. Este sistema experimental tem o seu protocolo próprio de funcionamento, por exemplo, não necessitar de purificação.

Todas as peças dos sistemas foram projetadas e desenhadas por mim e construídas nas oficinas do Laboratório de Instrumentação e Física Experimental de Partículas (L.I.P.) de Coimbra. Os materiais usados na construção dos sistemas foram, essencialmente, aço inoxidável, a cerâmica Macor[®], cola da marca Araldite[®] AY103-1 e endurecedor HY991, também da marca Araldite[®]. Como anéis vedantes foram utilizados anéis de cobre e de Viton[®].

Após o fabrico de cada uma das partes dos sistemas experimentais, seguiu-se um protocolo rigoroso de limpeza, nomeadamente banho de acetona num aparelho de limpeza de ultrassons. Depois da construção de cada um dos sistemas, fez-se uma rigorosa análise de estanquidade, recorrendo ao espectrómetro de massa

RGA. Todos os sistemas atingiram pressões de vácuo inferiores a 1×10^{-7} Torr. Analisando o gás residual com o RGA verificou-se que a pressão residual era dominada pelos picos de m/z 17 e 18 – água – e que o pico com m/z 32, correspondente à molécula de oxigênio (O_2), era da ordem de 1×10^{-10} Torr, o que é indicativo da não existência de fugas.

Para melhor compreender a molécula de TMA realizaram-se alguns estudos com o espectrômetro de massa, nomeadamente, o fator de correção de gás do RGA a aplicar a TMA na utilização do espectrômetro, informação fundamental para analisar as misturas; a energia de ionização e de aparecimento dos vários iões de TMA por impacto eletrónico; a abundância relativa de cada ião para energias de impacto compreendidas entre 7.5 e 70 eV.

Os gases utilizados foram Xe, TMA e CH_4 , com graus de pureza de 99.999%, 99% e 99.9995%.

2.1.3 Espectrômetro de Massa

O sistema de vácuo inclui um espectrômetro de massa analisador de gás residual (RGA), do tipo quadripolar da marca Hiden[®], modelo HAL IV RC, equipado com uma cabeça RF HAL200. O RGA é uma ferramenta fundamental, não só para fazer testes à estanquicidade da linha de vácuo e dos sistemas desenvolvidos, mas também para analisar a composição das misturas gasosas. Este RGA equipado com esta cabeça tem a capacidade de analisar gases residuais com uma relação entre a massa e a carga m/z (m em unidades de massa atómica e z em unidades de carga elementar) de cada ião resultante até 200. Com o RGA foi ainda possível realizar o estudo dos limiares de ionização e abundâncias relativas dos iões de trimetilamina (TMA – $(CH_3)_3N$), produzidos por impacto de eletrões com energias compreendidas entre 7.5 e 70 eV.

2.2 Propriedades Físicas de Trimetilamina por Espectrometria de Massa

Neste trabalho testaram-se vários aditivos, nomeadamente CH_4 , e TMA – os aditivos inicialmente sugeridos pela colaboração NEXT [7, 10], sendo estes aditivos moleculares com os quais se pretende fundamentalmente diminuir a difusão dos eletrões.

A composição real da mistura (por oposição à composição estimada) é uma informação indispensável, sobretudo para misturas com pequenas quantidades de aditivo, no caso, inferiores a 1.5%. Com efeito, o medidor de pressão instalado na linha de vácuo/enchimento tem uma resolução de 1 Torr e um erro na medida de $\sim 0.5\%$, valores elevados para as misturas pretendidas. Para esse efeito foi necessário desenvolver uma técnica para controlar com rigor a composição da mistura. Deste modo, para obter misturas com fração de aditivo inferior a 0.1%, formulou-se um método que consiste em diluições sucessivas da mistura anterior.

A pressão normal de trabalho é de 800 Torr. Para obter a mistura pretendida procedeu-se do seguinte modo: o primeiro gás a entrar no sistema, previamente evacuado, era o gás minoritário (aditivo); a pressão pretendida deste gás era tal que, depois de completar o enchimento até 800 Torr com xénon, ficássemos com a máxima concentração de aditivo pretendida para o estudo. Para as composições seguintes, com concentrações de aditivo cada vez menores, foram feitas diluições da mistura corrente, com Xe puro.

Para a diluição, retira-se a quantidade necessária (calculada) da mistura pela linha de vácuo, de modo a baixar a pressão no sistema, e volta-se a encher com Xe puro novamente até à pressão de 800 Torr. Este método não tinha sido testado, pelo que foi necessário analisar com rigor a composição real da mistura a cada passo de diluição. Assim, no início e fim do estudo com uma mistura, procedeu-se sempre à análise do gás com o espectrómetro de massa.

Para isso, foi instalada uma válvula de agulha que permitisse controlar o fluxo de gás de modo a poder ser analisado pelo RGA (que não deve trabalhar a pressões superiores a 1×10^{-4} Torr). Deste modo ficou-se a conhecer a composição real da mistura com a precisão do RGA.

Relativamente ao funcionamento do RGA, a análise do gás residual é feita através da ionização do gás por impacto eletrónico. A secção eficaz por impacto de eletrões, naturalmente, varia de gás para gás. Como tal, há a necessidade de uma correção para que os valores obtidos sejam absolutos, não afetados pelas diferenças de secção eficaz entre gases. O RGA disponível tem uma biblioteca com fatores de correção para diversos gases. Assim, escolhendo o gás envolvido, a correção é feita automaticamente pelo *software*. Não havendo a informação na biblioteca, a correção terá de ser feita *a posteriori*. Apesar de a base de dados do RGA ser vasta, não inclui TMA. Assim sendo, o referido fator teve de ser determinado.

Dada a falta de informação disponível na literatura [80] e tendo acesso ao RGA com capacidades, considerámos ser relevante a identificação das espécies iónicas presentes, e das suas energias de aparecimento e abundância relativa em função da energia dos eletrões incidentes em TMA com o RGA.

2.2.1 Fator de Correção de TMA no RGA

Segue-se a descrição método para a verificação da composição das misturas sucessivamente obtidas pelo método desenvolvido, de diluição progressiva.

2.2.1.1 Metodologia

No RGA disponível, a análise do gás residual é feita através da ionização do gás por impacto de eletrões. De acordo com o manual de operação, a pressão parcial mínima detetável é de 1×10^{-11} Torr, que corresponde a uma corrente iónica de 1×10^{-15} A.

Os eletrões são produzidos por efeito termoiónico num filamento percorrido por uma corrente elétrica, cujo limite superior é de 5 A. A corrente de eletrões, designada por corrente eletrónica de ionização, é definida pelo operador e pode ter valores entre 20 e 1000 μ A. Os eletrões emitidos, através de campos elétricos apropriados também definidos pelo operador, são acelerados e conduzidos para uma câmara designada por câmara de ionização. A energia comunicada aos

eletrões pode variar entre 6 e 70 eV. Este RGA, no modo normal, opera com uma corrente de 1000 μA e energias de 70 eV.

Os iões produzidos pela ionização do gás residual são retirados da câmara de ionização por campos elétricos adequados e dirigidos para o quadripolo, que os separa de acordo com a relação entre massa e carga elétrica. O quadripolo é composto por quatro cilindros com cerca de 185 mm de comprimento e 3 mm de diâmetro, agrupados dois a dois, cuja tensão alterna a uma frequência de 2 MHz. Um varrimento permite recolher iões com m/z tal que

$$\frac{m}{z} \approx 1.3 \times 10^3 \frac{V}{r_0^2 w^2} \quad (2.1)$$

em que m em unidades de massa atômica, z a carga em unidades de carga unitária, V a tensão, r_0 metade da distância entre cilindros e w a frequência. O resultado, um espectro de massa, é um registo da corrente iónica, proporcional à pressão parcial do gás.

Um dos modos de análise do RGA é a medição da pressão parcial para cada m/z através de um varrimento sobre m/z que, neste caso, pode ir até 200. Cada varrimento gera um histograma com as medidas da pressão parcial (Torr) em função de m/z . Cada espécie iónica produz um pico ou mais, dependendo da existência de iões com mais do que uma carga, cuja amplitude é proporcional à abundância da espécie. Se um átomo/molécula for duplamente ionizado aparece um sinal na posição correspondente a metade do m/z do ião de carga 1. Através de vários varrimentos é calculada a pressão parcial média para cada pico do histograma, i.e., cada ião. Este método de análise não usa o fator de correção do gás pelo que os resultados têm de ser analisados e corrigidos.

Foram feitas várias misturas de Xe – TMA e analisados os resultados. Conhecendo o fator de correção de xénon traçou-se uma reta de calibração para determinar o fator para TMA.

Antes da admissão do gás no sistema, foram efetuados cerca de 10 varrimentos para avaliar o gás residual da linha de vácuo, designado por “*fundo*” e, através da média, obteve-se o valor da pressão parcial de “*fundo*” para cada valor de m/z . A pressão do gás residual era de $\sim 1 \times 10^{-7}$ Torr. Em seguida, através de uma válvula de agulha, admitiu-se o gás (correspondente a uma determinada mistura), com fluxo constante, até atingir a pressão total $\sim 8 \times 10^{-6}$ Torr, cerca de duas ordens de grandeza acima do “*fundo*”. Para cada mistura, o histograma resultante foi obtido

com várias dezenas de varrimentos, através das médias das pressões parciais para cada m/z . Finalmente, depois de fechada a válvula de agulha, evacuou-se o gás da mistura e repetiu-se a análise do “*fundo*”. Os resultados finais são a média dos varrimentos com o gás a analisar, após subtração do “*fundo*” determinado através da média dos valores inicial e final. Durante todo o procedimento de análise, o sistema de vácuo permaneceu ligado.

No histograma de pressão parcial em função de m/z , os picos principais eram de Xe e de TMA. A pressão parcial de cada gás obtém-se pela soma das intensidades de todos os seus picos. Sabida a composição da mistura e o fator de correção para xénon, determinou-se o fator de correção para TMA.

Na figura seguinte é apresentado um espectro de massa de uma mistura de Xe – TMA obtido a uma energia de impacto de 70 eV.

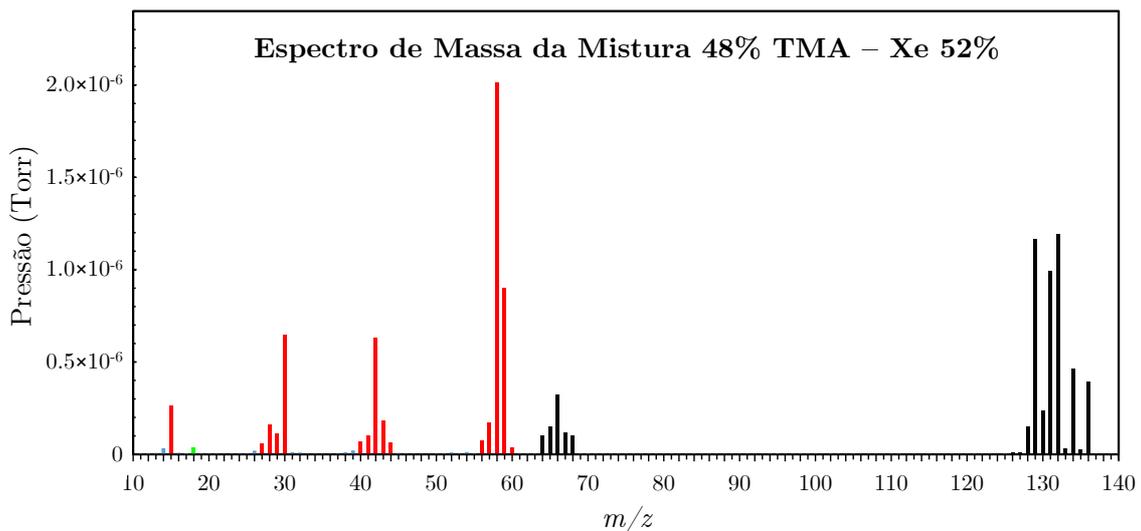


Figura 11 – Espectro de Massa da mistura 48% TMA – Xe 52%. A informação obtida para os fragmentos iônicos é representada consoante a sua proveniência: Xe – preto; TMA – vermelho; H₂O (m/z de 17 e 18) – verde; origens desconhecidas – azul. Energia: 70 eV. Corrente: 1000 μ A. Pressão: 8×10^{-6} Torr.

2.2.1.2 Resultados Experimentais

Estudaram-se várias misturas de Xe – TMA com frações de TMA entre 0.5% e 81%. A corrente e a energia dos eletrões foi de 1000 μ A e 70 eV, respetivamente. Para cada mistura foi feita uma análise do gás residual da linha de vácuo, uma

análise do gás da mistura e, novamente, uma análise do gás residual. Do histograma resultante obteve-se a composição da mistura dada pelo RGA.

Assim, com os valores de frações de TMA estimados através de diluição sucessiva (0.5%, 1.5%, 5%, 27%, 48%, 60% e 81%), e os valores medidos diretamente pelo RGA, construiu-se um gráfico (figura 12), em que o comportamento é linear com declive 1.0722.

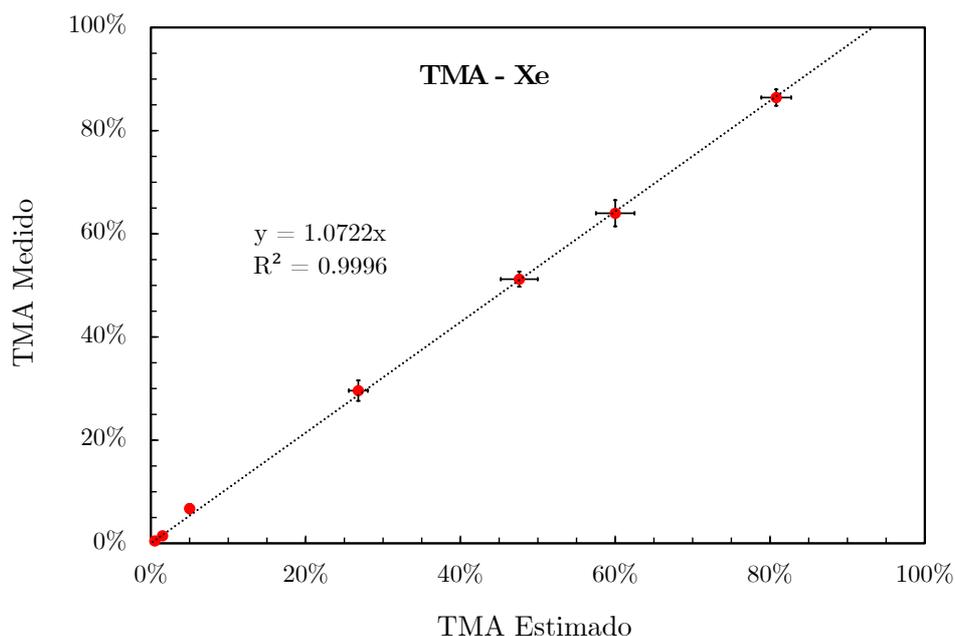


Figura 12 – Fração de TMA medida pelo RGA em função da fração de TMA estimada. O tracejado representa a reta de calibração, cujo declive é usado na determinação do fator de correção de gás para TMA com este RGA. A energia e a corrente de elétrons foram 70 eV e 1000 μ A, respetivamente.

2.2.1.3 Análise de Resultados e Conclusões

Para este RGA, de acordo com a base de dados, o fator de correção para Xe é de 3.0. Os resultados obtidos evidenciam a proporcionalidade entre as frações estimadas e medidas. O fator de proporcionalidade é de 1.0722. Atendendo ao fator de correção para o Xe (3.0), para TMA o fator é de ~3.2.

Para confirmar os resultados testou-se uma mistura com percentagens estimadas de 50% – 50% de CH_4 – TMA. Os valores obtidos com o RGA foram de ~33% de CH_4 e ~66% de TMA. Com o fator de correção para CH_4 1.6, o fator

de correção para TMA, neste caso, é de 3.2, o mesmo valor determinado anteriormente.

2.2.2 Limiares de Ionização de TMA por Impacto de Eletrões

O estudo dos limiares de ionização de TMA por impacto de eletrões realizado com o RGA é um complemento do estudo das características das misturas Xe – TMA que realizámos. Visa a identificação dos iões formados por impacto de eletrões em TMA em função da energia do eletrão, a determinação da energia de ionização e da energia de aparecimento de cada fragmento iónico produzido em TMA. Os dados existentes na literatura são escassos, e quisemos contribuir para colmatar essa lacuna. Tornará também mais fácil a análise dos resultados obtidos de mobilidade iónica em TMA e misturas Xe – TMA do próximo capítulo.

Como descrito atrás, a análise do gás residual é feita através da intensidade de corrente iónica gerada por impacto de eletrões. Os eletrões são gerados, por efeito termoiónico num filamento. Regulando a corrente e energia dos eletrões podemos produzir ionização direta, com a formação do ião TMA^+ , ou dissociação ionizante da molécula. Podem ocorrer processos de segunda ordem como fragmentação dos iões através de reações espontâneas [81]. O aumento da energia dos eletrões abre novos canais e possibilidade de formação de novos iões.

Este trabalho deu origem a uma publicação em *Journal of Instrumentation* [82].

2.2.2.1 Metodologia

Como referido anteriormente, o limite inferior de corrente iónica detetável é 1×10^{-15} A. No entanto, para estes valores de corrente há a possibilidade de confusão com ruído eletrónico ou flutuações estatísticas. O critério de consistência de resultados permite, normalmente, eliminar essa possibilidade. Outro aspeto relevante, é a sensibilidade do aparelho que, segundo o fabricante, é de 4 ordens

de grandeza, ou seja, o aparelho só consegue detetar simultaneamente picos cuja razão seja superior a 1/10 000.

A escolha do modo de operação do RGA depende da informação que se pretende obter. Num dos modos, referido na secção 2.1.1, analisa-se a pressão parcial por varrimentos num intervalo definido de m/z dos iões. Num outro modo, que foi usado aqui, fazem-se leituras da pressão de iões com um ou mais valores de m/z em função do tempo. Este é o modo usado, por exemplo, na deteção de fugas da linha de vácuo.

Para identificar os picos de TMA, com sistema de vácuo em bombeamento contínuo, foi admitido um fluxo contínuo de TMA através de uma válvula de agulha, elevando a pressão para $\sim 8 \times 10^{-6}$ Torr. Registaram-se os iões presentes a 70 eV, a energia máxima utilizada, com uma corrente de 100 μA de eletrões que se mostram na figura 13. É possível distinguir vinte picos diferentes, um resultado análogo ao apresentado em [81].

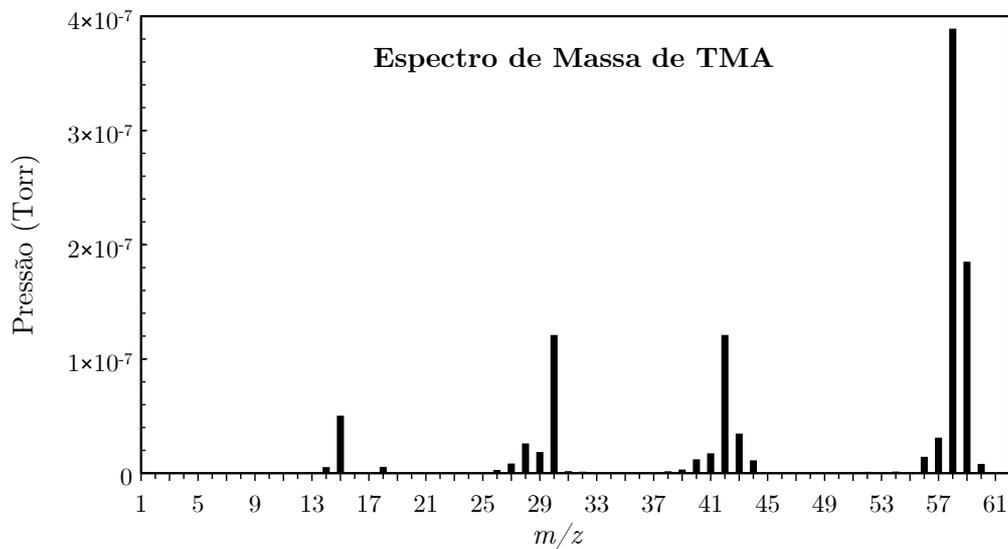


Figura 13 – Espectro típico de TMA a 70 eV – 100 μA . Pressão 8×10^{-6} Torr [82].

Para determinar a energia de aparecimento de cada uma das espécies iónicas fez-se um varrimento para as energias de eletrões, entre 7.5 e 70 eV. O incremento de energia normal era de 0.5 eV, mas sempre que um novo ião parecia surgir, diminui-se o incremento para 0.1 eV para determinar com maior rigor a energia de aparecimento de cada espécie iónica. A corrente eletrónica, sempre que possível, foi mantida a 100 μA , no entanto, para energia dos eletrões inferiores a

13 eV, o fabricante indica a corrente máxima aconselhada. Para 7.5 eV é de 40 μA . O aumento da energia dos elétrons foi sendo acompanhado, de acordo com o permitido, do aumento da corrente eletrônica. Acima de 13.0 eV passou a usar-se corrente de 100 μA . Os resultados obtidos com valores inferiores de corrente de elétrons, foram normalizados aos obtidos a 100 μA .

Determinou-se a energia de aparecimento dos iões mais abundantes (10 picos mais intensos), ou seja, em termos de m/z , os iões: 15 – CH_3^+ , 28 – H_2CN^+ , 29 – CH_3N^+ ou C_2H_5^+ , 30 – CH_4N^+ , 41 – C_3H_5^+ ou $\text{C}_2\text{H}_3\text{N}^+$, 42 – $\text{C}_2\text{H}_4\text{N}^+$, 43 – $\text{C}_2\text{H}_5\text{N}^+$, 57 – $\text{C}_3\text{H}_7\text{N}^+$, 58 – $\text{C}_3\text{H}_8\text{N}^+$, 59 – $\text{C}_3\text{H}_9\text{N}^+$ [81].

Cada medida no RGA foi feita com a aquisição do sinal em contínuo durante pelo menos cinco minutos, a que correspondem, no mínimo, dez medidas de cada pico. Para cada energia de elétrons este procedimento foi repetido pelo menos três vezes. Nas energias críticas (energias onde apareciam novos iões) o número de medidas foi superior. Assim, o resultado de cada pico é a média de dezenas de medidas. O erro associado a cada medida é obtido pelo desvio padrão das diferentes medidas.

Dadas as flutuações estatísticas do RGA, sobretudo nos valores de menores energias de elétrons, próximos do limite de detecção do aparelho (corrente iônica de $\sim 10^{-15}$ A), a análise dos resultados foi sistemática e meticulosa. Na presença de um ião, a respetiva energia de aparecimento só foi considerada quando o ião fosse detetado em pelo menos 2/3 das análises e os resultados fossem consistentes.

Para garantir a validade do método fez-se um estudo semelhante com CH_4 , em que se analisaram, igualmente, as energias de aparecimento dos vários iões. A escolha de CH_4 deveu-se à abundância de dados existentes na literatura.

Os diferentes gases usados foram colocados, nas respetivas garrafas, próximo da bomba turbomolecular e do RGA, em tubagens da linha de vácuo vedadas para diminuir a pressão de gás residual no sistema. A pressão residual a que se trabalhou foi sempre inferior a 1×10^{-7} Torr. A válvula de agulha, tal como referido anteriormente, permitiu admitir o gás a fluxo constante e manter uma pressão de $\sim 8 \times 10^{-6}$ Torr, aproximadamente 2 ordens de grandeza acima da do gás residual. A monitorização da pressão no sistema foi feita por um vacuómetro Varian, modelo 525.

Na análise dos resultados há a considerar três fatores que podem influenciar a determinação da energia de aparecimento de cada ião:

1 – O sinal, para cada m/z , segundo [83], tem uma distribuição normal com um desvio padrão de 0.204. Isto significa que $\sim 1.4\%$ do sinal não é atribuído à sua origem verdadeira, podendo ser contabilizado nos picos adjacentes. Na leitura das pressões parciais de cada m/z este erro não é significativo e, normalmente, está dentro dos erros experimentais. No entanto, quando o objetivo é determinar a energia de aparecimento de um ião, é necessário considerar essa possibilidade. Os resultados que se apresentam já têm essa correção;

2 – Quando temos picos com valores de pressão parciais acima de 10^{-7} Torr, a sensibilidade de deteção fica comprometida e só são detetados picos cuja pressão parcial seja superior a $1/10000$ desse pico. Ou seja, nesse caso deixa de haver um limite de deteção fixo (1×10^{-11} Torr), tornando-se dependente da pressão parcial do pico mais abundante. Isto implica que sejam necessários eletrões de maior energia para se conseguir afirmar o aparecimento de um novo ião, que será, assim, afetada de uma incerteza adicional;

3 – A energia dos eletrões emitidos pelo filamento por efeito termoiónico obedece a uma distribuição Fermi-Dirac que, para a temperatura do filamento, é muito semelhante à distribuição de Maxwell, com uma largura de 0.5 eV a 2σ [84, 85, 86]. Assim, haverá a emissão de alguns eletrões mais energéticos do que o espectável (uma “cauda” nas altas energias). Esta distribuição assimétrica poderá levar à deteção de iões a energias inferiores à energia real (até 0.5 eV), sobretudo nos primeiros picos ou a energias de grande probabilidade (secção eficaz) de ionização.

Foi estudado o intervalo de energias de eletrões entre 7.5 e 70 eV, em intervalos de 0.1 eV nas energias próximas da energia de ionização e de aparecimento de cada ião. Fora destas zonas de energia os intervalos foram maiores.

2.2.2.2 Energias de Aparecimento dos Iões de CH_4

Como referido, para validar o método acima descrito e aferir a incerteza dos resultados, procedeu-se a um estudo da energia de aparecimento dos iões formados por impacto de eletrões na molécula de CH_4 . A primeira energia de eletrões

considerada foi 12.0 eV e incrementos de 0.1 eV. Para 12.0 eV a corrente máxima permitida é de 90 μA . A partir de 13.0 eV, passa a ser permitida corrente $\geq 100 \mu\text{A}$. Os resultados foram normalizados a correntes eletrônicas de 100 μA .

O impacto de elétrons pode originar ionizações diretas ou ionizações dissociativas. Em concreto, na molécula de CH_4 , de acordo com [87], podem ocorrer as seguintes reações:



O espectro de massa de CH_4 obtido a 70 eV mostrou picos em m/z iguais a 16, 15, 14, 13 e 12, que correspondem inequivocamente aos iões CH_4^+ , CH_3^+ , CH_2^+ , CH^+ e C^+ , respetivamente.

A figura 14 mostra os resultados obtidos para a energia de aparecimento de cada um dos fragmentos carregados da molécula de CH_4 . Para ser possível ver a evolução das curvas de pressão parcial junto aos limiares, estão também representados os resultados com amplificação de 20 para CH_4^+ e CH_3^+ e amplificação de 10 para os restantes iões.

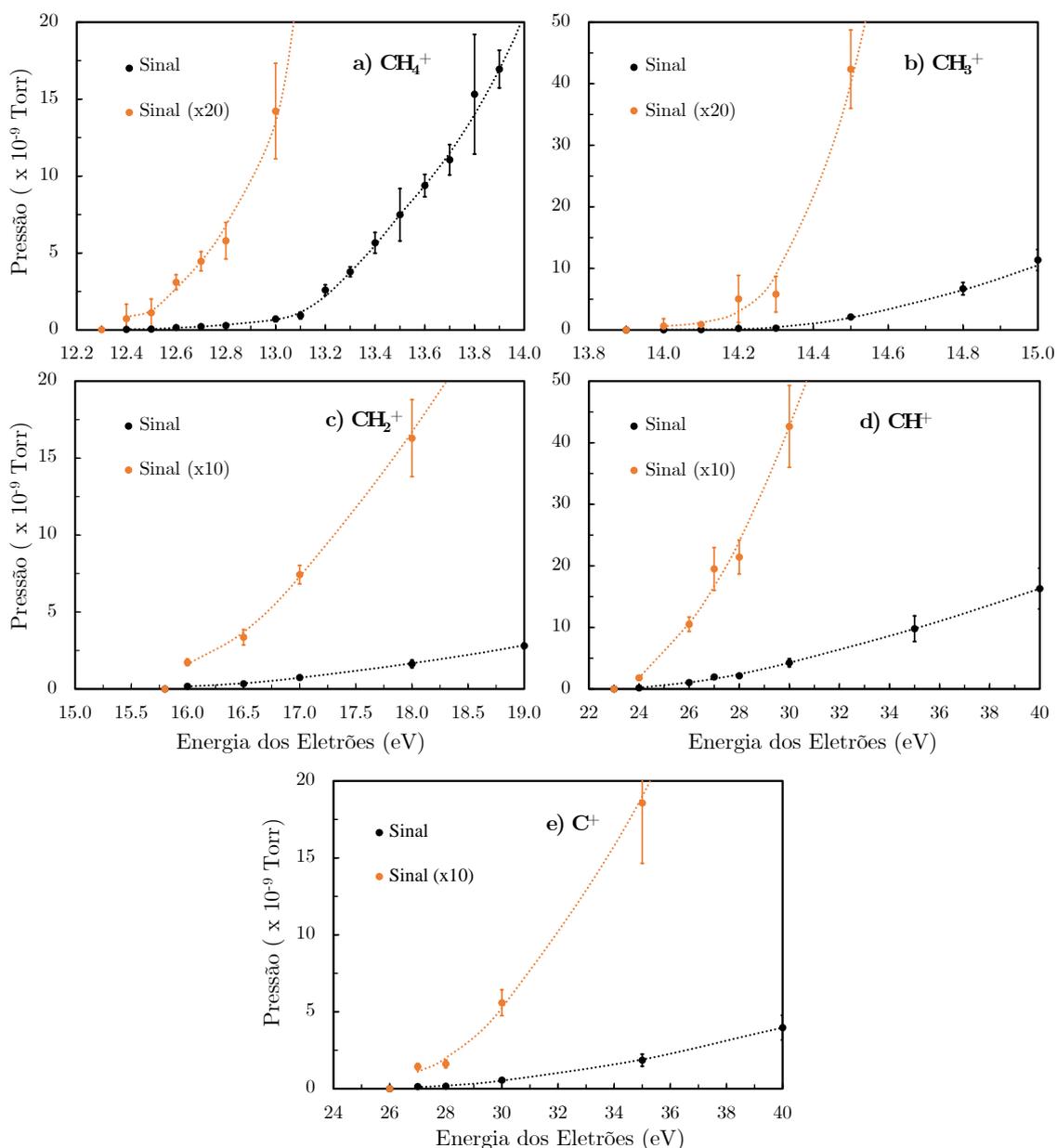


Figura 14 – Pressão parcial dos iões CH₄⁺ (a), CH₃⁺ (b), CH₂⁺ (c), CH⁺ (d) e C⁺ (e), produzidos em CH₄, em função da energia de impacto, nas regiões próximas das energias de aparecimento de cada espécie iônica. As curvas a tracejado são linhas guia [82].

Como foi descrito, foram sendo feitas análises a partir de 12.0 eV com incrementos regulares. O primeiro ião a ser detetado foi o ião CH₄⁺ (m/z 16) por ionização direta da molécula de metano (equação 2.1). Este ião foi detetado a 12.4 eV. Contudo a eficiência de ionização só cresce significativamente a partir de 12.5 eV, como se pode verificar na figura 14a. Como a 12.3 eV não foi detetada a presença do ião, considerou-se que a energia de aparecimento do ião CH₄⁺ é de

12.4 eV, um valor abaixo dos valores reportados em [88] – 12.615 ± 0.010 eV, em [89] – 12.63 ± 0.02 eV e em [87] – 12.65 ± 0.04 eV. Esta divergência de ~ 0.2 eV pode ser justificada pela emissão de eletrões da “cauda” da distribuição de energia a 12.4 eV (com uma energia superior a 12.4 eV), como referido em [89]. Perante esta discrepância consideramos que a incerteza de 0.5 eV da distribuição de energia de emissão dos eletrões é demasiado conservadora, sendo mais realista considerar uma incerteza de 0.2 eV nestas condições de operação. Assim, atribuímos o valor de 12.4 ± 0.2 eV à energia de ionização do metano.

O fragmento CH_3^+ (m/z 15) é produzido por dois processos: equação 2.2a, com maior probabilidade e a equação 2.2b com menor probabilidade, mas para menores valores de energia [89]. Na figura 14b podemos ver o aparecimento do ião de um sinal em $m/z = 15$, a 14.0 eV. Mantendo a análise feita a CH_4^+ , considerou-se que a energia de aparecimento do ião CH_3^+ é 14.0 ± 0.2 eV, sendo estes resultados coerentes com os resultados apresentados por diversos autores para a energia de aparecimento do ião pelo processo descrito em (2.2a) – 14.01 ± 0.08 eV [89], 14.34 ± 0.10 eV [87], 14.30 ± 0.02 eV [90]. Considerou-se também que o nosso sistema não tem sensibilidade para detetar o aparecimento do fragmento CH_3^+ pelo processo descrito na equação 2.2b, por ser um processo com baixa probabilidade (baixa secção eficaz) [89]. Este processo (2.2b) tem uma energia de aparecimento de aproximadamente 13.6 eV [87, 89, 90].

Na energia de aparecimento dos iões menos abundantes (CH_2^+ , CH^+ e C^+), a pressão parcial dos iões mais abundantes (CH_4^+ e CH_3^+) atinge valores superiores a 10^{-7} Torr. Esta pressão dos picos mais abundantes limita a sensibilidade de deteção do RGA, refletindo-se numa energia de aparecimento de cada fragmento superior à real. A incerteza da energia de aparecimento dos iões proveniente da distribuição de energia dos eletrões emitidos leva à deteção do ião a energias menores que as energias efetivas. Já a diminuição de sensibilidade do RGA leva à deteção dos fragmentos iónicos menos abundantes a energias mais elevadas do que as energias efetivas.

O ião CH_2^+ (m/z 14), ocorre a uma energia de 16.0 eV (figura 14c). Os valores reportados na literatura são 15.06 ± 0.02 eV [89], 15.1 ± 0.1 eV [87], e 15.19 ± 0.02 [88]. O aparecimento deste fragmento a aproximadamente 1 eV acima do esperado vem da diminuição da sensibilidade do RGA. De facto, a pressão parcial do ião

CH_4^+ é de $\sim 1.2 \times 10^{-7}$ Torr. Assim, neste caso, tendo em conta a incerteza da distribuição da energia dos eletrões (a “cauda” para energias mais elevadas) e a diminuição da sensibilidade do RGA, considerou-se que o aparecimento de CH_2^+ ocorre a $16.0^{+0.2}_{-1.0}$ eV.

Os processos que levam ao aparecimento dos iões CH^+ e C^+ , descritos nas equações 2.4a, 2.4b e 2.5, têm secção eficaz muito baixa para a energia de aparecimento, cerca de quatro ou mais ordens de grandeza inferiores aos dos iões CH_4^+ e CH_3^+ para a mesma energia. Por isso, a energia de aparecimento do ião CH^+ é 24 eV e a do ião C^+ 27 eV, como se pode verificar nas figuras 15d e 15e. Estes valores são superiores aos valores apresentados em [89] – 19.1 ± 0.2 eV e em [87] – 19.8 ± 0.2 eV, para o ião CH^+ e em [89] – 19.6 ± 0.2 eV e em [87] – 20.5 ± 0.2 eV para o ião C^+ e um pouco mais próximos dos valores experimentais obtidos por [91] (CH^+ - 22.2 ± 0.4 eV e C^+ - 25 ± 2 eV) e por [92] (CH^+ - 22.4 eV e C^+ - < 25.2 eV). Neste caso, quando a pressão do pico mais abundante é 4 – 5 ordens de grandeza superior a 1.2×10^{-7} Torr, conclui-se que a sensibilidade do sistema não permite fazer uma análise rigorosa da energia de aparecimento destes iões menos abundantes.

A tabela 1 tem os resultados das energias de aparecimento de cada um dos iões obtidos e de outros autores referidos.

Tabela 1 – Energia de aparecimento dos iões de CH_4 por impacto de eletrões (em eV).

CH_4^+	CH_3^+	CH_2^+	CH^+	C^+	Referência
12.4 ± 0.2	- 14.0 ± 0.2	$16.0^{+0.2}_{-1.0}$	*	*	Neste Estudo
12.63 ± 0.02	13.25 ± 0.08 14.01 ± 0.08	15.06 ± 0.02	19.11 ± 0.20 19.87 ± 0.20	19.56 ± 0.20	[89]
12.65 ± 0.04	13.58 ± 0.10 14.34 ± 0.10	15.1 ± 0.1	19.8 ± 0.1 20.5 ± 0.2	20.5 ± 0.2	[87]
12.615 ± 0.010 [88]	13.6 [90] 14.3 [90]	15.19 ± 0.02 [88]	22.2 ± 0.4 [91] 22.4 [92]	25 ± 2 [91] < 25.2 [92]	(outros)

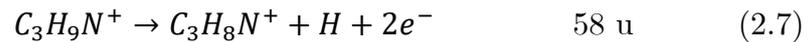
* A sensibilidade do sistema não permite determinar com rigor a energia de aparecimento destes iões menos abundantes

Este estudo com o gás metano permite concluir que o sistema experimental e o método desenvolvidos são válidos para determinar as energias de aparecimento dos diversos iões ou fragmentos iónicos de uma molécula, exceto quando a

abundância relativa é quatro ordens de grandeza inferior à de outros íons produzidos para a mesma energia. O método permite ainda avaliar a incerteza na energia de aparecimento das espécies iônicas nas condições em que ocorrem. Assim, na determinação da energia de ionização da molécula e da energia de aparecimento dos íons seguintes, a incerteza na energia é atribuída à distribuição de energia dos elétrons emitidos pelo filamento (0.2 eV). Na determinação da energia de aparecimento de novos íons, quando existe um pico com pressão parcial aproximadamente 4 ordens de grandeza superior (1×10^{-7} Torr) à do novo íon, a incerteza aumenta para 1 eV. Também se concluiu que, quando há íons com pressões 4 – 5 ordens de grandeza superiores ao limite de detecção, o sistema não tem precisão suficiente para determinar a energia de aparecimento de novos íons.

2.2.2.3 Energias de Aparecimento dos Íons de TMA

A ionização de TMA por impacto de elétrons leva à criação de diversos íons, produzidos por ionização direta ou por fragmentações da molécula. Hvistendahl [81] identificou a maioria dos fragmentos observados por espectrometria de massa e indica o processo que leva à formação de cada um desses fragmentos. Os fragmentos observados têm a sua formação a partir das seguintes reações:





Neste estudo mediu-se a energia de ionização de TMA e a energia de aparecimento dos 10 iões mais abundantes observados num espectro de massa obtido com energia de impacto de 70 eV. A soma das pressões parciais destes dez picos mais intensos corresponde a ~93% da pressão total a 70 eV.

A figura seguinte mostra os resultados obtidos. Para melhor analisar a evolução da pressão parcial de cada pico perto da energia de aparecimento, também se mostram os resultados amplificados por um fator de 10.

Partindo de uma energia de 7.5 eV e com incrementos de 0.1 eV, procurou-se o aparecimento de um sinal proveniente da ionização da molécula de TMA. A 7.9 eV foi detetado um sinal no espectrómetro de massa para m/z 59, correspondendo este sinal ao aparecimento do ião $((CH)_3)_3N^+$. Apesar de este ião aparecer a 7.9 eV (figura 15a), o sinal só cresce de forma significativa aproximadamente 0.3 eV depois (~8.2 eV), provavelmente pela existência de mais de um estado do ião. Assumindo a incerteza na energia de emissão dos eletrões considerada em CH_4 , nesta gama de energias, estima-se que a energia de ionização de TMA seja 7.9 ± 0.2 eV. O valor estimado está de acordo com a base de dados do *National Institute of Standards and Technology* (NIST) [80] que indica o valor de 7.85 ± 0.05 eV, baseado em experiências que obtiveram os valores 7.83 ± 0.02 eV [93] e 7.82 ± 0.02 eV [94]. Para energias de 7.9 eV, a corrente de emissão de eletrões máxima permitida é de 40 μA . Esta corrente, inferior à utilizada para determinação da energia de ionização de CH_4 (90 μA), dá origem a uma distribuição de energia menor largura, razão pela qual o ião TMA^+ não aparece a energias inferiores, às esperadas como em CH_4 .

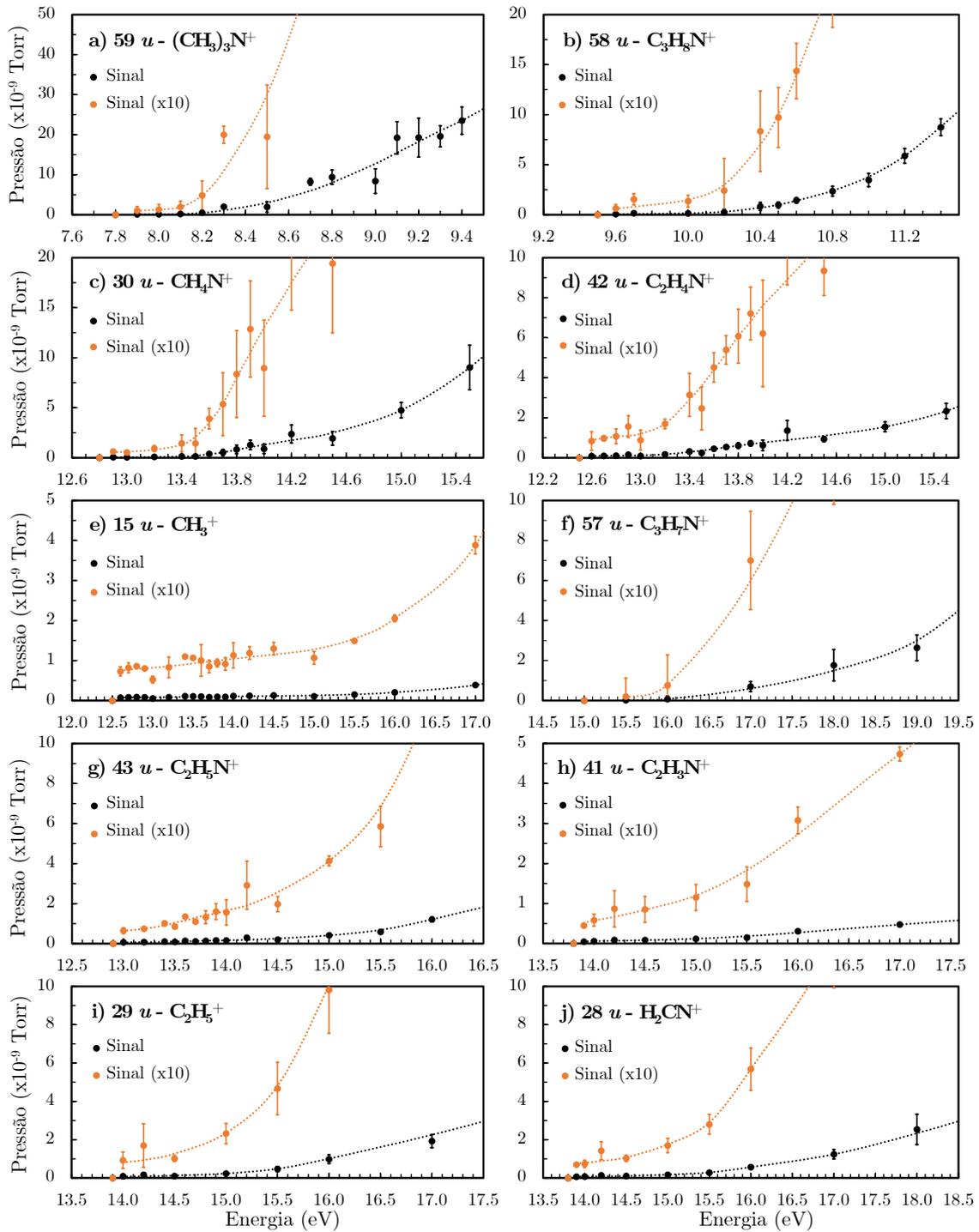


Figura 15 – Pressão parcial dos íons $(\text{CH}_3)_3\text{N}^+$ (a), $\text{C}_3\text{H}_8\text{N}^+$ (b), CH_4N^+ (c), $\text{C}_2\text{H}_4\text{N}^+$ (d), CH_3^+ (e), $\text{C}_3\text{H}_7\text{N}^+$ (f), $\text{C}_2\text{H}_5\text{N}^+$ (g), $\text{C}_2\text{H}_3\text{N}^+$ (h), C_2H_5^+ (i) e H_2CN^+ (j) produzidos em TMA, em função da energia de impacto, nas regiões próximas das energias de aparecimento de cada espécie iônica. As curvas tracejadas são linhas guia [82].

O íon $\text{C}_3\text{H}_8\text{N}^+$ (m/z 58), de acordo com [81] (equação 2.7), é o precursor da maioria dos fragmentos que aparecem no espectro de massa e aparece a 9.6 eV

(figura 15b). Tal como anteriormente, considerou-se a incerteza de 0.2 eV neste valor. Verifica-se ainda que a eficiência de ionização apenas tem um crescimento significativo acima de 10.0 eV, comportamento semelhante ao do primeiro ião (crescimento significativo do pico ~ 0.3 eV acima da energia de aparecimento). Assim, considerou-se que a energia de aparecimento do ião $C_3H_8N^+$ é 9.6 ± 0.2 eV, valor muito próximo do valor determinado em [90] – 9.38 ± 0.10 eV. A energia de aparecimento deste ião também foi determinada em [95] e em [96], com valores de 10.55 eV e 9.8 eV, respetivamente.

De acordo com [81], o ião com m/z de 30 u corresponde ao ião CH_4N^+ . O processo de criação deste ião está na equação 2.8. A deteção deste fragmento ocorre a 12.9 eV (figura 15c). No entanto, a pressão do pico mais abundante é $\sim 1 \times 10^{-7}$ Torr. Nestas condições, tal como aconteceu na determinação da energia de aparecimento de CH_2^+ , considera-se uma incerteza acrescida devido à diminuição da sensibilidade de deteção do sistema. Assim, considerou-se a incerteza de 1 eV para energias menores e 0.2 eV para as energias superiores, tal como se fez em metano, ou seja, a energia de aparecimento é de $12.9_{-1.0}^{+0.2}$ eV.

Como os restantes iões aparecem em condições de deteção muito semelhantes (pressão do ião mais abundante aproximadamente constante) atribuímos aos restantes iões uma incerteza de 1.0 eV para energias inferiores, e 0.2 eV para energias superiores.

O quarto ião mais abundante observado no espectro de massa a 70 eV, é um ião com m/z de 42. De acordo com [81], é o ião $C_2H_4N^+$ gerado através de três canais diferentes: por ionização direta, que leva à fragmentação da molécula, e pelas reações das equações 2.9a e 2.9b, com percursos diferentes. Na figura 15d pode ser observado o aparecimento do sinal a 12.6 eV com um crescimento acentuado a ~ 13.2 eV, provavelmente pela ocorrência de outros canais de produção deste ião. Considerou-se, assim, a energia de aparecimento deste ião em $12.6_{-1.0}^{+0.2}$ eV.

O quinto ião mais abundante é o ião com $m/z = 15$, que, de acordo com [81] é o fragmento CH_3^+ (equação 2.10). O aparecimento deste ião ocorre a 12.6 eV (figura 15e), mas o sinal apenas tem um crescimento significativo a ~ 15.5 eV. Como a energia de aparecimento do precursor ($C_2H_4N^+$) é 12.6 eV, acredita-se que este canal só deverá ocorrer para energias próximas de 15.0 eV, 0.5 eV abaixo

do valor a que ocorre a subida significativa do sinal, tal como ocorreu nos iões anteriores. Este valor (~ 15 eV) está de acordo com os 14.9 eV de [97]. Em [98] o valor apontado para o mesmo ião é de 14.0 ± 0.1 eV. Considerou-se, assim, que a energia de aparecimento deste ião é $12.6^{+0.2}_{-1.0}$ eV, mas provavelmente por um outro canal menos provável, não referido na literatura, que ocorra a uma energia inferior à de fragmentação de $C_2H_4N^+$.

A 70 eV, o conjunto de picos até agora analisados corresponde a de cerca de 85% do sinal total. Os próximos cinco picos têm abundâncias relativas inferiores a 3.5% a 70 eV.

O pico para $m/z = 57$ corresponde ao ião $C_3H_7N^+$ (figura 15f). Este ião, segundo [81] resulta de dois processos diferentes de fragmentação da molécula (equações 2.11a e 2.11b). A deteção de sinal para $m/z = 57$ ocorre a 15.5 eV. Seguindo os argumentos adotados para os iões anteriores decidiu-se considerar aparecimento deste ião a $15.5^{+0.2}_{-1.0}$ eV.

O pico com m/z de 43, segundo [81], corresponde maioritariamente (95%) ao ião $C_2H_5N^+$ (equação 2.12) e é detetado a energias iguais ou superiores a 13.0 eV (figura 15g). Considerou-se que a energia de aparecimento deste fragmento é de $13.0^{+0.2}_{-1.0}$ eV.

Segundo [81], o pico com $m/z = 41$ corresponde a dois diferentes fragmentos (equações 2.13a e 2.13b): os fragmentos $C_2H_3N^+$ e $C_3H_5^+$, com abundâncias relativas de 89% e 11%, respetivamente. O aparecimento do pico correspondente ocorre a 13.9 eV (figura 15h) e considerou-se a energia de aparecimento deste fragmento (41 u) $13.9^{+0.2}_{-1.0}$ eV.

O pico com $m/z = 29$, de acordo com [81], corresponde predominantemente ao ião $C_2H_5^+$ (92%), e do ião CH_3N^+ (4%). A formação destes dois fragmentos é indicada nas equações 2.14a e 2.14b, respetivamente. O pico é detetado a 14.0 eV (figura 15i). A energia de aparecimento atribuída ao fragmento com 29 u é $14.0^{+0.2}_{-1.0}$ eV.

O último pico a ser analisado foi o correspondente a m/z 28. Segundo [81], este pico corresponde ao ião H_2CN^+ . Há três processos na origem deste ião (equações 15a, 15b e 15c). Este ião é detetado a 13.9 eV (figura 15j). Mais uma vez, considerou-se que a energia de aparecimento deste ião é $13.9^{+0.2}_{-1.0}$ eV.

As tabelas seguintes, mostram a energia de ionização da molécula de TMA e as energias de aparecimento de vários iões produzidos por impacto de elétrões e outros valores disponíveis na literatura. A Tabela 2 apresenta os cinco fragmentos iónicos mais abundantes e a Tabela 3 para os seguintes cinco mais abundantes, ambos a 70 eV.

Tabela 2 – Energia de ionização de TMA e energia de aparecimento (em eV) dos cinco fragmentos iónicos mais abundantes a 70 eV, produzidos em TMA por impacto de elétrões.

59 <i>u</i> (CH₃)₃N⁺	58 <i>u</i> C₃H₈N⁺	30 <i>u</i> CH₄N⁺	42 <i>u</i> C₂H₄N⁺	15 <i>u</i> CH₅⁺	Referência
7.9±0.2	9.6±0.2	12.9 ^{+0.2} _{-1.0}	12.6 ^{+0.2} _{-1.0}	12.6 ^{+0.2} _{-1.0}	Neste Estudo
7.85±0.05 [80]	9.38±0.10 [90]			14.9 [97]	
7.83±0.02 [93]	10.55 [95]			14.0±0.1 [98]	
7.82±0.02 [94]	9.8±0.1 [96]				

Tabela 3 – Energia de aparecimento, em eV, determinada para outros cinco fragmentos iónicos, produzidos em TMA por impacto de elétrões.

57 <i>u</i> C₃H₇N⁺	43 <i>u</i> C₂H₅N⁺	41 <i>u</i> C₂H₃N⁺	29 <i>u</i> C₂H₅⁺	15 <i>u</i> C₂H₄⁺
15.5 ^{+0.2} _{-1.0}	13.0 ^{+0.2} _{-1.0}	13.9 ^{+0.2} _{-1.0}	14.0 ^{+0.2} _{-1.0}	13.9 ^{+0.2} _{-1.0}

2.2.3 Abundância Relativa de Diferentes Iões de TMA

Outro dado importante sobre a molécula de TMA é a abundância relativa de cada ião formado por impacto de elétrões, agora apresentado para energias até 70 eV. Esta informação não está presente na literatura e surgiu na sequência do estudo anterior.

2.2.3.1 Metodologia

Para este estudo registaram-se as pressões parciais correspondentes a cada pico em função do tempo, para diversas energias, entre 7.5 e 70 eV.

O método utilizado foi semelhante ao da secção anterior: para cada energia foram acumuladas leituras do espectrómetro durante, pelo menos, cinco minutos para cada m/z , garantindo pelo menos dez leituras consecutivas de pressão. Após estas leituras, foi calculada a média dos resultados e analisada a abundância relativa de cada um deles. Cada medida foi repetida diversas vezes. Estudaram-se apenas os dez picos mais intensos detetados no intervalo de energias considerado. Segundo [81], estes dez picos correspondem na realidade a doze iões diferentes, já que dois pares de iões $\text{CH}_3\text{N}^+ - \text{C}_2\text{H}_5^+$ e $\text{C}_2\text{H}_3\text{N}^+ - \text{C}_3\text{H}_5^+$ têm a mesma massa e não são distinguíveis. Verificou-se que os dez picos correspondem a aproximadamente 93% do total de iões formados por impacto de eletrões com energias de 70 eV. Estes resultados são consistentes com os resultados de [81].

Tal como anteriormente, estudou-se também CH_4 para validar o método.

2.2.3.2 Abundância Relativa dos Iões de CH_4

Como referido (secção 2.2.2), o espectro de massa obtido com CH_4 a 70 eV tem picos a m/z de 16, 15, 14, 13 e 12, que correspondem aos iões CH_4^+ , CH_3^+ , CH_2^+ , CH^+ e C^+ , respetivamente. Não foram considerados os iões H^+ e H_2^+ .

A energia inicial considerada foi 12.4 eV (energia de ionização) e correntes de eletrões de 90 μA . Para energias acima de 13.0 eV, a corrente de eletrões passou a 100 μA . Os resultados obtidos com correntes de 90 μA foram normalizados a 100 μA .

A figura 16 a), mostra os valores absolutos da pressão total e pressões parciais dos iões e a figura 16 b) mostra a abundância relativa de cada uma das espécies, ambas em função da energia dos eletrões.

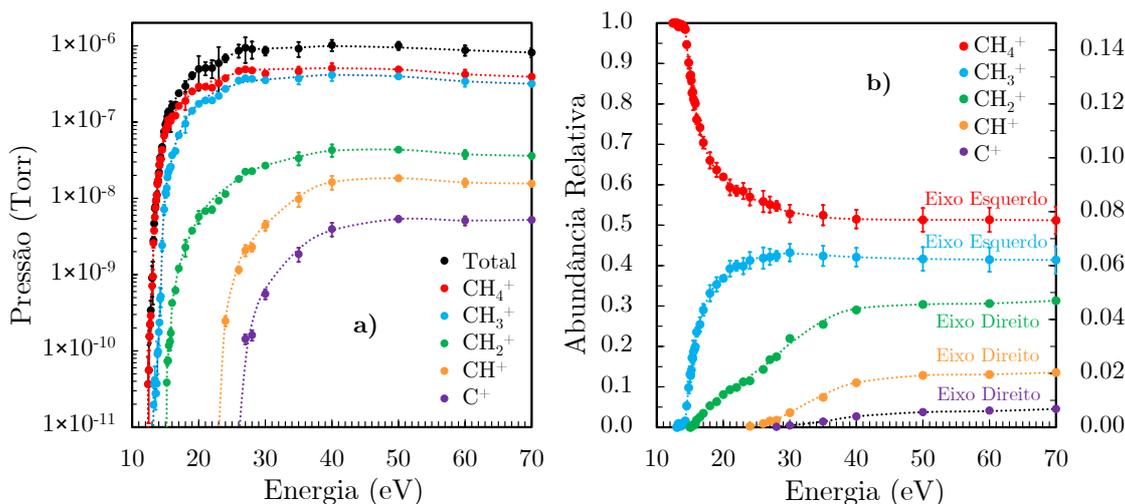


Figura 16 – Pressão parcial das diferentes espécies de iões produzidos por impacto de eletrões em CH₄, em função da energia dos eletrões. Em a) apresentam-se os valores absolutos juntamente com a pressão total e em b) a abundância relativa de cada um dos iões, até 70 eV. Pressão total de 8×10⁻⁶ Torr. Corrente de eletrões normalizada a 100 μA. Os iões H₂⁺ e H⁺ não foram considerados. As linhas a tracejado são linhas guia [82].

Na figura 16 é possível observar que, neste intervalo de energias, o ião CH₄⁺ é sempre o mais abundante. O conjunto das pressões parciais dos iões CH₄⁺ e CH₃⁺ constitui mais de 90% para a pressão total. A partir de 40 eV existe uma estabilização das abundâncias relativas dos iões com valores aproximados de 51%, 41%, 5%, 2% e 1%, para os iões CH₄⁺, CH₃⁺, CH₂⁺, CH⁺ e C⁺, respetivamente, valores concordantes com os de [91, 99]. Os resultados confirmaram novamente a validade do método e fundamentam a confiança nos resultados de TMA.

2.2.3.3 Abundância Relativa dos Iões de TMA

Como foi referido anteriormente, a ionização da molécula TMA por impacto de eletrões leva ao aparecimento de variadíssimas espécies iónicas, produzidas por diferentes canais de fragmentação das quais se determinou a energia de aparecimento. Nesta secção veremos os resultados obtidos para as pressões parciais, bem como a abundância relativa em função da energia dos eletrões.

Tal como anteriormente, estudaram-se os dez picos mais abundantes observados no espectro de massa a 70 eV: 15u – CH₃⁺, 28u – H₂CN⁺,

29u – CH_3N^+ ou C_2H_5^+ , 30u – CH_4N^+ , 41u – C_3H_5^+ ou $\text{C}_2\text{H}_3\text{N}^+$, 42u – $\text{C}_2\text{H}_4\text{N}^+$, 43u – $\text{C}_2\text{H}_5\text{N}^+$, 57u – $\text{C}_3\text{H}_7\text{N}^+$, 58u – $\text{C}_3\text{H}_8\text{N}^+$, 59u – $\text{C}_3\text{H}_9\text{N}^+$.

As figuras seguintes mostram a pressão total e as pressões parciais de cada ião medidas em função a energia de elétrões até 70 eV, (figura 17) e a abundância relativa de cada ião (figura 18).

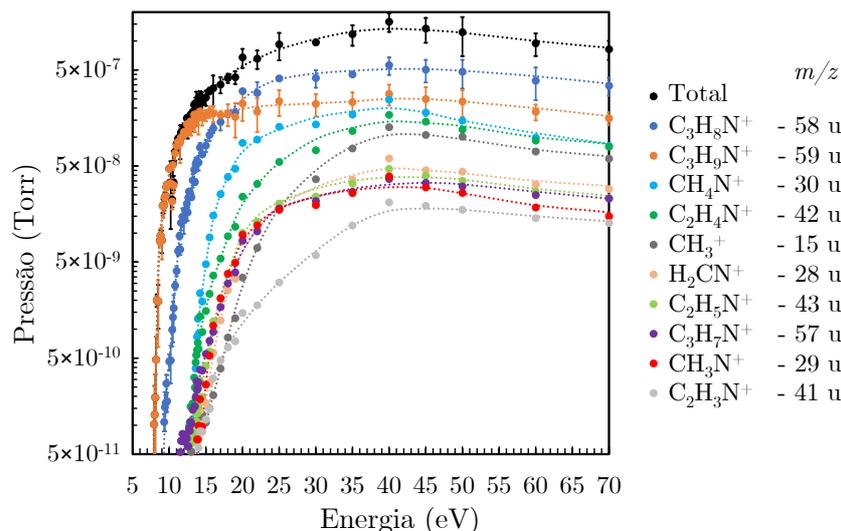


Figura 17 – Pressão parcial de cada um dos íons produzidos por impacto de elétrões em TMA, juntamente com a pressão total, em função da energia (até 70 eV). Pressão total de 8×10^{-6} Torr. Corrente de elétrões normalizada a 100 μA . As linhas a tracejado são linhas guia [82].

Na figura 17 pode verificar-se que o ião de 59 u é o primeiro a aparecer (7.9 eV) e o mais abundante até 18 eV. A partir desta energia e até 70 eV o ião mais abundante é o de 58 u. Em TMA, o primeiro ião a aparecer só é o mais abundante até energias de 18 eV. Em metano o primeiro ião a aparecer é sempre o mais abundante até 70 eV.

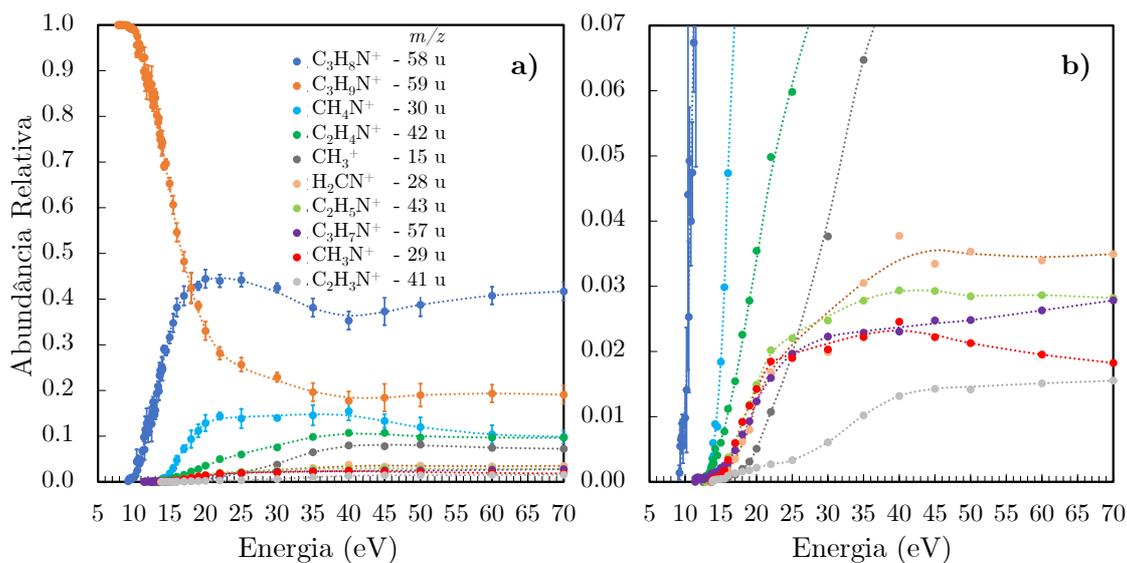


Figura 18 – Abundância relativa dos íons em função da energia. b) mostra uma ampliação da escala para melhor observação da informação para os íons menos abundantes. Não foram colocadas barras de erro em todas as séries para simplificar a figura. Pressão 8×10^{-6} Torr. Corrente de elétrons de $100 \mu\text{A}$. As linhas a tracejado são linhas guia [82].

A figura 18 mostra que, a partir de 30 – 40 eV, a abundância relativa de íons estabiliza. Os cinco picos menos intensos têm uma abundância relativa inferior a 3.5%. A figura 18b tem uma ampliação da escala da figura 18a para evidenciar a abundância relativa dos picos menos abundantes na região da energia de aparecimento.

Calculou-se o erro associado a cada valor, mas apenas estão representados os erros para três íons mais abundantes.

2.2.4 Conclusões

Neste capítulo descreve-se o estudo da determinação da energia de ionização de TMA, $(\text{CH}_3)_3\text{N}$, e da energia de aparecimento de diversos fragmentos iônicos que se formam por dissociação da molécula, após o impacto de elétrons. Também foi determinada a abundância relativa destas espécies iônicas em função da energia dos elétrons até 70 eV. Foi usado um espectrômetro de massa (RGA). A pressão de trabalho foi de 8×10^{-6} Torr e foram analisadas as dez espécies iônicas mais abundantes, cerca de 93% da totalidade dos íons formados a 70 eV.

A energia de ionização de TMA determinada foi 7.9 ± 0.2 eV, em concordância com a maioria dos dados publicados. A energia de aparecimento de $C_3H_8N^+$ adotada foi 9.6 ± 0.2 eV, valor igualmente semelhante aos valores referidos na literatura. Os dez fragmentos iônicos analisados têm uma energia de aparecimento inferior a 15.5 eV, mas a 14 eV já apareceram nove desses dez fragmentos iônicos.

Relativamente à abundância relativa, determinou-se que até 18 eV o ião predominante é $(CH_3)_3N^+$, sendo que acima desta energia passa a ser o ião $C_3H_8N^+$. A abundância relativa dos cinco iões mais abundantes é aproximadamente constante a partir de 30 eV, com valores, aproximadamente, de 40%, 20%, 10%, 10% e 7% para os iões $58u - C_3H_8N^+$, $59u - (CH_3)_3N^+$, $30u - CH_4N^+$, $42u - C_2H_4N^+$ e $15u - CH_3^+$.

Para validar o método, fez-se um estudo com metano em que foi determinada a energia de ionização e a de aparecimento dos iões CH_3^+ , CH_2^+ , CH^+ e C^+ . Os valores obtidos (12.4 ± 0.2 eV) e das energias de aparecimento de CH_3^+ e CH_2^+ estão de acordo com os valores publicados [87, 89].

Assim, é possível concluir-se que, o método utilizado para determinar a energia de ionização é um método fiável, validando os resultados obtidos para as energias de aparecimento dos fragmentos iônicos e as abundâncias relativas de cada fragmento em função da energia de impacto dos elétrons em TMA.

O resultado essencial a tirar deste trabalho é que a energia de ionização de TMA é inferior ao limiar de excitação de Xe, uma possível vantagem para o seu uso como aditivo em modo multiplicação de carga. Adicionalmente permite a identificação de iões no estudo de mobilidade dos iões formados por impacto de elétrons.

3 Propriedades das Misturas Xe – TMA

3.1 Porquê? Espectativas

O estudo das misturas Xe – TMA surge de uma hipótese proveniente da colaboração internacional NEXT [78, 100], pela necessidade de adequar os parâmetros de deriva para elétrons em xénon, às necessidades da experiência. A escolha específica de TMA vem de ter as características necessárias para alterar convenientemente os parâmetros de deriva, mas sobretudo pelas espectativas criadas de produzir efeito de *Penning* com xénon e, mais importante ainda, de poder ser conversor de c.d.o. para a radiação emitida por xénon, reemitindo-a num c.d.o. de mais fácil manipulação experimental, eventualmente simplificando o desenho do detetor. Esta é uma característica conhecida da molécula noutros c.d.o., mas não explorada para 172 nm. Se por um lado as espectativas eram altas e não confirmadas, havia propriedades do xénon como meio de deteção de radiação essenciais para a experiência que era preciso verificar que se mantinham (e.g. cintilação primária detetável).

3.2 Mobilidade Iônica em Xe – TMA

Nos detetores gasosos de radiação, a mobilidade dos iões tem um papel muito importante na formação do sinal [1, 101], na acumulação de carga espacial, etc. Concretamente, no CERN, em várias experiências com detetores gasosos (*e.g.* ALICE TPC), a possibilidade de ter de operar com grandes densidades de carga espacial positiva, requer o conhecimento da mobilidade dos iões. Esta característica, nesse ambiente, pode mesmo determinar a escolha de uma mistura em detrimento de outras.

Recentemente, em física de partículas, novas misturas gasosas estão a ser propostas para as quais o conhecimento da mobilidade de iões não está estabelecido. Nomeadamente na colaboração internacional NEXT, cujo meio de deteção é xénon gasoso a alta pressão, com o propósito de aumentar a velocidade de deriva e de diminuir a difusão dos eletrões, várias novas misturas são apontadas como opções possíveis para meio de deteção [10, 78, 100, 102 – 105]. A mobilidade dos iões pode ser um fator determinante na escolha entre duas boas opções. A molécula de trimetilamina, TMA – $(\text{CH}_3)_3\text{N}$, em pequenas concentrações ($<2\%$), foi considerada como um potencial aditivo com eventuais vantagens em diversas vertentes [78, 100, 106, 107]. No entanto, há propriedades físicas de TMA pouco conhecidas, nomeadamente a mobilidade dos iões e, mais concretamente, em misturas Xe – TMA. Para este estudo, realizado na fase inicial desta dissertação, fez-se uso de uma câmara desenvolvida por P.N.B. Neves no âmbito da sua dissertação de doutoramento [79] com a qual foram publicados diversos trabalhos [108 – 111]. Dado o interesse em TMA como aditivo decidiu-se, para que o estudo sobre este aditivo fosse exaustivo, medir a mobilidade dos iões formados em misturas Xe – TMA e em TMA puro. Ainda que fora do plano inicial, verificou-se a necessidade de fazer algumas alterações para melhorar o desempenho desta câmara. Concretamente, relativamente ao protótipo inicial, aumentou-se a distância de deriva dos iões (o que levou a uma melhor resolução temporal) e melhorou-se a eletrónica, o que resultou numa diminuição do ruído eletrónico. Estas alterações levaram a uma melhoria na precisão das medidas e aumento da sensibilidade do sistema.

O trabalho que de seguida se descreve está já publicado em revista científica [112].

3.2.1 Método e Sistema Experimental

O sistema experimental usado no estudo da mobilidade iónica está esquematizado na figura 19 de uma forma simplificada juntamente com a eletrónica associada.

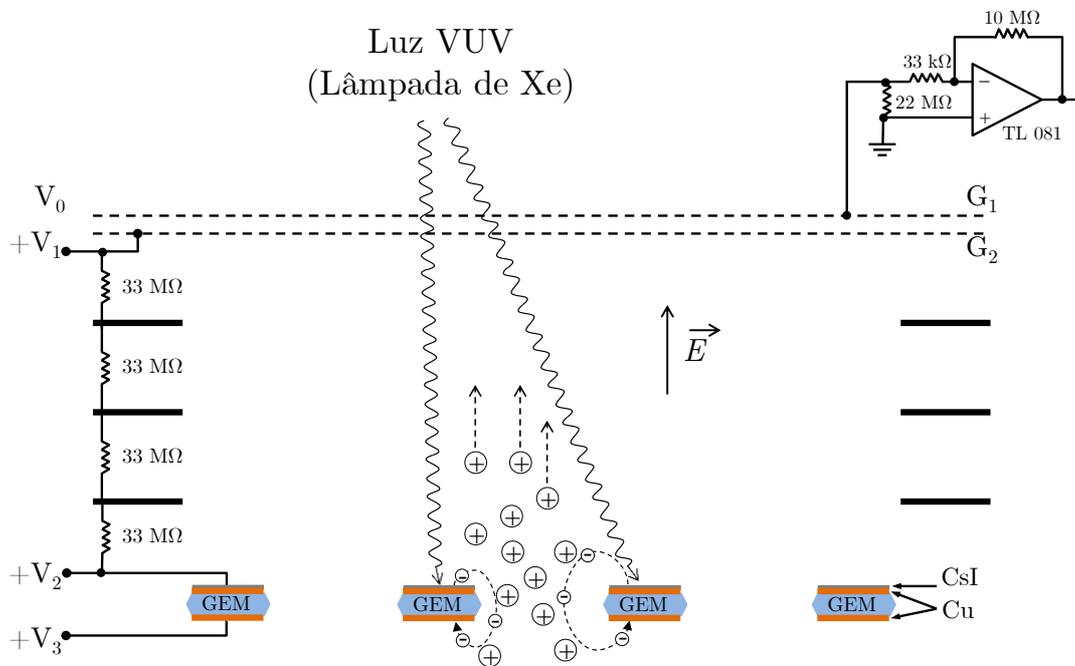


Figura 19 – Representação esquemática do processo de criação e deteção de iões positivos.

O sistema é composto por uma câmara cilíndrica de aço inoxidável, instalada na linha de vácuo descrita na secção 2.1. No interior, de modo a gerar os eletrões numa posição longitudinal bem definida, existe uma lâmpada de xénon pulsada marca Hamamatsu®, modelo L2439, de 10 W e frequência de impulso de 10 Hz e um *Gas Electron Multiplier* (GEM) [50] com um fotocátodo de iodeto de céσιο (CsI) com 250 nm de espessura depositado na face superior. Acima do GEM, a uma distância de 42.73 mm, estão duas grelhas metálicas separadas por 0.5 mm,

designadas por G_1 (a de cima), e por G_2 (a de baixo). A grelha G_1 , que recolhe o sinal, e o topo do GEM, definem a distância de deriva dos iões – 42.73 mm.

A lâmpada de xénon produz impulsos de duração ~500 ns e energia 0.1 J. Cada impulso da lâmpada emite predominantemente fótons VUV de Xe (~172 nm) que geram fotoelétrons na superfície do fotocátodo de CsI. Polarizando adequadamente o GEM, os fotoelétrons extraídos do fotocátodo são guiados, seguindo as linhas de campo elétrico, para os buracos do GEM onde se dá um processo de avalanche de que resultam pares ião/eletrão. Os iões positivos são guiados, mais uma vez ao longo das linhas de campo elétrico, para a grelha G_1 onde são recolhidos. O instante t_0 é definido como o instante em que ocorre a emissão de luz na lâmpada e é registado como sendo o instante de formação dos iões no interior do GEM. Medindo o intervalo de tempo entre a produção e a recolha de iões na grelha G_1 , determina-se o tempo de deriva da nuvem iónica. O conhecimento da distância de deriva, constante (42.73 mm), permite calcular a velocidade de deriva dos iões em cada mistura. A grelha G_2 , colocada 0.5 mm abaixo da grelha G_1 , funciona como grelha de Frisch, evitando a indução de sinal devida ao movimento da nuvem de iões, na grelha G_1 . Ao longo do percurso de deriva estão colocados três anéis condutores que minimizam “efeitos de bordos” que distorcem as linhas de campo elétrico e garantem um campo elétrico constante, perpendicular às grelhas que guiam os iões na sua deriva.

O sinal de carga recolhido na grelha G_1 é convertido num impulso de tensão através de um amplificador e posteriormente analisado num osciloscópio (Tektronix®, modelo TDS 2022B). O osciloscópio analisa continuamente o sinal e faz a média de 128 impulsos detetados.

Cada medida, correspondente à média de 128 impulsos, foi registada, bem como as tensões aplicadas no GEM e grelhas. O procedimento seguido consistiu em, na sequência do registo do sinal, fazer uma medida sem tensões aplicadas, que foi considerado o “fundo”. O sinal de fundo é um sinal induzido pelo disparo da lâmpada de Xe e ruído de altas frequências dele decorrente. Cada medida experimental era digitalmente processada para subtrair o “fundo”. Através da posição do centróide do sinal, considerado o tempo médio de chegada da nuvem de iões, obtiveram-se o tempo de deriva dos iões e a amplitude do sinal. O tempo

de deriva permite o cálculo da velocidade de deriva dos iões e daí a mobilidade reduzida.

Assim, este sistema permite medir a mobilidade reduzida de iões em misturas gasosas e, embora sem um dispositivo direto de identificação, mas, existindo informação adicional, podem identificar-se os iões de mobilidade diferente, quer tenham sido produzidos por impacto direto de eletrões no interior do GEM, quer por reações dos iões com os átomos/moléculas do meio durante a deriva, funcionando deste modo também como espectrómetro de mobilidade iónica.

A nuvem de iões move-se em direção às grelhas G_1 e G_2 através do campo elétrico. Durante o percurso de deriva, os iões vão perdendo energia através de colisões com moléculas neutras presentes no gás e ganhando energia do campo elétrico existente. Se o campo elétrico aplicado for fraco, a nuvem de iões rapidamente atingirá o equilíbrio entre perdas e ganhos de energia. Nestas condições, a velocidade de deriva dos iões é proporcional à intensidade do campo elétrico e é dada por

$$v_d = KE \quad (3.1)$$

onde K é a mobilidade dos iões e E é a intensidade do campo elétrico. Para facilitar a comparação de resultados, converte-se habitualmente a mobilidade K em mobilidade reduzida K_0 , independente da pressão do gás. K_0 é dada por

$$K_0 = K \frac{N}{N_0} \quad (3.2)$$

onde N número de densidade do gás e N_0 é o número de Loschmidt (N a 273 K e 1 atm, $N_0 = 2.687 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ [113]). Os resultados da mobilidade são apresentados em função do campo elétrico reduzido (E/N) em unidades de Td (1 Td = 10^{21} Vm^2).

De acordo com a teoria de Langevin [114], para valores baixos de E/N e a baixas temperaturas, a mobilidade pode ser determinada de acordo com a seguinte expressão

$$K_0 = 13.88 \left(\frac{1}{\alpha\mu} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.3)$$

em que α é a polarizabilidade da molécula neutra ($\alpha = 4.04 \text{ \AA}^3$ para xénon [115] e $\alpha = 7.076 \text{ \AA}^3$ para TMA [116, 117]) e μ é a massa reduzida do ião em unidades de massa atómica. De acordo com a teoria de Langevin, a mobilidade reduzida do ião $\text{C}_3\text{H}_9\text{N}^+$, quando $E/N \rightarrow 0$, em xénon é $1.08 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ e em TMA

$0.96 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. A aplicação desta teoria tem algumas restrições, nomeadamente quando ocorrem transferências ressonantes de carga no percurso de deriva dos iões [118].

Em misturas gasosas, desde que a transferência de cargas seja desprezável em comparação com forças de atração e repulsão entre iões e átomos/moléculas, a lei empírica de Blanc [119], resultante do trabalho de Blanc em misturas gasosas binárias, afirma que a mobilidade reduzida obedece à seguinte relação

$$\frac{1}{K_{0 \text{ mix}}} = \frac{f_1}{K_{0 \text{ } g_1}} + \frac{f_2}{K_{0 \text{ } g_2}} \quad (3.4)$$

onde $K_{0 \text{ mix}}$ é a mobilidade reduzida do ião na mistura e $K_{0 \text{ } g_1}$ e $K_{0 \text{ } g_2}$ a mobilidade do mesmo ião em cada um dos gases componentes, g_1 e g_2 . As constantes f_1 e f_2 são a fração molar, respetivamente, de g_1 e g_2 .

O trabalho experimental foi realizado em xénon, em TMA e em misturas de Xe com 0.2%, 0.5%, 1%, 2%, 5%, 10% e 20% de TMA, a diversas pressões compreendidas entre 0.5 e 10 Torr. Utilizaram-se campos elétricos reduzidos de deriva, E/N , entre 7.5 e 60 Td. As tensões aplicadas no GEM (V_{GEM}) foram entre 19 V e 39 V. Todas as medidas experimentais foram realizadas a uma temperatura ambiente de $\sim 298 \text{ K}$.

A gama de campos elétricos reduzidos aplicados foi condicionada: nas misturas Xe – TMA, não puderam ser usados campos elétricos reduzidos superiores a 25 Td, devido a descargas elétricas entre o topo e a base do GEM; em TMA puro, para os campos elétricos reduzidos demasiado baixos ($< 15 \text{ Td}$), o sinal apresentava uma grande degradação o que dificultou a análise do tempo de chegada dos iões. Consideramos que, nestas condições de baixo campo, o tempo de deriva é maior e o número de colisões entre os iões e as moléculas de gás aumenta, pelo que é provável que a degradação advenha de um maior número de colisões com impurezas, que alteram os resultados [108].

As impurezas têm grande influência nos resultados, como foi já discutido em diversas publicações [75, 109, 110]. Como o sistema não tem purificação de gases integrada, houve necessidade de criar um procedimento sistemático e metucioso para a admissão de gás no sistema. Primeiro era feito vácuo durante o tempo necessário para que, no interior da câmara, se conseguisse uma pressão residual inferior a 10^{-6} Torr , cerca de 8 ordens de grandeza abaixo das pressões típicas de operação (alguns Torr). Desta forma garantíamos que as impurezas eram

maioritariamente devidas ao próprio gás introduzido. Após a admissão de gás(es), as medidas são realizadas no intervalo de tempo mais curto possível (tipicamente, 2-3 min) para evitar a contaminação com impurezas provenientes das superfícies interiores da câmara, por desgaseificação.

3.2.2 Mobilidade em Xe Puro

A mobilidade reduzida dos iões gerados em xénon puro tinha já sido motivo de estudo em [109], usando o protótipo anterior. Neste trabalho, para testar o sistema experimental após modificação, foram repetidas medidas e obtidos novos resultados. Nas condições de operação, já discutidas em [109], são produzidos dois tipos de iões: Xe^+ e Xe_2^+ . O ião Xe^+ é produzido diretamente por impacto eletrónico dentro do GEM. O ião molecular Xe_2^+ , a pressões abaixo de 1 Torr, é produzido sobretudo pela colisão de um átomo excitado com um átomo no estado fundamental [18], processo descrito pela equação



Para pressões superiores, o processo mais provável para que ocorra a formação do ião diatómico de Xe é a colisão a três corpos [120, 121]:



Os resultados foram obtidos a 8 Torr, com campos elétricos reduzidos entre 7.5 e 25 Td. Foi observado apenas um ião, identificado como sendo o ião Xe_2^+ . Os valores de mobilidade reduzida obtidos estão de acordo com os resultados publicados em [109] e vão ser discutidos na secção 3.2.4.

3.2.3 Mobilidade em TMA Puro

As medidas em TMA puro tiveram uma limitação na pressão de gás: a molécula de TMA absorve a luz emitida pela lâmpada de xénon [122], por isso, a pressões superiores a 3 Torr o número de fotões que chegam ao fotocátodo não é suficiente para produzir um sinal mensurável. Mesmo que houvesse reemissão de luz em c.d.o. entre 260 e 350 nm como previsto em [10, 78, 100, 107], não haveria

fotoionização de CsI [123]. Assim, em TMA puro, os resultados são apenas para pressões entre 0.5 e 3 Torr.

Para todas as pressões e campos reduzidos E/N usados, os espectros temporais no osciloscópio tinham apenas um pico, confirmando a formação de apenas uma espécie iônica ou de espécies com mobilidades semelhantes.

A figura seguinte representa os sinais obtidos com TMA a pressões de 0.5, 1, 2 e 3 Torr e E/N de 50 Td. A tensão aplicada no GEM em cada caso está indicada na figura. Para pressões mais elevadas foi necessário aumentar a tensão no GEM para aumentar a produção de iões por fóton, e assim compensar a diminuição do número de fótons que chegam ao fotocátodo. Na figura observa-se uma diminuição da largura a meia altura do sinal com a pressão, consistente com a diminuição da difusão dos iões [115]. Também é visível o aumento do tempo de deriva com a pressão, decorrente da diminuição da mobilidade dos iões, como será explicado de seguida.

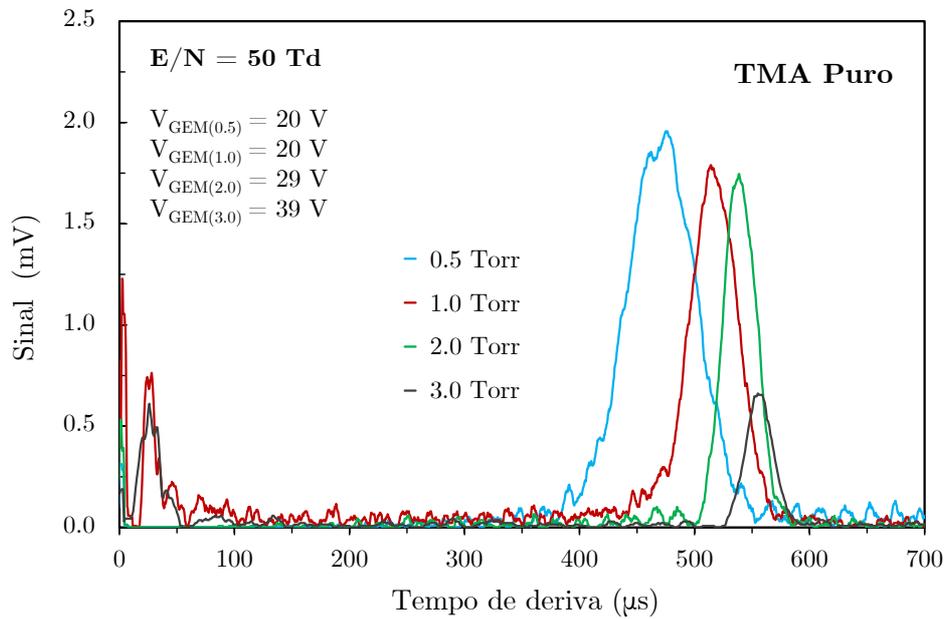


Figura 20 – Espectros do tempo de deriva obtidos em TMA pura a pressões de 0.5, 1, 2 e 3 Torr. Campo elétrico reduzido de 50 Td. As tensões no GEM aplicadas são as indicadas na figura [112].

Como este sistema não permite a identificação direta dos iões, a identificação de iões produzidos em TMA descrita no capítulo 2, foi fundamental nesta fase.

Para tensões aplicadas no GEM entre 20 e 39 V os iões mais abundantes são $(\text{CH}_3)_2\text{CH}_2\text{N}^+$ (58 u), $(\text{CH}_3)_3\text{N}^+$ (59 u) e CH_4N^+ (30 u), com abundâncias relativas, respetivamente, de 44%, 33% e 13% a 20 eV e de 36%, 19% e 15% a 39 eV [82].

Estes dados são compatíveis com a existência de um só pico no espectro (iões de massa similar), correspondente aos iões $(\text{CH}_3)_2\text{CH}_2\text{N}^+$ (58 u), $(\text{CH}_3)_3\text{N}^+$ (59 u), já que a resolução do sistema não é suficiente para distinguir diferenças na mobilidade de iões com massas tão próximas.

A figura seguinte mostra a mobilidade reduzida, K_θ , dos iões de TMA em TMA, em função do campo elétrico reduzido, E/N , a pressões de 0.5, 1, 2 e 3 Torr: para cada E/N , K_θ diminui com o aumento da pressão, tomando o valor, $0.62 \pm 0.01 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ a 0.5 Torr, e de $0.56 \pm 0.01 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ a 3 Torr. A diminuição da mobilidade reduzida pode ser explicada com processos de transferência de carga sucessivos entre o ião e a molécula neutra (transferência ressonante), que atrasa o movimento do ião e cuja probabilidade aumenta com a pressão [118]. Outra possível explicação para esse efeito é a formação de aglomerados de moléculas e iões, que poderão ocorrer durante o processo de deriva dos iões. Estes aglomerados são bastante estáveis [124] e produzem uma diminuição da mobilidade pelo aumento da massa da partícula. A probabilidade deste processo aumenta com o aumento da pressão [124].

Outra informação a retirar da figura 21 é que a mobilidade diminui com o aumento de E/N . Este comportamento não é exclusivo da molécula de TMA. Estudos anteriores com gases moleculares, por exemplo CO_2 e C_2H_6 , descrevem o mesmo comportamento [75, 110]. De facto, de acordo com [118], o processo de transferência de carga ressonante prevalece sobre o processo de colisões elásticas, exceto para iões com muito baixa energia (baixos campos elétricos) em que a interação de longo alcance induzida pelo dipolo é dominante. Assim, a diminuição da mobilidade iónica com o aumento de E/N é justificada pelo aumento de processos de transferência de carga.

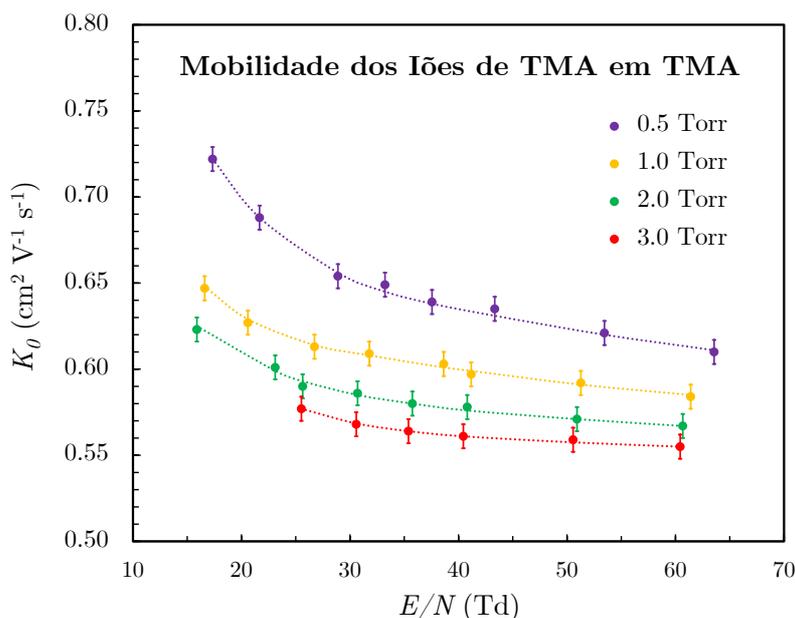


Figura 21 – Mobilidade iônica reduzida em TMA puro, em função do campo elétrico reduzido, para pressões de 0.5, 1, 2 e 3 Torr. A tracejado são linhas guias [112].

Pela equação 3.3 pode ser calculada a mobilidade reduzida quando E/N tende para zero. Havendo a possibilidade de existirem aglomerados do íon TMA^+ com as moléculas de TMA, calculou-se a mobilidade reduzida para os dois mais prováveis íons de TMA ($(\text{CH}_3)_3\text{N}^+$ e $(\text{CH}_3)_2\text{CH}_2\text{N}^+$), e para os aglomerados com uma molécula e com duas moléculas neutras de TMA. Os valores obtidos foram de $0.96 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ para ambos os íons de TMA, $0.83 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ para o aglomerado de 2 moléculas e $0.78 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ para o aglomerado de 3 moléculas. Estes valores estão acima dos resultados obtidos experimentalmente, apresentados na figura 21. O resultado é explicado em [118] e justificado pela prevalência da transferência ressonante de carga sobre todos os outros processos, como atrás referido. A redução da mobilidade com o aumento de E/N é, assim, explicada pelo maior número de colisões de transferência de carga.

3.2.4 Mobilidade em Misturas Xe – TMA

O estudo da mobilidade iônica em misturas Xe – TMA foi realizado para pressão total entre 6 e 10 Torr e fração de TMA entre 0.2% e 20%. Como a

produção de iões é por impacto de eletrões e a produção de eletrões por irradiação de luz VUV no fotocátodo de CsI, a absorção de VUV por TMA [122], estabeleceu o limite superior da concentração de TMA de 20%. Acima deste valor, o número de fotões VUV que chegavam ao CsI não era suficiente para produzir um sinal visível, não obstante o aumento das tensões aplicadas no GEM.

Em todas as misturas estudadas, apenas se observou um pico no espectro de tempos de deriva dos iões. Como a energia de ionização de TMA (~ 7.9 eV [82]) é consideravelmente inferior à de xénon (12.13 eV [80]), o pico observado deverá corresponder a um ião de TMA, produzido diretamente, por impacto eletrónico, ou por um processo de transferência de carga de um ião de xénon para a molécula de TMA. Apesar de não termos conhecimento de uma constante de reação para o processo de transferência de carga entre o ião de xénon e a molécula de TMA, ele é energeticamente favorável, portanto, provavelmente com grande probabilidade. Assim, como nos estudos em TMA puro, o único pico observado corresponde aos dois iões de TMA com massa atómica de 58 e 59 u, ou a aglomerados do ião TMA com moléculas neutras.

Para esclarecer os processos de ionização no GEM, foi adaptado um modelo para simulação pelo método de Monte Carlo (MC) baseado num anteriormente desenvolvido [111], usando as secções eficazes de [125, 126]. Os resultados da simulação indicam que o ião Xe^+ é o de formação direta mais provável no GEM: na mistura com 0.2% de TMA, há apenas 0.37% de iões de TMA e 17% de iões de TMA a 10%. Com um número residual de iões de TMA formados por impacto de eletrões no GEM, e verificando-se que o sinal detetado é de TMA, a taxa da reação de transferência de carga entre o ião de Xe e a molécula de TMA é de tal modo grande que, num intervalo de tempo menor que o tempo de deriva dos iões, há transferência total (ou quase total) de carga do ião primário maioritariamente formado (Xe^+) para TMA.

A figura seguinte apresenta espectros dos tempos de chegada de iões à grelha de recolha do sinal em condições semelhantes de campo elétrico (15 Td), de pressão (6 Torr) e de tensão aplicada no GEM (22 eV), em misturas com frações diferentes de TMA em xénon puro. A figura mostra que a amplitude do sinal diminui, e o tempo de deriva aumenta, com o aumento da fração de TMA na

mistura, exceto nas misturas de 1% e 2%. A explicação para este comportamento será dada mais adiante.

A diminuição da amplitude do sinal com o aumento da fração de TMA é compatível com o facto de TMA absorver a luz VUV proveniente da lâmpada de Xe.

O aumento do tempo de deriva dos iões até à grelha de recolha corresponde à diminuição da mobilidade, K_θ , que será seguidamente discutido.

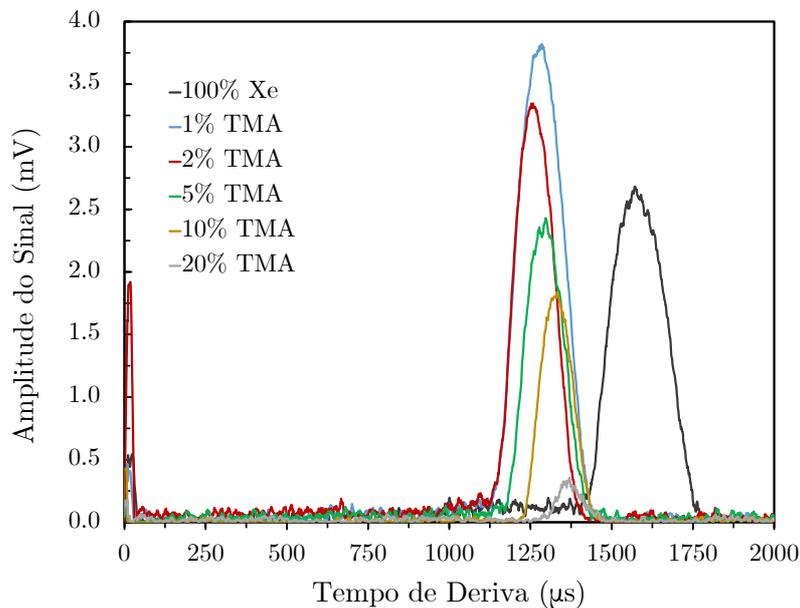


Figura 22 – Espectros dos tempos de deriva dos iões produzidos em xénon puro e em misturas com frações de 1%, 2%, 5%, 10% e 20% de TMA em xénon, a pressões de 6 Torr, E/N de 15 Td e V_{GEM} de 22 V [112].

A mobilidade, K_θ , foi calculada para as diferentes frações de TMA em xénon. Foram feitas medidas a 8 Torr com frações de 1%, 5% e 10% de TMA cujos resultados se mostram na figura 23, em função de E/N . À semelhança do que se verificou nas medidas em TMA puro, verifica-se uma diminuição da mobilidade com o aumento de E/N . Os processos físicos envolvidos em TMA puro e em misturas com Xe são os mesmos (maior probabilidade de transferência de carga ressonante com o aumento de E/N), com consequências semelhantes na mobilidade: diminuição com o aumento de E/N .

Também se verificou que a mobilidade diminui com o aumento da fração de TMA na mistura. Na mesma figura estão também os resultados obtidos com

xénon puro (8 Torr) e com TMA puro (3 Torr). A diminuição gradual da mobilidade com o aumento da fração de TMA sugere a tendência para o valor da mobilidade de 100% TMA. Observou-se ainda que a adição de TMA a Xe puro leva a que a mobilidade dos iões seja superior à mobilidade de iões de Xe em Xe e à de iões de TMA em TMA.

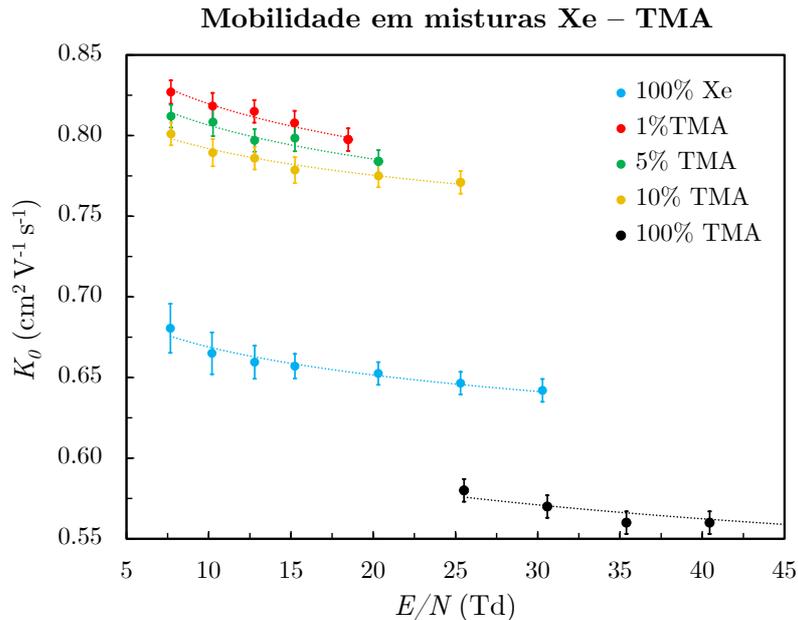


Figura 23 – Mobilidade iônica reduzida, K_0 , em misturas Xe – TMA (frações de 1%, 5% e 10% de TMA) em função de E/N . Pressões de 8 Torr. Apresenta-se também K_0 para os iões de Xe em Xe puro (8 Torr) e para os iões de TMA em TMA pura, a 3 Torr (o valor de pressão mais elevado possível). A tracejado são linhas guia [112].

O estudo da variação de K_0 com a fração de TMA foi feita para campos elétricos reduzidos de 10 Td e 15 Td. Foram analisadas misturas com frações de TMA entre 0.2% e 10%. Os resultados apresentados na figura 24 são uma média de resultados obtidos para pressões entre 6 e 10 Torr.

Verifica-se que a mobilidade aumenta ligeiramente com a fração de TMA até 2% de TMA e diminui para frações maiores de TMA. Comparando com o valor da mobilidade reduzida para os iões de Xe em Xe puro ($E/N = 15$ Td), verifica-se que a introdução de uma pequena fração de TMA (0.2%) produz um aumento grande na mobilidade reduzida dos iões (cerca de 25%).

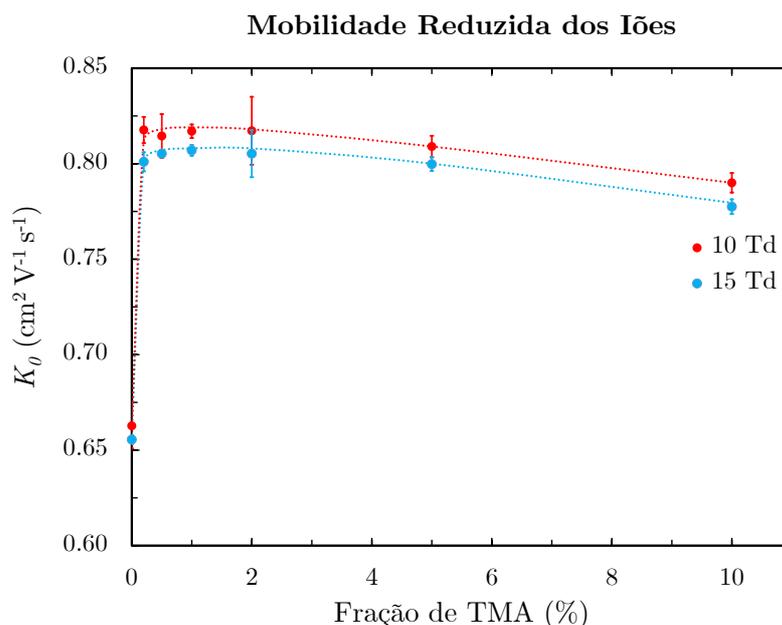


Figura 24 – Mobilidade reduzida dos iões de TMA em função da fração de TMA em misturas Xe – TMA e em Xe puro. Os valores K_0 apresentados são a média dos resultados obtidos a pressões entre 6 e 10 Torr. As linhas tracejadas são linhas guia [112].

Sabendo que o ião presente em todas as misturas é o mesmo ião e é de TMA, mesmo a frações muito baixas de TMA (0.2%), há duas explicações possíveis para a diminuição da mobilidade com o aumento da fração de TMA. Em primeiro lugar, o ião de TMA perde menos energia na colisão com o átomo de Xe do que com uma molécula de TMA, dada a maior massa do átomo de xénon. Por isso, o aumento da fração de TMA implica mais colisões com TMA neutro, ou seja, maior probabilidade de perdas de maior energia. A outra razão possível é a transferência de carga entre o ião de TMA e a molécula de TMA (transferência ressonante de carga), processo que produz diminuição da mobilidade dos iões e que ocorre com maior frequência para maior fração de TMA. A probabilidade de transferência ressonante de carga também aumenta com o aumento de E/N , como atrás referido, explicando a diminuição de mobilidade a maiores E/N [118].

A mobilidade dos iões tem um máximo para a concentração de ~1%-2%. Com efeito, a baixas frações de TMA, o tempo médio para a transferência de carga de iões primários (Xe^+) para as moléculas de TMA é maior, dada a menor fração de TMA. Deste modo, o ião primário (de Xe) percorre uma distância maior enquanto tal. Como a mobilidade de Xe^+ em Xe é menor que a mobilidade dos iões de TMA em Xe, fica explicada a razão pela qual a mobilidade aumenta com a fração de

TMA para frações muito baixas de TMA (<2%). Acima desta fração, pelos motivos acima referidos, existe diminuição da mobilidade.

3.2.5 Conclusões

Neste trabalho, estudou-se experimentalmente a mobilidade reduzida (K_0) de iões em misturas gasosas de Xe – TMA (frações de TMA entre 0.2% e 10%), Xe puro e TMA puro, para campos elétricos reduzidos (E/N) entre 7.5 e 60 Td. O estudo foi realizado a pressões entre 6 e 10 Torr, à temperatura ambiente. Em todas as circunstâncias, apenas se detetou a presença de um pico, sugerindo a existência de apenas um ião ou de iões com mobilidades reduzidas de tal modo próximas que não são distinguíveis com este sistema experimental.

Como a molécula de TMA absorve a luz VUV da lâmpada de Xe, e sendo a luz VUV responsável pela produção de iões positivos, em TMA puro o estudo só pode ser feito até 3 Torr, ou seja, a gama de pressões investigada foi de 0.5 a 3 Torr. Para compensar a perda de intensidade do sinal devido à diminuição da intensidade da luz incidente no fotocátodo, aumentou-se a diferença de potencial aplicada ao GEM, de modo a obter mais iões. Apesar do sistema experimental não ter a possibilidade de identificação direta das espécies iónicas presentes, com os resultados capítulo 2 e [82], pudemos concluir que os iões recolhidos na grelha são sobretudo dois: $(\text{CH}_3)_3\text{N}^+$ e $(\text{CH}_3)_2\text{CH}_2\text{N}^+$, iões com massas muito semelhantes (59 e 58 u , respetivamente), não distinguíveis no espectro de tempo de chegada. O valor obtido para a mobilidade reduzida de iões de TMA em TMA foi de $\sim 0.56 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$, valor não concordante com os valores calculados pela teoria de Langevin ($0.96 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$, pela equação 3.3). A diferença poderá ser explicada pela transferência ressonante de carga entre moléculas de TMA durante o percurso de deriva, ou a formação de aglomerados do ião com uma ou mais moléculas neutras, ambos limitativos da aplicação da teoria de Langevin e ambos originando diminuição da mobilidade dos iões e possíveis causas da diferença entre os resultados experimentais e a teoria de Langevin. Discrepâncias com a teoria de Langevin já tinham sido detetados em outros gases em que existe transferência de carga ressonante, como por exemplo CO_2 [75].

Em misturas Xe – TMA, também só foi observado um pico no espectro. Também se observou uma variação brusca do valor K_θ com a introdução de uma pequena fração de TMA (0.2%). A mobilidade reduzida dos iões de Xe em Xe é de $0.64 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$, mas a presença de TMA faz subir K_θ para $\sim 0.80 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. Em todas as misturas estudadas (0.2% a 10% de TMA) o valor da mobilidade reduzida foi muito semelhante, o que nos leva a concluir que o ião ou iões dominantes seriam sempre os mesmos. A explicação para este facto foi também investigada: para se conhecer o processo de formação de iões no GEM foi desenvolvido no grupo um modelo de simulação de MC aproximado, baseado num modelo anteriormente desenvolvido [112]. Embora em misturas gasosas Xe – TMA possam ser gerados iões de TMA e de Xe, os resultados indicaram que a maioria dos iões formados eram de Xe e que apenas uma pequena fração era de TMA (0.37% com frações de 0.2% de TMA e 17% com frações de 10% de TMA). Apesar disso, e por causa da rápida transferência de carga entre o ião de Xe e a molécula de TMA, os iões de xénon rapidamente passam a iões de TMA e a maior parte do percurso de deriva era feito por iões de TMA.

Na gama de campos elétricos reduzidos estudados, verificou-se que quando a fração de TMA aumenta, K_θ diminui. É de esperar que continuando a aumentar a fração de TMA, o valor de K_θ continue a decrescer até atingir o valor de TMA puro. Este decréscimo da mobilidade poderá ser explicado pelo aumento da probabilidade de transferências ressonantes de carga entre iões e moléculas de TMA, mais prováveis a maiores frações.

Destes resultados, já publicados na revista internacional *Journal of Instrumentation* [112], pudemos concluir que, nas condições deste estudo, a molécula de TMA como aditivo de xénon, aumenta em $\sim 25\%$ a mobilidade dos iões presentes. Este resultado, juntamente com o maior fator de multiplicação podem constituir uma vantagem significativa nomeadamente em detetores baseados na multiplicação de carga.

3.3 Absorção/Reemissão de luz VUV pela TMA

Como já discutido atrás, os aditivos moleculares em pequenas percentagens têm sido considerados como possível solução para experiências de grandes dimensões em que gases nobres são o meio de deteção. De facto, embora as propriedades dos gases nobres sejam essenciais em algumas destas experiências, as desvantagens destes gases, nomeadamente a elevada difusão de eletrões e baixa velocidade de deriva podem dificultar ou impedir a obtenção de alguns requisitos considerados indispensáveis para o sucesso da experiência. Vários aditivos têm sido considerados e testados no âmbito destas experiências. Como dito atrás, no âmbito da experiência NEXT, um dos aditivos proposto foi a trimetilamina (TMA). Este aditivo, para além de diminuir os coeficientes de difusão dos eletrões no meio [71, 72], como outros gases moleculares, poderia ainda, eventualmente, absorver a EL do xénon e reemiti-la num outro comprimento de onda, de mais fácil trato experimental [78].

Na sequência do estudo amplo iniciado com TMA, solicitado no âmbito da colaboração NEXT, neste capítulo vamos estudar o coeficiente de absorção da luz de cintilação de Xe pela molécula de TMA, bem como a eventual possibilidade de reemissão num c.d.o. superior. A figura 25 é um esquema das reações em misturas Xe – TMA após excitação ou ionização de Xe, das quais nos vamos focar nos processos destacados a vermelho no esquema, os relevantes para o nosso objetivo.

Na literatura encontram-se artigos que referem a absorção de radiação com c.d.o. entre 115 e 260 nm pela molécula de TMA [127 – 130]. No entanto, relativamente à reemissão num c.d.o. superior, apenas existem estudos para fotões absorvidos com c.d.o. entre 210 e 260 nm, que concluem que há efetivamente reemissão – parcial ou total, dependendo do c.d.o. da luz absorvida [128, 130].

No estudo que descrevemos foram investigadas diversas misturas Xe – TMA, com concentrações de TMA inferiores a 1.06%. A pressão total foi mantida a 800 Torr em todas as experiências. O método utilizado para a realização das misturas gasosas foi o descrito na secção 2.2 (método de diluição).

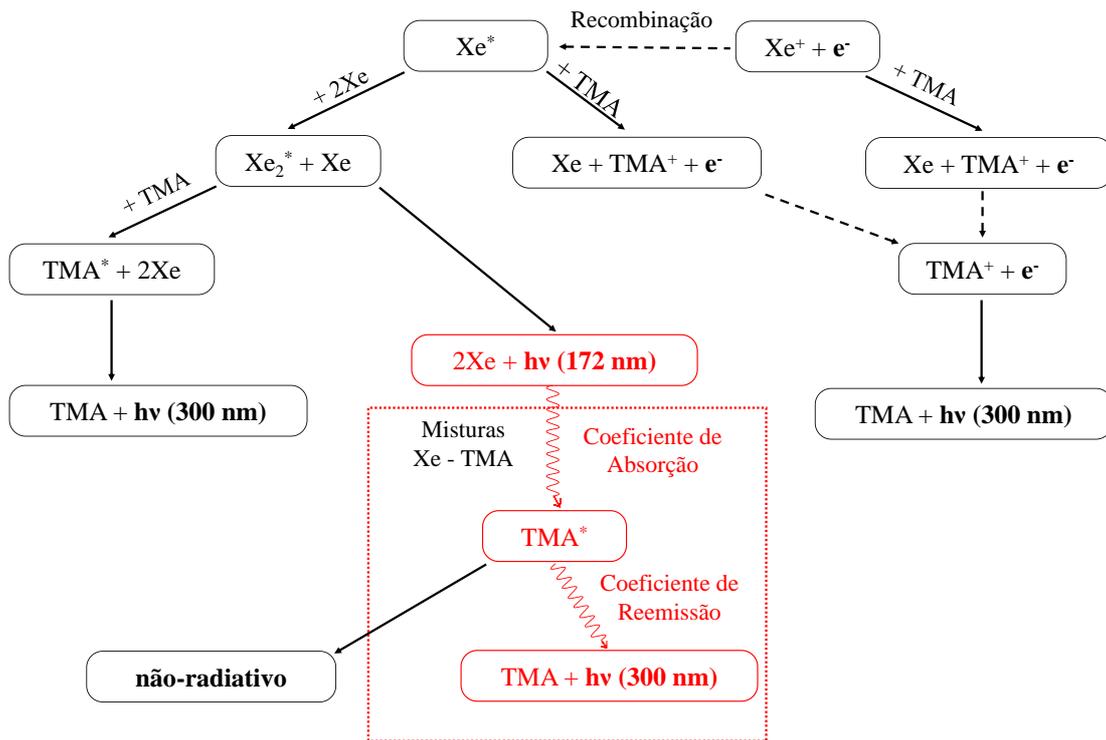


Figura 25 – Esquema das reações em misturas Xe - TMA após uma excitação ou ionização de xénon. Os processos envolvidos estão destacados a vermelho [122].

Como referido no capítulo 1, a adição de TMA em pequenas quantidades foi uma possibilidade considerada no âmbito da colaboração NEXT. Uma vez que a cintilação primária é fundamental para a determinação do instante inicial t_0 da interação da radiação, é necessário estudar o comportamento da molécula de TMA relativamente à luz de cintilação de Xe (172 nm). Há dados para outros comprimentos de onda, mas não concretamente para este.

Por este motivo foi feito um estudo com misturas de Xe – TMA para estudar a absorção da luz VUV de cintilação do Xe pelo gás TMA e eventual reemissão noutra c.d.o..

Os resultados aqui apresentados foram publicados em revista científica [122].

3.3.1 Método e Sistema Experimental

O sistema experimental projetado para esta experiência está esquematizado na figura 26. A câmara, em aço inoxidável, é cilíndrica com diâmetro interno de

55.0 mm e altura de 49.7 mm, é aberta no topo e na base, e tem ligações laterais para a circulação de gás.

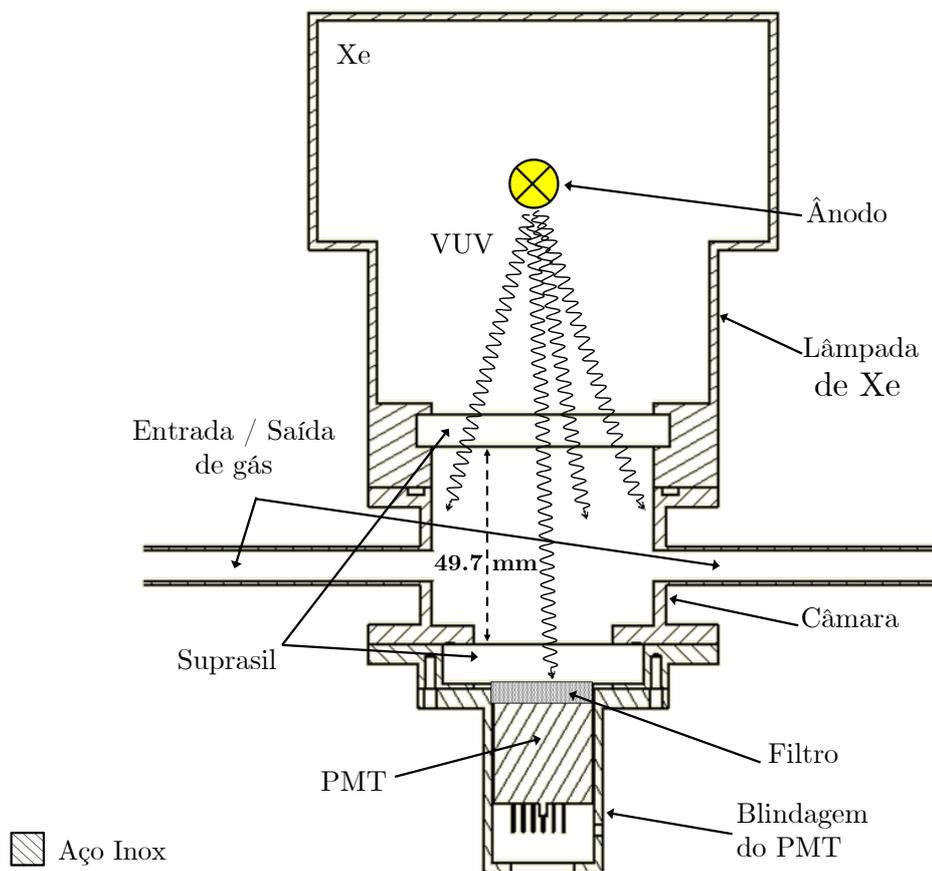


Figura 26 – Esquema do sistema para o estudo da absorção de VUV. O sistema inclui a lâmpada de Xe (topo), a câmara, o PMT (base), sendo possível a colocação eventual de filtros [122]. A separar a lâmpada e o PMT da câmara estão janelas de Suprasil®.

No topo da câmara está instalada uma lâmpada de xénon, vedada por uma janela de Suprasil® (Suprasil® 311, da marca Heareus, com 50 mm de diâmetro e 10 mm de espessura [131]. Na base está instalado um fotomultiplicador (PMT) Hamamatsu, modelo R8520-406, também ele ligado à câmara por uma janela de Suprasil® idêntica à janela do topo. Estas duas janelas, bem como o PMT, são compatíveis com os c.d.o. da luz envolvida neste trabalho (ver figura 27). A janela de Suprasil® tem uma eficiência de transmissão de 3.6% para 160 nm, 72.8% a 170 nm e 85.2% a 180 nm. O máximo de transmissão ocorre na região do visível (~93%) [132]. A eficiência quântica do PMT é ~20% para a região de c.d.o. de interesse neste estudo [133].

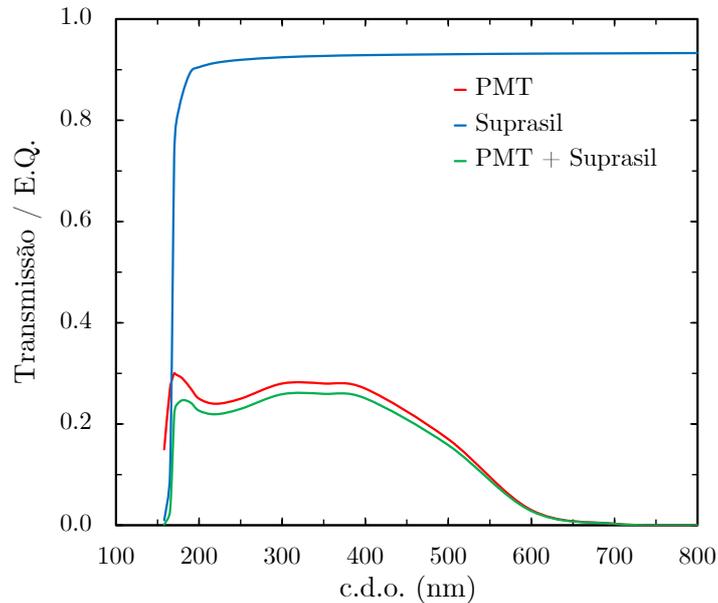


Figura 27 – Transmissão de luz em função do c.d.o. nos diferentes meios, no detetor, até à chegada ao fotocátodo do PMT. A linha azul representa a transmissão da janela de Suprasil; A vermelho a eficiência quântica do PMT; A verde, a eficiência combinada.

Com esta configuração (PMT no exterior da câmara), torna-se possível a colocação de filtros apropriados para identificar o c.d.o. da luz transmitida, ou seja, verificar se houve absorção e reemissão noutra c.d.o. dentro da câmara. O PMT não distingue o c.d.o. dos fótons detetados, pelo que os filtros são componentes fundamentais nesta análise. Foram utilizados três filtros *bandpass*: BP1, BP2 e LV.

O BP1 é um filtro *bandpass* da Edmund Optics®, modelo U-330 [134]. A gama de transmissão deste filtro está compreendida entre 220 e 400 nm, tendo no intervalo compreendido entre 250 e 370 nm uma transmissão sempre superior a 70%. O máximo de transmissão deste filtro é de 90% a ~310 nm.

O BP2 é também ele um filtro *bandpass* da marca S.A.Matra® para 172 nm [135]. Tem transmissão máxima de ~12% e largura a meia altura de 17 nm, centrado a 172 nm.

O LV é uma lâmina de vidro com 1.1 mm de espessura com transmissão superior a 95% para c.d.o. superiores a 350 nm.

Estes 3 filtros cobrem a região de comprimentos de onda de interesse neste trabalho: emissão da lâmpada na região dos VUV de Xe (BP2); emissão da

lâmpada e de eventual reemissão de luz pela molécula de TMA (BP1); emissão da lâmpada nos c.d.o. superiores aos referidos (LV).

Na tabela seguinte são indicadas as características de cada filtro relativas à região de transmissão e ao máximo de transmissão.

Tabela 4 - Região e máximo de transmissão de cada filtro

Filtro	Espectro de Transmissão (nm)	Máximo de Transmissão (%)
Sem Filtro	160 – 650	100
<i>Bandpass</i> 1 (BP1)	220 – 400	90
Lâmina de Vidro (LV)	>350	95
<i>Bandpass</i> 2 (BP2)	160 - 188	12

A câmara está devidamente protegida da luz exterior. Com a lâmpada desligada não foi detetável sinal relevante. Todavia, esse sinal (de fundo) foi considerado, especialmente em medidas com baixa intensidade de luz.

A lâmpada de xénon foi contruída pelas oficinas do L.I.P.. É um CP com ~2.5 bar de xénon puro, com uma fonte radioativa de ^{241}Am colocada no seu interior. A intensidade da luz emitida pela lâmpada é controlada pela tensão aplicada ao ânodo. A fonte de alta tensão utilizada foi da marca Canberra[®], modelo 3106D.

Como o CP não tem um sistema integrado de purificação, com o passar do tempo a pureza do gás vai-se deteriorando e isso reflete-se na intensidade de luz emitida que, para as mesmas tensões, vai sendo cada vez menor. Para fazer as devidas correções, foi-se monitorizando a intensidade da lâmpada ao longo do tempo para poder comparar os resultados.

Para cada experiência foi colocada a mistura gasosa e ligada a lâmpada. A luz emitida pela lâmpada entra na câmara podendo ocorrer dois processos: a luz atravessar a câmara sem qualquer interação, ou ser absorvida pela mistura (pelas moléculas de TMA), com ou sem reemissão noutra c.d.o. superior. Em qualquer caso, a luz que chegar ao PMT é detetada e é produzido um sinal que será analisado por um multicanal (MCA – Amptek[®] MCA8000D), que produz um espectro cujo centróide tem uma posição proporcional ao número de fotões

recolhido em cada evento. A análise da posição do centróide em cada uma das misturas foi representada num gráfico em função da fração ou pressão parcial de TMA na mistura. O coeficiente de absorção, C , da molécula de TMA para a luz VUV de Xe, é determinado a partir da expressão de atenuação

$$Y(p) = Y_0 e^{-C d p} \quad (3.7)$$

em que $Y(p)$ é a posição do centróide do sinal no MCA, p a pressão parcial de TMA, Y_0 a posição do centróide do sinal no MCA em vazio (ou xénon puro) e d a distância média percorrida pela luz no interior do sistema (5.03 cm). C é o declive da reta que melhor se ajusta aos resultados, em unidades de $\text{cm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

Para determinar o c.d.o. dos fotões recolhidos, são usados os filtros BP1, BP2 e LV acima descritos. Tendo em conta que a transmissão de cada filtro e da janela de Suprasil[®] são diferentes para os vários c.d.o., e que a eficiência quântica do PMT também depende do c.d.o., foi necessário fazer todas estas correções (normalizações). A fonte de tensão utilizada para polarizar o PMT foi da marca Caen[®], modelo N1470. As tensões utilizadas foram iguais em todas as experiências.

Antes de realizar o enchimento do sistema, foi sempre feito alto vácuo com o sistema de vácuo descrito na secção 2.1 e analisado o gás residual com o espectrómetro de massa RGA, igualmente descrito nessa secção. Após o enchimento com a mistura a estudar, fez-se sempre uma análise da composição com o RGA amostrando o gás através da válvula de agulha. O método utilizado na realização de cada mistura está descrito pormenorizadamente na secção 2.2.

Após o enchimento, a mistura gasosa foi devidamente purificada, sendo a circulação de gás assegurada por aquecimento dos tubos do sistema num local apropriado. A purificação foi assegurada pelo purificador mais adequado em cada caso, de entre os dois instalados em tubos paralelos: o purificador SAES[®] 707 e o SAES[®] MC1-702-F, para Xe puro ou para misturas Xe – TMA, respetivamente.

Todas as experiências foram realizadas a pressão total de 800 Torr.

3.3.2 Características da Lâmpada

Para este trabalho é necessário conhecer as características da lâmpada, contruída nas oficinas do L.I.P.. Para poder analisar os resultados há que conhecer

o espectro de emissão da lâmpada, através dos filtros já descritos, e a evolução da intensidade da lâmpada com o tempo. São os resultados desses estudos que em seguida se descrevem.

3.3.2.1 Espectro de Emissão da Lâmpada

A lâmpada emite numa vasta região de c.d.o., mas que a luz VUV de Xe é a predominante. No entanto é necessário estabelecer quantitativamente a distribuição espectral da luz emitida.

Com a câmara em vácuo ($<10^{-5}$ Torr), a luz detetada no PMT seria a luz emitida pela lâmpada. A figura 28 mostra a razão entre a luz detetada com cada um dos filtros e a “luz total”¹, em função da tensão aplicada no ânodo da lâmpada.

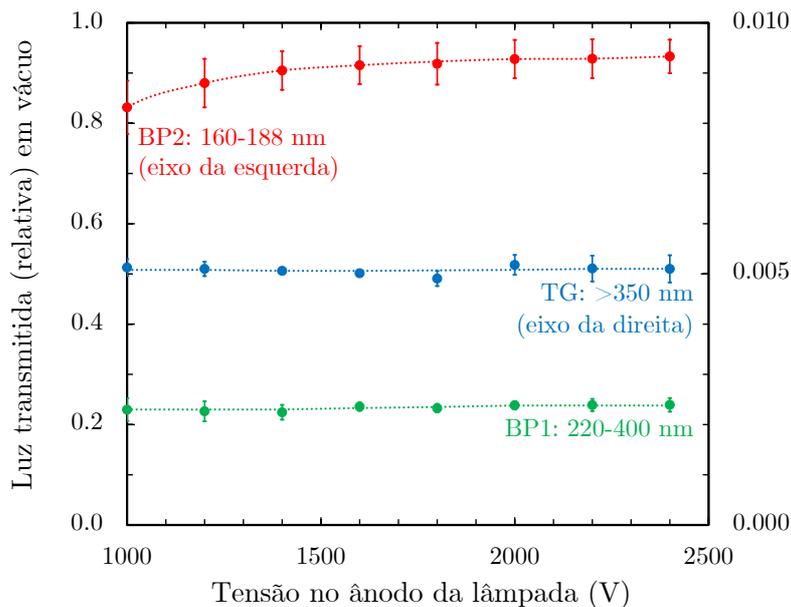


Figura 28 – Razão entre a luz detetada no PMT utilizando cada um dos filtros e a luz total (sem filtro), em função da tensão aplicada no ânodo da lâmpada. Os resultados a vermelho referem-se ao eixo da esquerda e os resultados a azul e verde ao eixo da direita. Os valores foram corrigidos tendo em conta a transmissão de cada filtro. Os resultados foram obtidos em vácuo [122].

¹ Considerou-se “luz total” como sendo a luz recolhida no PMT sem qualquer filtro e com a câmara em vazio.

Os resultados confirmam que a lâmpada emite essencialmente ($>90\%$) luz com c.d.o. compreendidos entre 160 e 188 nm. Aplicando uma tensão de 2000 V no ânodo é detetada uma luz residual ($<0.75\%$) com c.d.o. superiores a 220 nm que podemos discriminar: aproximadamente 0.25% de luz com c.d.o. entre 220 e 400 nm, e $\sim 0.5\%$ para c.d.o. superiores a 350 nm. A soma destas parcelas é de $93.2\pm 4.4\%$. Os $\sim 7\%$ não contabilizados deverão estar no intervalo de c.d.o. entre 188 e 220 nm, não coberto por nenhum dos filtros, mas sem qualquer intervenção na experiência.

3.3.2.2 Variação da Intensidade de Emissão da Lâmpada em Função do Tempo

Como foi atrás referido, o gás de enchimento da lâmpada não tem purificação. Isso leva a que haja uma degradação da pureza do gás no interior da lâmpada e uma consequente diminuição da intensidade de emissão da lâmpada.

No início, no final e, por diversas vezes, ao longo do trabalho, analisou-se a intensidade da “luz total”. A figura seguinte apresenta-nos um gráfico da intensidade da emissão da lâmpada, expressa através do canal do MCA, em função do tempo.

Ajustando os resultados a uma curva exponencial, determinou-se o valor da constante de decaimento da exponencial em 0.00219 dia^{-1} . Ou seja, a cada ~ 316 dias a intensidade de emissão da lâmpada é reduzida para metade. Essa análise tornou possível a normalização dos sinais obtidos ao longo do tempo relativamente a esta degradação do sinal. Os resultados foram normalizados à intensidade do sinal da lâmpada no início dos estudos (Canal 708).

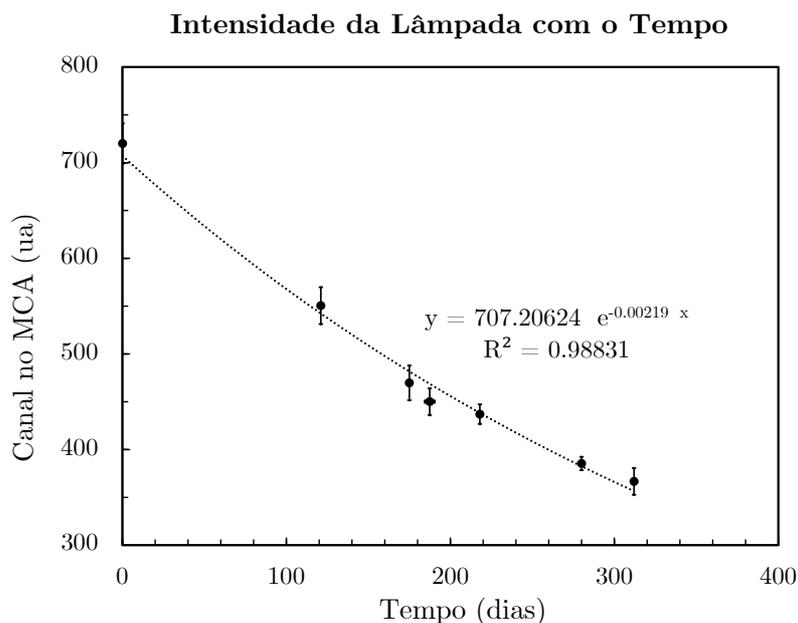


Figura 29 – Intensidade de emissão da lâmpada (canal no MCA) em função do tempo (dias).

3.3.3 Coeficiente de Absorção de Luz VUV pela TMA

Para verificar absorção da luz VUV de xénon pela molécula de TMA e determinar o coeficiente de absorção, encheu-se a câmara com Xe puro e com misturas de Xe – TMA. Comparando o canal do centróide da “luz total”, em vazio e em Xe puro, e em cada mistura, permitiu verificar que a intensidade do sinal detetado diminuía com o aumento da concentração de TMA na mistura. A figura 30 mostra espectros obtidos com o MCA para diferentes misturas Xe – TMA e para Xe puro. O sinal com Xe puro não mostrou diferenças detetáveis em relação ao obtido em vazio, como se esperava.

A análise da posição do centróide de cada uma das distribuições foi feita automaticamente pelo *software* do MCA. Para frações de TMA superiores a 0.5% (mais de 4 Torr de TMA, em 800 Torr), o número de fótons detetados não foi suficiente para produzir um sinal visível no MCA.

A figura 31 mostra os resultados do canal do centróide do pico no MCA em função da concentração de TMA na mistura.

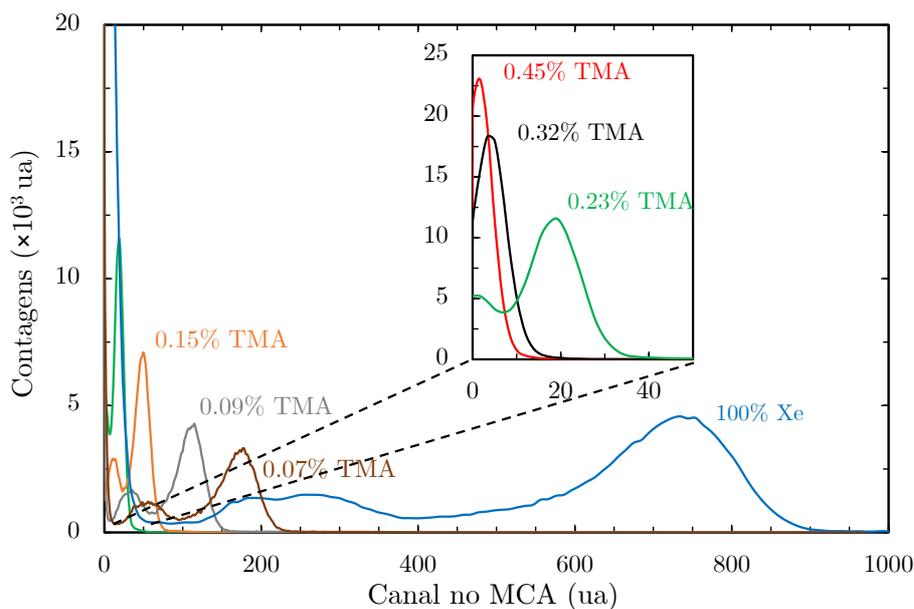


Figura 30 – Espectros da luz detetada no PMT (160 – 650 nm) para diferentes misturas de Xe – TMA. Pressão total de 800 Torr, tensão aplicada no ânodo de 2000 V. Para melhor analisar os resultados nas misturas com 0.45%, 0.32% e 0.23% de TMA, fez-se uma amplificação na região dos primeiros 50 canais [122].

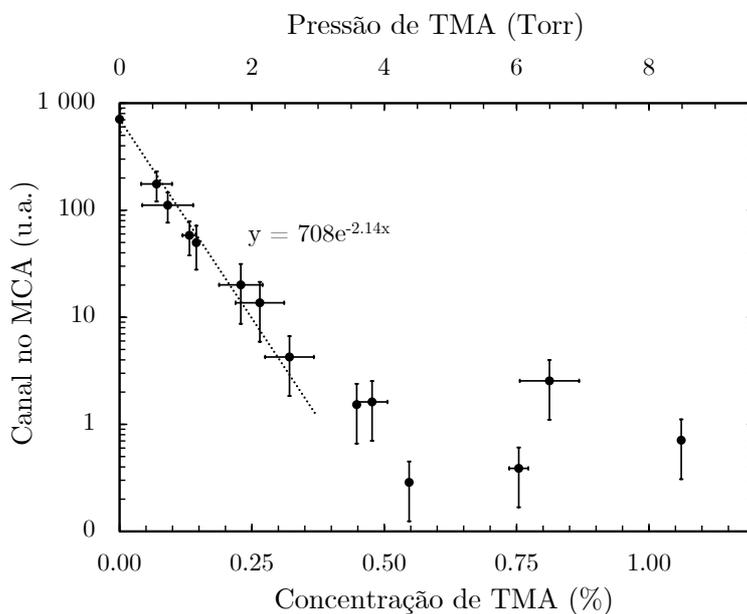


Figura 31 – Resultados da amplitude do sinal (posição do centróide no MCA) em função da concentração de TMA na mistura. Pressão total de 800 Torr e tensão de 2000 V. Estimou-se um percurso médio para os fótons de 50.3 mm.

Fazendo uma estimativa da distância percorrida pelos fótons de 50.3 mm, e analisando a posição do centróide do sinal no MCA para cada mistura através do

ajuste aos resultados experimentais, pela equação 3.7, determinou-se que o coeficiente de absorção da luz VUV de Xe por TMA, C , é de $0.43 \pm 0.03 \text{ Torr}^{-1} \text{ cm}^{-1}$. Estes resultados estão de acordo com os resultados a baixas pressões apresentados em [127].

3.3.4 Coeficiente de Reemissão de Luz UV pela TMA

Uma vez que a literatura [136] não esclarece se a molécula de TMA reemite ou não a luz VUV em outro c.d.o. (260 – 350 nm), procurou-se detetar essa reemissão.

Usando as mesmas misturas do estudo do coeficiente de absorção, colocando o BP1 entre o PMT e a janela do detetor, analisaram-se os espectros produzidos.

Já tinha sido verificado, no estudo do espectro de emissão da lâmpada, que a luz emitida entre 220 e 400 nm é residual ($<0.25\%$ da luz total). Aqui, para cada mistura, analisou-se o espectro obtido sem filtro e com o filtro BP1 (220 - 400 nm), para determinar se, após a absorção da luz VUV, a molécula de TMA reemitia num c.d.o. maior (260 – 350 nm de acordo com [128, 130]).

Tal como anteriormente, o centróide do espectro foi determinado pelo *software* do MCA. No entanto, para um sinal residual ou no caso de o centróide ser muito próximo da origem, o *software* não consegue determinar o centróide. Nestas condições considerámos que devia ser determinado pela média pesada do número de contagens em cada canal.

Na figura seguinte são apresentados os espectros, obtidos pelo MCA, para algumas misturas de Xe – TMA com o filtro BP1. Como se pode ver, a luz detetada pelo PMT é semelhante, independente da composição da mistura de Xe – TMA e é também semelhante à do espectro com Xe puro.

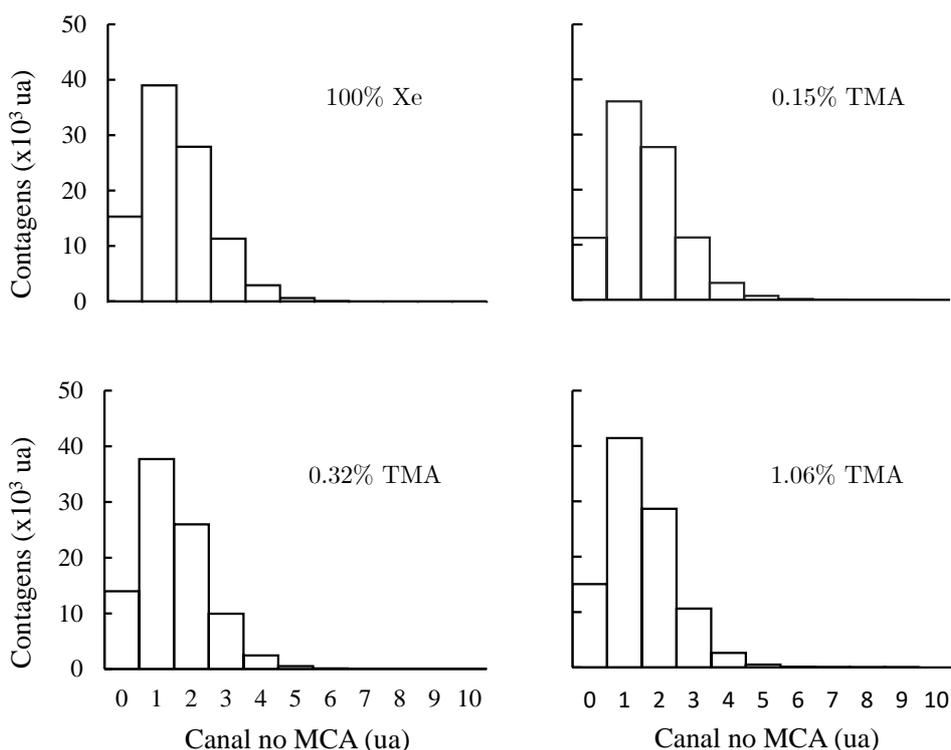


Figura 32 – Histograma produzido no MCA da luz detetada no PMT usando o filtro BP1 (220 - 400 nm) em diferentes misturas Xe - TMA. Pressão de 800 Torr. Tensão no ânodo de 2000 V [122].

Nas diferentes misturas Xe – TMA e em Xe puro, a posição do centróide determinado pela média pesada das contagens em cada canal foi de 1.64 ± 0.12 . Este valor corresponde a $\sim 0.2\%$ da “luz total” emitida pela lâmpada detetada no PMT (centróide no canal 708 do MCA).

Os resultados obtidos são apresentados na figura 33, em que a posição do centróide do espectro é analisada em função da concentração de TMA na mistura. Sem filtro, observa-se um decréscimo da luz detetada em função do aumento da concentração de TMA na mistura. Com o filtro BP1 o centróide está sempre situado no canal 1.64 (símbolos vermelhos, eixo da direita), não variando com a concentração de TMA o que seria de esperar se houvesse reemissão nesta região de c.d.o.

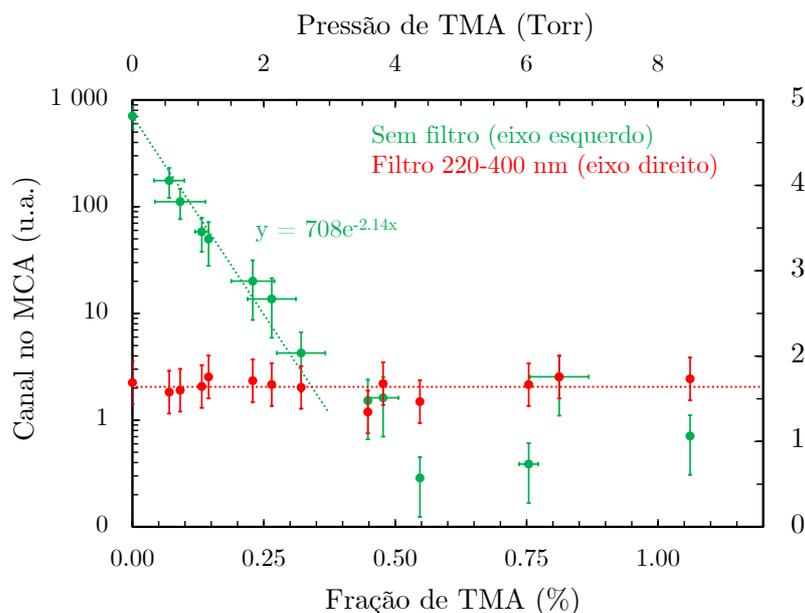


Figura 33 – Luz recolhida no PMT (expressa em termos de posição do centróide do pico) em função da concentração de TMA na mistura a 800 Torr, sem filtro (símbolos verdes, eixo da esquerda) e com o filtro BP1 (símbolos vermelhos, eixo da direita). Estimou-se um percurso médio para os fótons de 50.3 mm. Tensão aplicada na lâmpada de 2000 V. As barras de erro horizontais (só apresentados na série a verde) são iguais em ambas as séries. [122].

A Tabela seguinte apresenta, resumidamente, os resultados obtidos a 800 Torr para as diferentes misturas e para Xe puro, com os vários filtros e sem filtro. Os resultados foram normalizados e corrigidos para as características de cada filtro e são apresentados sob a forma de percentagem da “luz total”. A tensão aplicada no ânodo em todos os casos foi de 2000 V.

Estes resultados permitem-nos concluir que a molécula de TMA absorve a luz VUV de Xe com um coeficiente de absorção de $0.43 \pm 0.03 \text{ Torr}^{-1} \text{cm}^{-1}$, e não reemite com intensidade detetável por este sistema experimental noutra c.d.o..

Tabela 5 - Luz detetada em Xe puro e em misturas Xe - TMA a 800 Torr, sem filtro e com os vários filtros utilizados. Tensão no ânodo a 2000 V [122].

TMA (Torr)	TMA (% a 800 Torr)	Sem Filtro (%)	220-400 nm (%)	>350 nm (%)	160-188 nm (%)
8.49 ± 0.45	1.06 ± 0.06	0.94 ± 0.07	0.24 ± 0.05	0.50 ± 0.05	*
6.03 ± 0.14	0.75 ± 0.02	0.89 ± 0.07	0.22 ± 0.05	0.45 ± 0.05	*
4.38 ± 0.23	0.55 ± 0.03	0.88 ± 0.07	0.22 ± 0.05	0.48 ± 0.05	*
3.58 ± 0.04	0.45 ± 0.01	1.05 ± 0.11	0.25 ± 0.05	0.48 ± 0.05	*
2.57 ± 0.37	0.32 ± 0.05	1.44 ± 0.07	0.23 ± 0.05	0.47 ± 0.05	0.7 ± 0.5
1.83 ± 0.33	0.23 ± 0.04	3.65 ± 0.07	0.24 ± 0.05	0.46 ± 0.05	1.6 ± 1.0
1.16 ± 0.04	0.15 ± 0.01	7.81 ± 0.10	0.19 ± 0.05	0.49 ± 0.05	6.6 ± 1.0
0.73 ± 0.38	0.09 ± 0.05	16.5 ± 0.2	0.21 ± 0.05	0.49 ± 0.05	11.2 ± 1.0
0.56 ± 0.23	0.07 ± 0.03	25.5 ± 0.9	0.23 ± 0.05	0.51 ± 0.05	24.5 ± 1.0
0.00	0.00	100	0.24 ± 0.05	0.49 ± 0.05	93.2 ± 4.4

* não detetável

3.3.5 Análise dos Resultados

Apesar do sistema experimental não conseguir detetar nenhum sinal proveniente da reemissão de luz de TMA, podia este comportamento ser devido ao facto de a sensibilidade do sistema não ser suficiente para detetar essa reemissão. Não ser detetado não significa necessariamente que não exista. Foi então importante estabelecer a sensibilidade do sistema. Para determinar o limite inferior de intensidade para o qual o sistema detetaria um sinal (que neste caso seria proveniente da reemissão da molécula de TMA), foi feita no grupo uma simulação pelo método de MC.

Determinou-se primeiramente o limite mínimo de intensidade de luz que o nosso sistema poderia detetar. Em vácuo, com 2000 V no ânodo (“luz total”), o centróide do pico gerado no MCA situava-se no canal 708. Analisando os histogramas da figura 32, considerou-se que o aumento de 0.5 de canal na posição do centróide no MCA, na região em que se considerou que não se detetava luz (ver figura 32) seria o suficiente para ser observável a presença de um sinal de luz. Esse desvio de 0.5 canais corresponderia a 0.07% da “luz total”.

Contudo, como a reemissão de luz é isotrópica, a luz efetivamente detetada seria diferente dos 0.07% da luz total estimados. Além disso, os fótons reemitidos

têm c.d.o. diferentes dos fotões VUV de Xe pelo que os coeficientes de reflexão nas paredes da câmara são maiores do que os da luz VUV de Xe [137, 138]. Quer isto dizer que o aumento de 0.5 canal no espectro, (em teoria 0.07% da “luz total”), não corresponderá a uma probabilidade de reemissão de 0.07%, mas superior. Para determinar qual a probabilidade de reemissão a que corresponde um aumento de 0.5 canal neste sistema, fez-se uma simulação de MC.

Na figura seguinte apresenta-se um esquema das (principais) interações dos fotões provenientes da lâmpada de Xe, após entrarem na câmara onde está o gás. Em a) estão apresentadas as interações quando não há reemissão e em b) estão apresentadas as interações no caso de reemissão noutra c.d.o..

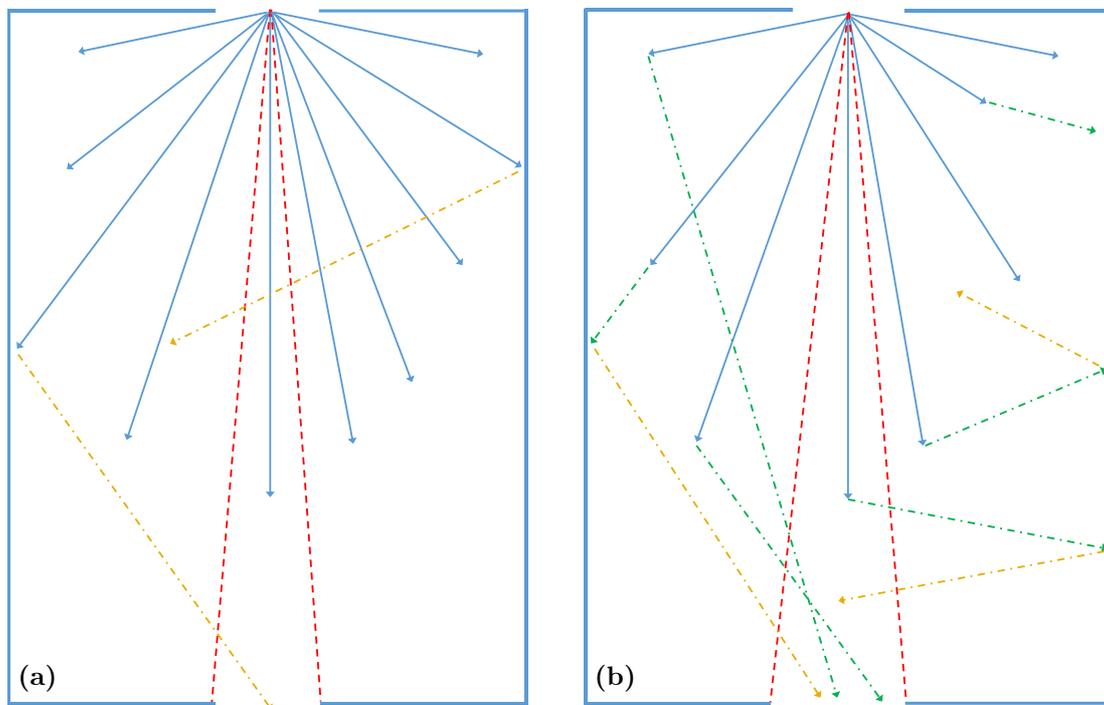


Figura 34 – Representação esquemática da deteção de luz (a) sem reemissão e (b) com reemissão. As setas azuis representam os fotões provenientes da lâmpada de Xe. As linhas tracejadas a vermelho representam o ângulo sólido do PMT. As setas tracejadas a amarelo representam os fotões refletidos pelas paredes da câmara. As setas tracejadas a verde representam os fotões reemitidos por TMA [122].

O modelo de MC desenvolvido teve em conta as características geométricas do sistema experimental, nomeadamente reflexão da luz nos materiais, refração e transmissão nas janelas de Suprasil[®] e janela do PMT, para os diferentes c.d.o. possíveis: 172 nm de Xe ou ~300 nm da reemissão de TMA. Os resultados obtidos

por simulação (relativos) foram normalizados relativamente à “luz total” (708 canais no MCA) para ser feita a conversão em canais do MCA.

Simulando para diferentes probabilidades de reemissão, admitindo como limite mínimo de detecção do MCA 0.5 canais, foi possível estabelecer a probabilidade mínima de reemissão a partir da qual o sinal seria visível no nosso sistema.

A figura seguinte mostra os resultados obtidos através da simulação.

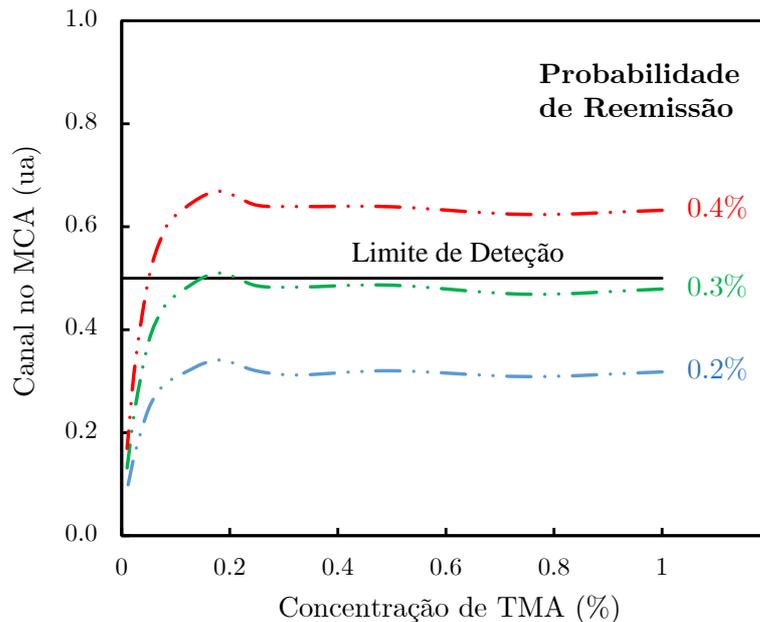


Figura 35 – Resultados de simulação de Monte Carlo para o número de fótons reemitidos (convertidos em canais no MCA) em função da concentração de TMA, para três diferentes probabilidades de reemissão. A linha preta horizontal, marca o limite de detecção (0.5 canais) [122].

Os resultados apresentados na figura 35 mostram que se houver reemissão de luz por TMA a probabilidade dessa reemissão deverá ser inferior a 0.3%. Para valores superiores produziria um sinal detetável neste sistema experimental.

3.3.6 Conclusões

O estudo da absorção da luz VUV e reemissão num maior c.d.o. pelo gás TMA foi realizado em xénon puro e em misturas Xe – TMA com frações de TMA entre

0.07% e 1.06%, a pressão total de 800 Torr. Para frações de TMA acima de 0.5%, num percurso estimado de 50.3 mm, a luz emitida pela lâmpada é absorvida e nenhum sinal é detetado. O coeficiente de absorção de TMA para a luz VUV de Xe (~ 172 nm) estimado foi de 0.43 ± 0.03 Torr $^{-1}$ cm $^{-1}$.

Neste sistema experimental não foi detetada reemissão de luz UV (260 – 350 nm). No entanto, como isto não significa necessariamente que não haja reemissão, é necessário avaliar a quantidade mínima de luz reemitida que produziria um sinal detetável pelo sistema. Para isso criou-se um modelo, para simular por Monte Carlo, que incluísse os aspetos relevantes, físicos e geométricos, do sistema experimental e da reemissão de luz. Estabelecida a sensibilidade mínima do sistema, e determinado o coeficiente de absorção, a simulação permitiu concluir que, mesmo havendo reemissão, ela deverá ser inferior a 0.3% da luz absorvida.

Assim, podemos concluir que TMA não deverá ser o aditivo adequado na procura do $0\nu\beta\beta$ (decaimento beta duplo sem emissão de neutrino), numa Xe-TPC a alta pressão, já que não corresponde às expectativas que motivaram esta investigação. De facto, não só absorve a cintilação de xénon (aspeto crítico no que respeita à cintilação primária) como não a reemite num outro (mais vantajoso) c.d.o..

3.4 Produção de Carga

A experiência NEXT a que este trabalho está diretamente ligado, utiliza uma TPC eletroluminescente, como referido anteriormente. Este detetor tem um princípio de funcionamento semelhante ao do CGCP, ou seja, é um detetor em que a amplificação do sinal é feita através do sinal de eletroluminescência. Embora a experiência NEXT tenha optado por esta modalidade de amplificação, a multiplicação de carga com microestruturas chegou a ser uma opção e é o modo de amplificação usado em outras experiências. Os dois detetores – CP e CGCP, permitem a obtenção de informação complementar e, assim, estudar as diferentes possibilidades de operação de um determinado meio de deteção (neste caso uma

mistura) tornam o estudo mais abrangente. Por outro lado, há indicações, dadas pelos estudos anteriores, de possíveis vantagens neste modo de amplificação.

Como descrito na secção 1.1, o CP é um tipo de detetor gasoso de radiação, desenvolvido nos anos 40 do século passado [1], cujo modo de funcionamento tem um estágio de amplificação com multiplicação de carga. Utiliza comumente gases nobres como meio de deteção, normalmente com *quencher*, ou seja, misturas baseadas em gás nobre.

No âmbito da experiência NEXT têm sido considerados alguns aditivos moleculares, tais como CF_4 , CH_4 ou TMA, em detrimento da utilização de Xe puro [7, 10].

Alguns dos aditivos sugeridos âmbito de NEXT (CF_4 , CH_4) estão já bem estudados no que diz respeito à multiplicação de carga, pelo que o seu estudo seria redundante aqui. No âmbito do estudo da trimetilamina como aditivo molecular em detetores gasosos com gás nobre como meio de deteção, não estando essa informação disponível, decidiu-se, por uma questão de generalidade e abrangência, avaliar também os efeitos do aditivo na multiplicação de carga, o meio alternativo da eletroluminescência na amplificação do sinal em detetores gasosos. Dado o baixo limiar de ionização de TMA determinado no capítulo 2 [82], TMA pode ser um aditivo interessante na modalidade de amplificação por multiplicação de carga, já que pode permitir maiores fatores de multiplicação a campos elétricos mais baixos.

3.4.1 Sistema e Método Experimental

Como atrás referido, o CP é um dispositivo gasoso de deteção da radiação. O CP usado neste trabalho tem formato cilíndrico com um fio de tungsténio (ânodo), como habitualmente, com $45\ \mu\text{m}$ de diâmetro, revestido com 5 nm de ouro.

O corpo do detetor é uma “cruz” *standard* DN40 CF, de aço inoxidável para alto vácuo. Tem uma janela para a radiação de Kapton[®] com $50\ \mu\text{m}$ de espessura, com um depósito de alumínio com $\sim 100\ \text{nm}$ de espessura. A janela é circular com 1 mm de diâmetro. O cátodo, de aço inoxidável, é um cilindro menor do que o corpo, com um raio interno de $32.2\pm 0.1\ \text{mm}$. Este cilindro, tem uma abertura

para permitir a entrada da radiação, e foi colocado no interior do corpo do detetor para uniformizar o campo elétrico. O isolamento elétrico entre o corpo do detetor e o ânodo é feito através de cerâmica Macor[®]. Entre o ânodo e o corpo do detetor está um anel metálico, designado por *anel de guarda*. O *anel de guarda*, também ele isolado eletricamente do corpo do detetor e do ânodo por componentes de cerâmica Macor[®], está à mesma tensão do ânodo, e impede correntes de fuga (figura 36).

Os processos físicos envolvidos na detecção da radiação num CP foram descritos na secção 1.1.

O CP desenvolvido foi usado para estudar a produção de carga e resolução em energia em misturas gasosas. Foi usada uma fonte radioativa ⁵⁵Fe (com emissão predominantemente de raios X de 5.90 e 6.49 keV – emissão K_α e K_β do Mn, respetivamente).

A figura seguinte é o esquema de um corte vertical do interior do detetor (sem o cilindro metálico interno – cátodo – para melhorar a visualização do esquema).

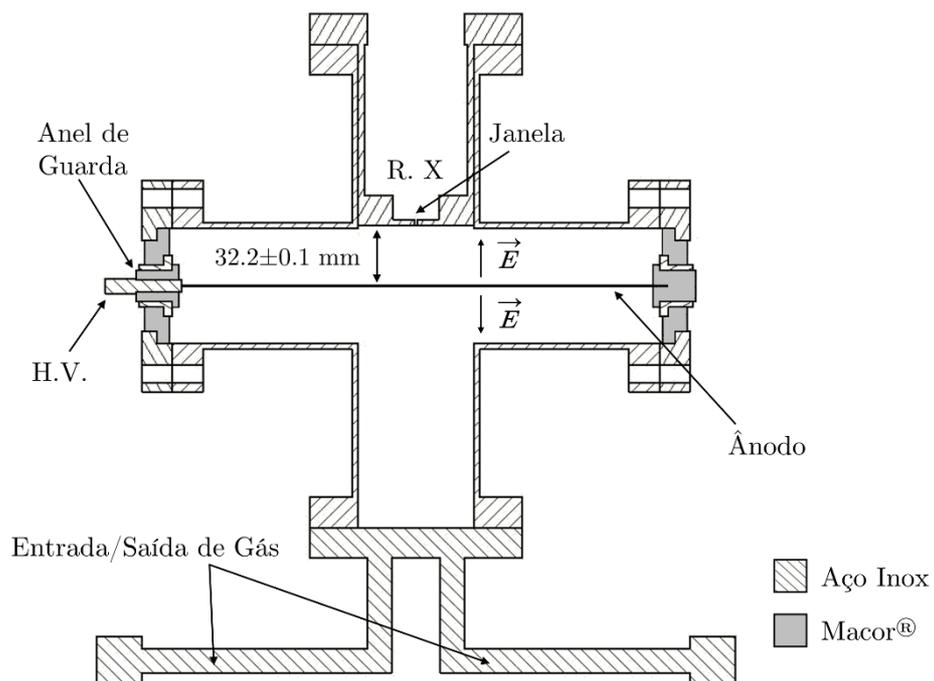


Figura 36 – Esquema do corte vertical do CP de geometria cilíndrica. Não está representado o cilindro metálico (cátodo) para melhorar a visualização do esquema.

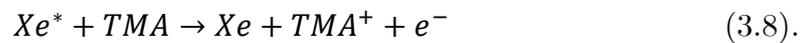
A tensão no ânodo é fornecida por uma fonte de alta tensão da marca Canberra[®], modelo 3106D. O sinal recolhido no ânodo é pré-amplificado e posteriormente amplificado. O pré-amplificador utilizado foi da marca Canberra[®], modelo 2006 (pré-amplificador de carga) e o amplificador foi Tenelec[®], modelo TC243. O sinal foi analisado com um MCA Ortec[®], modelo Trump PCI 2k e por um osciloscópio da marca Tektronix[®], modelo TDS 2024C.

Usou-se Xe e misturas Xe – TMA, a pressões de 800 Torr. A percentagem de aditivo considerada foi sempre inferior a 0.5%. A purificação era contínua, por convecção, e está descrita pormenorizadamente na secção 2.1.

3.4.2 Resultados em Xe puro e Misturas Xe – TMA

A mistura Xe – TMA, no modo multiplicação de carga suscitou grandes expectativas, por ser desconhecida e prenunciadas pelas experiências anteriores. A figura 37 apresenta os resultados obtidos, para ganho de carga e resolução em energia, em função da tensão aplicada ao ânodo do CP.

Nas misturas Xe – TMA verifica-se que a multiplicação de carga ocorre para tensões no ânodo inferiores às de Xe puro e que o aumento da concentração de TMA leva a que as tensões aplicadas no ânodo para produzir o mesmo ganho sejam cada vez menores. Este efeito decorre de dois modos: menor potencial de ionização de TMA (~7.9 eV) [80, 82], que leva a que os produzam ionização mais rapidamente e, portanto, em maior número e através do processo descrito na equação seguinte:



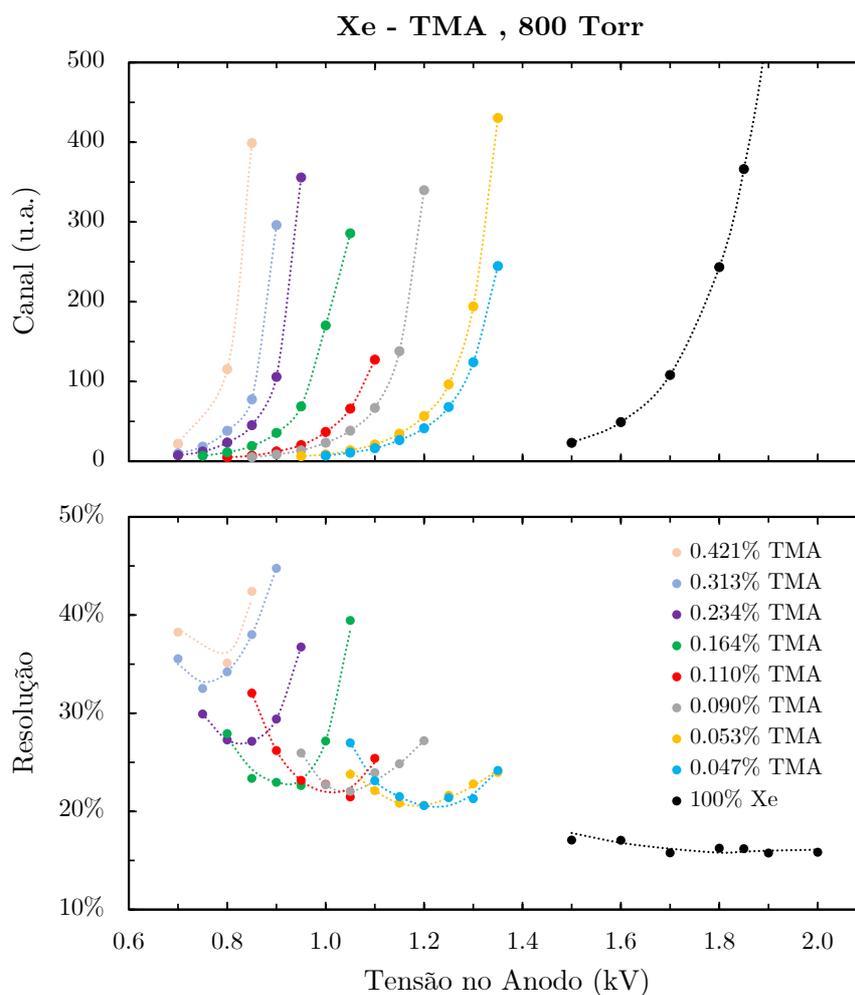


Figura 37 – Ganho de carga (em cima) e resolução em energia (em baixo) em Xe puro e em misturas Xe – TMA a 800 Torr, em função da tensão no ânodo. Energia da radiação incidente 5.90 keV.

Esta característica poderá ser uma vantagem na utilização destas misturas neste modo. Mas, nesta modalidade de amplificação (carga) há outras vantagens a salientar: a absorção da luz de xénon por TMA – muito eficiente como se viu na secção 3.3 – TMA atua como um *quencher* muito eficiente, evitando avalanches espúrias. Para além disso, a elevada mobilidade dos iões de TMA, podem tornar estas misturas eficientes para elevadas taxas de contagem. No entanto, existe uma degradação da resolução de energia, crescente com o aumento da concentração de TMA na mistura, devida ao aumento da variância do número médio de eletrões produzidos por cada fóton absorvido, característica determinante para a resolução do detetor (equações 1.4 e 1.5).

3.4.3 Conclusões

A fim de poder estudar as características (ganho de carga e resolução em energia neste modo de amplificação) de misturas gasosas de Xe com aditivos moleculares, foi desenvolvido um detetor gasoso de radiação do tipo contador proporcional. Foram analisadas diversas misturas gasosas de Xe com TMA, em concentrações inferiores a 0.5%.

Da análise dos resultados, podemos verificar que:

- Em todas as misturas existe uma degradação da resolução em energia;
- Em todas as misturas pode verificar-se o aparecimento de multiplicação de carga a tensões mais baixas, do que em Xe puro. Quanto maior for a concentração de TMA na mistura, menor é a tensão necessária para produzir um sinal de carga de igual amplitude.

Podemos assim concluir que existem possíveis benefícios na adição de TMA a Xe puro, para detetores de radiação do tipo CP, embora à custa de uma degradação da resolução em energia.

3.5 Produção de Luz

Como discutido na secção 1.2, o contador gasoso de cintilação proporcional (CGCP), é um dispositivo que tem sido muito estudado no nosso grupo de investigação desde a década de 60 [59]. A experiência e o conhecimento adquiridos no desenvolvimento e construção de vários protótipos de CGCP, as variações na configuração, para melhorar a resolução em energia [63, 139], dão-nos a aptidão e, esperamos, a competência, para esta nova etapa de adaptação a novas aplicações. A nova etapa pretende satisfazer as solicitações das novas experiências, de grandes dimensões, indispensáveis na procura de matéria escura, física de altas energias ou outras experiências de eventos raros. As características já enumeradas destes detetores fazem-nos os dispositivos ideais para as necessidades individualizadas de cada uma destas experiências. Verifica-se que as experiências de grandes dimensões recorrem, em número crescente, aos detetores gasosos, concretamente a TPCs eletroluminescentes, uma versão melhorada, mas com

princípio de funcionamento semelhante ao do CGCP [4, 5]. Estas experiências têm exigências elevadas e muito específicas a que a TPC/CGCP consegue dar resposta. Por exemplo, grandes dimensões, facilmente conseguidas com detetores gasosos que podem ser desenhados e construídos de acordo com as necessidades; elevada eficiência de deteção que, apesar da baixa densidade intrínseca dos meios gasosos, pode ser solucionada pelo aumento da pressão; a possibilidade de variação do gás de enchimento conforme as conveniências da experiência. Mais ainda, algumas características existentes podem ser soluções nessas experiências.

O trabalho realizado com o CGCP pretende dar resposta a problemas da experiência NEXT. O estudo de cintilação (primária e secundária) e de resolução em energia, podem ser efetuados com este dispositivo, numa escala menor, com menor custo e por isso com possibilidade de maior extensão, mas igualmente informativo. O objetivo proposto foi estudar as características de misturas gasosas com xénon como componente maioritário, que pudessem ser viáveis, ou seja, mantendo as suas propriedades essenciais (ainda que haja margem para alguma degradação) mas, ao mesmo tempo resolver ou minimizar os problemas existentes.

O detetor CGCP construído para este trabalho utiliza a geometria de grelhas paralelas, a mais convencional e com mais vantagens, descrita em pormenor na secção 1.2.

Da interação inicial dos fótons de radiação em xénon resulta a emissão de luz (cintilação primária) e no decorrer da deriva de eletrões sob influência de campos elétricos há também emissão de luz (cintilação secundária). Estes processos estão descritos na secção 1.2.

A cintilação primária é uma característica de operação do CGCP tradicionalmente negligenciada, considerada acessória. No entanto, as suas propriedades motivaram a sua escolha para sinalizar o instante de ocorrência da interação na experiência NEXT. Assim, o conhecimento pormenorizado do comportamento e propriedades desta emissão nos meios considerados possíveis, é fundamental para viabilizar esses meios.

Em NEXT é usada uma TPC eletroluminescente. A eletroluminescência ou cintilação proporcional é uma propriedade dos gases raros, intensificada pela aplicação de um campo elétrico apropriado.

Dada a possibilidade de utilização de aditivos moleculares a xénon, foi indispensável o estudo dos seus efeitos nos processos de produção de luz. Mais concretamente, aqui vamos fazer incidir o estudo nas misturas Xe – TMA. Assim, começámos por analisar pormenorizadamente as possibilidades na sequência da excitação de xénon (a origem da cintilação) nas misturas de xénon com TMA.

Para discutir os possíveis canais de um átomo de xénon excitado em misturas de Xe – TMA, apresentamos a figura 38, uma adaptação da figura 25 da secção 3.3.

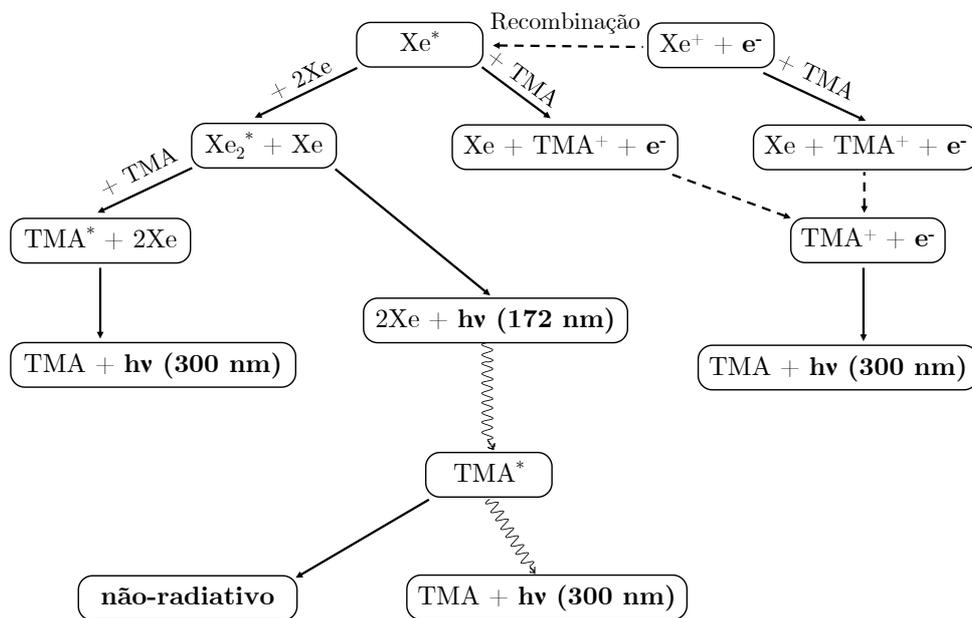


Figura 38 – Esquema dos processos possíveis em misturas Xe – TMA após a formação de um átomo de xénon excitado.

No CGCP (e na TPC), a nuvem de eletrões primária formada deriva em direção à região designada por região de cintilação, por ação de um campo elétrico externo uniforme ($<1 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$). Nessa região, um campo elétrico também uniforme, mas de maior intensidade (em xénon entre $2 \text{ e } 6 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$)², garante que os eletrões ganham energia suficiente para, ao colidirem, excitar os átomos do meio, mas não para os ionizar. Tal como visto, os átomos excitados produzem cintilação, aqui designada por cintilação secundária ou eletroluminescência, uma vez que é induzida pelo campo elétrico externo.

² Estas gamas para os campos de deriva e de cintilação são para xénon.

3.5.1 Sistema Experimental

A construção do CGCP foi nas oficinas do L.I.P.. Os materiais usados foram aço inoxidável, cerâmica Macor[®] e anéis vedantes de cobre e de Viton[®]. Após a manufatura e limpeza das peças, fez-se a montagem e instalação do CGCP na linha de vácuo. Foram feitos testes de estanquicidade recorrendo ao RGA.

O CGCP tem uma altura de 70 mm e um diâmetro de 240 mm. No topo está uma janela de Kapton[®] de 50 μm de espessura, aluminizado com um filme fino de 200 nm com espessura. A janela tem uma abertura de 1 mm de diâmetro. No interior existem duas grelhas metálicas (G_1 e G_2) feitas de uma malha de fios com 50 μm de diâmetro de aço inoxidável produzidas pela Hebei General Metal Netting Co. [140] com transmissão ótica de 0.885. Aplicando tensões apropriadas às grelhas, são gerados dois campos elétricos distintos que definem duas regiões do detetor: a primeira região, compreendida entre o topo do detetor e a primeira grelha (G_1), a região de absorção/deriva; a segunda região, compreendida entre a primeira e a segunda grelha (G_1 e G_2 , respetivamente), a região de cintilação. Neste caso as tensões aplicadas são negativas. O campo elétrico na região de deriva/absorção é definido pela d.d.p. entre a janela e a grelha G_1 . O campo elétrico na região de cintilação é definido pela d.d.p. entre G_1 e G_2 , com G_2 ligada à terra. Os valores dos campos elétricos aplicados na zona de deriva/absorção estão compreendidos entre 0.1 e 1.0 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Os campos elétricos na zona de cintilação estão compreendidos entre 1.5 e 9.0 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

A fonte radioativa utilizada foi ^{55}Fe (raios X de 5.90 keV e 6.49 keV para emissão K_α e K_β do Mn, respetivamente). Para obter uma fonte mais próxima de monoenergética, utilizou-se um filtro com 8 μm de espessura de Crómio, que absorve a quase totalidade (>90%) da radiação K_β , e apenas ~30% da radiação K_α [141].

A figura seguinte representa um esquema do corte vertical do CGCP, com as dimensões das regiões de absorção/deriva e de cintilação, de 35.0 ± 0.3 e 6.2 ± 0.1 mm, respetivamente, a janela de entrada de raios X e o fotomultiplicador (PMT), colocado no interior do detetor. O PMT utilizado neste sistema é Hamamatsu[®], modelo R8520-406.

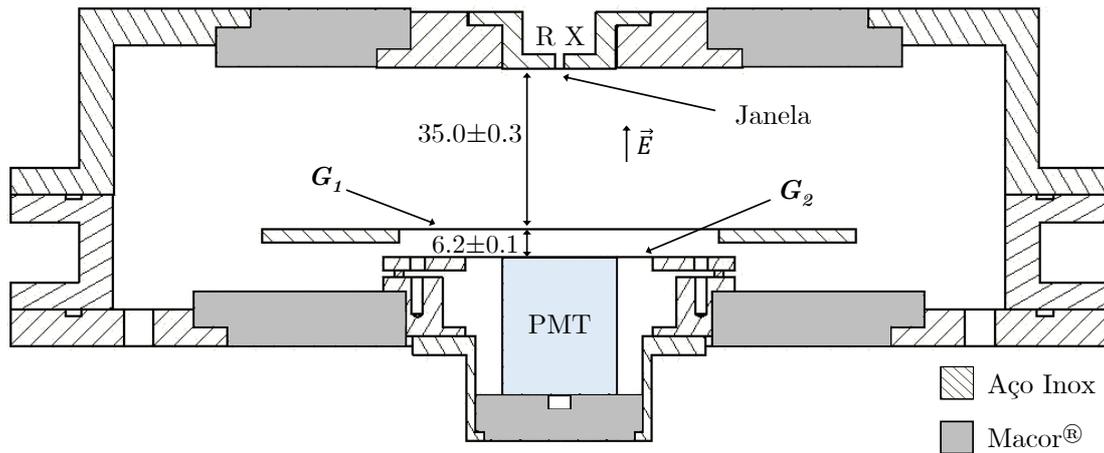


Figura 39 – Corte vertical do segundo protótipo CGCP. R X indica a localização da fonte de raios X. G_1 e G_2 são as grelhas metálicas que definem as regiões de absorção/deriva e de cintilação.

Este esquema representa o corte vertical do segundo protótipo CGCP, feito a partir de um primeiro protótipo semelhante, mas com o PMT [133] no exterior do detector. O PMT foi colocado no exterior, na mesma localização do que o da figura, mas separado do detector por uma janela de quartzo Suprasil[®] 311 [131], com 10 mm de espessura e 50 mm de diâmetro. Este novo detector foi necessário já que o sinal de cintilação primária, fundamental nesta experiência, é muito fraco. O PMT no exterior (primeiro protótipo) permitia a colocação de filtros (*bandpass*) à entrada do PMT, para avaliar a composição espectral da luz. No entanto, no caso da cintilação primária, esta montagem implica perdas inportáveis, quer pelo menor ângulo sólido subtendido pelo PMT, quer pela absorção da luz pela janela (~25%). Ambos os fatores diminuem a intensidade do sinal recolhido e, por isso, pioram a resolução em energia (a 800 Torr com a fonte de Mn a resolução é de ~13% no primeiro protótipo e ~8% no segundo) dificultando ou mesmo impedindo o estudo da, já de si diminuta, cintilação primária.

As tensões (janela e grelha G_1) são fornecidas por uma fonte de alta tensão Caen[®], modelo N1470. A amplificação do sinal é feita por um amplificador linear Tenelec[®], modelo TC202. A análise do sinal faz-se utilizando um analisador multicanal (MCA) Amptec[®], modelo MCA8000D e por osciloscópio Tektronix[®], modelo TDS 2024C.

As misturas gasosas foram realizadas recorrendo ao ‘método de diluição’ descrito no capítulo 2. Os gases utilizados foram Xe e TMA. A purificação foi feita continuamente, por convecção, como descrito também no segundo capítulo.

3.5.2 Cintilação Primária

Em algumas experiências, nomeadamente na experiência NEXT, o sinal de luz primária é muito importante porque é usado para indicar o instante inicial do acontecimento (origem temporal) [4, 102]. Uma mistura gasosa que iniba a possibilidade de deteção da cintilação primária compromete esta possibilidade.

Assim, em misturas Xe – TMA e em Xe puro determinou-se o rendimento de cintilação primária por raio-X de 5.9 keV. Em paralelo, com os resultados obtidos para as amplitudes de sinal de luz primária e secundária, foi possível determinar o valor de W para a cintilação primária que designamos por w_p (valor de energia médio gasto na emissão de cada fóton de cintilação primária), em Xe.

Pretende-se com este estudo, dar um contributo para o esclarecimento do valor w_p , já que, na literatura, encontramos dois estudos realizados, nas mesmas condições aqui utilizadas, com valores de w_p diferentes: em [142] $w_p = 111 \pm 16$ eV e em [143] $w_p = 72 \pm 6$ eV. Um terceiro estudo, embora em condições experimentais diferentes, obteve o valor de $w_p = 76 \pm 12$ eV [144] (misturas 90%Xe – He10%, a 20 bar, usando radiação γ de 60 keV).

Os resultados que serão apresentados, estão publicados em Nucl. Instrum. Meth. A 1049 (2023) 168038 [145].

3.5.2.1 Método Experimental

O processo utilizado para a deteção da luz primária e determinação do valor de w_p foi o mesmo que foi utilizado em [142, 146]. Este método consiste em determinar a amplitude do sinal gerado no PMT pela cintilação primária e compará-la com a amplitude do sinal gerado pela cintilação secundária. A dificuldade está em conseguir identificar o sinal de luz primária, já que, neste caso o sinal é da ordem de 1 mV, e mesmo após a multiplicação no PMT e amplificador

linear, não se distingue de modo claro do ruído eletrônico. Por outro lado, a amplitude do sinal de cintilação secundária é da ordem de alguns milhares de vezes superior à do sinal de cintilação primária. Como o sinal de luz primária não se distingue do ruído eletrônico, não é possível fazer este estudo diretamente recorrendo ao MCA. A técnica utilizada em [142, 146] consiste em utilizar um osciloscópio no modo de aquisição fazendo a média de 128 sinais, de modo a atenuar o ruído. Assim, fazendo o *trigger* na subida do impulso de cintilação secundária e colocando a escala no osciloscópio no mínimo (2 mV/div), distingue-se, cerca de $\sim 25 \mu\text{s}$ antes, um impulso $\sim 1 \text{ mV}$ de amplitude (média de 128 impulsos), que corresponde ao sinal de cintilação primária. Este método é possível porque os dois sinais estão separados por um intervalo de tempo conhecido e mensurável (o tempo de deriva da nuvem desde o ponto de absorção até à zona de cintilação). A confirmação de que este sinal de baixa amplitude correspondia ao sinal de cintilação primária foi dada pela variação do intervalo temporal entre os sinais com a variação da intensidade do campo de deriva: o tempo entre sinais aumentava com a diminuição do campo elétrico e vice-versa.

Neste estudo, o *trigger* foi colocado a cerca de $2/3$ da amplitude do sinal de cintilação secundária, de modo a minimizar a contabilização de sinais não correspondentes a sinais de cintilação secundária, para os quais não há sinal de cintilação primária.

No entanto, mesmo com este nível de *trigger*, verificou-se que a existência de sinais de ‘ruído’ de grande amplitude, ou seja, não correspondentes a cintilação secundária, tinha efeito nos cálculos da amplitude do sinal de cintilação primária, pois na média dos 128 impulsos, obtida pelo osciloscópio, estavam incluídos impulsos provenientes de ruído. Com o MCA quantificou-se a razão entre os impulsos provenientes de sinais de cintilação secundária e o total de impulsos registados no espectro. A figura seguinte apresenta um espectro típico obtido pelo MCA, com campos de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e de cintilação $3.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, em 800 Torr de Xe. Em cada espectro obtido determinou-se área do sinal e a linha de base (ruído/fundo).

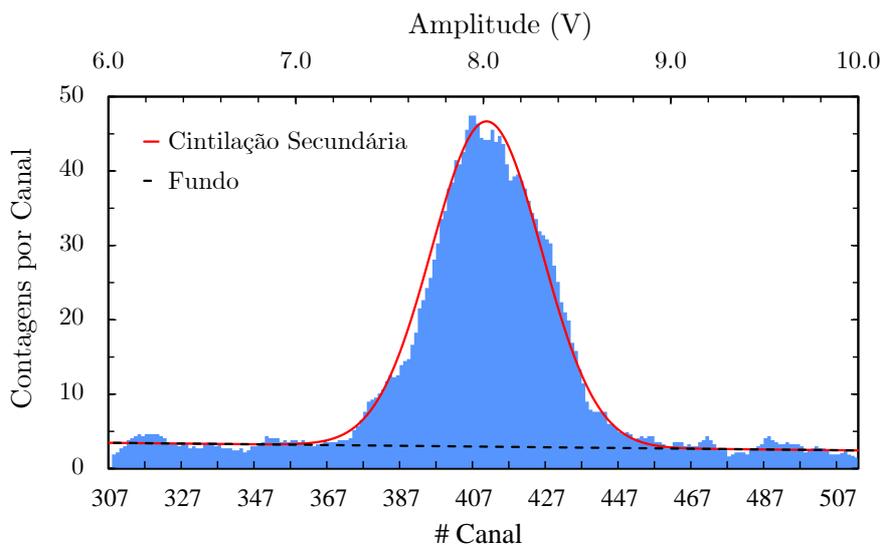


Figura 40 – Espectro típico obtido com o MCA. A curva gaussiana (vermelho) é a curva de ajuste aos resultados. A linha tracejada preta é a de ajuste ao fundo. Campos de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e de cintilação $3.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. 800 Torr de Xe.

Da análise dos resultados do *software* do MCA determina-se o número de impulsos de cintilação secundária e o número total de impulsos, o que nos permite saber e, daí, o número de impulsos de outras proveniências, para os quais não há sinal de cintilação primária, e que falseiam os resultados de cintilação primária.

O rácio entre o número de impulsos de cintilação secundária e o total de impulsos (da ordem de $0.7 - 0.8$) foi tido em conta no cálculo da amplitude do sinal de cintilação primária em cada caso. Na situação anterior, na deteção de um sinal “falso” de cintilação secundária, não há sinal de cintilação primária e, no cálculo da média (com o osciloscópio) dá um valor inferior ao valor real (a amplitude média do ruído é zero). A determinação do valor da amplitude do sinal de cintilação secundária foi obtida pelo canal do centróide do espectro obtido no MCA, confirmada, ainda assim, no osciloscópio. A determinação da amplitude do sinal de cintilação primária foi obtida através da média de 128 impulsos, obtidos com o osciloscópio, depois de feitas as correções do rácio de sinais de cintilação secundária e total. Outras correções efetuadas serão discutidas oportunamente.

Na figura seguinte podemos ver um sinal típico de cintilação primária e secundária, obtidos pelo osciloscópio (os sinais apresentados na realidade correspondem à média de 128 impulsos). Nestes espectros ainda não está feita a correção da amplitude do sinal de cintilação primária que referimos acima.

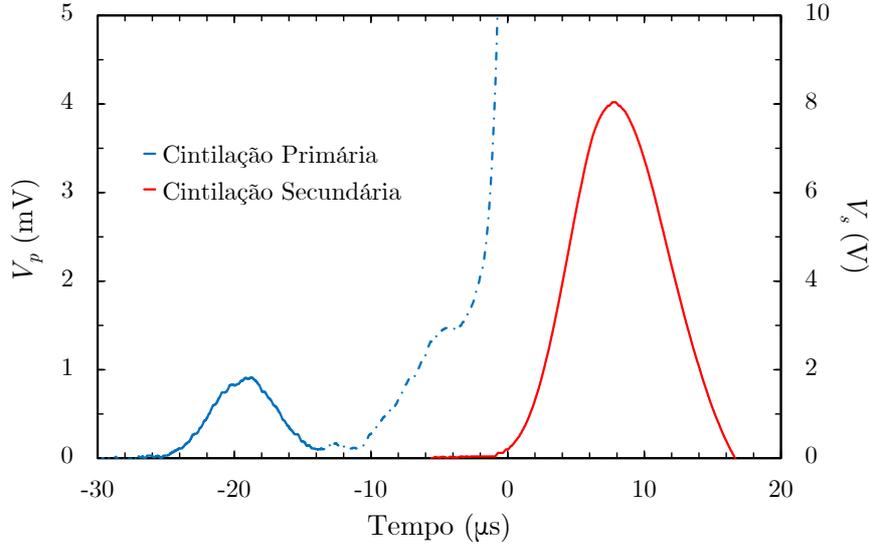


Figura 41 – Sinal, típico, de cintilação primária (azul – eixo da esquerda) e de cintilação secundária (vermelho – eixo da direita). O tempo “zero” está ajustado ao instante da subida do sinal de cintilação secundária escolhido. Espectros correspondem à média de 128 impulsos observados no osciloscópio. 800 Torr de Xe. Campo de deriva de $0.2 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e campo de cintilação de $3.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

O trabalho foi realizado com o segundo protótipo, descrito na secção anterior (PMT no interior do CGCP).

Após a correção da amplitude do sinal de cintilação primária, as amplitudes dos sinais de cintilação secundária, V_s , e de cintilação primária, V_p , são proporcionais ao número de fótons (primários e secundários) que chegam ao PMT.

$$\frac{V_s}{V_p} = \frac{n_s}{n_p} \quad (3.9)$$

O número de fótons primários recolhidos no PMT, n_p , é apenas uma fração do número de fótons emitidos por cintilação primária. O número de fótons recolhidos depende da eficiência de detecção do PMT, da geometria do detetor, do ponto de absorção da radiação (emissão de fótons), das propriedades óticas do detetor (coeficientes de reflexão dos vários materiais e índice de refração da janela do PMT) e da transparência das grelhas. Assim, n_s e n_p são determinados por:

$$n_s = m_s \varepsilon_s \quad (3.10)$$

$$n_p = m_p \varepsilon_p \quad (3.11)$$

em que m_s e m_p são, respetivamente, o número efetivo de fótons emitidos, por cintilação secundária e por cintilação primária. ε_s e ε_p são os coeficientes de eficiência de detecção para fótons de cintilação secundária e primária.

A determinação de m_s pode ser feita através de:

$$m_s = N L d_s \quad (3.12)$$

onde N é o número de elétrons primários produzidos por raio X absorvido, L é o número de fótons de cintilação secundária emitidos por elétron primário e d_s a dimensão da região de eletroluminescência. O valor de L é determinado pela equação

$$L = \left(A \frac{E_s}{p} - B \right) p \quad (3.13)$$

onde E_s é o campo na região de cintilação, p a pressão e as constantes A e B têm os valores de 0.1389 fótons elétron⁻¹ V⁻¹ e 0.1325 fótons elétron⁻¹cm⁻¹Torr⁻¹, de acordo com [147, 148]. A determinação de N é feita através de:

$$N = \frac{E_x}{w} \quad (3.14)$$

onde E_x é a energia da radiação incidente e w a energia média despendida na produção de um par elétron-íon no gás. Pela equação 3.14 e utilizando o valor de w de 21.61 eV [149], para raios X de 5.90 keV, N é de 273 elétrons primários por fóton absorvido no gás.

Com base nas equações 3.9 – 3.14, o número de fótons primários emitidos por fóton absorvido no gás é dado por:

$$m_p = m_s \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_p} \frac{V_p}{V_s} \quad (3.15)$$

Assim, pode finalmente ser determinado o valor de w para a cintilação primária a partir da equação:

$$w_p = \frac{E_x}{m_p} \quad (3.16)$$

Os coeficientes de eficiência de detecção ε_s e ε_p são fatores muito importantes no cálculo de w_p pelo que a sua estimativa foi feita, mais uma vez, por simulação pelo método de MC, adaptado de modelo anteriormente desenvolvido no nosso grupo de trabalho [126, 147]. Mais uma vez, o modelo anterior foi alterado para o adequar à geometria do sistema, aos coeficientes de reflexão dos materiais, à transmissão ótica das grelhas e coeficientes de reflexão da janela do PMT. Estes dois últimos fatores dependem do ponto onde os fótons são emitidos e, para obter essa informação, o mesmo modelo teve em conta os efeitos de difusão dos elétrons no gás durante a deriva sob diferentes campos elétricos aplicados. O modelo

assume que a absorção ocorre no ponto de coordenadas $x = 0$, $y = 0$, $z = 2.62$ mm [150] e que a emissão ocorre nesse ponto, isotropicamente.

Os coeficientes de reflexão para aço inoxidável e para alumínio são, respetivamente, 0.57 [138] e 0.70 [151]. Estimou-se uma incerteza de ± 0.10 [151], dada a incerteza no tempo de exposição das superfícies ao ar.

A transmissão ótica da grelha T é referida pelo fabricante como sendo 0.885 [140]. No entanto essa transmissão ótica é para uma incidência perpendicular. Como a incidência não é exclusivamente perpendicular, a transmissão da grelha depende do ângulo de incidência θ , e é dada por:

$$T(\theta) = \frac{(pt \cos(\theta) - D)(pt - D)}{pt^2 \cos(\theta)} \quad (3.17)$$

onde pt é o passo (*pitch*) da grelha (0.846 mm) e D o diâmetro dos fios da grelha (50 μm).

Também foi considerada a transmissão dos fótons incidentes nas superfícies da janela do PMT, usando a equação de Fresnel e a lei de Snell, considerando o índice de refração 1.606 [152].

Por simulação pelo método de MC foi possível determinar os coeficientes de eficiência de deteção dos fótons de cintilação primária e secundária, através do número de fótons incidentes e recolhidos no PMT.

A eficiência de deteção seria 1 em condições ideais: não haver reflexões nos materiais do detetor, transmissão da grelha e da janela do PMT fossem 1 e ângulo sólido subtendido pelo PMT fosse 2π .

A tabela seguinte apresenta estes fatores, para a emissão de luz primária e secundária. O coeficiente de eficiência de deteção é o produto entre ambos os fatores determinados por simulação de MC com campo elétrico reduzido de deriva de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ à pressão de 800 Torr em Xe. A incerteza indicada vem do coeficiente de reflexão do alumínio (o fator mais importante) de 0.7 ± 0.1 , de [151] e das flutuações estatísticas consideradas na simulação.

Tabela 6 – Eficiências de detecção de fótons de cintilação primária e secundária pelo PMT, obtidos por simulação de Monte Carlo e respectivas contribuições. Campo elétrico reduzido de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. 800 Torr Xe.

Fator de correção na emissão de fótons	Cintilação Primária	Cintilação Secundária
Fração do ângulo sólido subtendido pelo PMT	0.021 ± 0.001	0.355 ± 0.001
Reflecção no topo do detetor	1.546 ± 0.086	1.009 ± 0.001
Transmissão média nas grelhas	0.780 ± 0.001	0.822 ± 0.001
Transmissão média na janela do PMT	0.895 ± 0.001	0.806 ± 0.001
Eficiência de Cintilação, ε_i	0.023 ± 0.002	0.237 ± 0.001

Para campos de deriva diferentes, teremos eficiências de detecção diferentes, dadas as diferenças nos valores da difusão dos eletrões que, por isso, foram também calculados para os outros campos de deriva usados (entre 0.1 e $1.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$).

3.5.2.2 Cintilação Primária em Xénon

O estudo da cintilação primária em xénon puro foi feito à pressão de 800 Torr, campos de cintilação secundária de 3.0 , 3.5 e $4.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e campos de deriva entre 0.1 e $1.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Para cada campo de cintilação secundária foram feitas medidas para diversos campos de deriva, tendo em conta a variação na distância temporal entre os dois sinais, estimado através do tempo médio de deriva da nuvem primária para cada campo.

A figura seguinte mostra o tempo médio de deriva dos eletrões em função do campo reduzido de deriva, bem como os resultados deles decorrentes para a velocidade de deriva: entre 1.1 e $1.8 \text{ mm } \mu\text{s}^{-1}$, consistentes com as velocidades de deriva de eletrões em Xe da literatura nesta gama de campos elétricos reduzidos [14, 153].

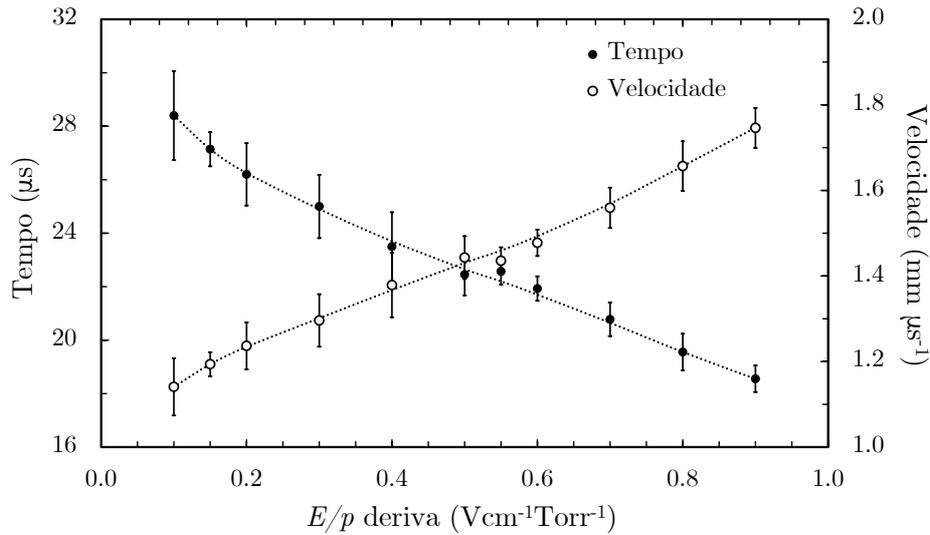


Figura 42 – Tempo médio (círculos a cheio) e velocidade média (circunferências) de deriva dos elétrons no percurso de deriva (32.4 mm), em função do campo elétrico reduzido de deriva a 800 Torr em Xe.

A figura 43 apresenta os resultados obtidos para a cintilação primária. Uma vez que a cintilação primária não depende dos campos aplicados na região de deriva (apenas para campos elétricos inferiores a $0.05 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ [23, 26]), os resultados obtidos são a média todas as medidas de cintilação primária para o mesmo campo de deriva, independentemente do valor de campo de cintilação.

Observa-se na figura 43 que o sinal de cintilação primária apresenta resultados semelhantes para uma gama ampla de campos de deriva ($<0.55 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$), como seria de esperar. No entanto, verifica-se um aumento da amplitude do sinal primário, sobretudo a partir de $0.55 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ o que poderá indicar o início da cintilação secundária ou Bremsstrahlung neutro.

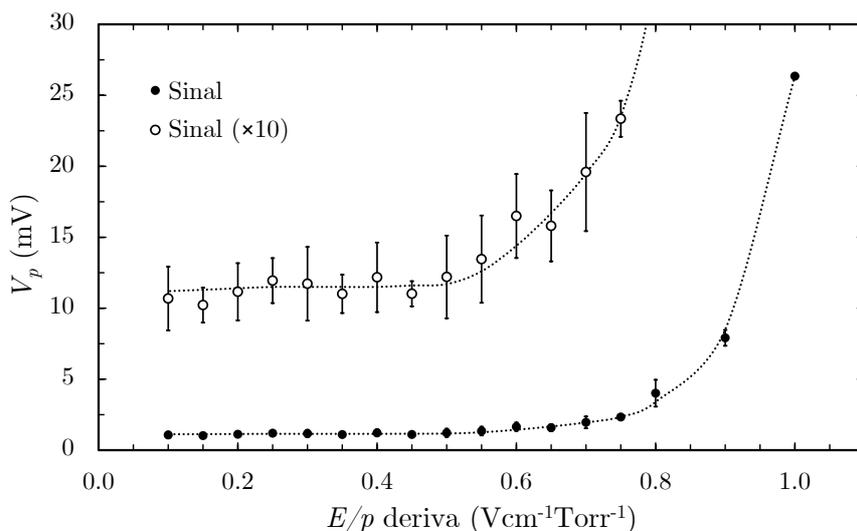


Figura 43 – Amplitude do sinal de cintilação primária. Os pontos a cheio correspondem à amplitude do sinal. As circunferências correspondem à amplitude do sinal amplificado 10 vezes. 800 Torr Xe. Os resultados são a média dos resultados obtidos para os campos de cintilação de 3.0, 3.5 e 4.0 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

O sinal da cintilação secundária tem um aumento de amplitude com o aumento do campo de deriva aplicado, na gama de campos até 0.2 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Este efeito é consequência da maior difusão de elétrons para campos de deriva mais baixos que leva à perda de elétrons, à diminuição de ângulo sólido, menor transparência ótica da grelha e maior reflexão na janela do PMT (ambos os efeitos consequência do maior ângulo de incidência). A partir de 0.2 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ a amplitude deste sinal não tem dependência significativa no campo elétrico reduzido de deriva.

A figura seguinte apresenta os resultados obtidos para a cintilação secundária, em função do campo elétrico reduzido de deriva, para campos na região de cintilação de 3.0, 3.5 e 4.0 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

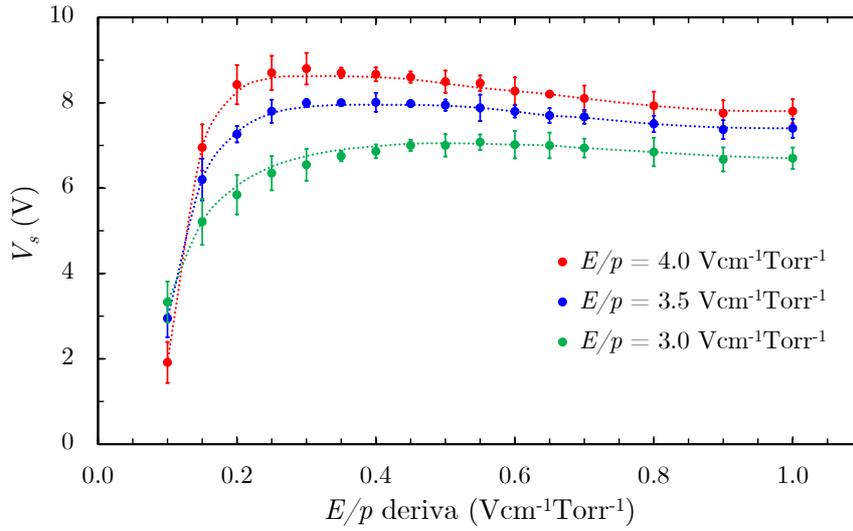


Figura 44 – Amplitude da cintilação secundária para campos de cintilação de 3.0 (verde), 3.5 (azul) e 4.0 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (vermelho) em função do campo elétrico reduzido de deriva. As linhas tracejadas são linhas guia. 800 Torr Xe.

Como foi descrito na secção anterior, através da amplitude dos sinais de cintilação primária e secundária, e conhecidas as eficiências de deteção dos fótons de cintilação primária e secundária, ε_p e ε_s , para cada campo de deriva, com as equações 3.9 – 3.15 pode determinar-se o número de fótons resultantes do processo de absorção, m_p , e conseqüentemente, (equação 3.16) o valor de w_p para a cintilação primária.

A figura seguinte mostra os resultados obtidos para o valor de w_p em função do campo elétrico reduzido. As barras de erro nas medidas representam o desvio padrão das medidas experimentais, para cada campo elétrico reduzido de deriva.

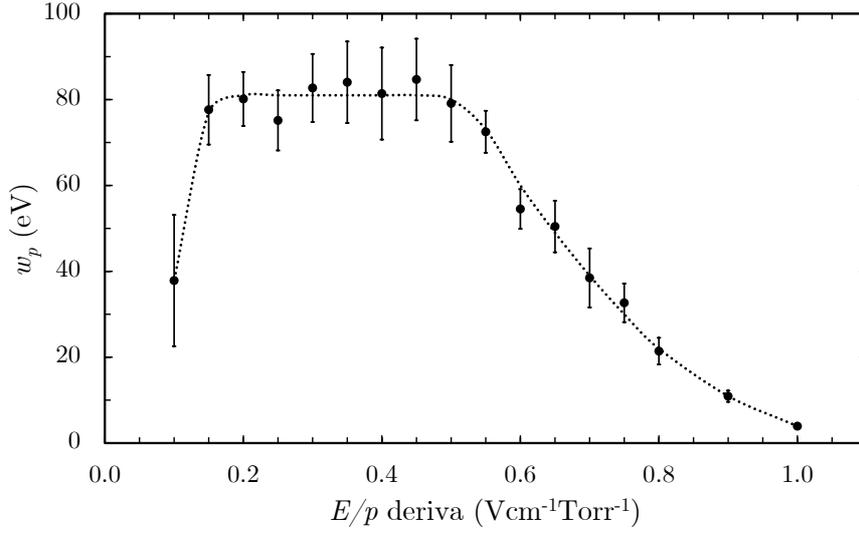


Figura 45 – Resultados para w_p . Os símbolos a preto são os valores obtidos com as barras de erro. A linha tracejada é uma linha guia. 800 Torr de Xe. Os valores obtidos correspondem a campos elétricos reduzidos de cintilação de 3.0, 3.5, 4.0 Vcm⁻¹Torr⁻¹.

Verifica-se que para campos <0.15 Vcm⁻¹Torr⁻¹, o valor de w_p é influenciado pelas perdas de eletrões primários e difusão antes de chegar à região de cintilação, que fazem decrescer a amplitude de cintilação secundária recolhida. Por esse motivo, não foram considerados esses valores na determinação do valor de w_p . Por outro lado, para campos de deriva >0.50 Vcm⁻¹Torr⁻¹, o aumento de sinal de cintilação primária quer pelo início da cintilação secundária e/ou por Bremsstrahlung neutro, levou a que os valores obtidos acima deste valor também não tenham sido considerados no cálculo de w_p . Sendo assim, considerando os valores para campos de deriva entre 0.15 e 0.50 Vcm⁻¹Torr⁻¹, determinou-se que o valor de m_p é de 73.4 ± 11.1 fotões (por raio X de 5.90 keV) e, conseqüentemente, w_p é de 80 ± 12 eV. A incerteza do resultado teve em conta a incerteza dos resultados experimentais ($\sigma_{m_s V_p/V_s}$) bem como a incerteza na determinação dos coeficientes ε_p e ε_s . a partir das fórmulas de propagação de erros e fazendo $C = m_s V_p/V_s$, temos

$$\sigma_{m_p} = \sqrt{\left(C \frac{\sigma_{\varepsilon_s}}{\varepsilon_p}\right)^2 + \left(C \frac{\varepsilon_s \sigma_{\varepsilon_p}}{\varepsilon_p^2}\right)^2 + \left(\sigma_C \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_p}\right)^2} \quad (3.18)$$

onde

$$\sigma_{w_p} = \frac{E_x}{m_p^2} \sigma_{m_p} \quad (3.19).$$

Estes resultados experimentais podem ser comparados com resultados experimentais obtidos usando o mesmo método e condições semelhantes (sistemas, gás, pressão e energia da radiação incidente, semelhantes) [142, 143], contudo para estes resultados não é referida a eficiência de detecção ε_s e ε_p , mas apenas correções referentes à geometria dos detetores (ângulo sólido). Contudo os nossos resultados são concordantes com os resultados apresentados em [143] (72 ± 6 eV) mas afastam-se dos resultados em [142] (111 ± 16 eV). Uma das explicações para a diferença poderá ser a diferença na geometria dos sistemas e, sobretudo, na refletividade da luz VUV dos materiais constituintes do detetor, em particular da janela de entrada da radiação, aluminizada no interior. Esta janela, em ambos os sistemas, é referida como aluminizada. O índice de reflexão no alumínio é da ordem de 0.7 [151], enquanto no aço inoxidável é de 0.57 [138]. Esta diferença dá origem a uma alteração significativa no valor w_p , produzindo um aumento. Um outro fator que foi tido em conta aqui foi a determinação do rácio de impulsos acima do *trigger* estabelecido que não são de cintilação secundária e que influenciam a média, no osciloscópio, dos sinais de cintilação primária. Este procedimento também produziu uma alteração significativa do resultado.

Estes dois fatores (reflexão de cintilação no filme de alumínio da janela de entrada de radiação do detetor e exclusão dos sinais falsos de cintilação secundária), são as causas fundamentais para a a diferença nos resultados.

No caso dos resultados de [144] (76 ± 12 eV), semelhantes aos aqui apresentados, a falta de informação adicional (correções efetuadas e geometria do detetor), não permitiu fazer uma análise comparativa.

3.5.2.3 Estudo da Cintilação Primária em Misturas Xe – TMA

Com o método atrás descrito, procurou-se detetar o sinal de cintilação primária em misturas de Xe – TMA a 800 Torr, para concentrações de TMA entre 0.1% e 1.0%. Apenas na mistura de menor concentração de TMA (0.1%) foi possível identificar um sinal de cintilação primária, claramente distinto do ruído de fundo. A molécula de TMA absorve a luz VUV de Xe [122], com um coeficiente de absorção estimado em $0.43 \text{ cm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Com este coeficiente de absorção e dada a geometria do sistema experimental, estima-se que a fração da luz de cintilação

primária que chega ao PMT é cerca de 25% da luz primária emitida. Nas restantes misturas com concentrações de TMA superiores, não foi possível detetar o sinal de cintilação primária neste sistema experimental. Para a mistura com concentração de TMA de 0.2%, a fração estimada de luz primária que chega ao PMT é de apenas 7%, que é insuficiente para a distinguir do ruído.

Na figura seguinte é possível observar os sinais de cintilação primária e secundária obtidos da mistura de 0.1% de TMA, a 800 Torr, para campos elétricos reduzidos de deriva de $0.4 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (a) e de $0.6 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (b), e campo elétrico reduzido de cintilação de $4.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

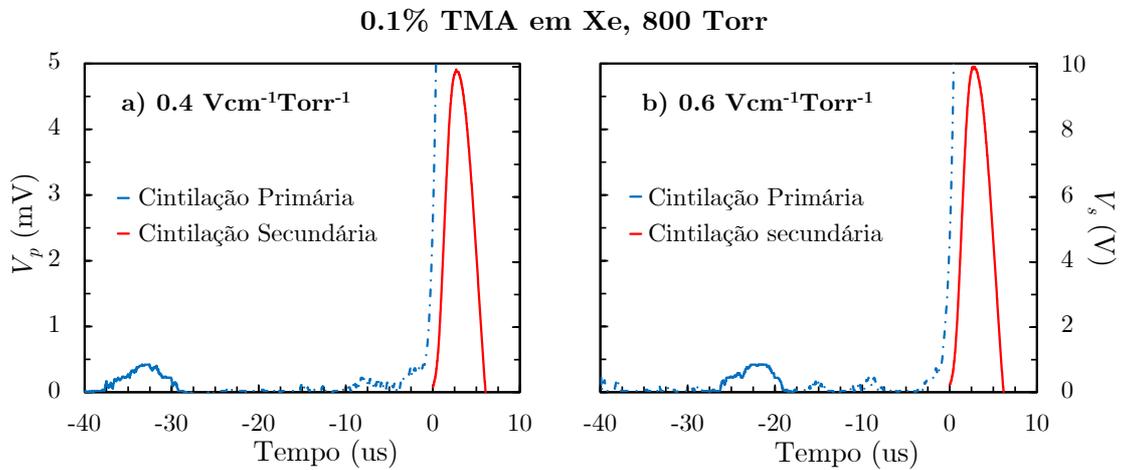


Figura 46 – Sinal de cintilação primária (linha azul, eixo da esquerda) e sinal de cintilação secundária (linha vermelha, eixo da direita). Resultados para 0.1% de TMA à pressão total de 800 Torr. Campo elétrico reduzido de deriva $0.4 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (a) e $0.6 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (b). Campo elétrico reduzido de cintilação de $4.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

O sinal de cintilação primária não está tão bem definido como o obtido em Xe puro, uma vez que a menor amplitude o aproxima mais do ruído. Verifica-se também uma maior mobilidade dos eletrões com o aumento do campo elétrico reduzido de deriva (distância temporal entre os dois sinais em a) e b)), como seria de esperar.

Na figura seguinte podemos observar os sinais obtidos para os mesmos campos elétricos reduzidos de deriva e cintilação (0.6 e $4.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, respetivamente) em misturas com 0.1% (a) e 0.2% (b) de TMA em Xe (800 Torr).

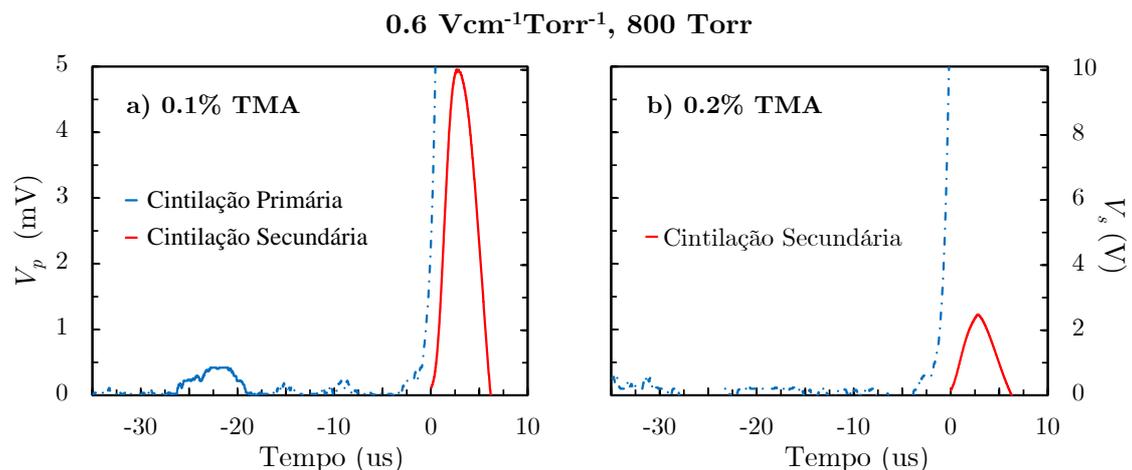


Figura 47 – Sinal de cintilação primária (linha azul, eixo da esquerda) e sinal de cintilação secundária (linha vermelha, eixo da direita). Misturas com 0.1% de TMA (a) e 0.2% de TMA (b) em Xe, à pressão total de 800 Torr. Campos elétricos reduzidos de deriva e de cintilação de 0.6 e 4.0 Vcm⁻¹Torr⁻¹, respectivamente.

3.5.2.4 Conclusões do Estudo de Cintilação Primária

Os valores de w_p da cintilação primária em Xe encontrados na literatura, obtidos com experiências semelhantes à nossa, têm valores diferentes 111 ± 16 eV em [142] e 72 ± 6 eV em [143] para raios X de 5.9 keV. Outra experiência em misturas 90%Xe – He10%, a 20 bar, com radiação γ de 60 keV refere o valor 76 ± 12 eV [144]. Com este trabalho pretendeu-se clarificar a divergência. Determinou-se um valor de w_p de 80 ± 12 eV, próximo dos valores apresentados em [143] e [144], mas abaixo do valor apresentado em [142]. Embora este estudo tenha utilizado um método semelhante ao referido em [142] e [143], correções feitas podem justificar as diferenças. Podemos referir duas correções essenciais e altamente influentes nos resultados, não mencionadas nos outros trabalhos: exclusão de sinais não provenientes de cintilação secundária com o MCA e introdução de eficiências de deteção para cada cintilação, estimadas por simulação pelo método de MC, em que foi tida em conta a reflexão no filme de alumínio da janela de entrada de radiação bem como nos outros materiais do interior do detetor, a transparência das grelhas para diferentes ângulos de incidência, e difusão dos eletrões primários na deriva.

O valor w_p aqui apresentado, é de 80 ± 12 eV, para raios X de 5.9 keV incidentes em Xe à pressão de 800 Torr.

Estes resultados estão publicados em Nucl. Instrum. Meth. A 1049 (2023) 168038 [145].

3.5.3 Cintilação Secundária

Outra das características de uma mistura gasosa baseada em gás nobre que poderá determinar a sua viabilidade como meio de detecção num detetor eletroluminescente é o rendimento de eletroluminescência. O sistema experimental desenvolvido permite o estudo dessa característica.

3.5.3.1 Método Experimental

Como descrito anteriormente, a absorção de raios X produz uma nuvem de elétrons primários pela termalização dos elétrons emitidos pelos átomos fotoionizados, na zona de deriva.

Num detetor CGCP, no meio gasoso adequado (gás raro), na região de cintilação, o campo elétrico tem uma intensidade tal que os elétrons adquirem energia suficiente para excitar as moléculas de gás, mas não para as ionizar. As excitações do gás raro dão origem a fótons no VUV, através de um processo designado por cintilação secundária ou eletroluminescência. Como cada elétron que entra na região de cintilação origina a emissão de vários fótons de eletroluminescência (dependendo do meio, da intensidade do campo aplicado e do comprimento da zona de cintilação) este mecanismo é um processo de amplificação do sinal primário, também designado por amplificação ótica. Uma parte dos fótons emitidos (isotropicamente) ao longo do percurso dos elétrons na zona de cintilação é detetada no fotomultiplicador (ou outro fotossensor) colocado num extremo desta zona. O número de fótons recolhido é proporcional ao número de elétrons, por isso também proporcional à energia do fóton incidente.

O estudo da cintilação secundária no CGCP tem como objetivo analisar o efeito de potenciais aditivos moleculares (utilizados para diminuir a difusão dos elétrons nos gases raros) na eletroluminescência e na resolução em energia do detetor,

avaliar a viabilidade do uso de misturas como meio de detecção, por exemplo, na experiência NEXT, mas também em outras aplicações.

Estudou-se a cintilação secundária em Xe puro e misturas com TMA, com concentrações inferiores a 1.0%.

Na secção seguinte são apresentados os resultados para cada uma das misturas estudadas. Os resultados apresentam-se como amplitude do sinal produzido pela luz recolhida expressa pelo número do canal do centróide do pico correspondente no MCA (unidades arbitrárias) ou da resolução em energia (percentagem), em função do campo elétrico reduzido aplicado na região de cintilação. Previamente determinou-se que o campo de deriva ideal para a resolução em energia era de $0.6 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, valor escolhido para Xe puro e misturas estudadas.

3.5.3.2 Resultados Experimentais

As misturas gasosas, como descrito no capítulo 2, foram realizadas pelo método de diluição da concentração de TMA em Xe. Após a realização da mistura, era feita uma análise da composição da mistura com o RGA, através de sucessivas medições das concentrações de cada componente antes e depois das experiências. As concentrações de TMA em Xe têm uma incerteza da ordem de 0.05%. Este valor pode ser significativo atendendo a que se estudaram misturas gasosas com concentrações inferiores a 0.1%.

No estudo das misturas foram usados os dois protótipos: PMT no exterior do detetor (primeiro protótipo) e PMT no interior do detetor (segundo protótipo). O segundo protótipo tem melhor resolução em energia. No entanto, o primeiro protótipo, como veremos em seguida, teve um papel fundamental no estudo das características da mistura como meio de detecção já que permitiu analisar o c.d.o. da luz detetada, colocando filtros (*bandpass*) junto à janela do PMT e, deste modo, analisar quais os processos envolvidos na produção da luz recolhida.

Nas misturas de Xe – TMA há dois processos para a emissão de luz no ultravioleta (UV): excitação de Xe (172 nm, no VUV) e excitação de TMA (260 – 350 nm). A excitação de TMA tem o limiar inferior ao de Xe (TMA – 4.6 eV [125]; Xe – 8.32 eV [154]). Um outro dado importante é de que o limiar de excitação de Xe (8.32 eV) é superior ao limiar de ionização de TMA (7.85 eV em

[80], 7.9 eV em [82]), o que significa que a mistura Xe – TMA pode ser uma mistura *Penning*. Isto significa que quando há eletroluminescência de xénon poderá haver ionização da molécula de TMA, por transferência de energia para esta molécula, resultando em multiplicação de carga na zona de cintilação. Esta multiplicação de carga, origina um aumento da cintilação secundária, com o aumento da concentração de TMA. Por outro lado, existe diminuição da luz VUV detetada, dada a absorção pela molécula de TMA, que poderá ser compensada pelo aumento do número de elétrons, como referido na secção 3.3 [122]. A diminuição do sinal recolhido no PMT com o aumento da concentração de TMA é uma indicação de que a absorção da luz é o fenómeno prevaemente.

Se por um lado existe mais emissão de luz de eletroluminescência nas misturas com maiores concentrações de TMA (pelo aumento do número de elétrons), por outro lado existe também maior absorção dessa luz. Nesta secção estudamos a origem da luz que chega ao PMT (composição espectral) em função da concentração de TMA na mistura.

Uma outra conclusão deste estudo foi a redução significativa do potencial de disrupção com a introdução de TMA. Estudou-se também, o efeito da concentração de TMA na mistura no potencial de disrupção. A figura seguinte mostra os resultados.

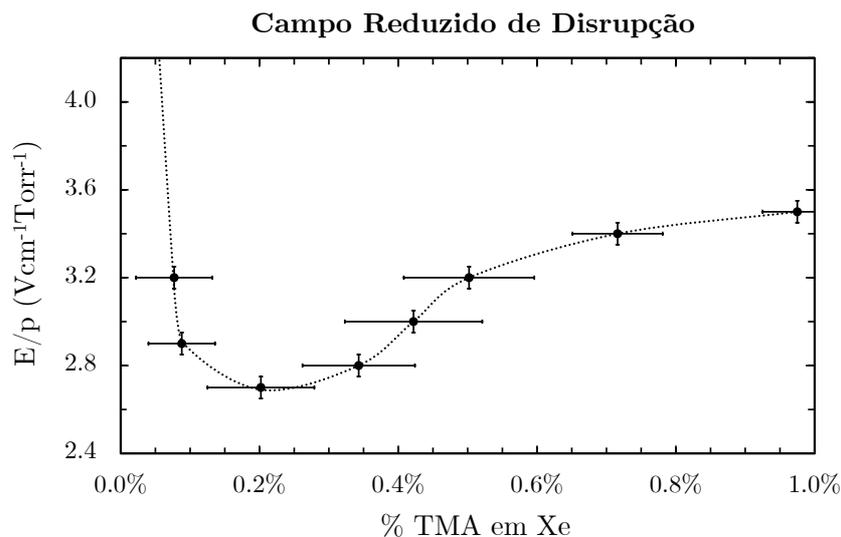


Figura 48 – Campo elétrico reduzido a que ocorreu descarga elétrica em função da concentração de TMA em Xe. A linha a tracejado é uma linha guia. As barras de erro verticais correspondem à incerteza do campo de disrupção. As barras de erro horizontais correspondem à incerteza na composição da mistura, por análise com o RGA.

Em Xe puro, obtiveram-se resultados experimentais para campos de cintilação até $9.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ sem que ocorressem descargas elétricas, de acordo com o esperado. Numa mistura com 0.08% de TMA em Xe ocorrem descargas elétricas para campos de $3.2 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Para concentrações de 0.20% de TMA ocorre um mínimo, ou seja, é a mistura para a qual as descargas elétricas ocorrem a campos mais baixos ($2.7 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$). Com o aumento da concentração de TMA verificou-se de novo um aumento no valor do potencial de disrupção. A 0.98% de TMA a disrupção ocorreu a $3.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Este facto deve estar relacionado com a proporção da mistura mais eficiente relativamente ao efeito *Penning*.

Concluiu-se que os campos permitidos na região de cintilação nas misturas Xe – TMA teriam de ser inferiores aos normalmente usados em xénon. Este foi um resultado importante para as misturas Xe – TMA: diminuição substancial do potencial de disrupção, relativamente ao Xe puro, o que limita os valores de campo elétrico reduzido a utilizar em detetores com estas misturas.

Devido a estas limitações, só se estudaram misturas de Xe – TMA, para concentrações de TMA inferiores a 1%.

Os gráficos seguintes apresentam os resultados com o segundo protótipo, do sinal de cintilação secundária e da resolução em energia, para as várias misturas estudadas, em função do campo de cintilação. A amplitude do sinal traduz-se na posição do centróide no espectro do MCA (unidades arbitrárias).

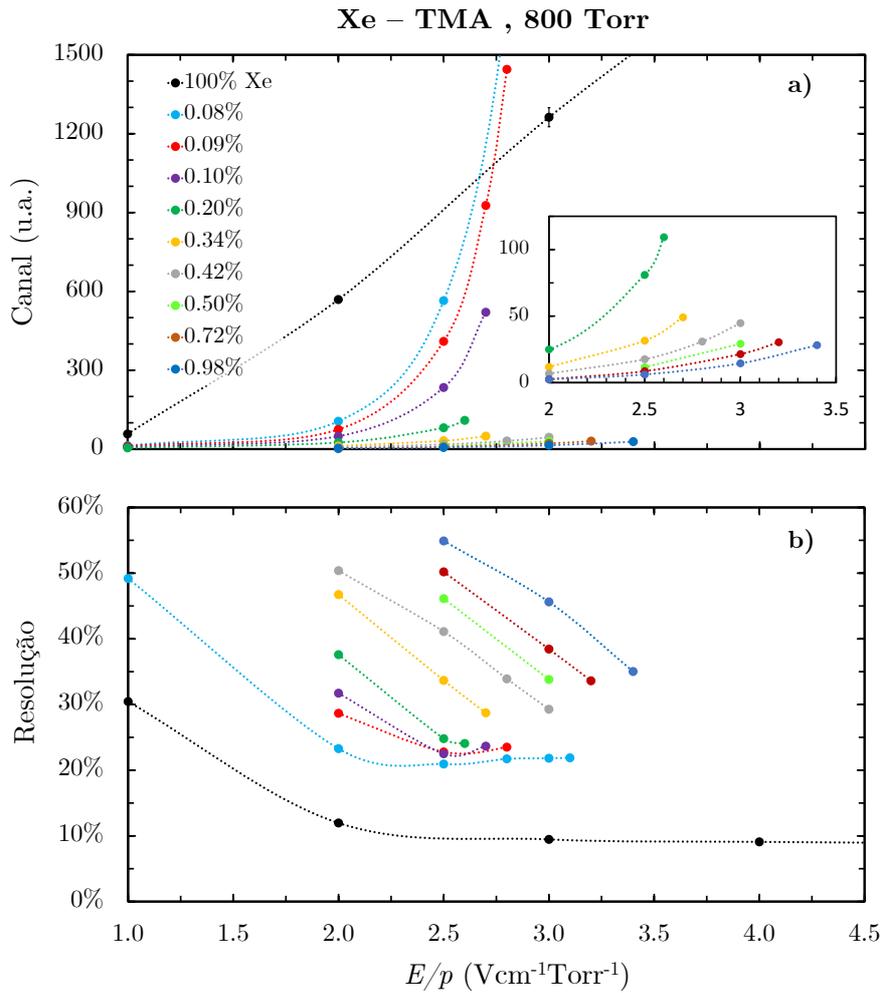


Figura 49 – Resultados de eletroluminescência (a) e resolução em energia (b) em Xe e misturas Xe – TMA. Pressão total 800 Torr. Em (a) a janela à direita em baixo tem os resultados para concentrações de TMA mais elevadas numa escala ampliada para permitir analisar melhor os resultados. Resultados obtidos com o segundo protótipo.

Os resultados indicam que, em qualquer das misturas estudadas, para campos inferiores a $2.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ o sinal de cintilação é sempre inferior ao sinal obtido em Xe puro. Este comportamento pode ter cinco causas distintas:

- Absorção da luz VUV de Xe, pela molécula de TMA;
- Menor energia média dos elétrons, para o mesmo E/N , do que em Xe puro, devido efeito de moderação (*cooling*) pelas interações dos elétrons com a molécula de TMA;
- Pela presença de TMA no meio, mecanismos de inibição de formação do excímero Xe_2^* , responsável emissão de EL;

- Captura de elétrons pela molécula de TMA, durante o movimento de deriva, contribuindo assim para uma menor emissão de EL durante a deriva dos mesmos;
- Diminuição da probabilidade de colisão dos elétrons com o Xe, com o aumento de concentração de TMA na mistura.

Uma das cinco causas possíveis que é mensurável é a absorção de luz VUV de Xe, por TMA. Nesta configuração experimental, a presença de TMA na mistura, leva à diminuição da luz VUV de Xe detetada, com o coeficiente de absorção estimado de $0.43 \text{ cm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ [122]. Para as concentrações estudadas, entre 0.08% e 0.98% de TMA em Xe (800 Torr), a absorção da luz VUV de Xe varia entre 10% e 65%.

Nas figuras nota-se claramente o efeito da multiplicação de carga pelo afastamento do comportamento linear dos resultados, que ocorre para a $E/p \geq 2.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Nas misturas de menor concentração de TMA (0.08% e 0.09%) para campos elétricos superiores a $2.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, o sinal tem maior amplitude do que em Xe puro. O crescimento exponencial do sinal (indicativo de multiplicação de carga) explica a razão pela qual pequenos incrementos do campo de cintilação ($0.1 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$) produzem grande aumento na amplitude do sinal ($>50\%$). Para a concentração de 0.08% verificou-se que a $3.1 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (campo mais elevado aplicável) o sinal de luz é cerca de quatro vezes mais intenso do que o sinal de Xe puro, nas mesmas condições. Em Xe puro, aplicando um campo de cintilação de $6.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ o sinal é, aproximadamente, metade do sinal da mistura com 0.08% de TMA para o campo de $3.1 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

Para concentrações de TMA superiores a 0.1%, a amplitude do sinal nunca é superior à do sinal de Xe, já que não é possível aplicar campos elétricos suficientemente elevados dada a ocorrência de descargas elétricas.

A resolução em energia deteriora-se significativamente mesmo com a adição de uma pequena percentagem de TMA (0.08%). Em Xe puro, o detetor tem uma resolução inferior a 10% para campos de $3.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e na mistura com 0.08% de TMA (a mais baixa percentagem estudada) a resolução em energia é superior a 20%.

Comparando os resultados obtidos com os dois protótipos verificamos que, por exemplo, a resolução em energia, para campos de 0.6 e $6.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ de deriva e de cintilação, respetivamente, com o segundo protótipo (8.7% em xénon puro

para a fonte de ferro filtrada com crómio) é significativamente melhor do que com o primeiro (12.9%), nas mesmas condições. No segundo protótipo verificou-se um aumento significativo da amplitude do sinal de luz. O aumento foi da ordem de 100% (duplicou a intensidade de luz detetada), e decorre do aumento de ângulo sólido do PMT e da eliminação da janela de quartzo, cuja transmissão não é unitária. Para além destes fatores determinantes, com o PMT no interior também terão sido eliminadas eventuais bolsas de ar, entre o PMT e a janela, que também absorvem a cintilação.

No entanto, com o primeiro protótipo, que tem o PMT fora do detetor, foi possível usar os filtros apropriados (*bandpass*) para determinar a composição espectral da luz. Foi utilizado um filtro *bandpass* Edmund Optics®, modelo U-330 [134] com transmissão de 220 a 400 nm. Esta gama inclui a luz emitida pela molécula de TMA (250-370 nm) e exclui a luz VUV de Xe (~172 nm).

Analisando a intensidade da luz detetada com e sem *bandpass* é possível calcular o rácio entre a luz proveniente de emissão de TMA e a luz total emitida. Para determinar esse valor foi necessário avaliar todos os processos envolvidos em cada caso e fazer as devidas correções, concretamente: diminuição do ângulo sólido subtendido pelo PMT com o filtro ($\Delta\Omega = 0.816$); transparência do filtro *bandpass* para a luz de cintilação de TMA ($TF_{TMA} = 0.88$); transmissão da janela de Suprasil e eficiência quântica do PMT, para TMA e Xe ($TJ_{TMA} = 0.91$; $TJ_{Xe} = 0.8$; $EQ_{TMA} = 0.25$; $EQ_{Xe} = 0.3$); Coeficiente de transmissão da luz VUV de Xe em TMA ($T_{\text{luz Xe}}$ varia com a concentração de TMA na mistura).

Utilizando o filtro é possível determinar a luz total emitida por TMA LT_{TMA} , que se relaciona com o sinal detetado LD_{TMA} , por

$$LT_{TMA} = \frac{LD_{TMA}}{TJ_{TMA} EQ_{TMA} \Delta\Omega TF_{TMA}} \quad (3.20).$$

Sem o filtro, o sinal de luz detetado LD_{Total} , tem duas componentes: luz de Xe L_{Xe} e luz de TMA L_{TMA}

$$LD_{Total} = L_{Xe} + L_{TMA} \quad (3.21)$$

com

$$L_{TMA} = LT_{TMA} TJ_{TMA} EQ_{TMA} \quad (3.22).$$

Na determinação da luz total de Xe emitida tem de se ter em conta as correções de transmissão e de eficiência quântica para a luz de Xe e a transmissão da luz

VUV de Xe por TMA em cada mistura. A sua determinação pode ser feita a partir da equação

$$LT_{Xe} = \frac{L_{Xe}}{T_{J_{Xe}} E_{Q_{Xe}} T_{Luz\ Xe}} \quad (3.23).$$

A luz total emitida L_{Total} é a soma da luz total de Xe e de TMA

$$L_{Total} = LT_{Xe} + LT_{TMA} \quad (3.24).$$

Quando falamos em *luz total emitida*, referimo-nos à fração da luz total (4π) emitida em direções contidas no ângulo sólido do PMT. Como nos interessam razões, não há qualquer alteração nos resultados.

Através dos resultados obtidos com e sem filtro, a figura mostra o rácio entre a luz emitida por TMA e a luz total, para várias concentrações de TMA, em função do campo elétrico reduzido aplicado. Estes resultados já foram alvo das correções referidas atrás.

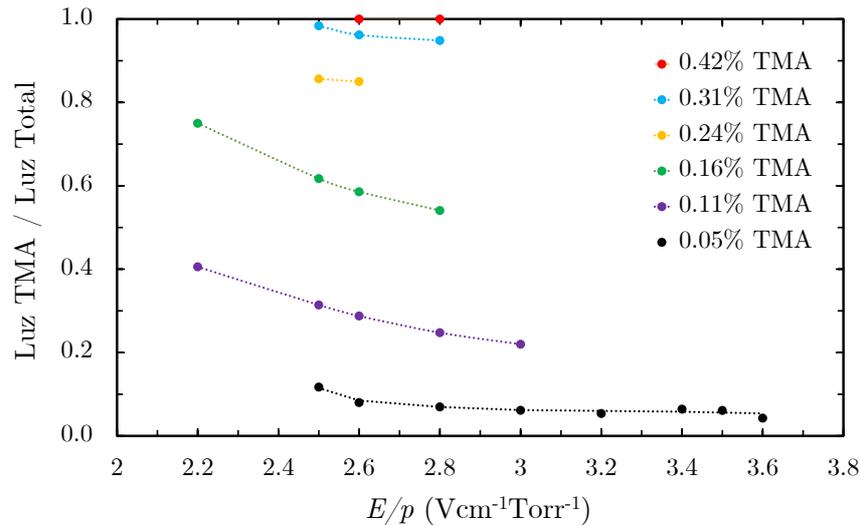


Figura 50 – Relação entre a emitida de TMA e a luz total emitida, para diferentes concentrações de TMA, em função do campo elétrico reduzido aplicado. Resultados obtidos com o primeiro protótipo. Pressão total de 800 Torr. As linhas tracejadas são linhas guia.

A análise da figura 50 permite-nos verificar que a origem da luz total emitida é fortemente condicionada pela presença de TMA: a concentrações superiores a 0.42% a luz emitida é essencialmente de TMA. Quer isto dizer que a molécula de TMA tem forte influência na inibição da formação do excímero Xe_2^* , na moderação da energia dos eletrões (*cooling*) ou na captura de eletrões durante a

deriva. As colisões diretas de elétrons com TMA em vez de Xe não tem grande expressão, dada a pequena concentração de TMA na mistura. A absorção de luz VUV de Xe está incluída no estudo da razão entre a luz de TMA e de luz total emitida.

3.5.4 Conclusões

O trabalho aqui descrito consistiu no desenvolvimento de um dispositivo experimental para estudar as características da cintilação primária e secundária produzidas e a resolução em energia, neste caso em detetores gasosos CGCP com xénon ou misturas de xénon na detecção de radiação X. Numa primeira fase foi desenvolvido um dispositivo com o PMT no exterior (primeiro protótipo), que posteriormente foi convertido num segundo protótipo, com o PMT no interior. Foram estudadas misturas de xénon com TMA, a pressões de 800 Torr.

O primeiro protótipo foi utilizado para estudar a composição espectral da luz recolhida no PMT. O segundo protótipo foi utilizado para o estudo de cintilação primária e secundária, resolução em energia e o valor do campo de disrupção nas misturas Xe – TMA em função da concentração de TMA.

As misturas Xe – TMA foram estudadas para avaliar a sua viabilidade como meio de detecção. A primeira constatação foi a diminuição dos valores máximos dos campos elétricos reduzidos aplicáveis sem a existência de descargas elétricas, efeito observado para todas as concentrações de TMA. Enquanto em Xe puro não ocorreram descargas elétricas até ao valor de E/p de $9 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, em nenhuma outra das misturas foi possível aplicar um campo elétrico reduzido superior a $3.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Na mistura de 0.2% de TMA verificou-se que o valor máximo suportado foi de $2.7 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, o valor mínimo dos máximos de todas as misturas estudadas.

Verificou-se também que uma pequena percentagem de TMA (0.5%) leva a que a luz recolhida no PMT seja luz emitida por TMA.

A resolução em energia, tal como no CP, também se degrada com o aumento da concentração de TMA. O efeito é também explicado pelo aumento da variância do número médio de elétrons produzidos por cada fóton absorvido.

O sinal de cintilação secundária em misturas Xe – TMA perde rapidamente a sua característica fundamental: o comportamento linear do aumento de eficiência de cintilação com o aumento de intensidade do campo reduzido numa gama ampla de campos elétricos (no caso do xénon puro, de 1 a $\sim 6 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$) já que a multiplicação de carga ocorre para um campo elétrico reduzido muito inferior ao de xénon puro, produzindo um crescimento exponencial da luz recolhida em consequência da multiplicação de carga. Por esta razão, o campo máximo sem que ocorra descarga é também inferior ao campo permitido em xénon.

O valor medido em xénon puro para w_p (energia necessária para produzir um fóton de cintilação primária) foi de $80 \pm 12 \text{ eV}$. Nas misturas Xe – TMA apesar de ser observado sinal de cintilação secundária na mistura de menor concentração de TMA (0.1%), não foi possível desenvolver esse estudo.

Foi observado que em concentrações superiores a 0.42%, a luz detetada é exclusivamente de TMA e que 0.05% de TMA na mistura dá origem a $\sim 6\%$ da luz total emitida. Este efeito está associado sobretudo a três causas: inibição da formação do excímero Xe_2^* ; moderação na energia dos eletrões (*cooling*); captura dos eletrões durante a deriva.

Pode-se concluir, portanto, que TMA não é um candidato viável a aditivo molecular para Xe puro como meio de deteção em detetores que utilizem a eletroluminescência como meio de amplificação. Poderá, eventualmente, haver vantagens na utilização de misturas com TMA com percentagens inferiores a 0.1% no modo de multiplicação de carga pelas duas propriedades verificadas: absorção muito eficiente de fótons VUV de xénon, o que faz deste aditivo um excelente *quencher*, e a multiplicação de carga surgir a campos reduzidos muito mais baixos do que em xénon puro ($< 2.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$) e uma maior mobilidade dos iões, que permitiria a sua utilização em ambiente de elevadas taxas de contagem.

No decurso das experiências pudemos verificar que, no caso de o sinal de cintilação primária ser detetável (i.e., se puder determinar o do instante do acontecimento) podemos determinar a velocidade de deriva dos eletrões. Esta é uma funcionalidade adicional do sistema experimental.

4 Coeficientes de Difusão

Os parâmetros de deriva de elétrons têm importância fundamental em detetores gasosos de radiação [155, 156, 157], uma vez que definem o meio gasoso de enchimento e podem ser muito úteis no que respeita à simulação destes detetores. Nas duas últimas décadas, os detetores gasosos têm sido alvo de renovado interesse, dada a sua versatilidade na escolha do meio de deteção (pressão e meio gasoso), na forma e dimensões, etc.. A introdução de microestruturas [46, 158, 159] nestes detetores permitiu superar ou reduzir limitações existentes, nomeadamente efeitos de carga espacial e de realimentação positiva de fótons [158]. Entre as aplicações recentes de detetores gasosos estão a física de partículas/astropartículas [2, 4, 160 – 164], com requisitos específicos de acordo com os seus objetivos.

A multiplicidade de opções no que respeita a condições de operação permite aos detetores gasosos atender à maioria das necessidades das novas aplicações. Um dos requisitos mais comum é a obtenção da informação relativa à posição de interação da radiação no meio, essenciais em muitas aplicações, tais como na deteção de partículas, polarimetria de raios X ou deteção de eventos raros (pesquisas WIMP e $0-\nu\beta\beta$) [4, 102]. A condição mais importante para a preservação desta informação (durante a deriva dos elétrons) é a pequena difusão transversal dos elétrons no meio gasoso. Os gases moleculares conseguem preencher este requisito, já que, mesmo adicionados em pequenas quantidades a um gás nobre, permitem melhorar significativamente os parâmetros de difusão de

eletrões sem, no entanto, em muitos casos modificar outras características essenciais em causa.

Numa perspetiva teórica, os parâmetros de transporte de eletrões obtidos experimentalmente têm grande importância no âmbito das secções eficazes de difusão de eletrões em meio gasoso: eles são frequentemente usados para iterativamente obter um conjunto completo de secções eficazes [165] fundamentalmente a baixas energias, onde as secções eficazes de difusão elástica são experimentalmente muito difíceis de determinar ou são obtidas com baixa precisão [166]; eles têm sido usados na comparação com os obtidos por simulação de Monte Carlo para testar as secções eficazes e outros dados aí usados [156].

Assim, o conhecimento dos parâmetros de difusão e, particularmente, de difusão transversal, tornou-se um campo de pesquisa muito importante na área dos detetores de radiação que utilizam gases como meio de deteção.

Neste contexto, foi desenvolvido um sistema para estudar a difusão transversal de eletrões em gases. Os gases testados neste novo dispositivo foram xénon e metano, gases cujos coeficientes de difusão transversal são bem diferentes, mas conhecidos e bem estabelecidos na literatura, e que por isso servirão para validar o funcionamento do sistema e o método usado.

A necessidade do desenvolvimento deste dispositivo, vem da especificidade das necessidades da aplicação em vista, que apenas requer informação de coeficientes de difusão de eletrões em misturas gasosas, baseadas em gases leves e pressões atmosféricas ou inferiores.

Os resultados apresentados estão publicados em Nucl. Instrum. Meth. A [167] e IEEE Trans. Nucl. Sci. [168].

4.1 Sistema Experimental

Para determinar a difusão transversal de eletrões em meios gasosos foi construído de raiz um novo sistema experimental com um desenho original. Como para os restantes sistemas experimentais, os materiais utilizados na construção deste sistema experimental foram, essencialmente, aço inoxidável, cerâmica

Macor[®] e anéis de Viton[®] e de cobre como vedantes. As peças do sistema foram construídas nas oficinas do LIP-Coimbra, passando seguidamente por um rigoroso processo de limpeza para evitar impurezas no interior do sistema experimental.

O sistema, esquematizado na figura 51, é constituído por duas câmaras: a antecâmara, onde está instalada uma lâmpada de xénon, e a câmara principal, onde estão colocados um fotocátodo (CsI), um GEM e um alvo multipistas. Como a luz VUV de Xe é fortemente absorvida pelo ar [169], a antecâmara tem o mesmo gás do que a câmara principal. A purificação é garantida pela circulação do gás entre as duas câmaras através de orifícios nos componentes que as separam. Ópticamente, as duas câmaras estão separadas por dois colimadores. A câmara principal tem dimensões aproximadas de 100 mm de altura e de 150 mm de diâmetro.

Analisando a figura 51 (com maior detalhe a figura 52), podemos ver que a luz emitida pela lâmpada é colimada e, ao atravessar a janela de Suprasil[®] incide no CsI aí depositado, produzindo eletrões por efeito fotoelétrico, de modo que por cada *flash* da lâmpada é produzida uma nuvem de eletrões. O campo elétrico conduz os eletrões ao topo do GEM e, no seu interior, um campo elétrico intenso produz multiplicação de carga e eletroluminescência. Abaixo do GEM, a 0.5 mm, está o alvo multipistas onde a carga é recolhida e medida em cada uma das pistas num dado intervalo de tempo. A distribuição da carga pelas pistas para diferentes distâncias permite avaliar o espalhamento da nuvem no meio gasoso em função da distância, associado à difusão transversal dos eletrões a determinar. Os parâmetros variáveis no sistema são o gás, a pressão do gás, o campo elétrico de deriva e a distância de deriva.

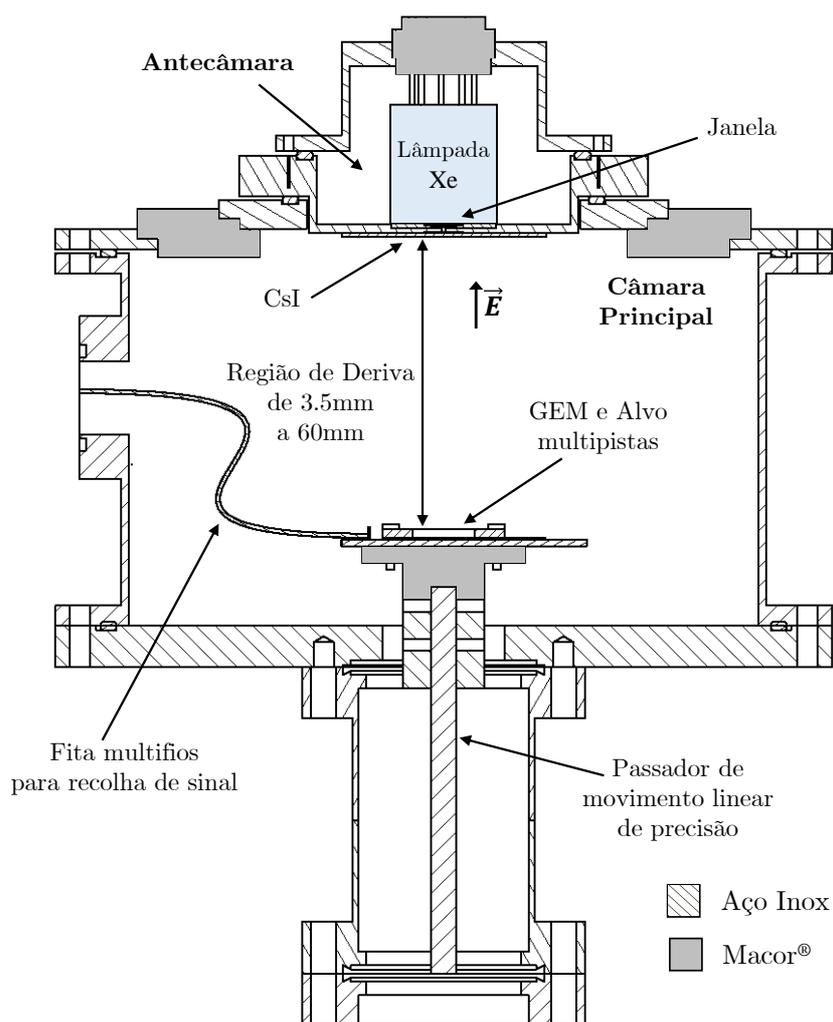


Figura 51 – Corte vertical do esquema do sistema experimental. A lâmpada de Xe está no interior da antecâmara cuja atmosfera é igual à da câmara principal. A dimensão da região de deriva é variável (3.5 – 60 mm). A câmara principal tem dimensões aproximadas de 100 mm de altura e de 150 mm de diâmetro.

O desenho e montagem do sistema foi uma tarefa muito desafiante, já que era um dispositivo completamente novo, fora da nossa área de competência habitual, para um estudo também novo para nós. Assim, foi um processo de tentativa e erro. A primeira montagem revelou um problema de projeto. Os orifícios para circulação de gás entre as câmaras permitiam também a passagem da luz VUV da lâmpada, observando-se por isso uma nuvem de elétrons dispersa por toda a área do CsI, em vez da nuvem ‘pontual’ esperada. Simultaneamente, verificava-se o aumento da carga recolhida com o aumento da distância de deriva porque a menores distâncias de deriva a estrutura onde assentava o alvo “protegia” o CsI dessa incidência indesejada de radiação. O problema foi resolvido com a colocação

de uma peça de alumínio que impedisse a passagem de luz VUV para a câmara, garantindo, ainda assim, a circulação de gás entre as câmaras. Naturalmente, depois do procedimento, a exposição do CsI ao ar obrigou a nova série de deposições.

Uma nova avaliação revelou um desvio transversal do alvo multipistas, em relação ao local onde eram produzidos os fotoelétrons (origem das coordenadas), que se manifestou num claro desalinhamento do sinal. Não sendo notória a origem, as hipóteses prováveis eram deficiente centragem da posição do passador linear de movimento ou da posição dos colimadores ou ligeiro empenamento da haste do passador linear. Fez-se o alinhamento dos colimadores e do alvo multipistas com um laser e garantiu-se a manutenção do alinhamento da haste do passador linear com três peças de Teflon[®] desenhadas para essa função e construídas nas oficinas do L.I.P.. Testou-se o alinhamento novamente com o laser, tendo-se verificado um alinhamento perfeito para a cota máxima do passador enquanto para a cota mínima se notava apenas um desvio submilimétrico. Seguiu-se nova série de depósitos.

A lâmpada de xénon, pulsada, é da marca Hamamatsu[®], modelo L2435, de 15 W e frequência de impulso de 10 Hz e é alimentada por uma fonte de tensão da marca Hamamatsu[®], modelo C13315. A duração de cada impulso de 0.15 J, é de aproximadamente 500 ns. Para conseguir fornecer as tensões de alimentação da lâmpada colocada no interior do sistema experimental, foi necessária a construção de uma peça de cerâmica Macor[®] – cerâmica isoladora – com oito passadores elétricos do tipo “fêmea” no interior, para o acoplamento da lâmpada e, no lado exterior, do tipo “macho”, para acoplar a base (*socket*) de alimentação da lâmpada. Na base da antecâmara está colocado um primeiro colimador circular de 200 μm de diâmetro na abertura, da marca Edmund Optics Ltd.. É através deste colimador, situado a 12 ± 1 mm da lâmpada, que a luz entra na câmara principal. A distância entre o ânodo e o cátodo da lâmpada é de 1.5 mm. Segundo [170], a região onde é emitida cerca 95% da luz tem uma largura de ~ 0.4 mm.

No topo da câmara principal, a 1.15 ± 0.10 mm de distância do primeiro colimador (que se encontra na antecâmara), está colocado um segundo colimador circular, também da marca Edmund Optics Ltd., com 50 μm de diâmetro de abertura. A luz vinda da lâmpada atravessa os dois colimadores e incide numa

janela de quartzo Suprazil[®] 311 [131], com 1 mm de espessura. Nesta janela ocorre absorção, reflexão e transmissão da luz. A absorção e reflexão não serão objeto de análise visto que são fatores constantes. A transmissão da luz VUV de Xe é superior a 85% [132]. Na base da janela foram feitos três depósitos de filmes finos, pela seguinte ordem: Al, Cr e CsI. O primeiro depósito, de Al, com 103 nm de espessura, foi feito em toda a janela, exceto na região central de 3.8 mm de diâmetro, para permitir a transmissão da luz de Xe e assegurar o contacto elétrico que permite a polarização da janela. O segundo depósito é de Cr e tem 7.0 nm de espessura e ocupa 15 mm de diâmetro na região central da janela. Este depósito permite a passagem de ~40% da luz de Xe [171], e serve de substrato ao CsI. Por último, foi feita a evaporação de CsI (fotocátodo) com 53 nm de espessura. Os valores publicados para a transparência do filme de 53 nm para a luz de Xe e, sobretudo, a eficiência de extração de elétrons, têm grandes discrepâncias. A diversidade de valores traduz a dificuldade em conhecer e avaliar com rigor todas as condições que contribuem para alterar a eficiência quântica efetiva do fotocátodo. Em [172] são apresentadas diversas razões para estas discrepâncias, a saber: pureza do CsI e cuidados no manuseamento; condições de vácuo no momento do depósito do CsI; eventual excesso de tempo de exposição do CsI ao ar. Outros fatores relevantes, noutra perspectiva, são: calibração do fluxo de luz incidente; campo elétrico; temperatura; composição exata do meio gasoso. Estes fatores vão afetar sobretudo a avaliação dos valores de transparência. A falta de controlo, de monitorização, ou de conhecimento destas condições são a causa das diferenças nos valores da eficiência quântica atribuídos ao filme de CsI.

Para a espessura de 53 nm de CsI, a eficiência quântica é de ~26%, segundo [173]. No entanto, em [171], o máximo de eficiência quântica ocorre a 10 nm (~20%) e a 53 nm a eficiência quântica é de ~2%. Este valor de 2% está em maior concordância com os valores apresentados em [174] – 18% em filmes com espessura 20 nm de CsI e 12% para 30 nm, que refere ainda que não apresenta resultados para 50 nm de CsI devida à baixa eficiência quântica do filme com essa espessura. Apesar da diversidade de valores, admitimos como valor de eficiência quântica do fotocátodo transmissivo de CsI com 53 nm de espessura, 2%.

A eficiência de extração tem uma dependência direta do campo elétrico de extração [126, 175]. Para os campos usados neste estudo (0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹)

a eficiência de extração é, respetivamente, 4.11% e 5.06%, em Xe, 57.02% e 63.48%, em CH₄ [126, 176].

Apesar das grandes discrepâncias nos valores, e das dúvidas sobre a eficiência quântica do filme de CsI, os eletrões produzidos são em número suficiente para o propósito da experiência. A escolha da maior espessura do depósito 53 nm, em vez de espessuras menores indicadas como tendo maior eficiência quântica, visou diminuir a transparência do fotocátodo para a luz VUV e reduzir, deste modo, a carga gerada por luz ‘parasita’³ no interior da câmara principal. Com este filme de 53 nm de CsI a transmissão ótica para a luz VUV é da ordem de 20% [174, 177, 178].

As evaporações para produzir os depósitos referidos foram feitas num sistema de vácuo composto por uma bomba difusora e uma bomba rotativa, a uma pressão de gás residual da ordem de 2×10^{-6} Torr, e foram terminadas ao ser atingida a espessura desejada, determinada com um medidor de espessuras da marca Inficon[®], modelo XTM/2 – 758-500-G2⁴. A taxa de depósito foi de 1-2 nm/s, nos filmes de Al e CsI e inferior a 1 nm/s no filme de Cr. Como o CsI é higroscópico, degrada-se rapidamente com a humidade presente no ar [123, 179]. Assim, após a evaporação, foi rapidamente transportado e instalado no interior do detetor, imediatamente após o que se iniciou a evacuação do sistema. O tempo de exposição do filme de CsI ao ar foi ~2 minutos. Foi feito vazio durante aproximadamente 10 horas antes de ser colocado gás no sistema. A pressão do gás residual no momento da colocação de gás foi de 1.1×10^{-6} Torr. A composição do gás residual, analisada com o espectrómetro de massa, mostrou que os picos dominantes eram de água (18 e 17 *u*). A pressão parcial para $m/z = 18$ era de 4×10^{-7} Torr. O sistema foi enchido com 800 Torr de Xe. A temperatura ambiente durante o enchimento (e no decorrer das experiências) era de ~25 °C. O enchimento com CH₄ foi feito em condições semelhantes. Dado que a quantidade de impurezas nos gases é superior à existente no gás residual, não foi necessário

³ Designamos por luz ‘parasita’ a luz que entra na câmara principal e que poderá libertar eletrões do fotocátodo ou de qualquer outra superfície.

⁴ O equipamento referido neste parágrafo, utilizado para a realização das evaporações dos filmes de Al, Cr e CsI são pertença do LibPhys sediado no Departamento de Física da Universidade de Coimbra. As evaporações foram realizadas com a supervisão do Dr. Fernando Amaro e do Mestre Pedro Silva.

melhorar o vazio no sistema. Após o enchimento, a purificação do gás foi feita de forma contínua, com os purificadores apropriados para cada gás, como se descreve no segundo capítulo.

A ‘câmara principal’ tem três distintas regiões de campos elétricos: a ‘região de deriva’, entre a base da janela de quartzo e o topo do GEM, com dimensão variável, entre 3.5 ± 0.1 mm e 60.0 ± 0.1 mm; a ‘região de multiplicação de carga’, dentro dos orifícios do GEM ($50 \mu\text{m}$); e a ‘região de recolha de carga’, entre a base do GEM e o alvo, de 0.50 ± 0.05 mm de espessura.

A colimação da luz da lâmpada, faz com que a irradiação direta da lâmpada no CsI ocorra numa área circular de $\sim 100 \mu\text{m}$ de diâmetro. Como o local de emissão de luz está a cerca de 14 mm, em primeira aproximação, é razoável considerar que nesta região de $\sim 100 \mu\text{m}$ de diâmetro o fluxo de luz seja constante. No entanto, a luz pode passar pelos colimadores com ângulos superiores (por reflexões na antecâmara) e a região de CsI irradiada irá ter um diâmetro superior, estimado, por considerações geométricas, em $\sim 270 \mu\text{m}$, pouco superior à largura de uma pista do alvo ($200 \mu\text{m}$). Assim, mesmo reconhecendo que a área central de $100 \mu\text{m}$ recebe o fluxo de luz mais elevado, considerámos $270 \mu\text{m}$ como o diâmetro da região irradiada pela lâmpada de onde provém a nuvem de eletrões. Esta aproximação só é válida porque a dimensão de uma pista é desta grandeza. Caso contrário, teríamos de considerar a distribuição do fluxo de fótons. Há ainda fótons que, passando no primeiro colimador, podem ser refletidos no aço inox entre colimadores e atravessar o segundo colimador. Não sendo possível, nesta experiência, quantificar o número destes fótons, é de esperar que o seu número seja inferior ao número de fótons vindos diretamente da lâmpada. Ainda assim, considerando esta possibilidade, o diâmetro total da área do fotocátodo irradiada poderá ser da ordem de $3700 \mu\text{m}$, da mesma ordem de grandeza da largura total das 19 pistas do alvo e da área central transparente à luz VUV (em que estão depositados os filmes de Cr e de CsI), $\sim 3800 \mu\text{m}$. Esta irradiação, de menor intensidade, mas abrangendo toda a área ativa do fotocátodo, vai gerar eletrões que se vão distribuir por toda a área do alvo e que, como tal, vão constituir uma contribuição para o sinal de fundo. Designamos este sinal como *Fundo 1*: luz vinda diretamente da antecâmara, que irradia o fotocátodo, após reflexões nas paredes

entre colimadores. Há outros processos que levarão a outras contribuições para o *Fundo* e que serão discutidos oportunamente.

A figura 52 é um esquema representativo das regiões do CsI irradiadas pela luz VUV de Xe, quer por irradiação direta (traços a vermelho), por irradiação com fótons provenientes de reflexões nas paredes da antecâmara (pontos a azul) ou por irradiação de fótons provenientes de reflexões na antecâmara e nas paredes de aço inoxidável entre colimadores (traço-ponto – a roxo).

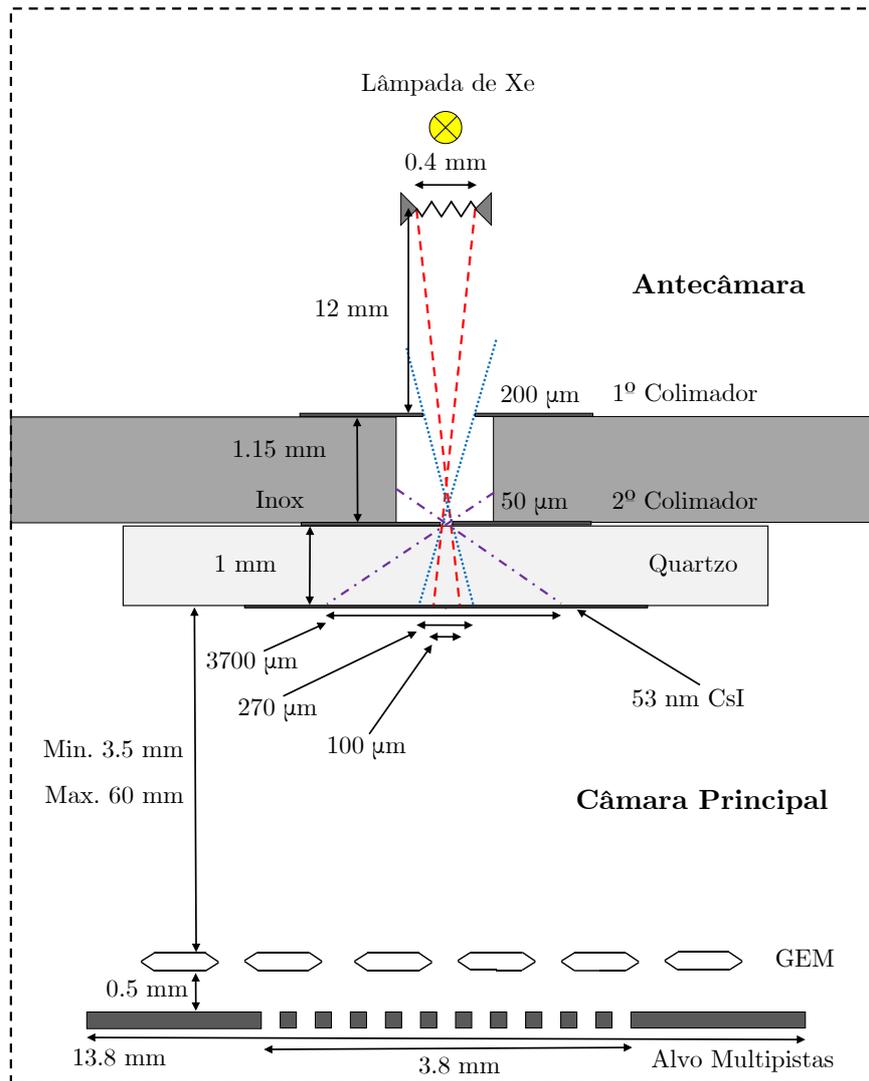


Figura 52 – Esquema representativo do sistema experimental. As linhas vermelhas (traços) indicam a região do fotocátodo irradiada por fótons vindos diretamente da lâmpada de Xénon. As linhas azuis (pontos) indicam a região total do fotocátodo irradiada pela luz vinda após reflexões nas paredes da antecâmara. A linha roxa (traço-ponto) indica a região máxima do fotocátodo irradiada pela luz refletida nas paredes da antecâmara e entre colimadores. O esquema não está à escala.

O alvo multipistas é constituído por 21 pistas, com 15 mm de comprimento em que 19 pistas internas têm uma largura de 100 μm e as externas, designadas por pista 1 e pista 21, 5 mm de largura. O espaçamento entre pistas é igualmente de 100 μm . A região entre pistas é flutuante do ponto de vista elétrico, pelo que consideramos que a largura total de cada pista é de 200 μm (100 + 50 + 50 μm , ou seja, a carga que possa acumular-se no intervalo entre pistas contribui para as duas pistas adjacentes), sem espaçamento entre pistas. As pistas 1 e 21 servem de controlo, ou seja, para monitorizar carga não recolhida no conjunto de 19 pistas centrais do alvo.

O GEM utilizado é um modelo *standard* produzido no CERN. Tem dimensões de 16×16 mm, com área útil de 10×10 mm. Tem duas superfícies de cobre (com 5 μm de espessura) separadas por 50 μm de Teflon[®], buracos bicónicos de 70 μm /50 μm de diâmetro separados de 140 μm . A transparência ótica é de ~23% [54].

O alvo e o GEM estão colocados num suporte montado num passador de movimento linear de precisão que atravessa a base do sistema e permite o movimento de alvo e GEM, em conjunto, na vertical. É, portanto, possível deslocar GEM e alvo verticalmente desde o topo até à base do detetor. O passador de movimento linear de precisão, adquirido para o efeito, é da marca MDC, modelo BLM-275-4. Tem uma precisão no movimento de 0.025 mm.

As 21 pistas, bem como as ligações elétricas para a alimentação do GEM, estão conectadas, por um cabo multifios flexível, ao exterior através da parede lateral.

A polarização da janela, onde está depositado o filme de CsI, é feita por uma fonte de alta tensão da marca Caen[®], modelo N1470 e a condutividade garantida pelos filmes de Al e Cr. O topo e a base do GEM são polarizados por uma fonte alta tensão da marca Caen[®], modelo, N471A. O alvo está à terra. As tensões aplicadas são negativas e decrescentes, em módulo, desde a janela até ao alvo. A leitura da carga foi feita com um eletrómetro da marca Keithley[®], modelo 602. Este eletrómetro, de acordo com o fabricante, tem uma precisão na leitura de carga de 5% e um *offset* de 5×10^{-3} pC s⁻¹. Este valor de *offset* por ser um valor 2-3 ordens de grandeza inferiores aos valores medidos na experiência e por os resultados serem valores absolutos de carga, não tem influência nos resultados.

Apresentam-se resultados em Xe e CH₄, em campos de deriva de 0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (0.92 Td) e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (1.53 Td). O campo elétrico aplicado na ‘região de recolha de carga’ foi de 3.0 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (9.16 Td). As tensões aplicadas no GEM foram, no caso de Xe, 400 V (topo: -525 V; base: -125V) e, no caso do CH₄, 525 V (topo: -650 V; base: -125V). Esta escolha de tensões no GEM permitiu que a recolha de carga total fosse semelhante em ambos os gases. O intervalo de distâncias de deriva⁵ escolhido foi entre 3.5 mm e 11.5 mm. A uniformidade do campo elétrico na região de deriva foi verificada por simulação com os *softwares* Salome [180] e Elmer [181].

No decorrer da experiência, a pressão total foi de 800 Torr. A pressão de enchimento foi controlada com um medidor de pressão da marca MKS Baratron[®], modelo 722A (até 5000 Torr e precisão de 0.5%) e posteriormente monitorizada continuamente por um medidor WIKA (até 15 bar, com precisão de 0.05 bar).

A purificação dos gases foi feita pela circulação de gás (por convecção) através de purificadores da marca SAES[®] getters ST707. Os purificadores são apropriados para os gases nobres. A temperaturas superiores a 200 °C, CH₄ é absorvido [76], pelo que, com este gás, a temperatura das *getters* foi regulada para 120 °C.

4.2 Método e Tratamento de Dados

A nuvem de eletrões vai-se espalhando tridimensionalmente ao longo da distância percorrida: o espalhamento na direção do campo elétrico (eixo dos z , perpendicular ao GEM), é indicativo da difusão longitudinal e o espalhamento no plano perpendicular ao campo elétrico (eixos x e y , com x perpendicular às pistas), da difusão transversal. O sistema experimental desenvolvido tem como objetivo estudar a difusão transversal de uma nuvem de eletrões sob ação de um campo elétrico de deriva.

Neste sistema experimental, a nuvem de eletrões forma-se pela irradiação de luz VUV num fotocátodo (CsI). A luz que incide no fotocátodo, depois de colimada por dois colimadores de 50 e 200 μm , pode permitir uma incidência numa

⁵ É considerada *distância de deriva* a distância entre o fotocátodo e o topo do GEM.

região com $\sim 3700 \mu\text{m}$ de diâmetro no fotocátodo, por reflexões nas paredes entre colimadores, embora se pareça claro (dada a geometria), ainda que não se possa quantificar, que a maior incidência de luz ocorra numa região com $\sim 270 \mu\text{m}$ de diâmetro (ver figura 52). Embora não haja dados para quantificar a carga correspondente ao *Fundo 1*, será possível, no decorrer da análise dos resultados fazer uma estimativa, por diferença, desta contribuição. Como a área em que se distribui esta contribuição para a nuvem é grande (da ordem da dimensão do alvo multipistas) será de esperar que, com o aumento da distância de deriva, o maior espalhamento dos elétrons leve a menor eficiência de recolha, por haver mais elétrons que não incidem na zona ativa do GEM e que, portanto, não vão ser recolhidos no alvo. Assim, o *Fundo 1* deverá ter uma amplitude que diminui com o aumento da distância.

Outra contribuição para o fundo vem da interação da luz VUV que atravessa os filmes de CsI, Cr e Al e atinge a superfície do GEM (*Fundo 2*). O *Fundo 2* pode ter duas origens: fótons refletidos na superfície do GEM que chegam ao CsI, ou fotoionização na cobertura de cobre do GEM. Esta segunda hipótese tem uma probabilidade de ocorrer de 0.03% [182], ou seja, contribuindo para o sinal com, no máximo, $\sim 0.2\%$ e que consideramos desprezável. Deste modo, o *Fundo 2*, será produzido por fótons que são refletidos no GEM e incidem no CsI.

O rácio entre o *Sinal* (número de elétrons recolhidos no alvo gerados no fotocátodo por fótons vindos diretamente da lâmpada $N_{e \text{ lamp}}$) e o *Fundo 2* (número de elétrons recolhidos no alvo gerados no fotocátodo por fótons refletidos no cobre do GEM $N_{e \text{ Cu}}$) depende de diversos parâmetros: eficiência quântica do filme de CsI transmissivo EQ_T e refletivo EQ_R ; transparência do filme de CsI de 53 nm para a luz de Xe T_{CsI} ; transparência ótica do GEM T_{GEM} ; índice de reflexão do cobre para a luz de Xe R_{Cu} ; eficiência de extração dos elétrons do fotocátodo nas diferentes condições (gás e campo elétrico) $Ef_{\text{extr.}}$; fator de perda de elétrons F_{perda} devido à luz refletida no cobre que incide fora da zona ativa do fotocátodo, cujo valor depende da distância entre o GEM e o CsI – para uma reflexão 100% especular, a região de CsI irradiada após a reflexão no cobre do GEM vai ter um diâmetro de $\sim 1900 \mu\text{m}$ com o GEM a 3.5 mm de distância do CsI e de $\sim 5040 \mu\text{m}$ a 11.5 mm. Assim, a razão entre o *Sinal* e o *Fundo 2* virá:

$$\frac{\text{Sinal}}{\text{Fundo 2}} = \frac{N_{e \text{ lamp}}}{N_{e \text{ Cu}}} = \frac{N_f EQ_T Ef_{\text{extr}}}{N_f T_{\text{CsI}} (1 - T_{\text{GEM}}) R_{\text{Cu}} EQ_R Ef_{\text{extr}} F_{\text{perda}}} \quad (4.1).$$

N_f é o número de fótons emitidos pela lâmpada e que entra na câmara principal. Considerando reflexão especular e $EQ_T = 0.02$ [178], $EQ_R = 0.28$ [123, 171, 172] $T_{CsI} = 0.20$ [174, 177, 178], $R_{Cu} = 0.40$ [183] e $T_{GEM} = 0.23$ [54], o limite inferior (correspondente a $F_{perda} = 1$) da razão entre o *Sinal* e o *Fundo 2* é ~ 1.16 , ou seja $\sim 54\%$ dos fotoelétrons tem origem em fótons vindos diretamente da lâmpada e $\sim 46\%$ em fótons provenientes da reflexão na superfície de cobre do GEM.

As medidas da difusão de elétrons, vão ser feitas entre o fotocátodo (formação da nuvem de elétrons) e o topo do GEM. Os parâmetros que influenciam a difusão de elétrons são o campo elétrico, a pressão do gás, a distância de deriva e o próprio gás. Neste trabalho foram estudados os gases Xe e CH₄, a 800 Torr, com dois campos de deriva de 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ e distâncias de deriva de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. Temperatura 298 K.

As tensões aplicadas no GEM – 400 V (80 kVcm⁻¹), no caso do Xe e 525 V (131.25 kVcm⁻¹), no caso do CH₄ – permitiram criar a multiplicação de carga desejada e semelhante em ambos os gases (ver secção 4.3). Em Xe, a multiplicação de carga no GEM é acompanhada pela emissão de luz de cintilação que também vai dar origem a uma contribuição para o fundo, que designamos por *Fundo 3*. Estes fótons produzidos por eletroluminescência, ao incidirem no filme de CsI, vão gerar novos fotoelétrons (1^a ordem) que produzem novos fótons e assim sucessivamente num processo de realimentação positiva. De acordo com o modelo de simulação de MC em que o campo no GEM é aproximado a um campo elétrico uniforme [111], determinou que, em Xe, com um campo de 100 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (as condições experimentais), a razão entre o número de ionizações e excitações é de 0.27 [184].

Para quantificar a contribuição do *Fundo 3*, desprezando a realimentação positiva, determinou-se a relação entre o número de elétrons recolhidos no alvo $N_{e\ Alvo}$ e o *Fundo 3* (de 1^a ordem) através da expressão

$$\frac{N_{e\ Alvo}}{N_{e\ Fundo\ 3}} = \frac{N_{e\ Alvo}}{\frac{N_{e\ Alvo}^{-1}}{0.27} \cdot \Omega \cdot EQ_R \cdot Ef_{extr}} \quad (4.2)$$

em que $(N_{e\ Alvo} - 1)/0.27$ corresponde ao número de fótons emitidos no GEM (eletroluminescência de Xe), Ω é o ângulo sólido (aproximado) a partir do centro do GEM até ao CsI, EQ_R a eficiência quântica do CsI (filme reflexivo) e Ef_{extr} tal como definido acima. A proporção entre o *Fundo 3* (1^a ordem) e a carga recolhida no alvo é aproximadamente 1.1%, 0.7%, 0.4%, 0.3% e 0.2%, para distâncias de

deriva de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5, 11.5 mm, respetivamente. Tendo em conta a exígua dimensão desta contribuição, não foram analisadas ordens superiores.

Estas três contribuições para o sinal de *Fundo* (*Fundo 1* – carga recolhida no alvo gerada pela luz vinda da antecâmara, após reflexões nas superfícies entre colimadores; *Fundo 2* – carga recolhida no alvo gerada pela luz proveniente de reflexões no cobre do GEM; *Fundo 3* – carga recolhida no alvo gerada por luz proveniente da eletroluminescência do Xe (apenas em Xe) são inerentes a este sistema experimental. Os valores referidos para as diferentes contribuições de ‘*fundo*’ são os valores máximos estimados, já que os fotoelétrões não gerados na região central do fotocátodo, podem não ser recolhidos no GEM por serem gerados em regiões afastadas do centro e, com a difusão, ‘perderem-se’ no seu percurso de deriva. Esta situação ocorre mais em Xe (com maior difusão) e menos em CH₄.

Entre o alvo e o GEM (0.5 mm), ‘região de recolha’, os eletrões são sujeitos a um campo de deriva de 3.0 Vcm⁻¹Torr⁻¹. A análise das linhas de campo próximo do GEM [54, 158], mostram que não há alteração significativa antes e depois do GEM, pois a largura de cada pista é semelhante ao espaçamento dos buracos do GEM. A transparência do GEM em Xe, para os campos de deriva estudados (0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹), para tensão aplicada no GEM de 400 V é de ~97% e ~95%, respetivamente [54]. Em CH₄, a 525 V, a transparência para os mesmos campos de deriva é de ~98% e ~96% [54].

No alvo, a medida da carga recolhida em cada pista é feita individualmente, com uma pista ligada ao eletrómetro e as restantes à terra. Para confirmar a coerência das leituras individuais fez-se a leitura de carga de todas as pistas em simultâneo, antes e depois de se realizarem as medidas individuais. Verificou-se que, para o mesmo intervalo de tempo, a soma das cargas individuais de cada uma das pistas era muito próxima (dentro dos erros) da carga recolhida de todas as pistas em simultâneo.

Todas as medidas cumpriram o seguinte protocolo: primeiro media-se a carga com a lâmpada desligada (carga inicial), em seguida faziam-se quatro medidas de carga por intervalo de tempo com a lâmpada ligada (carga total) e, novamente sem lâmpada, media-se a carga (carga final). O resultado final (carga do sinal), em pC/s, era a média das quatro medidas (carga total) a que se subtraía a média da carga inicial e final, normalizadas ao mesmo intervalo de tempo. Este

procedimento foi repetido para cada pista pelo menos três vezes. Desta forma, cada sinal de carga obtido em cada pista para cada um dos campos e para cada uma das distâncias, era resultado de, pelo menos, doze medidas.

Os resultados da carga do sinal por intervalo de tempo, que passamos a designar por carga total recolhida, para cada campo e para cada distância, são apresentados sob a forma de histograma em que cada coluna representa a carga recolhida, por intervalo de tempo, em cada uma das pistas. A carga total recolhida é a soma de duas parcelas distintas: a carga proveniente do sinal que se pretende analisar (*Sinal*) e a carga atrás definida como *Fundo* (ela própria com mais do que uma parcela). A análise dos resultados, incluindo a contribuição do *Fundo* e a sua subtração, foi feita usando a biblioteca *SciPy 1.0* do Python [185]. Através desta análise, foi determinada a curva normal que melhor se ajustava aos resultados para cada histograma.

A figura 53 mostra um histograma típico da carga recolhida por intervalo de tempo em cada pista e a análise/tratamento de dados que se lhe seguiu. Podemos ver em a) os resultados originais, em b) a determinação do fundo (com *software* atrás referido [185]), em c) o mesmo resultado sem os resultados das pistas de controlo, 1 e 21, em que se amplificou a escala e em d) os resultados finais (fundo excluído) com a representação da curva gaussiana de ajuste aos resultados com desvio padrão σ (linha vermelha) (com o pacote de *software* atrás referido [185]), e as curvas que representam os limites da incerteza do *fitting* $\sigma - \Delta\sigma$ (a roxo) e $\sigma + \Delta\sigma$ (a verde). Notar que a distribuição de fundo é, também ela, gaussiana, porque as diferentes contribuições são também provenientes de fotoelétrões. No entanto, em Xe, esta distribuição pode ser considerada um ‘patamar’ (devido ao elevado σ), decorrente da maior difusão dos eletrões (quando comparada com CH₄).

Tratamento típico de Resultados

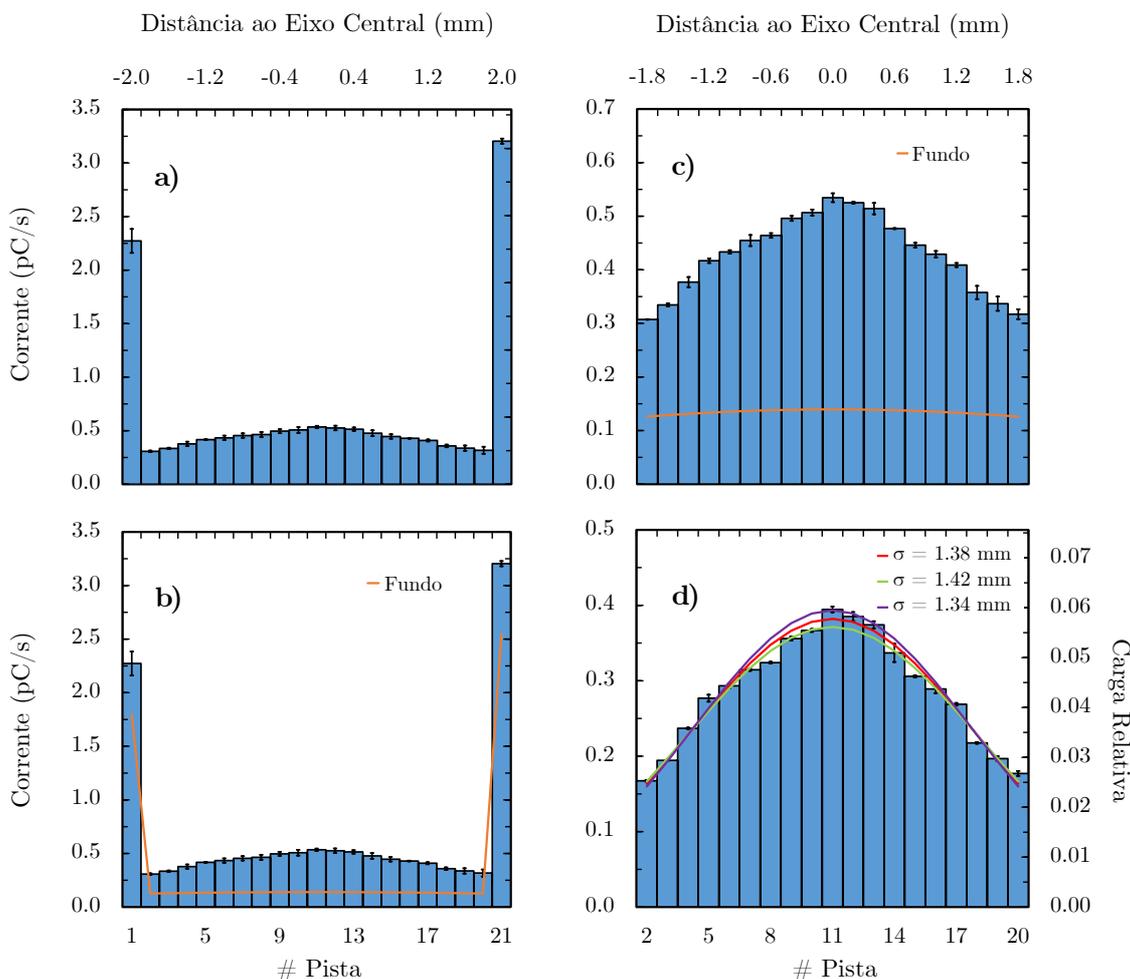


Figura 53 – Sequência típica de tratamento de resultados. Em a) histograma da carga recolhida por intervalo de tempo. Em b) o mesmo histograma em que se representa também a curva de fundo (linha laranja) determinada biblioteca SciPy 1.0 do Python [185]. Em c) o mesmo histograma, sem as pistas de controlo (1 e 21), e com a escala amplificada. Em d) o histograma dos resultados, com o fundo subtraído, e com a curva gaussiana – calculada usando o pacote de *software* atrás referido [185] – de ajuste aos resultados com desvio padrão σ (linha vermelha) bem como com as curvas representando os limites da incerteza do ajuste $\sigma - \Delta\sigma$ (a roxo) e $\sigma + \Delta\sigma$ (a verde). Distância de deriva 3.5 mm, campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, 800 Torr de Xe.

Todos os resultados obtidos foram tratados de modo análogo. Nos diversos histogramas representativos de diferentes sinais, estão sempre representadas as três gaussianas referidas atrás para se poder, visualmente, comparar as incertezas no ajuste em cada caso.

A análise dos histogramas produzidos com xénon e com metano revelaram que, no caso do xénon, as pistas 1 e 21 tinham uma carga superior à das outras pistas

e tanto maior quanto maior a distância de deriva: para maiores distâncias, as pistas 1 e 21 registam um aumento de carga, enquanto as outras pistas registam diminuição de carga. Este efeito não foi observável em CH₄. Este comportamento é coerente com a maior difusão dos eletrões em xénon, que leva a que parte do sinal seja recolhido, mesmo a distâncias pequenas, nas pistas laterais. Com o aumento da distância, o espalhamento do sinal aumenta e com ele a carga nas pistas marginais, correspondendo a frações cada vez maiores do sinal. Em CH₄, pelo contrário, as pistas 1 e 21 têm o comportamento esperado relativamente às pistas vizinhas, indicando que a carga recolhida corresponde apenas ao fundo, mesmo a maiores distâncias.

Através do desvio padrão da curva normal de ajuste ao histograma para cada distância de deriva, pode determinar-se o coeficiente de difusão transversal do gás, para um dado campo elétrico reduzido.

Num meio gasoso, a dispersão dos eletrões ao longo da sua deriva sob ação de um campo elétrico E , depende do campo reduzido E/p (ou E/N), sendo p a pressão e N a densidade de partículas de gás. A difusão dos eletrões ao longo de uma direção i ($= x, y, z$) pode ser representada por uma distribuição gaussiana com variância

$$\sigma_i^2 = 2 D_i t = 2 D_i \frac{d}{v_d} \quad (4.3)$$

onde D_i é o coeficiente de difusão segundo a direção i e d , t e v_d são, respetivamente, a distância, o tempo e a velocidade de deriva [186, 187]. D_i e v_d dependem de E/p . A difusão dos eletrões pode também ser especificada em termos da energia característica ε_{ki} ($= e D_i d E/v_d$, sendo e a carga elementar) associada com a direção i , também dependente de E/p ,

$$\sigma_i^2 = 2 \varepsilon_{ki} \frac{d}{e E} \quad (4.4)$$

Para remover a dependência na distância d , a difusão é representada por

$$\sigma_i'^2 = \frac{\sigma_i^2}{d} = 2 \frac{D_i}{v_d} = 2 \frac{\varepsilon_{ki}}{e E} \quad (4.5)$$

De modo a representar a informação relativa à difusão dos eletrões mais genericamente, independente da densidade do gás (N), os resultados devem ser expressos em termos de energia característica ou ser reduzidos à densidade: $D_i N$, $\sigma_i'^2 N$ ou, mantendo as unidades, $\sigma_i'^2 N/N_0$, onde N_0 é o número de Loschmidt ($N_0 = 2.687 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ a 273 K e 1 atm, de acordo com [113]).

Uma vez que, na deriva dos eletrões, na ausência de um campo magnético, o único fator de assimetria é o campo elétrico (assumido ao longo do eixo z), no plano perpendicular a este, ambas as direções (x e y , com x perpendicular às pistas) são equivalentes relativamente à difusão dos eletrões, sendo definido o coeficiente de difusão transversal (a 2 dimensões, plano xy)

$$\sigma_T^2 = \sigma_x^2 + \sigma_y^2 = 2 D_x \frac{d}{v_d} + 2 D_y \frac{d}{v_d} = 4 D_T \frac{d}{v_d} \quad (4.6)$$

Assim,

$$\sigma_T^2 = 4 \frac{\varepsilon_{kT}}{e E} d = 2 \sigma_x^2 \quad (4.7)$$

[188, 189], com $D_T = D_x = D_y$.

No sistema experimental que construímos, pela descrição feita, pode ver-se que a difusão ao longo do percurso de deriva é apenas uma componente da dispersão final da nuvem de eletrões, uma vez que existem componentes da dispersão independentes da distância. Podemos identificar duas componentes na variância final

$$\sigma^2 = \sigma_0^2 + \sigma_1^2 d \quad (4.8)$$

em que σ_0^2 é a componente de dispersão com várias possíveis contribuições, tais como: largura da distribuição inicial dos eletrões; difusão na região de recolha; eventuais contribuições da eletrónica associada. Estas contribuições são independentes da distância de deriva [188, 190].

Realizando várias medidas de σ^2 a distâncias de deriva diferentes é possível a determinação de σ_1^2 . Da equação 4.8, na representação de σ^2 em função da distância, o declive da reta de ajuste é σ_1^2 , que no nosso caso (1 dimensão), corresponde a $\sigma'_x{}^2$ definido na equação 4.5, e a duas dimensões corresponde a $\sigma'_T{}^2$.

Para cada gás e para cada distância considerada, foram representados os histogramas dos resultados, para os dois campos de deriva estudados. Cada histograma corresponde pelo menos a duzentas e cinquenta medidas individuais.

A partir das equações anteriores, permitem a representação dos resultados sob a forma de energia característica.

$$\varepsilon_{kT} = \frac{\sigma'_T{}^2}{4} e E \quad (4.9)$$

4.3 Testes Preliminares

Sendo este sistema completamente novo, não só no desenho como na montagem e operação, foi necessário avaliar a sensibilidade do sistema e a estabilidade dos resultados. Para isso foram feitas medidas a várias distâncias, campos de deriva, campos no GEM e foi testada a sensibilidade de leitura do eletrômetro. Verificou-se que correntes de alguns pC/s eram suficientes para se conseguir medir consistentemente a carga recolhida em cada pista. Essa informação permitiu-nos não aplicar campos muito elevados através do GEM, evitando situações de possível descarga elétrica. No final dos testes, as condições escolhidas para a experiência foram: d.d.p no GEM de 400 V (80 kVcm^{-1}), no caso do Xe e 525 V (105 kVcm^{-1}), no caso do CH_4 e campos elétricos de deriva entre GEM e alvo de $3.0 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e entre fotocátodo e GEM 0.3 e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

Analisou-se de uma forma simplificada o fator de multiplicação de carga em função da tensão no GEM, a várias distâncias do fotocátodo. Para isso, obteve-se o ganho de carga no GEM: razão entre a carga total recolhida no alvo, com o GEM polarizado, e a recolhida no topo do GEM, com a base do GEM e alvo ligados à terra. A medida rigorosa do fator de multiplicação seria uma medida mais complexa e, na verdade, este valor não é relevante para a experiência. Apenas interessava testar o funcionamento do sistema até ao GEM e o funcionamento do GEM. Para medir com rigor o fator de multiplicação seria necessário considerar fatores como: a transparência do GEM a elétrons que derivam através de um campo elétrico de 0.3 ou $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$; a razão entre o número de elétrons recolhidos no bordo do GEM e na zona ativa (efeito mais pronunciado em Xe e a maiores distâncias do alvo); a carga não recolhida no alvo, mas na base do GEM.

Mostramos a carga recolhida no topo do GEM (figuras 54 e 56) e o ganho de carga em função da tensão no GEM (figuras 55 e 57), em Xe e CH_4 . De modo a dar uma indicação da intensidade do campo elétrico no GEM, este ganho é também mostrado (eixo secundário) em função do campo elétrico no GEM, obtido usando a aproximação de campo uniforme.

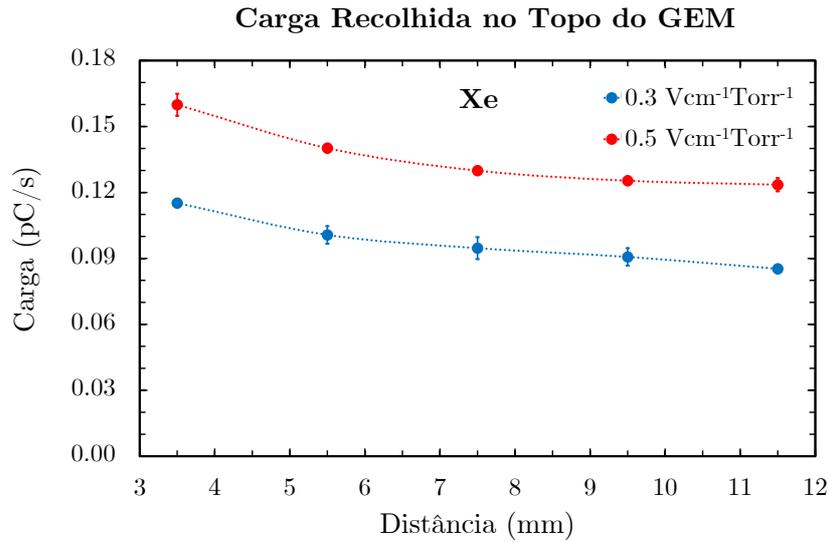


Figura 54 – Carga recolhida no topo do GEM em função da distância. Campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (azul) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (vermelho). 800 Torr Xe.

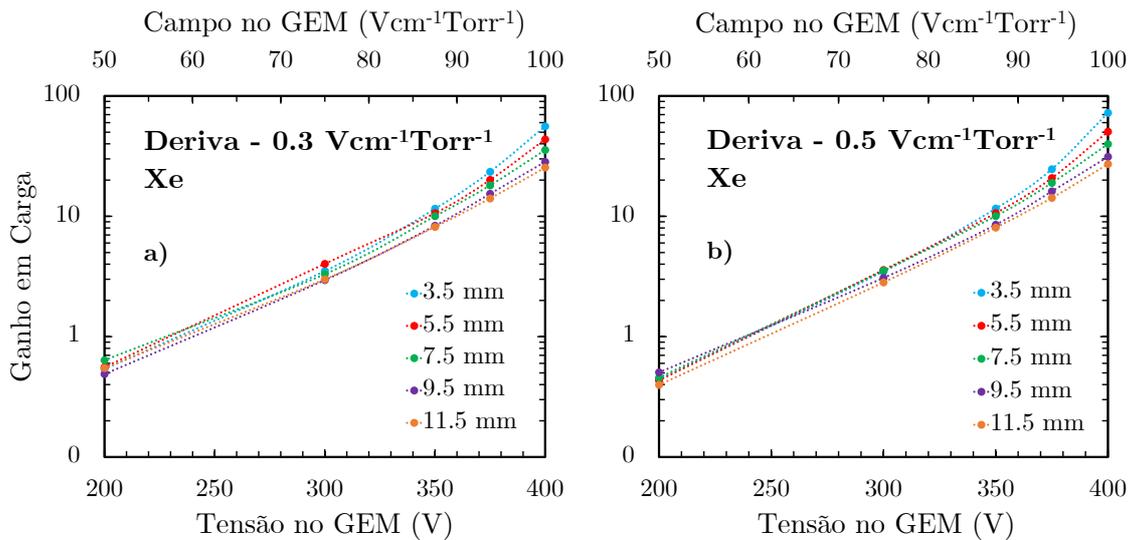


Figura 55 – Ganho de carga em função da tensão no GEM. Distâncias de deriva de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. Campos de deriva de a) $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e b) $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. 800 Torr de Xe.

Analisando a figura 55 verificou-se o bom funcionamento do GEM em Xe. O ganho inferior a 1 no GEM (perda de carga), para a tensão de 200 V, deve-se a haver carga que é recolhida no topo do GEM (sem tensões aplicadas) e que é perdida antes da recolha no alvo por fatores relacionados com as características do GEM: dimensão reduzida da área ativa, transparência não unitária, e eventual recolha de eletrões na base. A tensão no GEM correspondente a 200 V não é

suficiente para haver multiplicação significativa, pelo que o ganho é inferior a 1. A tensões superiores, a multiplicação supera as perdas e o ganho torna-se superior a 1. A quantidade de carga produzida no GEM com polarização de 400 V (campo de $100 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1} - 80 \text{ kVcm}^{-1}$) é da ordem de grandeza do referido na literatura para este tipo de GEMs [191]. Verifica-se também que a carga recolhida quando o campo de deriva é $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ é superior à carga recolhida quando o campo é $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. A razão entre as duas cargas é de cerca de 0.75, valor também da ordem de grandeza do referido na literatura (0.81 em [126]). Observou-se que o ganho no GEM diminui com o aumento da distância de deriva. Há duas razões para este efeito: diminuição do ângulo sólido para os fótons de eletroluminescência emitidos no GEM atingirem o CsI, (*Fundo 3*) e, eventualmente, elétrões que não chegam à região ativa do GEM devida à (grande) difusão durante o maior comprimento de deriva.

Com CH_4 foi feita uma análise semelhante.

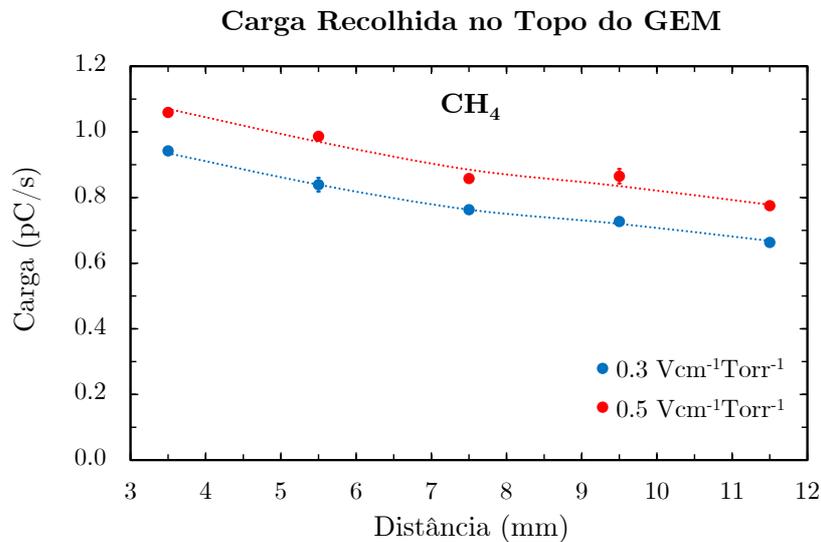


Figura 56 – Carga recolhida no topo do GEM em função da distância. Campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (azul) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (vermelho). 800 Torr CH_4 . As linhas a tracejado são linhas guia.

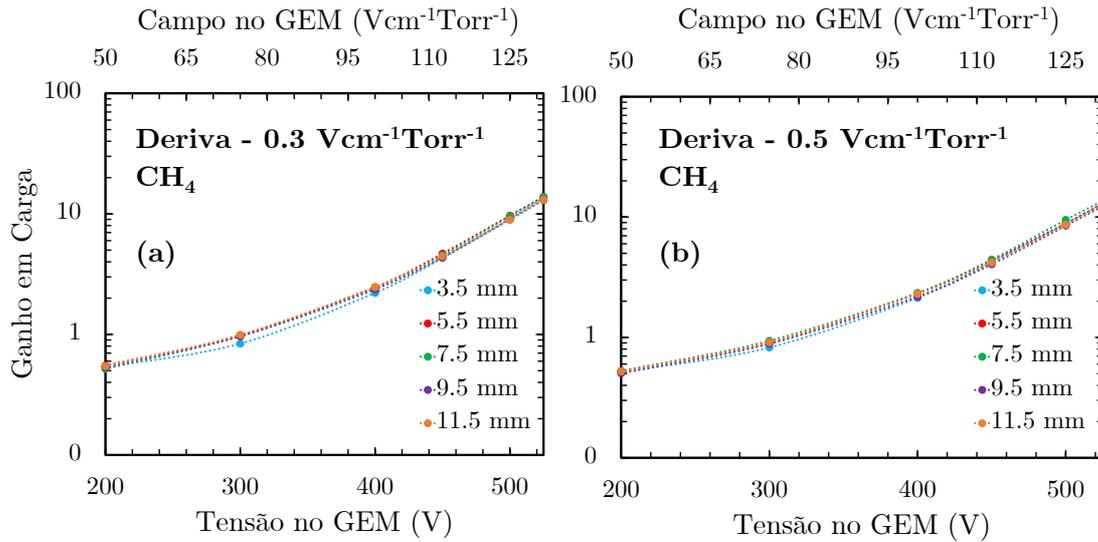


Figura 57 – Ganho de carga em função da tensão no GEM. Distâncias de deriva de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. Campos de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (a) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (b). 800 Torr de CH₄.

Verificou-se que a razão entre a carga recolhida a $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ é constante, ~ 0.88 . Este valor é muito próximo de $\sim 90\%$, referido em [126]. Tal como em Xe, o ganho do GEM é menor que 1 para tensões até 200 V (perda de carga) mas, ao contrário do observado em Xe, a carga recolhida não depende da distância. A justificação para esta observação vem confirmar as causas evocadas em Xe: grande difusão dos eletrões em Xe bem como as variações inerentes à incidência dos fotões de eletroluminescência no filme de CsI, componente não existente em CH₄.

Uma observação mais cuidadosa dos resultados em CH₄ revela que o ganho no GEM é ligeiramente superior para $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ do que para $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, o que decorre da maior transparência do GEM a campos mais baixos [54].

A análise aqui efetuada vai ajudar à análise dos resultados da difusão transversal em Xe e em CH₄.

4.4 Análise dos Resultados de Coeficientes de Difusão Transversal de Eletrões em Xénon

A distribuição da carga recolhida em Xe foi obtida para campos de deriva de 0.3 e 0.5 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, para as distâncias de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. Em cada caso, usando o pacote de *software* atrás referido [185] foi avaliada e subtraída a contribuição de fundo, como explicado.

A figura seguinte mostra um histograma da média da carga recolhida em cada uma das pistas a 3.5 mm de distância, para o campo de 0.5 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, em Xe a 800 Torr e a contribuição de fundo estimada assinalada.

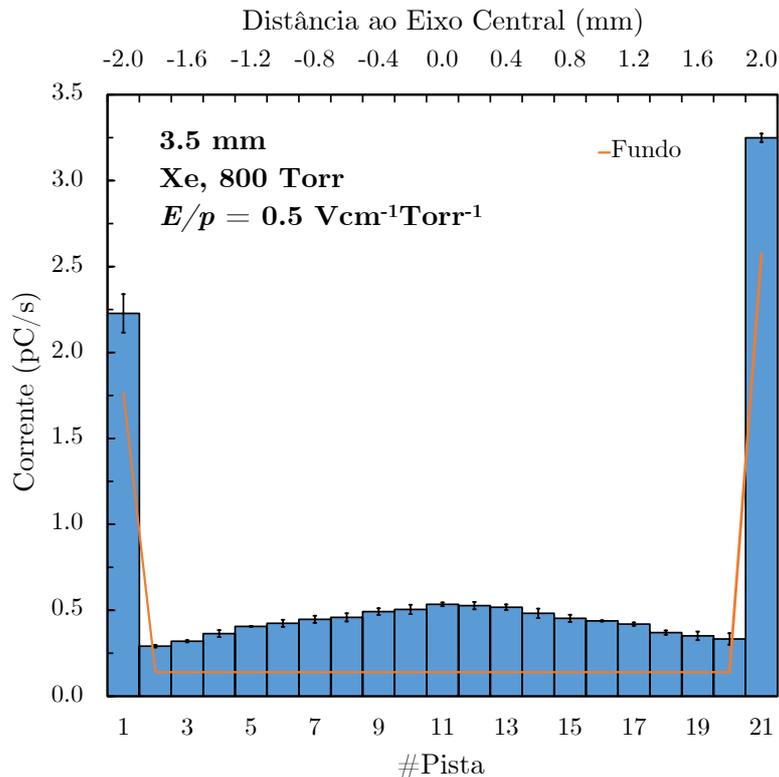


Figura 58 – Histograma da carga média recolhida em Xe em cada uma das pistas por intervalo de tempo. A linha laranja é o fundo estimado.

O procedimento adotado em cada medida foi o descrito na secção 4.2. Cada histograma provém da média de várias leituras de carga por intervalo de tempo em cada uma das pistas. Antes do início e no final da realização das medidas foi sempre feita a leitura da carga por intervalo de tempo de todas as pistas em

simultâneo (carga total) a fim de verificar que a leitura individual de cada pista não é alterada pela indução de carga de cargas vizinhas.

O aspeto fundamental na análise de resultados foi o de identificação do fundo (soma das várias contribuições atrás referidas). A determinação do *Fundo*, como descrito na secção 4.2, foi feita usando o *software* atrás referido [185]. No exemplo apresentado na figura anterior, globalmente subtraiu-se à carga total (~ 13.6 pC/s) o fundo (~ 7.0 pC/s). Ou seja, nestas condições, distância de 3.5 mm e campo de deriva de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, o fundo corresponde a cerca de 51.4% da carga total.

Como referido anteriormente, existe um *Fundo 1* difícil de quantificar, um *Fundo 2*, que poderá ser, no máximo, de 46% da carga total recolhida e um *Fundo 3* que, com o GEM a 3.5 mm, poderá atingir, no máximo, 1% da carga total. Dada a ordem de grandeza das contribuições fundamentadamente estimadas, um fundo total de 51.5% da carga total recolhida pareceu-nos adequado, com a incerteza na contribuição do *Fundo 1* que, nas condições presentes, não podemos quantificar. Na verdade, a quantificação exata da contribuição de cada um dos *Fundos* não é essencial para a análise dos resultados. As contribuições máximas estimadas de cada componente têm apenas como objetivo verificar a razoabilidade e coerência dos resultados.

A figura seguinte mostra os resultados obtidos (após subtração do fundo) em Xe a 800 Torr, para a distância de 3.5 mm e campo elétrico de deriva de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

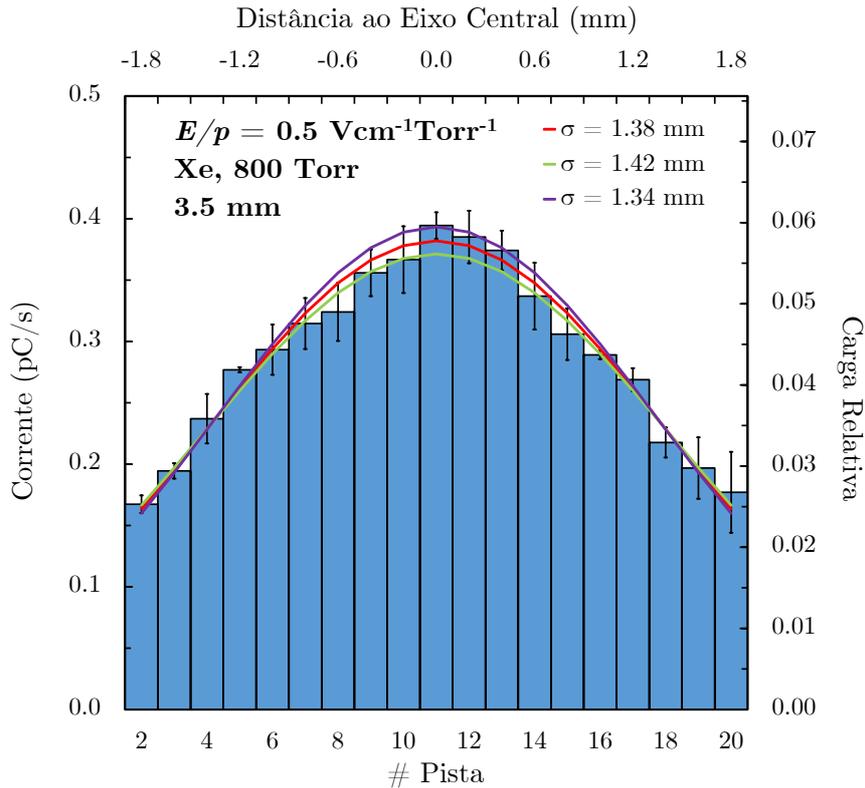


Figura 59 – Resultados obtidos para Xe a 800 Torr. Campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva total 3.5 mm. Nos eixos verticais a corrente (pC/s) (esquerda) e a fração relativa de carga (direita). Nos eixos horizontais o número da pista (inferior) e a distância ao eixo do alvo (superior). A curva gaussiana (vermelho) é a curva de ajuste aos resultados. As curvas a verde e a roxo são indicativas dos limites do intervalo de incerteza no desvio padrão determinado ($\sigma \pm \Delta \sigma$), usando o pacote de *software* atrás referido [185].

Como referido atrás, usando o *software* indicado [185] determinou o desvio padrão da curva (σ) e a incerteza ($\sigma \pm \Delta \sigma$). São esses três valores de desvio padrão que determinam as curvas representadas: a linha vermelha corresponde à curva gaussiana de ajuste aos resultados ($\sigma = 1.38 \text{ mm}$); a linha verde corresponde ao limite superior do intervalo de incerteza do resultado ($\sigma + \Delta \sigma = 1.42 \text{ mm}$); a linha roxa corresponde ao limite inferior do mesmo intervalo ($\sigma - \Delta \sigma = 1.34 \text{ mm}$).

Os resultados obtidos para distâncias diferentes (5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm) foram analisados do mesmo modo e são apresentados na figura seguinte.

Campo de deriva 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ ; 800 Torr Xe

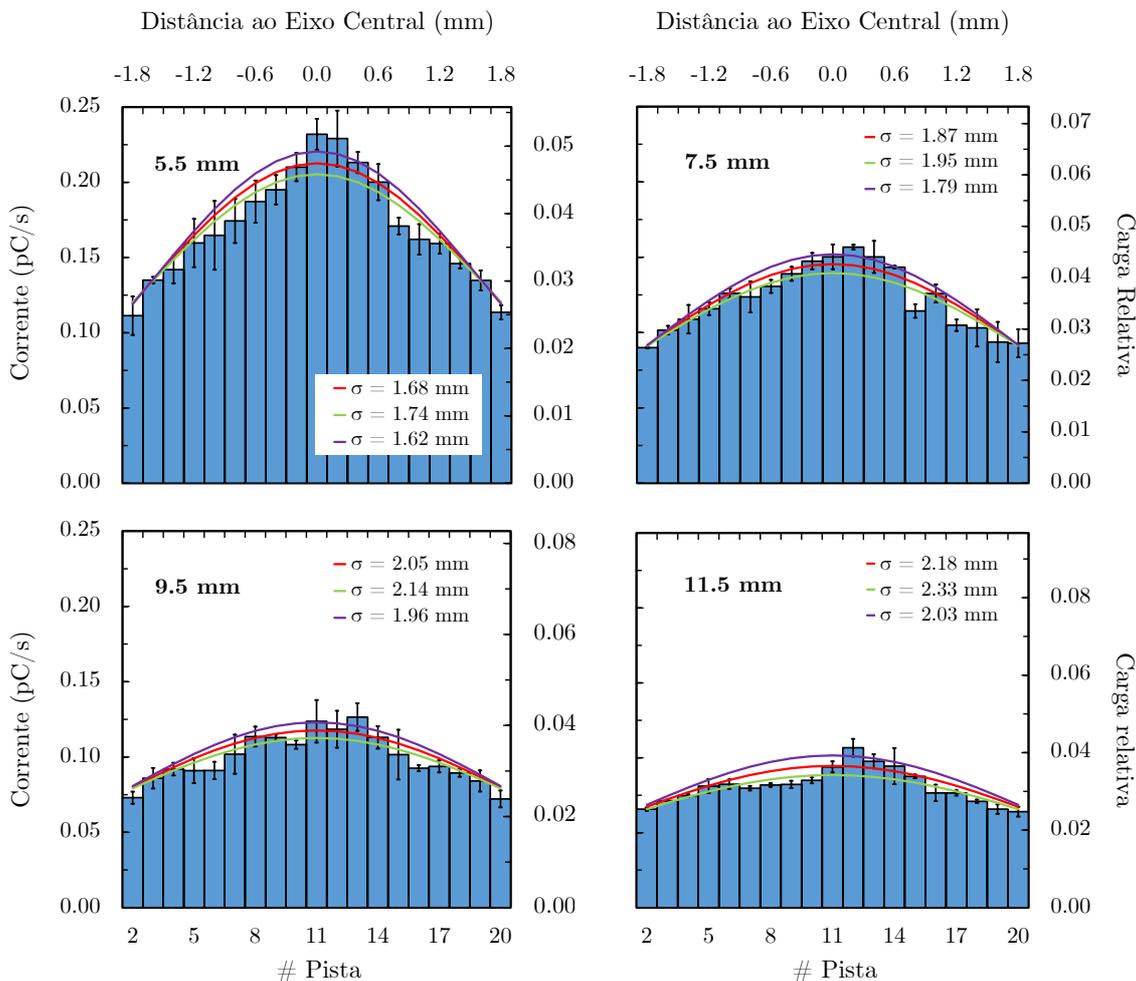


Figura 60 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr Xe. Campo de deriva 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹. A linha vermelha corresponde à curva normal de ajuste aos resultados σ . As linhas verde e roxa representam os limites do intervalo de incerteza no valor σ determinado ($\sigma \pm \Delta\sigma$). Valores determinados usando o pacote de *software* atrás referido [185].

Verificou-se que os valores absolutos de carga, bem como a fração correspondente ao *Fundo*, diminuem com o aumento da distância de deriva. Para 11.5 mm, a amplitude do *Fundo* correspondia a ~ 1.1 pC/s, com a carga total recolhida de ~ 3.7 pC/s, i.e. 29.8% da carga total. A diminuição do rácio entre o fundo e a carga total, em função da distância, está de acordo com o previsto já que as três contribuições de fundo diminuem com a distância, apesar da carga no *Sinal* também diminuir. Mas como a carga *Sinal* é gerada numa região mais central do CsI, as perdas de difusão são menores, levando a que as perdas no

Fundo sejam mais significativas do que no *Sinal*, que se traduz pela diminuição do rácio entre *Fundo* e *Sinal*.

Ainda com Xe, obtiveram-se também resultados, para as mesmas distâncias, com campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

A figura seguinte apresenta o histograma construído com a carga total recolhida, para a distância de deriva de 3.5 mm, em que o fundo estimado é representado pela linha a laranja.

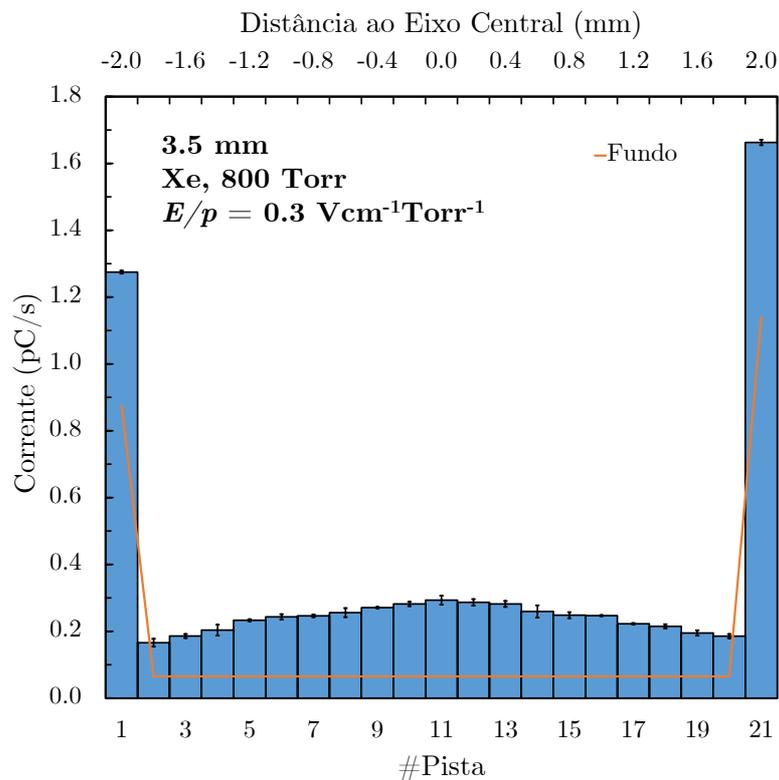


Figura 61 – Histograma da carga total média recolhida em cada uma das pistas por intervalo de tempo. A linha laranja representa o fundo estimado.

Para a distância de deriva de 3.5 mm, com campo de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, a carga total recolhida foi $\sim 7.5 \text{ pC/s}$ e o *Fundo* estimado foi de $\sim 3.3 \text{ pC/s}$. A fração de fundo (43.6%) é menor do que com o campo de deriva de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ nas mesmas condições. Este efeito foi discutido anteriormente, e será ainda mais notório para campos de deriva menos intensos, a que corresponde maior difusão.

A figura seguinte é o histograma dos resultados obtidos depois de retirado o fundo.

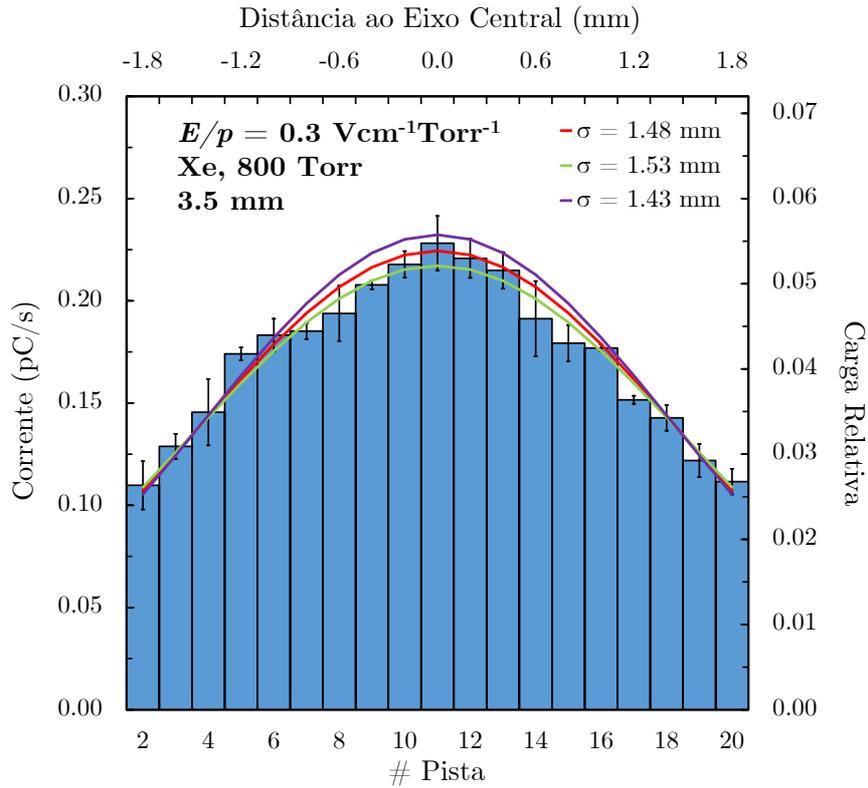


Figura 62 – Resultados em Xe, 800 Torr. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva total 3.5 mm. Nos eixos verticais a corrente (pC/s) e a fração relativa de carga (eixo esquerdo e direito, respetivamente). Nos eixos horizontais o número da pista (inferior) e a distância ao eixo do alvo (superior). Estão também representadas as curvas de ajuste aos resultados (vermelho) e dos limites da incerteza do ajuste (verde e roxo) correspondentes aos valores limite do intervalo de σ ($\sigma \pm \Delta \sigma$), determinados usando o pacote do *software* atrás referido [185].

Tal como para o campo de deriva de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, apresentam-se os resultados para as distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm.

Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$; 800 Torr Xe

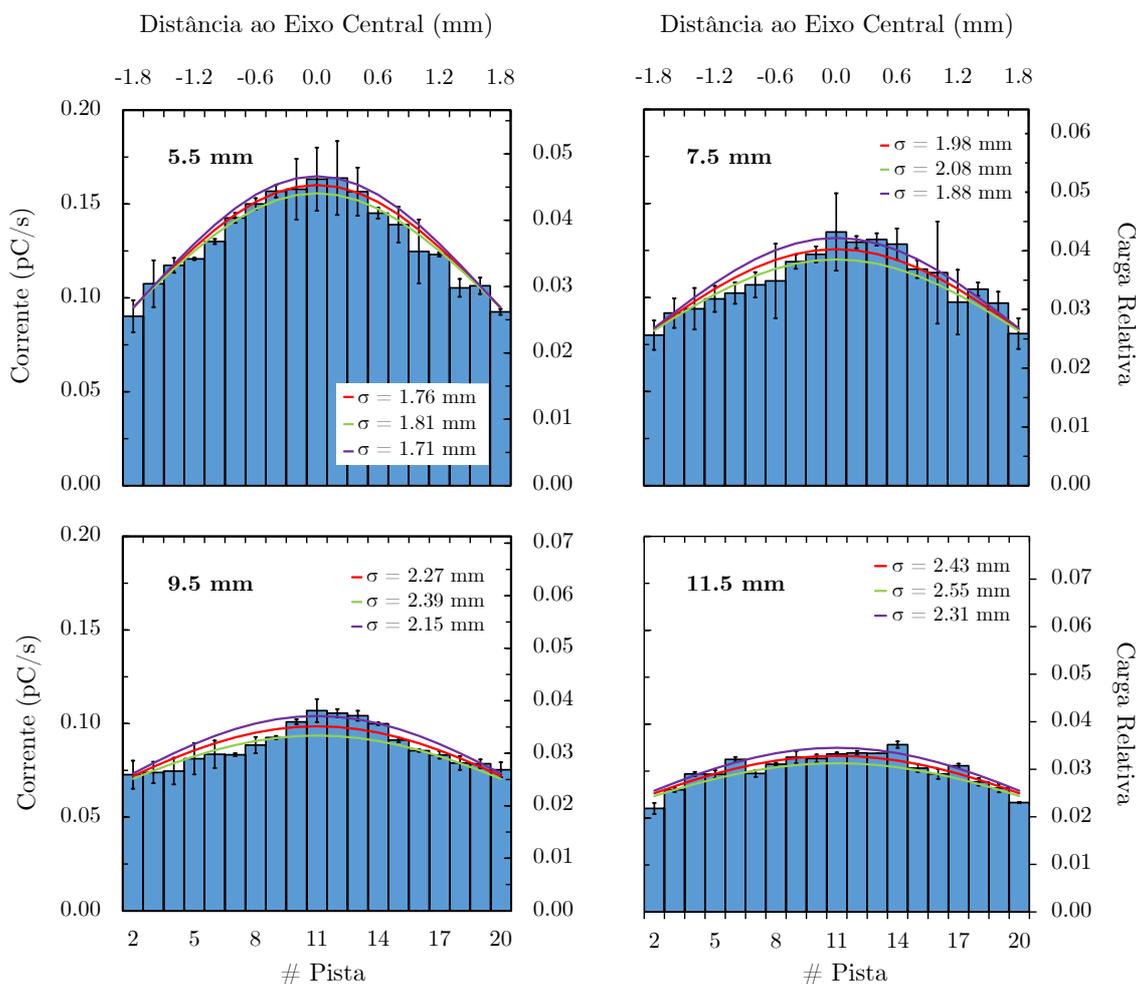


Figura 63 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr Xe. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. A linha vermelha corresponde à curva normal de ajuste aos resultados σ . As linhas verde e roxa representam os limites de incerteza no ajuste ($\sigma \pm \Delta \sigma$).

Também neste caso, a contribuição do fundo diminui com o aumento da distância de deriva: a 11.5 mm foi estimada $\sim 0.9 \text{ pC/s}$ de carga de fundo. A carga total recolhida foi de 3.4 pC/s , ou seja, o fundo corresponde a $\sim 27.8\%$ da carga total recolhida. Mais uma vez se verifica a diminuição do rácio entre o fundo e a carga total recolhida, para maiores distâncias, tal como esperado.

A 800 Torr de Xe, os resultados da variância σ^2 (mm^2) da distribuição transversal dos eletrões em função da distância de deriva d (mm), estão representados na figura seguinte, em a) para campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e em b) para campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td).

Como descrito na secção 4.2, $\sigma_x'^2$ corresponde ao declive da reta de ajuste aos resultados representados na figura. Foram obtidos os valores de $0.474 \pm 0.037 \text{ mm}^2/\text{mm}$, para $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e $0.354 \pm 0.031 \text{ mm}^2/\text{mm}$, para $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td). O declive da reta e a sua incerteza foram calculados pelo método dos mínimos desvios quadrados pesado.

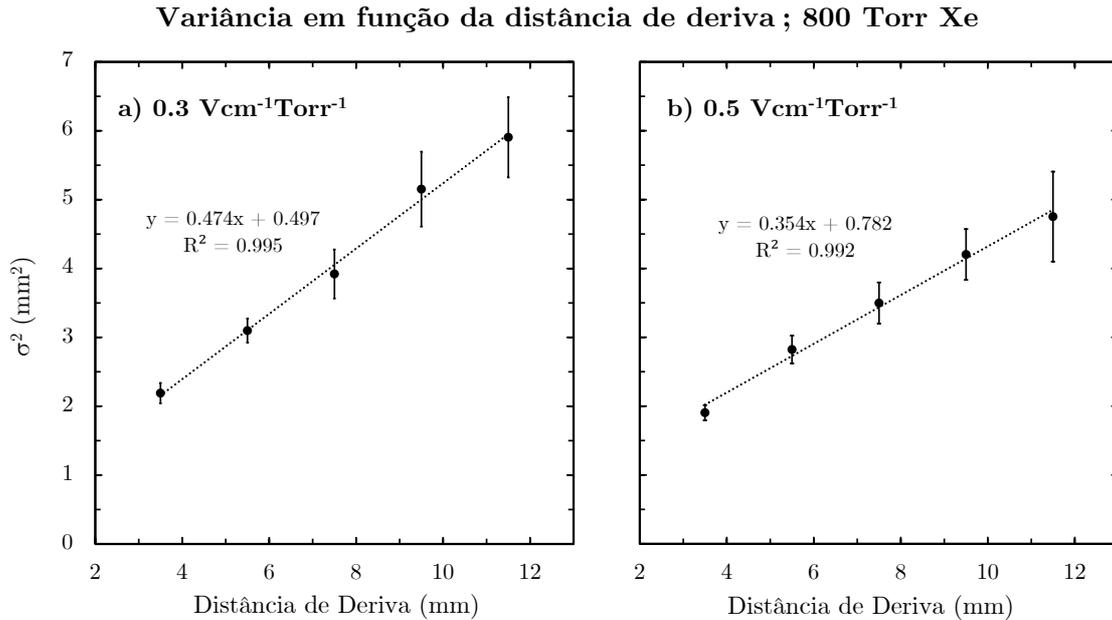


Figura 64 – Variância σ^2 em função da distância de deriva d , com ajuste linear (a pontado). 800 Torr de Xe. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (a) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (b).

Através das equações 4.6 e 4.7, verifica-se que σ_T' é $0.308 \pm 0.012 \text{ cm}/\sqrt{\text{cm}}$ para o campo de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e $0.266 \pm 0.012 \text{ cm}/\sqrt{\text{cm}}$ para o campo de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

Com a equação 4.9, obteve-se o valor da energia característica associada à difusão transversal dos eletrões (ε_{kT}) de $5.75 \pm 0.45 \text{ eV}$ e $7.15 \pm 0.63 \text{ eV}$ para os campos elétricos reduzidos de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td), respetivamente.

A figura seguinte apresenta os resultados deste trabalho (pontos a vermelho), de simulação de MC [126, 192] (linha a preto) e experimentais [153, 193, 194, 195] (símbolos abertos a preto).

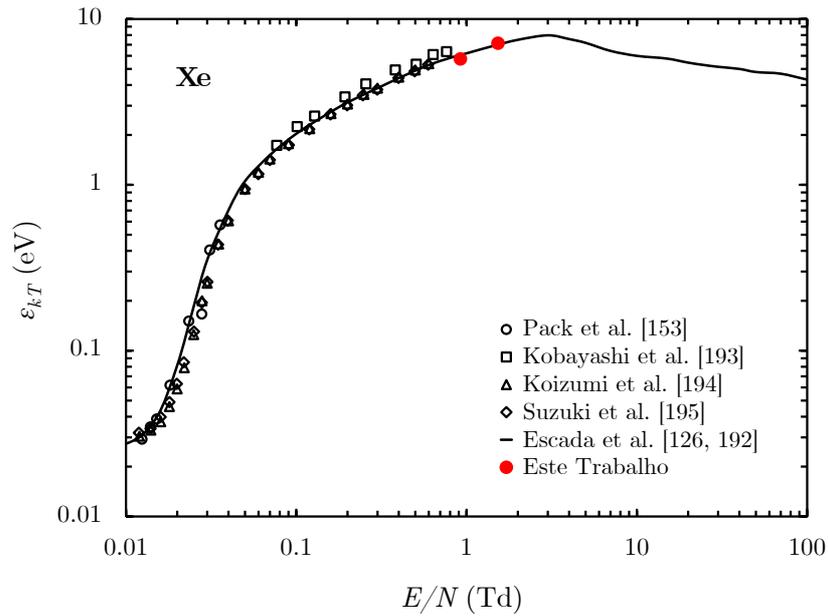


Figura 65 – Compilação dos resultados da energia característica associada ao coeficiente de difusão transversal para elétrons em xénon em função do campo elétrico reduzido (E/N). Os pontos vermelhos são os valores obtidos neste trabalho (campos elétricos reduzidos 0.92 Td e 1.53 Td, 800 Torr de Xe). A linha preta corresponde aos resultados obtidos por simulação de Monte Carlo [126, 192]. Outros símbolos correspondem a outros resultados experimentais [153, 193, 194, 195].

Os resultados da simulação apontam para ϵ_{kT} de 6.06 eV e 7.02 eV para os campos elétricos reduzidos de 0.92 Td e 1.53 Td, ambos dentro dos intervalos de incerteza dos valores aqui obtidos.

Por extrapolação dos valores experimentais da literatura são obtidos valores de ϵ_{kT} entre 6.04 – 6.70 eV para campos de 0.92 Td, e 7.04 – 7.74 eV para campos de 1.53 Td, valores muito próximos dos obtidos neste trabalho.

A tabela seguinte mostra resultados obtidos em xénon de: carga total recolhida; carga no sinal; fração da carga total correspondente ao fundo; desvio padrão da curva de ajuste aos resultados; declive da reta de ajuste aos valores da variância das curvas de ajuste aos resultados; e ϵ_{kT} . São apresentados os valores para os campos de: 0.3 e 0.5 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, (0.92 Td e 1.53 Td). Mostram-se também os resultados obtidos por simulação e (inferidos por extrapolação) de resultados experimentais de outros autores.

Tabela 7 – Resultados obtidos em Xe para os campos de 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ neste trabalho, simulação [126, 192] e outros autores [153, 193, 194, 195].

Xénon										
	0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (0.92 Td)					0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (1.53 Td)				
	3.5	5.5	7.5	9.5	11.5	3.5	5.5	7.5	9.5	11.5
Distância (mm)										
C_{Total} (pC/s)	7.46	5.53	4.72	4.01	3.42	13.61	8.48	5.81	4.72	3.69
C_{Sinal} (pC/s)	4.21	3.53	3.12	2.81	2.47	6.61	4.48	3.41	3.02	2.59
Fundo (%)	43.6	36.1	33.9	30.0	27.8	51.4	47.2	41.3	36.0	29.8
Desv. P. (mm)	1.48	1.76	1.98	2.27	2.43	1.38	1.68	1.87	2.05	2.18
$\sigma'_x{}^2$ (mm²/mm)	0.474±0.037					0.354±0.031				
ε_{kT} (eV) Experimental	5.75±0.45					7.15±0.63				
ε_{kT} (eV) Simulação	6.06					7.02				
ε_{kT} (eV) Outros Experimentais	[6.04 – 6.70]*					[7.04 – 7.74]*				

* Resultados Extrapolados

Pela comparação entre resultados agora obtidos e os publicados na literatura, podemos concluir que estão em boa concordância com os obtidos por simulação e com a tendência dos valores experimentais.

4.5 Análise dos Resultados de Coeficientes de Difusão Transversal de Eletrões em Metano

Realizou-se um estudo semelhante com CH₄ para os mesmos campos e distâncias de deriva. A d.d.p. aplicada ao GEM foi de 525 V (105 kVcm⁻¹) em vez de 400 V (80 kVcm⁻¹) em Xe. A necessidade de aumentar a d.d.p. no GEM deve-se a o fator de multiplicação de xénon ser superior ao de CH₄ nas mesmas condições [196].

A figura seguinte apresenta um histograma da média da corrente recolhida em cada uma das pistas, para o campo de 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹, a 3.5 mm de distância com 800 Torr de CH₄.

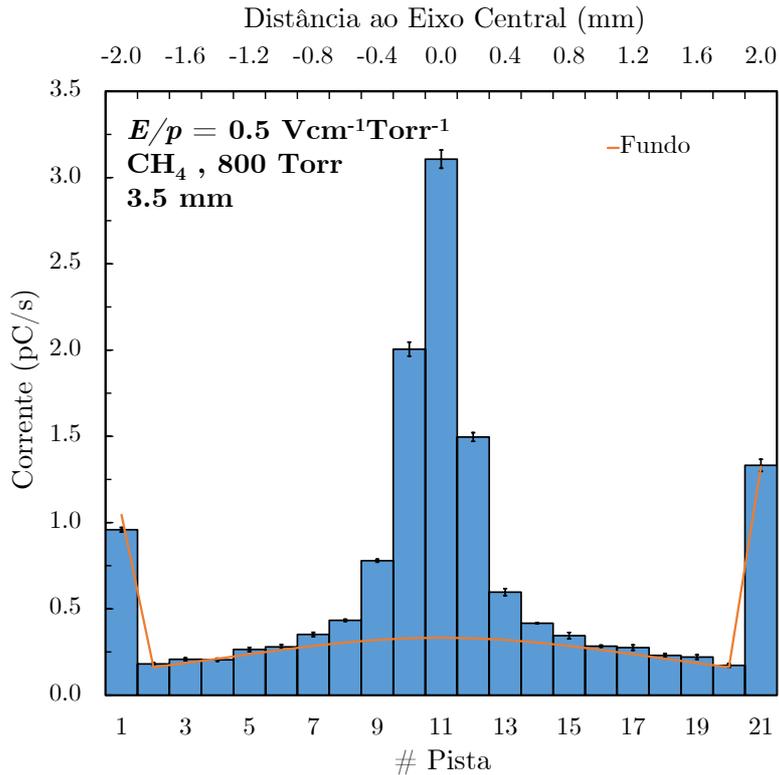


Figura 66 – Histograma da carga média recolhida em cada uma das pistas por intervalo de tempo. A linha laranja é o fundo considerado.

Tal como em Xe, existe também uma contribuição de fundo em CH_4 . Em Xe, como vimos, há três contribuições para esse fundo. Em CH_4 , como não há eletroluminescência, apenas temos duas contribuições: *Fundo 1* – luz vinda da antecâmara após reflexões; *Fundo 2* – luz proveniente de reflexões no cobre do GEM. Ambas as contribuições de luz, tal como anteriormente, vão converter-se parcialmente em elétrons ao incidirem no fotocátodo. A determinação do fundo e do desvio padrão da gaussiana de ajuste aos resultados, tal como no caso do Xe, foi feita com usando a usando o *software* atrás referido [185]. Em CH_4 a avaliação do ajuste da curva de fundo pode ser feita pela observação da coerência entre a curva de ajuste e a distribuição da carga pelas pistas, incluindo as mais externas 2 e 20 (em que, neste caso, não há carga proveniente do *Sinal*) e a sua extensão às pistas de controle 1 e 21. Esta avaliação não é possível em Xe, dado que o *Sinal* se espalhava por todas as pistas, inclusive nas de controle.

A figura seguinte apresenta o histograma do *Sinal* obtido depois da subtração do fundo.

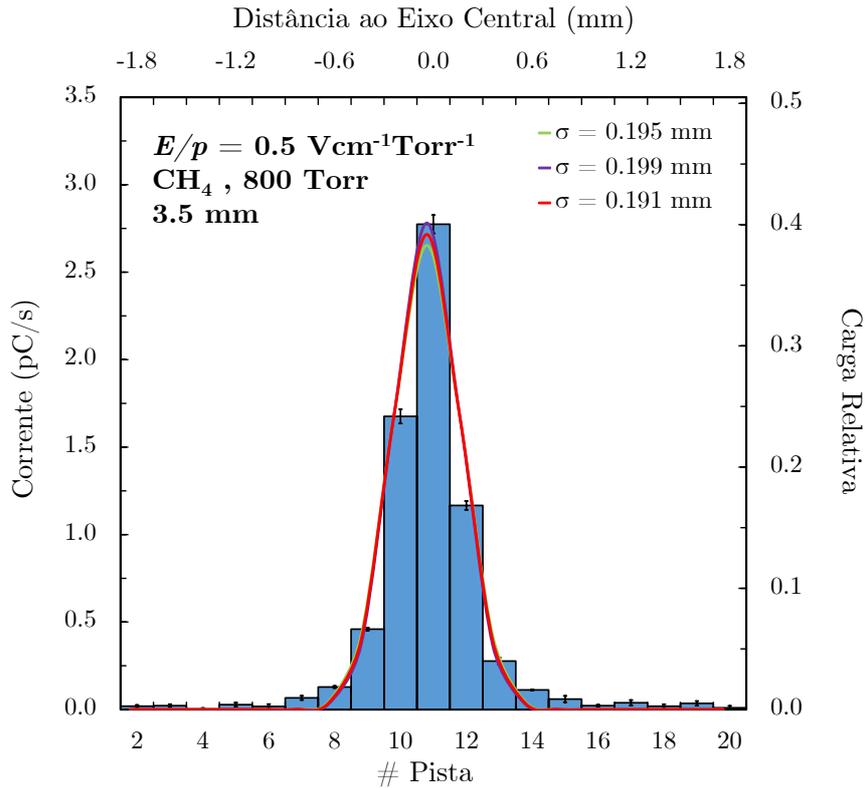


Figura 67 – Resultados obtidos para CH_4 , 800 Torr. Campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva total 3.5 mm. Nos eixos verticais a corrente (pC/s) (esquerda) e a fração relativamente de carga (direita). Nos eixos horizontais o número da pista e a distância ao eixo do alvo (mm). A vermelho, a curva gaussiana de ajuste aos resultados σ . As curvas a verde e a roxo são indicativas dos limites da incerteza no desvio padrão ($\sigma \pm \Delta \sigma$), determinado, usando o pacote de *software* atrás referido [185].

A técnica usada foi semelhante à usada em Xe.

A 3.5 mm de distância de deriva, o fundo considerado foi de $\sim 7.2 \text{ pC/s}$, correspondente a 51.0% da carga total (14.14 pC/s). Pela análise feita e discutida na secção 4.2, concluímos que o *Fundo 2* poderá atingir 46% da carga total e que o *Fundo 1* não era quantificável. Atendendo a que em CH_4 não há eletroluminescência (*Fundo 3*), estimamos que a contribuição do *Fundo 1* seja 5% – 10% da carga total, a contribuição máxima estimada para o *Fundo 2* seja 46%, dado que o fundo retirado foi de $\sim 51\%$. Os valores das contribuições são estimados, como foi dito. No entanto, o valor individual exato não é relevante.

Tal como em Xe, em CH_4 as contribuições do *Fundo 1 e 2* (com as mesmas origens que em xénon), deverão diminuir com a distância de deriva.

As figuras seguintes mostram os resultados em CH_4 com campo de deriva de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, para as distâncias de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm.

Campo de deriva 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ ; 800 Torr CH₄

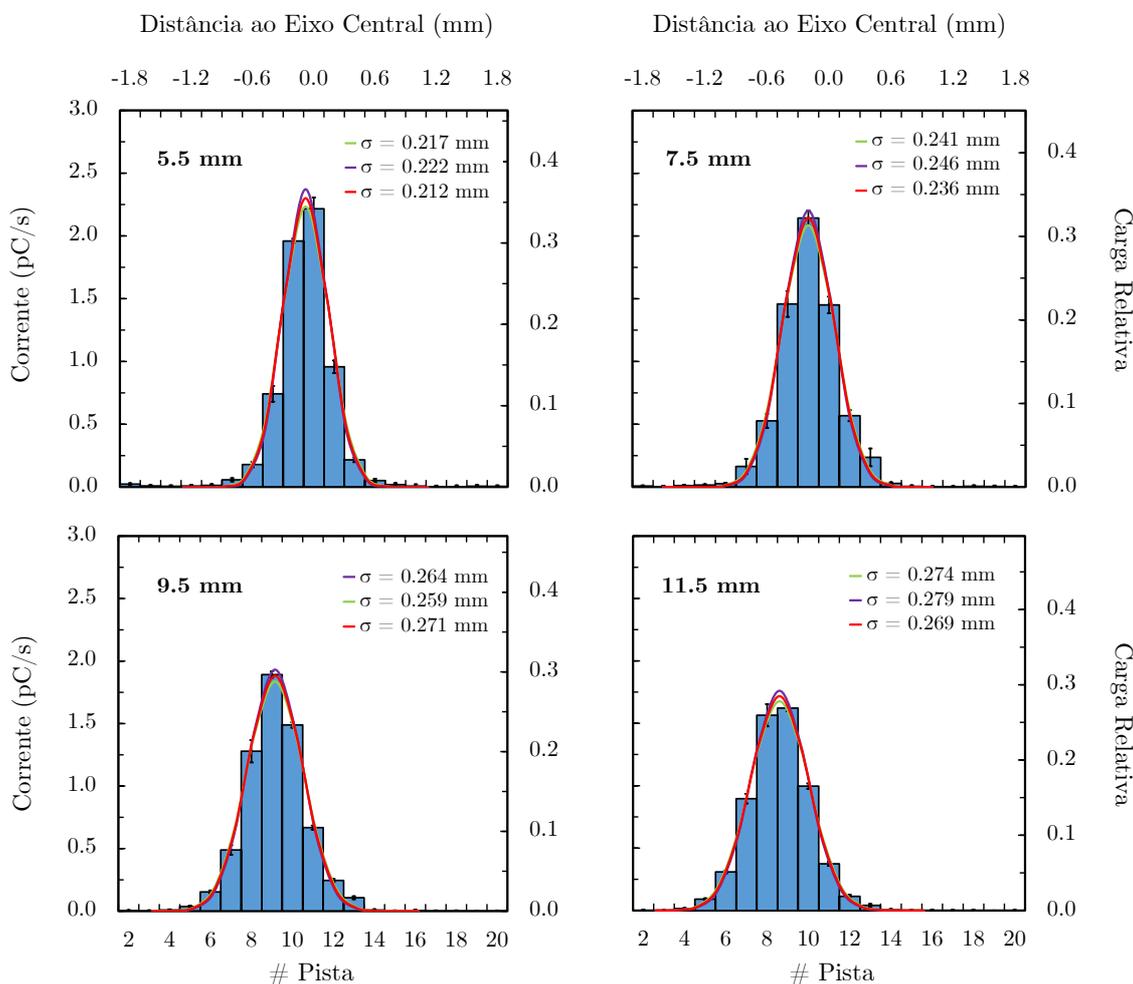


Figura 68 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr CH₄. Campo de deriva 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹. A linha vermelha corresponde à curva gaussiana de ajuste aos resultados. As linhas verde e roxa representam as curvas correspondentes dos limites do intervalo da incerteza no valor σ determinado ($\sigma \pm \Delta \sigma$).

Com o aumento da distância de deriva o fundo estimado diminui efetivamente e o desvio padrão da curva de ajuste aumenta. A 11.5 mm, o fundo estimado foi de 38.8% (3.82 pC/s de um total de carga recolhida de 9.85 pC/s). A diminuição do rácio de fundo com o sinal total em função da distância está de acordo com o previsto.

Também com CH₄ foram obtidos resultados (para as mesmas distâncias) com um campo de deriva de 0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹.

A figura seguinte apresenta um histograma dos resultados obtidos para o campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e 3.5 mm de distância, com 800 Torr de CH_4 .

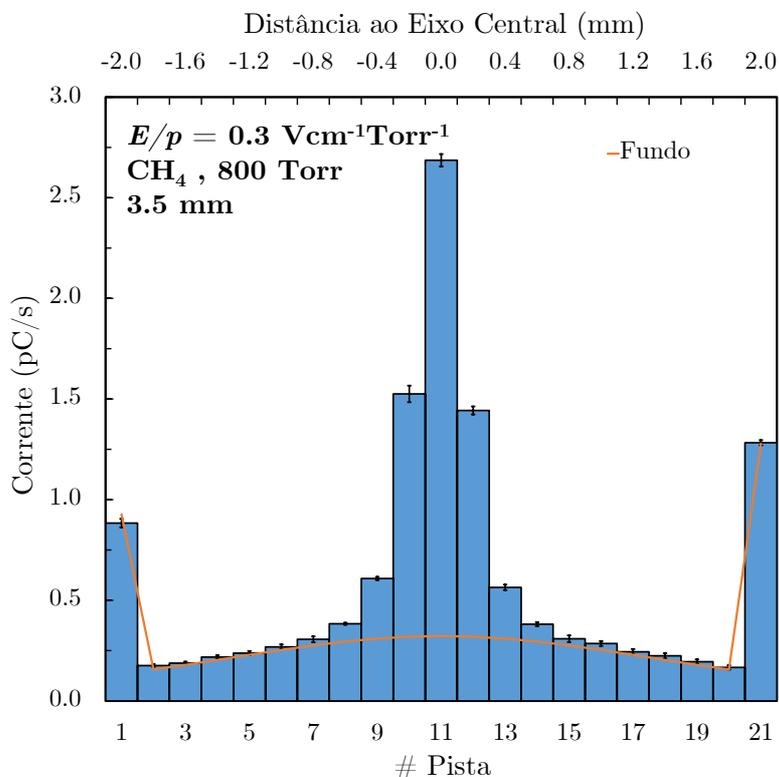


Figura 69 – Histograma da carga média recolhida por pista por intervalo de tempo. O fundo considerado está representado pela linha laranja.

Aqui também é possível avaliar a coerência do ajuste com a distribuição de cargas. Notar que, em CH_4 , a curva que representa o fundo tem uma forma visivelmente gaussiana, como discutido anteriormente.

O histograma seguinte corresponde aos resultados obtidos, após subtração do fundo, a 3.5 mm de distância e campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, a 800 Torr de CH_4 .

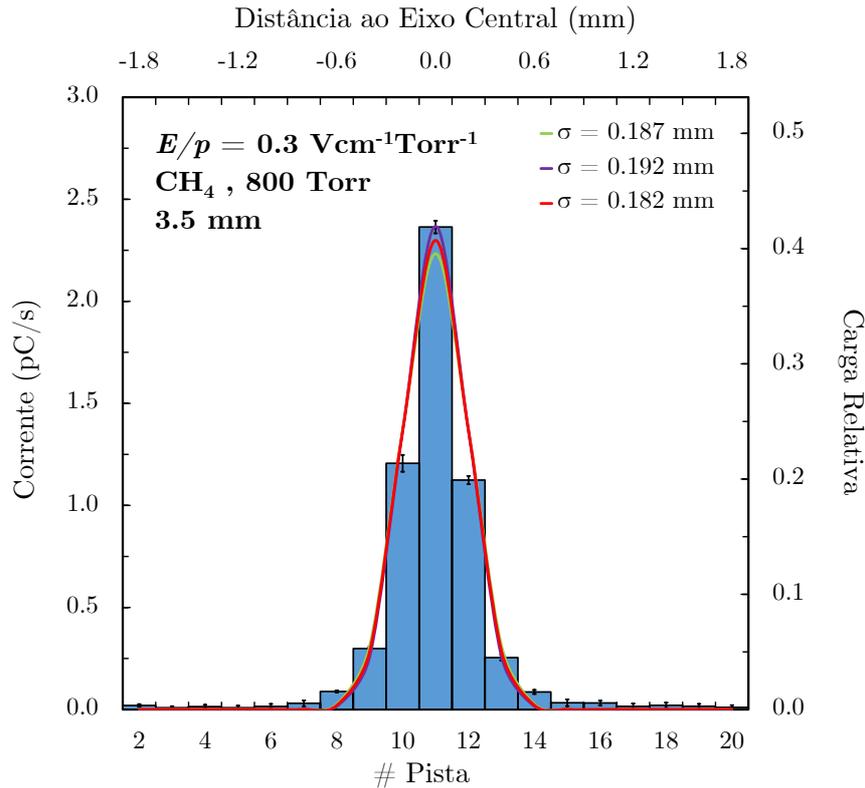


Figura 70 – Resultados obtidos para CH_4 , 800 Torr. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva 3.5 mm. Nos eixos verticais está a corrente (pC/s) (esquerda) e a fração relativamente de carga (direita). Os eixos horizontais indicam o número da pista e a distância ao eixo do alvo (mm). A curva gaussiana vermelha representa o ajuste aos resultados. As curvas a verde e a roxo são indicativas do intervalo de incerteza do desvio padrão calculado pelo pacote de software atrás referido [185].

Nestas condições, o fundo total estimado foi de $\sim 6.9 \text{ pC/s}$ para uma carga total de 12.6 pC/s , ou seja, 55.1%.

As figuras seguintes mostram os resultados obtidos com o campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, 800 Torr de CH_4 .

Campo de deriva 0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹ ; 800 Torr CH₄

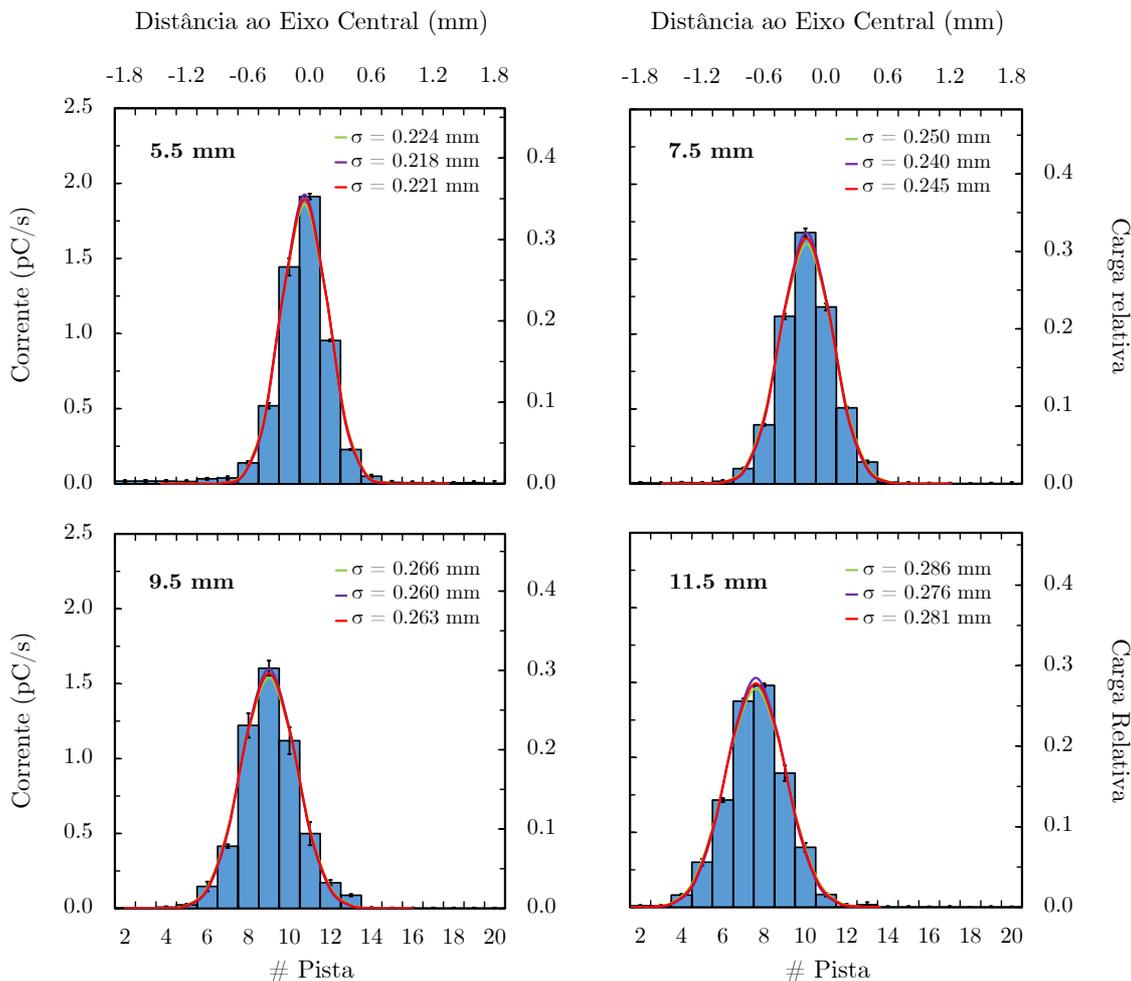


Figura 71 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr CH₄. Campo de deriva 0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹. A vermelho, a curva normal de ajuste aos resultados. As curvas verde e roxa indicam os limites do intervalo de incerteza no valor calculado ($\sigma \pm \Delta \sigma$).

Para a distância de deriva de 11.5 mm o fundo total estimado foi de ~3.7 pC/s, ~9.1 pC/s de carga total, 40.9% do sinal. Mais uma vez se verificou a diminuição da contribuição de fundo com a distância.

Determinado o desvio padrão σ da curva normal de ajuste ao histograma para cada distância, construiu-se, tal como anteriormente, o gráfico da variância σ^2 em função da distância, para determinar o declive da reta de ajuste aos pontos. Os gráficos seguintes apresentam os resultados de σ^2 em função da distância, para 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹. O procedimento seguido para CH₄ foi semelhante ao descrito para xénon na secção 4.4.

Tal como anteriormente, $\sigma'_x{}^2$ (obtido pelo método dos mínimos desvios quadrados pesado) é o declive da reta de ajuste aos resultados. Obtiveram-se valores de $0.0054 \pm 0.0004 \text{ mm}^2/\text{mm}$ para $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e $0.0048 \pm 0.0004 \text{ mm}^2/\text{mm}$ para $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td).

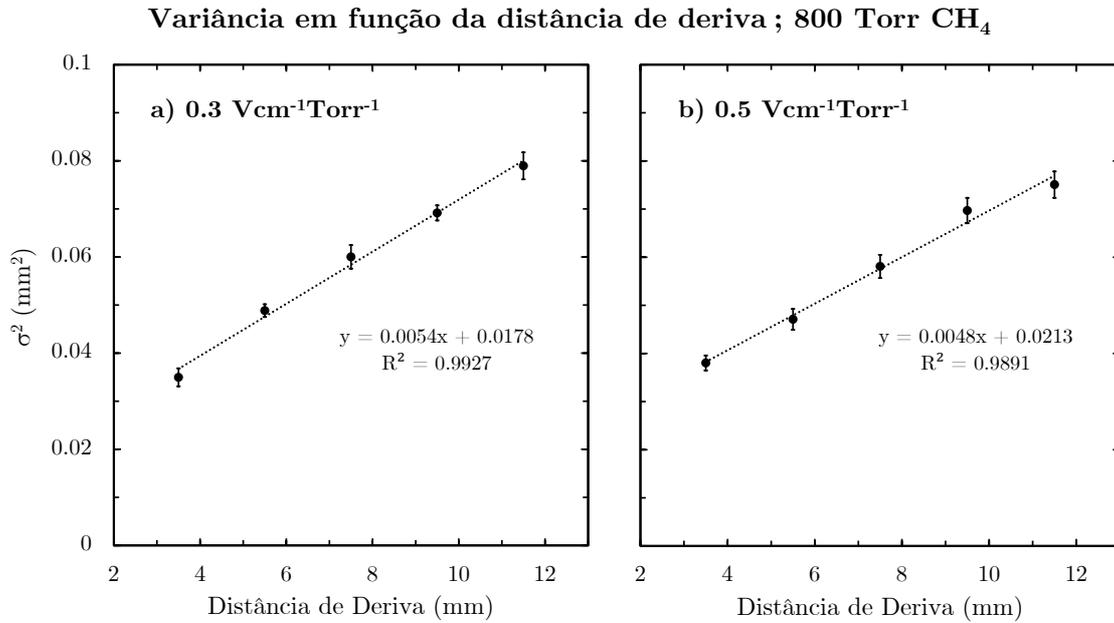


Figura 72 – Valor da variância da curva de ajuste (σ^2) em função da distância de deriva. A linha tracejada é a linha de ajuste aos resultados (bolas a preto), calculada pelo método dos mínimos desvios quadrados pesado. Campo de deriva a) $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e b) $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. 800 Torr de CH₄.

Através das equações 4.6 e 4.7 obtemos o valor de σ'_T : $0.0329 \pm 0.0012 \text{ cm}/\sqrt{\text{cm}}$ para o campo de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e $0.0310 \pm 0.0013 \text{ cm}/\sqrt{\text{cm}}$ para o campo de $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$.

Da mesma forma que em xénon, usando a equação 4.9, obtiveram-se os valores da energia característica associada à difusão transversal ϵ_{kT} de $0.065 \pm 0.005 \text{ eV}$ e $0.097 \pm 0.008 \text{ eV}$ para os campos elétricos reduzidos de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td), respetivamente. Os valores obtidos por simulação por MC publicados em [197] referem valores de ϵ_{kT} de 0.058 eV e 0.085 eV para campos elétricos reduzidos de 0.92 Td e 1.53 Td.

A figura seguinte mostra os resultados obtidos neste trabalho (pontos a vermelho), de simulação por MC [197] (linha) e outros resultados experimentais [198 – 203] (outros símbolos).

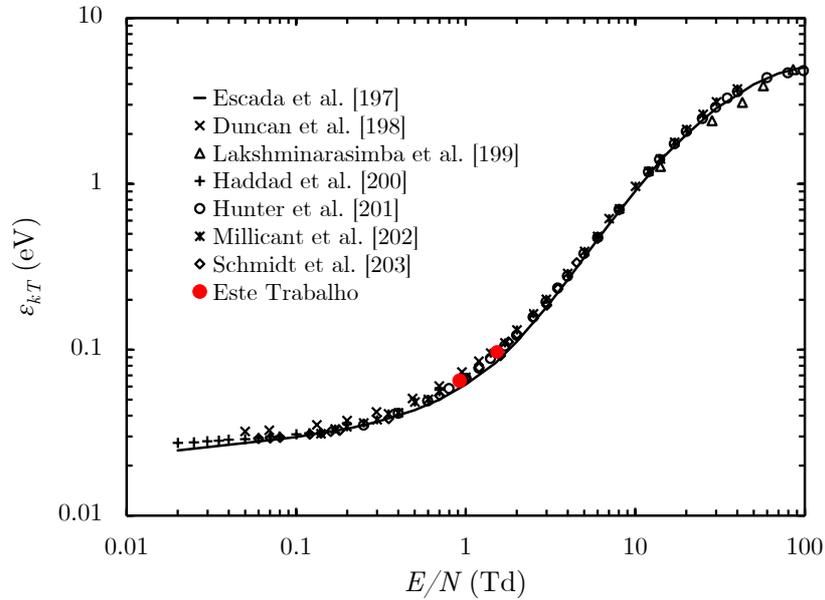


Figura 73 – Compilação dos resultados da energia característica transversal dos eletrões em metano em função do campo elétrico reduzido (E/N_0). As bolas vermelhas correspondem aos valores obtidos neste trabalho (campos elétricos reduzidos de 0.92 e 1.53 Td). A linha preta corresponde aos resultados obtidos por simulação pelo método de MC [197]. Outros símbolos correspondem a outros resultados experimentais [198 – 203].

Valores experimentais inferidos da literatura por extrapolação [193, 198 – 204], sugerem valores de ϵ_{kT} entre 0.065 – 0.072 eV para campo de 0.92 Td e 0.098 – 0.106 eV para campo de 1.53 Td, valores concordantes com os obtidos neste trabalho.

A tabela seguinte apresenta os resultados obtidos para vários parâmetros em metano, nomeadamente carga total recolhida, carga do sinal, fração do sinal de fundo, desvio padrão da curva de ajuste aos resultados, declive da reta de ajuste aos valores da variância em função da distância de deriva e ϵ_{kT} . Os valores apresentados são os dos campos estudados: 0.3 e 0.5 $\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, (0.92 Td e 1.53 Td). Também se apresentam resultados obtidos por simulação e experimentais de outros autores (inferidos por extrapolação).

Tabela 8 – Resultados obtidos em metano em campos de deriva 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹, neste trabalho, simulação [197] e outros autores [193, 198 – 204].

Metano										
	0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (0.92 Td)					0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (1.53 Td)				
Distância (mm)	3.5	5.5	7.5	9.5	11.5	3.5	5.5	7.5	9.5	11.5
C_{Total} (pC/s)	12.58	11.43	10.50	9.78	9.09	14.14	13.12	12.19	10.90	9.85
C_{Sinal} (pC/s)	5.65	5.42	5.17	5.30	5.38	6.93	6.48	6.66	6.38	6.03
Fundo (%)	55.1	52.6	50.7	45.8	40.9	51.0	50.6	45.4	41.5	38.8
Desv. P. (mm)	0.187	0.221	0.245	0.263	0.281	0.195	0.217	0.241	0.264	0.274
$\sigma'_x{}^2$ (mm²/mm)	0.0054 ± 0.0004					0.0048 ± 0.0004				
ε_{kT} (eV) Experimental	0.065 ± 0.005					0.097 ± 0.008				
ε_{kT} (eV) Simulação	0.058					0.085				
ε_{kT} (eV) Outros Experimentais	[0.065 – 0.072]*					[0.098 – 0.106]*				

* Resultados Extrapolados

Também em CH₄, se verifica que os resultados experimentais estão de acordo com os resultados obtidos por outros autores experimentais e de simulação. A análise do fundo indica que a contribuição para a carga total vai sendo progressivamente menor com o aumento da distância, como era esperado.

Uma constatação relevante na análise da carga do sinal é a consistência dos valores independentemente da distância de deriva. Esse comportamento, tal como foi sugerido na observação dos histogramas, é explicável pelo facto de a carga em CH₄ estar a ser totalmente recolhida a qualquer das distâncias, ao contrário do que acontece em Xe. A diferença de carga nos campos de 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ deve-se à menor eficiência de extração de eletrões do filme de CsI que ocorre para campos de menor intensidade. O rácio entre os valores da eficiência de deteção para os campos de 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ obtidos neste trabalho é de ~0.83, concordante com o rácio de 0.81 obtido para a eficiência de extração de eletrões de CsI em CH₄, por simulação de MC com estes mesmos campos [126].

4.6 Conclusões

O trabalho descrito neste capítulo consistiu no desenvolvimento de um dispositivo experimental para medir os coeficientes de difusão transversal de eletrões num gás sob ação de um campo elétrico. A prova do conceito e de bom funcionamento do sistema consistiu na medida dos coeficientes de difusão transversal de eletrões em dois meios com comportamentos de difusão bem diferentes, para os quais os valores são conhecidos. Estudou-se Xe e CH₄ a 800 Torr para campos de deriva de 0.3 e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹. A validação dos resultados obtidos foi feita comparando-os com resultados existentes na literatura obtidos por simulação pelo método de Monte Carlo e experimentalmente.

Em xénon, obtiveram-se valores para a energia característica associada à difusão transversal de eletrões de 5.75 ± 0.45 eV e 7.15 ± 0.63 eV em campos de 0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (0.92 Td) e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (1.53 Td). Em metano, obtiveram-se os valores de 0.065 ± 0.005 eV e 0.097 ± 0.008 eV em campos de 0.3 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (0.92 Td) e 0.5 Vcm⁻¹Torr⁻¹ (1.53 Td). Em ambos os casos, os intervalos dos valores obtidos experimentalmente incluem os valores da literatura (simulação e experimentais).

A conformidade dos resultados com outros da literatura é a confirmação do bom funcionamento do sistema e da validade do método de análise de resultados.

Por outro lado, é também importante referir que a versatilidade do dispositivo desenvolvido permite explorar uma gama de campos elétricos e de pressões grande. A simplicidade do sistema experimental, com as devidas alterações, permite medidas de velocidade de deriva e difusão longitudinal de eletrões.

Para este sistema, podemos também concluir que a contribuição para o *Fundo* vem maioritariamente do *Fundo 2* – proveniente de fótons refletidos no filme de cobre no GEM e que produzem fotoeletrões no CsI. A confirmação desta hipótese vem do facto de o valor desta contribuição ser da mesma ordem de grandeza da carga de fundo estimada pelo pacote de *software* atrás referido [185].

Estes resultados estão publicados em Nucl. Instrum. Meth. A [167] e IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 70, Issue 3 (2023). <https://doi.org/10.1109/TNS.2023.3244361> [168].

5 Conclusões e Trabalho Futuro

Para responder às necessidades que surgem em aplicações cada vez mais exigentes, nomeadamente na deteção de matéria escura, física de partículas ou em astrofísica, os detetores gasosos de radiação têm sido alvo de renovado interesse e investigação, dado que são possivelmente os detetores em que há mais equilíbrio entre custos e performance e, por outro lado, dos mais versáteis e adaptáveis. No caso de o problema dizer respeito ao meio de deteção, um procedimento comum é adicionar um componente minoritário, em geral molecular, cuja presença vai produzir as pequenas alterações necessárias nas propriedades do gás maioritário. Exemplo deste procedimento são os *quencher*s nos meios de deteção de detetores com multiplicação de carga. A novidade nestas novas aplicações será as condições de operação (altas pressões e eventualmente grandes dimensões) e as características do gás maioritário que se querem ver alteradas. Em contrapartida, há as características do gás maioritário que é obrigatório manter e cujo comportamento, com aditivos não testados, não é conhecido. Uma vertente desta nova fase de desenvolvimento dos detetores gasosos passa, por isso, pelo estudo de possíveis misturas que alterem as características não satisfatórias do gás maioritário e mantenham as indispensáveis, em que se baseou a escolha desse gás como meio de deteção.

Neste contexto, no âmbito desta dissertação, foram desenvolvidos sistemas experimentais que possibilitaram o estudo das características de diferentes misturas gasosas como meio de deteção da radiação. O gás maioritário alvo de estudo foi o xénon e os dispositivos desenvolvidos tiveram como objetivo o estudo

das propriedades específicas deste gás quer na perspectiva de alteração quer na de manutenção. Foram desenvolvidos sistemas experimentais que tornaram possível o estudo da cintilação primária e secundária, multiplicação de carga, mobilidade iônica, transparência da mistura gasosa à luz VUV. O aditivo escolhido foi TMA. Foi também desenvolvido um sistema experimental original para medir o coeficiente de difusão transversal de elétrons, no âmbito de uma outra aplicação para a qual a propriedade relevante é este parâmetro do gás.

O bom funcionamento dos sistemas experimentais desenvolvidos é comprovado pelos resultados obtidos, concordantes com resultados literatura quando existentes, ou pela aceitação para publicação em revistas científicas corrigidas por pares [82, 112, 122, 145, 167, 168].

Foi assim concluído com sucesso o essencial do programa de trabalhos inicialmente proposto: dotar o grupo de um conjunto de sistemas experimentais que possibilitassem o estudo das características de misturas gasosas como meio de detecção e estudo das características (produção de cintilação primária e secundária, multiplicação de carga, absorção de luz VUV e mobilidade iônica) de misturas de xénon com aditivos. Apesar de não terem sido estudados os coeficientes de difusão transversal em misturas gasosas, os estudos realizados com Xe e com CH₄ mostraram que o sistema desenvolvido está apto para o fazer.

Na sequência do trabalho puderam tirar-se diversas conclusões à cerca de algumas propriedades de TMA, quer como meio gasoso, quer como aditivo de xénon. A saber:

- A molécula de TMA tem uma energia de ionização de 7.9 eV, formando-se o ião (CH₃)₃N⁺. A partir de 18 eV, dos vários iões gerados, o mais abundante é (CH₃)₂CH₂N⁺;
- O fator de correção de gás no espectrómetro de massa RGA (marca Hiden[®], modelo HAL IV RC) para TMA é 3.2.

Do trabalho realizado nos diversos sistemas experimentais com misturas Xe – TMA concluiu-se que:

- A molécula de TMA absorve a luz VUV de Xe (172 nm) com um coeficiente de absorção de $0.43 \pm 0.03 \text{ Torr}^{-1}\text{cm}^{-1}$, característica que poderá ser crítica em sistemas com reduzida EL ou que necessitem do sinal de cintilação primária.

- Ao contrário do que tinha sido sugerido, a molécula de TMA não reemite luz após a absorção de luz de Xe (172 nm), o que seria a principal vantagem deste aditivo, pois serviria como conversor de c.d.o. evitando as perdas e dificuldades dos 172 nm;

- A mobilidade iónica em misturas Xe – TMA ($\sim 0.80 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) é superior à mobilidade iónica em Xe puro ($\sim 0.64 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) e TMA puro ($\sim 0.56 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$), uma vantagem significativa principalmente em detetores que utilizem multiplicação de carga e elevadas taxas de contagem:

- Usando misturas Xe – TMA num CP, verifica-se uma degradação da resolução de energia com o aumento da concentração do aditivo, uma característica indesejada, por outro lado, ocorre multiplicação de carga a tensões cada vez menores, característica que poderá ter aplicações vantajosas;

- O valor de w_p para a cintilação primária em Xe é de $80 \pm 12 \text{ eV}$;

- Pelo motivo da molécula de TMA absorver a luz VUV de Xe, não foi possível estudar o processo de cintilação primária em misturas Xe – TMA;

- A cintilação primária de xénon diminui substancialmente com a adição de TMA, deixando mesmo de ser visível;

- O sinal de cintilação secundária em misturas Xe – TMA perde o comportamento linear de aumento de eficiência com o aumento de intensidade do campo reduzido, e com esta perda sofre uma degradação da resolução em energia, tornando este aditivo inviável em detetores que utilizem EL como meio de amplificação do sinal;

- Foi observado que em concentrações superiores a 0.42% a luz detetada é de TMA.

- TMA pode ser um aditivo interessante no modo de multiplicação de carga pelas propriedades observadas: absorção muito eficiente de fótons no VUV (excelente *quencher* para estes c.d.o.), multiplicação de carga a campos reduzidos baixos (mais baixos do que em Xe puro) e maior mobilidade dos iões produzidos, útil em aplicações com elevadas taxas de contagem.

No âmbito do estudo de coeficientes de difusão transversal de eletrões, verificou-se que:

- A energia característica transversal dos elétrons em Xe é de 5.75 ± 0.45 eV e 7.15 ± 0.63 eV para os campos elétricos reduzidos de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td), respectivamente;

- A energia característica transversal dos elétrons em CH₄ é de 0.065 ± 0.005 eV e 0.097 ± 0.008 eV para campos elétricos reduzidos de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (0.92 Td) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (1.53 Td), respectivamente.

Estes sistemas experimentais vão permitir uma gama enorme de possibilidades no âmbito da caracterização de misturas de gases nobres (ou outros) com aditivos potencialmente interessantes para as grandes experiências que utilizam o meio gasoso como meio de detecção da radiação. O trabalho desenvolvido teve como fim a aplicação nas colaborações internacionais *Neutrino Experiment with a Xenon TPC* (NEXT) em que o nosso grupo se encontra envolvido e *Imaging X-ray Polarimetry Explorer* (IXPE), em que o grupo esteve envolvido.

Lista de Figuras

Figura 1 – Secção eficaz de fotoionização σ_{fot} (bolas), secção eficaz de dispersão Rayleigh σ_{Ray} (quadrados) e secção eficaz de efeito Compton σ_{Comp} (triângulos) para raios X em Xe [11].	12
Figura 2 – Representação esquemática dos processos de fotoionização de um átomo e decaimento do ião resultante por emissão de radiação ou por emissão de elétrons (efeito Coster-Kronig, Efeito Auger e efeito “shake-off”).	13
Figura 3 – Esquema de um contador proporcional de geometria cilíndrica. Adaptação da figura 1.1b de [28].	17
Figura 4 – Representação das linhas equipotenciais e de campo elétrico para um GEM com uma diferença de potencial entre elétrodos de 360 V e campos de deriva em ambos os lados de 4 kVcm^{-1} . As espessuras são de $50 \mu\text{m}$ para o material isolador e de $18 \mu\text{m}$ para os elétrodos (Fig. 2 de [52]).	21
Figura 5 – Fotografia microscópica de um GEM com micro buracos bicônicos de $70 \mu\text{m} - 50 \mu\text{m}$, com espaçamento entre centros de $140 \mu\text{m}$. Isolador com $50 \mu\text{m}$ de espessura. À direita, está a fotografia de perfil de um desses buracos [53].	22
Figura 6 – Ganho total das configurações com um único GEM, duplo GEM e Triplo GEM, em função da diferença de potencial aplicada aos elétrodos do GEM (símbolos a cheio). Probabilidade de descarga numa interação de partícula α de 6 MeV (símbolos abertos). Figura adaptada de [53].	23
Figura 7 – Representação esquemática do conjunto dos sistemas experimentais usados nestes trabalhos (exceto a câmara utilizada nos estudos de mobilidade iónica), juntamente com a linha de vácuo e de enchimento de gases. Neste esquema não está incluído o Espetrómetro de Massa RGA. Representação à escala.	34
Figura 8 – Foto da Bancada Principal (frente/direita).	35
Figura 9 – Foto da Bancada Principal (frente/esquerda).	35
Figura 10 – Fotografia da bancada onde está o sistema experimental de mobilidade de iões positivos.	36

Figura 11 – Espectro de Massa da mistura 48% TMA – Xe 52%. A informação obtida para os fragmentos iônicos é representada consoante a sua proveniência: Xe – preto; TMA – vermelho; H ₂ O (m/z de 17 e 18) – verde; origens desconhecidas – azul. Energia: 70 eV. Corrente: 1000 μA. Pressão: 8×10 ⁻⁶ Torr.....	43
Figura 12 – Fração de TMA medida pelo RGA em função da fração de TMA estimada. O tracejado representa a reta de calibração, cujo declive é usado na determinação do fator de correção de gás para TMA com este RGA. A energia e a corrente de eletrões foram 70 eV e 1000 μA, respetivamente.....	44
Figura 13 – Espectro típico de TMA a 70 eV – 100 μA. Pressão 8×10 ⁻⁶ Torr [82].	46
Figura 14 – Pressão parcial dos iões CH ₄ ⁺ (a), CH ₃ ⁺ (b), CH ₂ ⁺ (c), CH ⁺ (d) e C ⁺ (e), produzidos em CH ₄ , em função da energia de impacto, nas regiões próximas das energias de aparecimento de cada espécie iónica. As curvas a tracejado são linhas guia. As setas indicam as energias estimadas de aparecimento de cada espécie iónica [82].	50
Figura 15 – Pressão parcial dos iões (CH ₃) ₃ N ⁺ (a), C ₃ H ₈ N ⁺ (b), CH ₄ N ⁺ (c), C ₂ H ₄ N ⁺ (d), CH ₃ ⁺ (e), C ₃ H ₇ N ⁺ (f), C ₂ H ₅ N ⁺ (g), C ₂ H ₃ N ⁺ (h), C ₂ H ₅ ⁺ (i) e C ₂ H ₄ N ⁺ (j) produzidos em TMA, em função da energia de impacto, nas regiões próximas das energias de aparecimento de cada espécie iónica. As curvas tracejadas são linhas guia. As setas indicam as energias estimadas de aparecimento de cada espécie iónica [82].	55
Figura 16 – Pressão parcial das diferentes espécies de iões produzidos por impacto de eletrões em CH ₄ , em função da energia dos eletrões. Em a) apresentam-se os valores absolutos juntamente com a pressão total e em b) a abundância relativa de cada um dos iões, até 70 eV. Pressão total de 8×10 ⁻⁶ Torr. Corrente de eletrões normalizada a 100 μA. Os iões H ₂ ⁺ e H ⁺ não foram considerados. As linhas a tracejado são linhas guia [82]......	60
Figura 17 – Pressão parcial de cada um dos iões produzidos por impacto de eletrões em TMA, juntamente com a pressão total, em função da energia (até 70 eV). Pressão total de 8×10 ⁻⁶ Torr. Corrente de eletrões normalizada a 100 μA. As linhas a tracejado são linhas guia [82].	61
Figura 18 – Abundância relativa dos iões em função da energia. b) mostra uma ampliação da escala para melhor observação da informação para os iões menos abundantes. Não foram colocadas barras de erro em todas as séries para simplificar a figura. Pressão 8×10 ⁻⁶ Torr. Corrente de eletrões de 100 μA. As linhas a tracejado são linhas guia [82]......	62
Figura 19 – Representação esquemática do processo de criação e deteção de iões positivos.....	67

Figura 20 – Espectros do tempo de deriva obtidos em TMA pura a pressões de 0.5, 1, 2 e 3 Torr. Campo elétrico reduzido de 50 Td. As tensões no GEM aplicadas são as indicadas na figura [112].	72
Figura 21 – Mobilidade iônica reduzida em TMA puro, em função do campo elétrico reduzido, para pressões de 0.5, 1, 2 e 3 Torr. A tracejado são linhas guias [112].	74
Figura 22 – Espectros dos tempos de deriva dos iões produzidos em xénon puro e em misturas com frações de 1%, 2%, 5%, 10% e 20% de TMA em xénon, a pressões de 6 Torr, E/N de 15 Td e V_{GEM} de 22 V [112].	76
Figura 23 – Mobilidade iônica reduzida, K_0 , em misturas Xe – TMA (frações de 1%, 5% e 10% de TMA) em função de E/N. Pressões de 8 Torr. Apresenta-se também K_0 para os iões de Xe em Xe puro (8 Torr) e para os iões de TMA em TMA pura, a 3 Torr (o valor de pressão mais elevado possível). A tracejado são linhas guia [112].	77
Figura 24 – Mobilidade reduzida dos iões de TMA em função da fração de TMA em misturas Xe – TMA e em Xe puro. Os valores K_0 apresentados são a média dos resultados obtidos a pressões entre 6 e 10 Torr. As linhas tracejadas são linhas guia [112].	78
Figura 25 – Esquema das reações em misturas Xe - TMA após uma excitação ou ionização de xénon. Os processos envolvidos estão destacados a vermelho [122].	82
Figura 26 – Esquema do sistema para o estudo da absorção de VUV. O sistema inclui a lâmpada de Xe (topo), a câmara, o PMT (base), sendo possível a colocação eventual de filtros [122]. A separar a lâmpada e o PMT da câmara, estão janelas de Suprasil [®] .	83
Figura 27 – Transmissão de luz em função do c.d.o. nos diferentes meios, no detetor, até à chegada ao fotocátodo do PMT. A linha azul representa a transmissão da janela de Suprasil; A vermelho a eficiência quântica do PMT; A verde, a eficiência combinada.	84
Figura 28 – Razão entre a luz detetada no PMT utilizando cada um dos filtros e a luz total (sem filtro), em função da tensão aplicada no ânodo da lâmpada. Os resultados a vermelho referem-se ao eixo da esquerda e os resultados a azul e verde ao eixo da direita. Os valores foram corrigidos tendo em conta a transmissão de cada filtro. Os resultados foram obtidos em vácuo [122].	87
Figura 29 – Intensidade de emissão da lâmpada (canal no MCA) em função do tempo (dias).	89

Figura 30 – Espectros da luz detetada no PMT (160 – 650 nm) para diferentes misturas de Xe-TMA. Pressão total de 800 Torr, tensão aplicada no ânodo de 2000 V. Para melhor analisar os resultados nas misturas com 0.45%, 0.32% e 0.23% de TMA, fez-se uma amplificação na região dos primeiros 50 canais [122].	90
Figura 31 – Resultados da amplitude do sinal (posição do centróide no MCA) em função da concentração de TMA na mistura. Pressão total de 800 Torr e tensão de 2000 V. Estimou-se um percurso médio para os fótons de 50.3 mm.	90
Figura 32 – Histograma produzido no MCA da luz detetada no PMT usando o filtro BP1 (220 - 400 nm) em diferentes misturas Xe - TMA. Pressão de 800 Torr. Tensão no ânodo de 2000 V [122].	92
Figura 33 – Luz recolhida no PMT (expressa em termos de posição do centróide do pico) em função da concentração de TMA na mistura a 800 Torr, sem filtro (símbolos verdes, eixo da esquerda) e com o filtro BP1 (símbolos vermelhos, eixo da direita). Estimou-se um percurso médio para os fótons de 50.3 mm. Tensão aplicada na lâmpada de 2000 V. As barras de erro horizontais (só apresentados na série a verde) são iguais em ambas as séries. [122].....	93
Figura 34 – Representação esquemática da detecção de luz (a) sem reemissão e (b) com reemissão. As setas azuis representam os fótons provenientes da lâmpada de Xe. As linhas tracejadas a vermelho representam o ângulo sólido do PMT. As setas tracejadas a amarelo representam os fótons refletidos pelas paredes da câmara. As setas tracejadas a verde representam os fótons reemitidos por TMA [122].	95
Figura 35 – Resultados de simulação de Monte Carlo para o número de fótons reemitidos (convertidos em canais no MCA) em função da concentração de TMA, para três diferentes probabilidades de reemissão. A linha preta horizontal, marca o limite de detecção (0.5 canais) [122].	96
Figura 36 – Esquema do corte vertical do CP de geometria cilíndrica Não está representado o cilindro metálico (cátodo) para melhorar a visualização do esquema.	99
Figura 37 – Ganho de carga (em cima) e resolução em energia (em baixo) em Xe puro e em misturas Xe – TMA a 800 Torr, em função da tensão no ânodo. Energia da radiação incidente 5.90 keV.	101
Figura 38 – Esquema dos processos possíveis em misturas Xe – TMA após a formação de um átomo de xénon excitado.	104

Figura 39 – Corte vertical do segundo protótipo CGCP. R X indica a localização da fonte de raios X. G ₁ e G ₂ são as grelhas metálicas que definem as regiões de absorção/deriva e de cintilação.....	106
Figura 40 – Espectro típico obtido com o MCA. A curva gaussiana (vermelho) é a curva de ajuste aos resultados. A linha tracejada preta é a de ajuste ao fundo. Campos de deriva 0.3 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ e de cintilação 3.5 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ . 800 Torr de Xe.....	109
Figura 41 – Sinal, típico, de cintilação primária (azul – eixo da esquerda) e de cintilação secundária (vermelho – eixo da direita). O tempo “zero” está ajustado ao instante da subida do sinal de cintilação secundária escolhido. Espectros correspondem à média de 128 impulsos observados no osciloscópio. 800 Torr de Xe. Campo de deriva de 0.2 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ e campo de cintilação de 3.5 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹	110
Figura 42 – Tempo médio (círculos a cheio) e velocidade média (circunferências) de deriva dos elétrons no percurso de deriva (32.4 mm), em função do campo elétrico reduzido de deriva a 800 Torr em Xe.....	114
Figura 43 – Amplitude do sinal de cintilação primária. Os pontos a cheio correspondem à amplitude do sinal. As circunferências correspondem à amplitude do sinal amplificado 10 vezes. 800 Torr Xe. Os resultados são a média dos resultados obtidos para os campos de cintilação de 3.0, 3.5 e 4.0 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹	115
Figura 44 – Amplitude da cintilação secundária para campos de cintilação de 3.0 (verde), 3.5 (azul) e 4.0 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ (vermelho) em função do campo elétrico reduzido de deriva. As linhas tracejadas são linhas guia. 800 Torr Xe.	116
Figura 45 – Resultados para w _p . Os símbolos a preto são os valores obtidos com as barras de erro. A linha tracejada é uma linha guia. 800 Torr de Xe. Os valores obtidos correspondem a campos elétricos reduzidos de cintilação de 3.0, 3.5, 4.0 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹	117
Figura 46 – Sinal de cintilação primária (linha azul, eixo da esquerda) e sinal de cintilação secundária (linha vermelha, eixo da direita). Resultados para 0.1% de TMA à pressão total de 800 Torr. Campo elétrico reduzido de deriva 0.4 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ (a) e 0.6 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ (b). Campo elétrico reduzido de cintilação de 4.0 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹	119
Figura 47 – Sinal de cintilação primária (linha azul, eixo da esquerda) e sinal de cintilação secundária (linha vermelha, eixo da direita). Misturas com 0.1% de TMA (a) e 0.2% de TMA (b) em Xe. à pressão total de 800 Torr. Campos elétricos reduzidos de deriva e de cintilação de 0.6 e 4.0 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ , respetivamente. .	120

Figura 48 – Campo elétrico reduzido a que ocorreu descarga elétrica em função da concentração de TMA em Xe. A linha a tracejado é uma linha guia. As barras de erro verticais correspondem à incerteza do campo de deriva. As barras de erro horizontais correspondem à incerteza na composição da mistura, por análise com o RGA.....	123
Figura 49 – Resultados de eletroluminescência (a) e resolução em energia (b) em Xe e misturas Xe – TMA. Pressão total 800 Torr. Em (a) a janela à direita em baixo tem os resultados para concentrações de TMA mais elevadas numa escala ampliada para permitir analisar melhor os resultados. Resultados obtidos com o segundo protótipo.	125
Figura 50 – Relação entre a emitida de TMA e a luz total emitida, para diferentes concentrações de TMA, em função do campo elétrico reduzido aplicado. Resultados obtidos com o primeiro protótipo. Pressão total de 800 Torr. As linhas tracejadas são linhas guia.	128
Figura 51 – Corte vertical do esquema do sistema experimental. A lâmpada de Xe está no interior da antecâmara cuja atmosfera é igual à da câmara principal. A dimensão da região de deriva é variável (3.5 – 60 mm). A câmara principal tem dimensões aproximadas de 100 mm de altura e de 150 mm de diâmetro.....	134
Figura 52 – Esquema representativo do sistema experimental. As linhas vermelhas (traços) indicam a região do fotocátodo irradiada por fótons vindos diretamente da lâmpada de Xénon. As linhas azuis (pontos) indicam a região total do fotocátodo irradiada pela luz vinda após reflexões nas paredes da antecâmara. A linha roxa (traço-ponto) indica a região máxima do fotocátodo irradiada pela luz refletida nas paredes da antecâmara e entre colimadores. O esquema não está à escala.	139
Figura 53 – Sequência típica de tratamento de resultados. Em a) histograma da carga recolhida por intervalo de tempo. Em b) o mesmo histograma em que se representa também a curva de fundo (linha laranja) determinada biblioteca SciPy 1.0 do Python [185]. Em c) o mesmo histograma, sem as pistas de controlo (1 e 21), e com a escala amplificada. Em d) o histograma dos resultados, com o fundo subtraído, e com a curva gaussiana – calculada usando o pacote de software atrás referido [185] – de ajuste aos resultados com desvio padrão σ (linha vermelha) bem como com as curvas representando os limites da incerteza do ajuste $\sigma - \Delta\sigma$ (a roxo) e $\sigma + \Delta\sigma$ (a verde). Distância de deriva 3.5 mm, campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$, 800 Torr de Xe.....	146
Figura 54 – Carga recolhida no topo do GEM em função da distância. Campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (azul) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (vermelho). 800 Torr Xe. .	150

Figura 55 – Ganho de carga em função da tensão no GEM. Distâncias de deriva de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. Campos de deriva de a) $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e b) $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. 800 Torr de Xe.....	150
Figura 56 – Carga recolhida no topo do GEM em função da distância. Campo de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (azul) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (vermelho). 800 Torr CH_4 . As linhas a tracejado são linhas guia.	151
Figura 57 – Ganho de carga em função da tensão no GEM. Distâncias de deriva de 3.5, 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. Campos de deriva de $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (a) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (b). 800 Torr de CH_4	152
Figura 58 – Histograma da carga média recolhida em Xe em cada uma das pistas por intervalo de tempo. A linha laranja é o fundo estimado.....	153
Figura 59 – Resultados obtidos para Xe a 800 Torr. Campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva total 3.5 mm. Nos eixos verticais a corrente (pC/s) (esquerda) e a fração relativa de carga (direita). Nos eixos horizontais o número da pista (inferior) e a distância ao eixo do alvo (superior). A curva gaussiana (vermelho) é a curva de ajuste aos resultados. As curvas a verde e a roxo são indicativas dos limites do intervalo de incerteza no desvio padrão determinado ($\sigma \pm \Delta \sigma$), usando o pacote de software atrás referido [185].....	155
Figura 60 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr Xe. Campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. A linha vermelha corresponde à curva normal de ajuste aos resultados σ . As linhas verde e roxa representam os limites do intervalo de incerteza no valor σ determinado ($\sigma \pm \Delta \sigma$). Valores determinados usando o pacote de software atrás referido [185].....	156
Figura 61 – Histograma da carga total média recolhida em cada uma das pistas por intervalo de tempo. A linha laranja representa o fundo estimado.	157
Figura 62 – Resultados em Xe, 800 Torr. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva total 3.5 mm. Nos eixos verticais a corrente (pC/s) e a fração relativa de carga (eixo esquerdo e direito, respetivamente). Nos eixos horizontais o número da pista (inferior) e a distância ao eixo do alvo (superior). Estão também representadas as curvas de ajuste aos resultados (vermelho) e dos limites da incerteza do ajuste (verde e roxo) correspondentes aos valores limite do intervalo de σ ($\sigma \pm \Delta \sigma$), determinados usando o pacote do software atrás referido [185].	158
Figura 63 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr Xe. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. A linha vermelha corresponde à curva normal de ajuste aos resultados σ . As linhas verde e roxa representam os limites de incerteza no ajuste ($\sigma \pm \Delta \sigma$).....	159

Figura 64 – Variância σ^2 em função da distância de deriva d , com ajuste linear (a ponteados). 800 Torr de Xe. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (a) e $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ (b).	160
Figura 65 – Compilação dos resultados da energia característica associada ao coeficiente de difusão transversal para elétrons em xénon em função do campo elétrico reduzido (E/N_0). Os pontos vermelhos são os valores obtidos neste trabalho (campos elétricos reduzidos 0.92 Td e 1.53 Td, 800 Torr de Xe). A linha preta corresponde aos resultados obtidos por simulação de Monte Carlo [126, 192]. Outros símbolos correspondem a outros resultados experimentais [153, 193, 194, 195].....	161
Figura 66 – Histograma da carga média recolhida em cada uma das pistas por intervalo de tempo. A linha laranja é o fundo considerado.....	163
Figura 67 – Resultados obtidos para CH_4 , 800 Torr. Campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva total 3.5 mm. Nos eixos verticais a corrente (pC/s) (esquerda) e a fração relativamente de carga (direita). Nos eixos horizontais o número da pista e a distância ao eixo do alvo (mm). A vermelho, a curva gaussiana de ajuste aos resultados σ . As curvas a verde e a roxo são indicativas dos limites da incerteza no desvio padrão ($\sigma \pm \Delta \sigma$), determinado, usando o pacote de software atrás referido [185].....	164
Figura 68 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr CH_4 . Campo de deriva $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. A linha vermelha corresponde à curva gaussiana de ajuste aos resultados. As linhas verde e roxa representam as curvas correspondentes dos limites do intervalo da incerteza no valor σ determinado ($\sigma \pm \Delta \sigma$).	165
Figura 69 – Histograma da carga média recolhida por pista por intervalo de tempo. O fundo considerado está representado pela linha laranja.	166
Figura 70 – Resultados obtidos para CH_4 , 800 Torr. Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. Distância de deriva 3.5 mm. Nos eixos verticais está a corrente (pC/s) (esquerda) e a fração relativamente de carga (direita). Os eixos horizontais indicam o número da pista e a distância ao eixo do alvo (mm). A curva gaussiana vermelha representa o ajuste aos resultados. As curvas a verde e a roxo são indicativas do intervalo de incerteza do desvio padrão calculado pelo pacote de software atrás referido [185].....	167
Figura 71 – Resultados da corrente (pC/s) para distâncias de deriva de 5.5, 7.5, 9.5 e 11.5 mm. 800 Torr CH_4 . Campo de deriva $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. A vermelho, a curva normal de ajuste aos resultados. As curvas verde e roxa indicam os limites do intervalo de incerteza no valor calculado ($\sigma \pm \Delta \sigma$).	168

Figura 72 – Valor da variância da curva de ajuste (σ^2) em função da distância de deriva. A linha tracejada é a linha de ajuste aos resultados (bolas a preto), calculada pelo método dos mínimos desvios quadrados pesado. Campo de deriva a) $0.3 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ e b) $0.5 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$. 800 Torr de CH_4169

Figura 73 – Compilação dos resultados da energia característica transversal dos elétrons em metano em função do campo elétrico reduzido (E/N_0). As bolas vermelhas correspondem aos valores obtidos neste trabalho (campos elétricos reduzidos de 0.92 e 1.53 Td). A linha preta corresponde aos resultados obtidos por simulação pelo método de MC [197]. Outros símbolos correspondem a outros resultados experimentais [198, 199, 200, 201, 202, 203].....170

Lista de Tabelas

Tabela 1 – Energia de aparecimento dos iões de CH ₄ por impacto de eletrões (em eV).	52
Tabela 2 – Energia de ionização de TMA e energia de aparecimento (em eV) dos cinco fragmentos iónicos mais abundantes a 70 eV, produzidos em TMA por impacto de eletrões.	58
Tabela 3 – Energia de aparecimento, em eV, determinada para outros cinco fragmentos iónicos, produzidos em TMA por impacto de eletrões.	58
Tabela 4 - Região e máximo de transmissão de cada filtro.....	85
Tabela 5 - Luz detetada em Xe puro e em misturas Xe - TMA a 800 Torr, sem filtro e com os vários filtros utilizados. Tensão no ânodo a 2000 V [122].....	94
Tabela 6 – Eficiências de deteção de fotões de cintilação primária e secundária pelo PMT, obtidos por simulação de Monte Carlo e respetivas contribuições. Campo elétrico reduzido de deriva 0.5 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ . 800 Torr Xe.....	113
Tabela 7 – Resultados obtidos em Xe para os campos de 0.3 e 0.5 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ neste trabalho, simulação [126, 192] e outros autores [153, 193, 194, 195].	162
Tabela 8 – Resultados obtidos em metano em campos de deriva 0.3 e 0.5 Vcm ⁻¹ Torr ⁻¹ , neste trabalho, simulação [197] e outros autores [193, 198, 199, 200, 201, 202, 203, 204].....	171

Bibliografia

- [1] G. Knoll, em *Radiation detection and measurements*, New York, U.S.A., John Wiley and Sons Inc., (2000). ISBN: 978047013148-0
- [2] J. Gómez-Cadenas, e J. Martín-Albo, “NEXT, a HPXe TPC for neutrinoless double beta decay searches,” *Journal of Physics: Conference Series*, p. 136, (2008) 042048. [doi:10.1088/1742-6596/136/4/042048](https://doi.org/10.1088/1742-6596/136/4/042048)
- [3] R. Bellazzini, e G. Spandre, “MicroPattern Gas Detectors with pixel read-out,” *Nucl. Instru. Meth. A*, vol. 513, pp. 231-238, (2003). [doi:10.1016/j.nima.2003.08.038](https://doi.org/10.1016/j.nima.2003.08.038)
- [4] D. Nygren, “Optimal detectors for WIMP and 0- ν BB searches: Identical high-pressure xenon gas TPCs?,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 581, pp. 632-642, (2007). [doi:10.1016/j.nima.2007.07.062](https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.07.062)
- [5] R. Bellazzini, et al., “Gas pixel detectors for X-ray polarimetry applications,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 560, pp. 425-434, (2006). [doi:10.1016/j.nima.2006.01.046](https://doi.org/10.1016/j.nima.2006.01.046)
- [6] J. Díaz, et al., “The NEXT Experiment, (NEXT Collaboration),” *Journal of Physics: Conf. Series*, p. 179, (2009) 012005. [doi:10.1088/1742-6596/179/1/012005](https://doi.org/10.1088/1742-6596/179/1/012005)
- [7] D. Nygren, “High-pressure Xenon Gas Electroluminescent TPC for 0-neutrino beta - beta Decay Search,” *Nuclear Instrum. Meth. A* 603, pp. 337-348, (2009). [doi:10.1016/j.nima.2009.01.222](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.01.222)
- [8] Goldschmidt, “LBNL, *Comunicação Privada*,” (2012).
- [9] R. Bellazzini, et al., “A sealed Gas Pixel Detector for X-ray astronomy,” *Nucl. Instru. Meth. A*, vol. 579, pp. 853-858, (2007). [doi:10.1016/j.nima.2007.05.304](https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.05.304)
- [10] V. Alvarez, et al., “Characterization of a medium size Xe/TMA TPC instrumented with microbulk Micromegas, using low-energy γ -rays,” *JINST* 9 C04015, (2014). [doi:10.1088/1748-0221/9/04/C04015](https://doi.org/10.1088/1748-0221/9/04/C04015)
- [11] F. Santos, “Detetores Gasosos para raios X: simulação e estudo experimental,” Dissertação de Doutoramento, Departamento de Física, Universidade de Coimbra, Coimbra, Portugal, (1994).
- [12] T. Carlson, e C. Nestor, Jr., “Calculation of Electron Shake-Off Probabilities as the Result of X-Ray Photoionization of the Rare Gases,”

- Phys. Rev. A*, vol. 8, pp. 2887-2894, (1973).
[doi:10.1103/PhysRevA.8.2887](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.8.2887)
- [13] R. Tertian, e F. Claisse, Principles of quantitative X-ray fluorescence, John Wiley & Sons, Inc, (1982). ISBN: 978-0-47-126199-5
- [14] T. Dias, F. Santos, A. Stauffer, e C. Conde “Monte Carlo simulation of x-ray absorption and electron drift in gaseous xenon,” *Phys. Rev. A*, vol. 48, 4, pp. 2887-2902, (1993). [doi:10.1103/PhysRevA.48.2887](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.48.2887)
- [15] R. Johnsen, e M. Biondi, “Thermal-energy charge transfer, quenching and association reactions of doubly charged ions in the rare gases,” *Phys. Rev. A*, vol. 20, pp. 87-97, (1979). [doi:10.1103/PhysRevA.20.87](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.20.87)
- [16] R. Morgenstern, A. Niehaus, e G. Zimmermann, “Autoionization states formed by electron capture in collisions of multiply charged Ne ions with He, H₂ and Xe,” *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* 13, pp. 4811-4831, (1980). [doi:10.1088/0022-3700/13/24/015](https://doi.org/10.1088/0022-3700/13/24/015)
- [17] W. Groh, A. Muller, A. Schlachter, e E. Salzborn, “Transfer ionisation in slow collisions of multiply-charged ions with atoms,” *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 16 (1983), pp. 1997-2015, (1983). [doi:10.1088/0022-3700/16/11/019](https://doi.org/10.1088/0022-3700/16/11/019)
- [18] J. Hornbeck, e J. P. Molnar, “Mass Spectrometric Studies of Molecular Ions in the Noble Gases,” *Phys. Rev.* , vol. 84, pp. 621-625, (1951). [doi:10.1103/PhysRev.84.621](https://doi.org/10.1103/PhysRev.84.621)
- [19] R. Huffman, e D. Katayama, “Photoionization Study of Diatomic-Ion Formation in Argon, Krypton and Xenon,” *J. Chem. Phys.* , vol. 45, pp. 138-146, (1966). [doi:10.1063/1.1727298](https://doi.org/10.1063/1.1727298)
- [20] S. Kobayashi, et al., “Scintillation luminescence for high-pressure xenon gas,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 531, pp. 327-332, (2004). [doi:10.1016/j.nima.2004.06.024](https://doi.org/10.1016/j.nima.2004.06.024)
- [21] M. Suzuki, e S. Kubota, “Mechanism of Proportional Scintillation in Argon, Krypton and Xenon,” *Nucl. Instr. Meth.* 164, pp. 197-199, (1979). [doi:10.1016/0029-554X\(79\)90453-1](https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90453-1)
- [22] M. Leite, “Radioluminescence of rare gases,” *Port. Phys.* 11, pp. 53-100, (1980). Disponível:
https://www.spf.pt/magazines/Portugaliae_Phy/495/article/1966/pdf
 [Acedido em 19 12 2022].
- [23] M. Suzuki, J. Ruan(Gen), e S. Kubota, “Time dependence of the recombination luminescence from high-pressure argon, krypton, and Xenon excited by alpha particles,” *Nucl. Instrum. Meth.* 192, pp. 565-574, (1982). [doi:10.1016/0029-554X\(82\)90874-6](https://doi.org/10.1016/0029-554X(82)90874-6)
- [24] K. Saito, H. Tawara, T. Sanami, E. Shibamura, e S. Sasaki, “Absolute Number of Scintillation Photons Emitted by Alpha Particles in Rare

- Gases,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 4, vol. 49, pp. 1674-1680, (2002).
[doi:10.1109/TNS.2002.801700](https://doi.org/10.1109/TNS.2002.801700)
- [25] E. April, A. Bolotnikov, A. Bolozdynya, e T. Doke, Noble gas detectors, Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, (2006). ISBN: 9783527405978
- [26] K. Saito, S. Sasaki, H. Tawara, T. Sanami, e E. Shibamura, “Simultaneous Measurements of Absolute Numbers of Electrons and Scintillation Photons Produced by 5.49 MeV Alpha Particles in Rare Gases,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 6, vol. 50, pp. 2452-2459, (2003).
[doi:10.1109/TNS.2003.820615](https://doi.org/10.1109/TNS.2003.820615)
- [27] E. d. Lima, S. Leite, M. Alves, e A. Policarpo, “Fano factors of rare gases and their mixtures,” *Nucl. Instrum. Meth.* , vol. 192, pp. 575-581, (1982). [doi:10.1016/0029-554X\(82\)90875-8](https://doi.org/10.1016/0029-554X(82)90875-8)
- [28] F. Soares, “Detetores de radiação X de baixa energia baseados em misturas de Xenon e Neon,” Tese de Doutorado, Departamento de Física - Universidade de Coimbra, Coimbra - Portugal, (2003).
 Disponível: <http://hdl.handle.net/10316/1842> [Acedido em 19 12 2022].
- [29] S. Ahmed, Physics and Engineering of Radiation Detection, Amsterdam, Netherlands: Elsevier, (2014). [doi:10.1016/C2013-0-15270-1](https://doi.org/10.1016/C2013-0-15270-1)
- [30] W. Leo, Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A how-to Approach, England: SpringerVerlag, (1994). ISBN: 9783540572800
- [31] G. Charpak, R. Bouclier, T. Bressani, J. Favier, e Č. Zupančič, “The use of multiwire proportional counters to select and localize charged particles,” *Nucl. Instrum. Meth.* 62, pp. 262-268, (1968).
[doi:10.1016/0029-554X\(68\)90371-6](https://doi.org/10.1016/0029-554X(68)90371-6)
- [32] A. Breskin, G. Charpak, S. Majewski, G. Melchart, G. Petersen, e F. Sauli, “The multistep avalanche chamber: A new family of fast, high-rate particle detectors,” *Nucl. Instrum. Meth.* 161, pp. 19-34, (1979).
[doi:10.1016/0029-554X\(79\)90358-6](https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90358-6)
- [33] G. Charpak, e F. Sauli, “High-Resolution electronic particle detectors,” *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* 34, pp. 285-349, (1984).
[doi:10.1146/annurev.ns.34.120184.001441](https://doi.org/10.1146/annurev.ns.34.120184.001441)
- [34] A. Oed, “Position-Sensitive detector with microstrip anode for electron multiplication with gases,” *Nucl. Instrum. Meth.* A263, pp. 351-359, (1988). [doi:10.1016/0168-9002\(88\)90970-9](https://doi.org/10.1016/0168-9002(88)90970-9)
- [35] A. Oed, “Properties of micro-strip gas chambers (MSGC) and recent developments,” *Nucl. Instru. Meth.* A367, pp. 34-40, (1995).
[doi:10.1016/0168-9002\(95\)00657-5](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)00657-5)
- [36] R. Bellazzini, e M. Spezziga, “Electric Field, Avalanche Growth and Signal Development in Micro-Strip Gas Chambers and Micro-Gap

- Chambers,” *Rivista Del Nuovo Cimento*, vol. 17, pp. 1-91, (1994).
[doi:10.1007/BF02724441](https://doi.org/10.1007/BF02724441)
- [37] G. Cicognani, D. Feltin, B. Guerard, e A. Oed, “Study of the backside signal of micro-strip gas counters on electronic conducting glass,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 3, vol. 45, pp. 249-251, (1998). [doi:10.1109/23.682388](https://doi.org/10.1109/23.682388)
- [38] F. Angelini, et al., “The micro-gap chamber,” *Nucl. Instrum. Meth. A* , vol. 335, pp. 69-77, (1993). [doi:10.1016/0168-9002\(93\)90257-I](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)90257-I)
- [39] R. Bellazzini, e G. Spandre, “The MicroGap Chamber: a new detector for the next generation of high energy, high rate experiments,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 368, pp. 259-264, (1995). [doi:10.1016/0168-9002\(95\)01273-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)01273-7)
- [40] J. v. d. Marel, A. v. d. Bogaard, C. v. Eijk, R. Hollander, e P. Sarro, “Two-dimensional microgap gas chambers on silicon,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 367, pp. 181-184, (1995). [doi:10.1016/0168-9002\(95\)00535-8](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)00535-8)
- [41] S. Biagi, J. Bordas, D. Duxbury, E. Gabathuler, T. Jones, e S. Kiourkos, “First experimental results from a microdot gas avalanche detector integrated onto a silicon wafer,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 366, pp. 76-78, (1995). [doi:10.1016/0168-9002\(95\)00687-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)00687-7)
- [42] A. Sharma, “Gaseous Micropattern Detectors: High-Energy Physics and Beyond,” University of Maryland, College Park, USA, (2000). Disponível: <https://www.slac.stanford.edu/pubs/icfa/spring01/paper1/paper1.pdf> [Acedido em 19 12 2022].
- [43] F. Sauli, e A. Sharma, “Micropattern Gaseous Detectors,” *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* , vol. 49, pp. 341-388, (1999). [doi:10.1146/annurev.nucl.49.1.341](https://doi.org/10.1146/annurev.nucl.49.1.341)
- [44] A. Breskin, R. Chechik, G. Garty, A. Pansky, E. Shefer, e S. Biagi, “On the high gain operation of low-pressure microdot gas avalanche chambers,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 394, pp. 21-26, (1997). [doi:10.1016/S0168-9002\(97\)00641-4](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(97)00641-4)
- [45] S. Biagi, D. Duxbury, e E. Gabathuler, “Experimental results from a microdot detector overcoated with a semiconducting layer,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 419, pp. 438-443, (1998). [doi:10.1016/S0168-9002\(98\)00818-3](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00818-3)
- [46] Y. Giomataris, Ph. Rebourgeard, J. Robert, e G. Charpak, “MICROMEGAS: a high-granularity position-sensitive gaseous detector for high particle-flux environments,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 376, pp. 29-35, (1996). [doi:10.1016/0168-9002\(96\)00175-1](https://doi.org/10.1016/0168-9002(96)00175-1)
- [47] I. Giomataris, “MICROMEGAS: results and prospects,” *ICFA Instrum. Bull. France*, vol. 19, (1999). Disponível: <https://www.slac.stanford.edu/pubs/icfa/fall99/paper1/paper1.pdf> [Acedido em 19 12 2022].

- [48] G. Barouch, et al., "Development of a fast gaseous detector: 'Micromegas'," *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 423, pp. 32-48, (1999). [doi:10.1016/S0168-9002\(98\)01265-0](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)01265-0)
- [49] G. Charpak, J. Derré, Y. Giomataris, e Ph. Rebourgeard, "Micromegas, a multipurpose gaseous detector," *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 478, pp. 26-36, (2002). [doi:10.1016/S0168-9002\(01\)01713-2](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01713-2)
- [50] F. Sauli, "GEM: a new concept for electron amplification in gas detectors," *Nucl. Instru. Meth. Phys. Res. A*, vol. 386, pp. 531-534, (1997). [doi:10.1016/S0168-9002\(96\)01172-2](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)01172-2)
- [51] J. Benlloch, et al., "Development of the Gas Electron Multiplier (GEM)," *Trans. Nucl. Sci.*, vol. 45, pp. 234-243, (1998). [doi:10.1109/23.682386](https://doi.org/10.1109/23.682386)
- [52] R. Bouclier, et al., "New observations with the gas electron multiplier (GEM)," *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 396, pp. 50-66, (1997). [doi:10.1016/S0168-9002\(97\)00648-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(97)00648-7)
- [53] F. Sauli, "Development and applications of gas electron multiplier detectors," *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 505, pp. 195-198, (2003). [doi:10.1016/S0168-9002\(03\)01050-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01050-7)
- [54] S. Bachmann, A. Bressan, L. Ropelewski, F. Sauli, A. Sharma, e D. Mörmann, "Charge amplification and transfer processes in the gas electron multiplier," *Nucl. Instrum. Meth. A* 438, pp. 376-408, (1999). [doi:10.1016/S0168-9002\(99\)00820-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)00820-7)
- [55] A. Breskin, et al., "Advances in gas avalanche photomultipliers," *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 442, pp. 58-67, (2000). [doi:10.1016/S0168-9002\(99\)01200-0](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)01200-0)
- [56] J. Veloso, J. d. Santos, e C. Conde, "A proposed new microstructure for gas radiation detectors: The microhole and strip plate," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 71 No.6, pp. 2371-2376, (2000). [doi:10.1063/1.1150623](https://doi.org/10.1063/1.1150623)
- [57] J. dos Santos, et al., "Development of portable gas proportional scintillation counters for x-ray spectrometry," *X-Ray Spectrom.*, vol. 30, pp. 373-381, (2001). [doi:10.1002/xrs.510](https://doi.org/10.1002/xrs.510)
- [58] A. Buzulutskov, et al., "GEM operation in pure noble gases and the avalanche confinement," *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 433, pp. 471-475, (1999). [doi:10.1016/S0168-9002\(99\)00295-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)00295-8)
- [59] C. Conde, e A. Policarpo, "A gas proportional scintillation counter," *Nucl. Instrum. Meth.* 53, pp. 7-12, (1967). [doi:10.1016/0029-554X\(67\)91323-7](https://doi.org/10.1016/0029-554X(67)91323-7)
- [60] A. Policarpo, M. Alves, M. d. Santos, e M. Carvalho, "Improved Resolution for Low Energies with Gas Proportional Scintillation Counters," *Nucl. Instrum. Meth.* 102, pp. 337-348, (1972). [doi:10.1016/0029-554X\(72\)90733-1](https://doi.org/10.1016/0029-554X(72)90733-1)

- [61] A. Policarpo, M. Alves, M. Salete, S. Leite, e M. d. Santos, “Detection of Soft X-Rays with a Xenon Proportional Scintillation Counter,” *Nucl. Instrum. Meth.* 118, pp. 221-226, (1974). [doi:10.1016/0029-554X\(74\)90706-X](https://doi.org/10.1016/0029-554X(74)90706-X)
- [62] P. Lamb, et al., “The Gas Scintillation Proportional Counter in the Spacelab Environment: in-flight Performance and post-Flight Calibration,” *Astrophys. Space Sci.* 136, p. 369, (1987). [doi:10.1007/BF00642128](https://doi.org/10.1007/BF00642128)
- [63] C. Conde, e M. Ferreira, “The argon uniform-field gas proportional scintillation counter: Improved energy resolution for α -particles and its behaviour for X-rays,” *Nucl. Instrum. Meth.* 124, pp. 307-308, (1975). [doi:10.1016/0029-554X\(75\)90417-6](https://doi.org/10.1016/0029-554X(75)90417-6)
- [64] J. dos Santos, A. Bento, e C. Conde, “A simple, inexpensive gas proportional scintillation counter for x-ray fluorescence analysis,” *X-Ray Spectrometry*, vol. 22, pp. 328-331, (1993). [doi:10.1002/xrs.1300220428](https://doi.org/10.1002/xrs.1300220428)
- [65] A. Smith, A. Peacock, e T. Kowalski, “A Gas Scintillation Proportional Counter for the X-Ray Astronomy Satellite SAX,” *Trans. Nucl. Sci.* , vol. 34, pp. 57-61, (1987). [doi:10.1109/TNS.1987.4337301](https://doi.org/10.1109/TNS.1987.4337301)
- [66] D. Simons, e P. d. Korte, “Soft X-ray energy resolution and background rejection in a driftless gas scintillation proportional counter,” *Nucl. Instrum. Meth A* 277, pp. 642-656, (1989) . [doi:10.1016/0168-9002\(89\)90799-7](https://doi.org/10.1016/0168-9002(89)90799-7)
- [67] T. Dias, A. Stauffer, e C. Conde, “A unidimensional Monte Carlo simulation of electron drift velocities and electroluminescence in argon, krypton, and xenon,” *J. Phys. D*, vol. 19, pp. 527-545, (1986). [doi:10.1088/0022-3727/19/4/009](https://doi.org/10.1088/0022-3727/19/4/009)
- [68] T. Dias, “Simulação do Transporte de Electrões em Gases Raros,” Dissertação de Doutoramento, Departamento de Física da Universidade de Coimbra, Coimbra - Portugal., (1986). Disponível: <http://hdl.handle.net/10316/1796> [Acedido em 19 12 2022].
- [69] F. Risigo, et al., “SiPM technology applied to radiation sensor development,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 607, pp. 75-77, (2009). [doi:10.1016/j.nima.2009.03.209](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.03.209)
- [70] A. Aab, et al., “Design, upgrade and characterization of the silicon photomultiplier front-end for the AMIGA detector at the Pierre Auger Observatory,” *Journ. Instrum.* 16, vol. P01026, (2021). [doi:10.1088/1748-0221/16/01/P01026](https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/01/P01026)
- [71] Z. Petrovic, R. Crompton, e G. Haddad, “Model Calculations of Negative Differential Conductivity in Gases”, *Aust. J. Phys.*, p. 23, 37 (1984). [doi:10.1071/PH840023](https://doi.org/10.1071/PH840023)

- [72] J. Escada, T. Dias, F. Santos, P. Rachinhas, C. Conde, e A. Stauffer, “A Monte Carlo study of the fluctuations in Xe electroluminescence yield: pure Xe vs Xe doped with CH₄ or CF₄ and planar vs cylindrical geometries,” *JINST 6 P08006*, (2011). [doi:10.1088/1748-0221/6/08/P08006](https://doi.org/10.1088/1748-0221/6/08/P08006)
- [73] A. Cortez, et al., “Experimental Ion Mobility Measurements in Ar-C₂H₆ mixtures,” *J. Instrum. 8 P12012*, (2013). [doi:10.1088/1748-0221/8/12/P12012](https://doi.org/10.1088/1748-0221/8/12/P12012)
- [74] A. Trindade, et al., “Experimental study on ion mobility in Ar-CH₄ mixtures,” *J. Instrum. 9 P06003*, (2014). [doi:10.1088/1748-0221/9/06/P06003](https://doi.org/10.1088/1748-0221/9/06/P06003)
- [75] P. Encarnação, et al., “Experimental ion mobility measurements in Ar-CO₂ mixtures,” *J. Instrum. 10, P01010*, (2015). [doi:10.1088/1748-0221/10/01/P01010](https://doi.org/10.1088/1748-0221/10/01/P01010)
- [76] S. Getters, “Non Evaporable Getters,” [Online]. Disponível: <https://psec.uchicago.edu/getters/St%20707%20Brochure.pdf>. [Acedido em 4 10 2021].
- [77] S. Getters, “SAES Pure Gas,” [Online]. Disponível: http://www.saespuregas.com/Library/purifier_specifications/702_Media_Specification.pdf. [Acedido em 04 10 2021].
- [78] D. Nygren, “Columnar recombination: a tool for nuclear recoil directional sensitivity in a xenon-based direct detection WIMP search,” *J. Phys.: Conf. Ser. 460 012006*, (2013). [doi:10.1088/1742-6596/460/1/012006](https://doi.org/10.1088/1742-6596/460/1/012006)
- [79] P. Neves, “Studies on the mobility of monoatomic and dimer noble gas ions in their parent gases,” Universidade de Coimbra - Departamento de Física, Tese de Doutoramento, (2009). Disponível: <http://hdl.handle.net/10316/11182> [Acedido em 19 12 2022].
- [80] NIST, “Standard Reference Database,” NIST Chemistry WebBook, [Online]. Disponível: <https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C75503&Mask=20#Ion-Energetics>. [Acedido em 04 10 2021].
- [81] G. Hvistendahl, e K. Undheim, “High Resolution mass spectrometry of trimethylamine,” *Organic Mass Spectrometry*, vol. 3, pp. 821-824, (1970). [doi:10.1002/oms.1210030612](https://doi.org/10.1002/oms.1210030612)
- [82] A. Trindade, J. Escada, M. Silva, F. Borges, e F. Santos, “Determination of Ionizing Threshold of Trimethylamine Ions with a High Resolution RGA Mass Spectrometer,” *Journ. Instrum. 17 P02031*, (2022). [doi:10.1088/1748-0221/17/02/P02031](https://doi.org/10.1088/1748-0221/17/02/P02031)
- [83] J. dos Santos, A. Trindade, J. Veloso, e C. Monteiro, “Residual gas analysers in an undergraduate vacuum laboratory: a simple experiment

- involving direct quantitative measurements,” *Eur. J. Phys.*, 25, pp. 469-473, (2004). [doi:10.1088/0143-0807/25/4/002](https://doi.org/10.1088/0143-0807/25/4/002)
- [84] K. Uppireddi, T. Westover, T. Fisher, B. Weiner, e G. Morell, “Thermionic emission energy distribution from nanocrystalline diamond films for direct thermal-electrical energy conversion applications,” *J. Appl. Phys.* 106, vol. 043716, (2009). [doi:10.1063/1.3204667](https://doi.org/10.1063/1.3204667)
- [85] L. Germer, “The distribution of initial Velocities Among Thermoionic Electrons,” *Phys. Rev.* 25, p. 795, (1925). [doi:10.1103/PhysRev.25.795](https://doi.org/10.1103/PhysRev.25.795)
- [86] C. Tian, e C. Vidal, “Electron impact dissociative ionization and the subsequent ion-molecule reactions in a methane beam,” *Che. Phys.* 222, pp. 105-112, (1997). [doi:10.1016/S0301-0104\(97\)00192-4](https://doi.org/10.1016/S0301-0104(97)00192-4)
- [87] M. Stano, S. Matejčík, J. Skalný, e T. Märk, “Electron impact ionization of CH₄: ionization energies and temperature effects,” *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 36, pp. 261-271, (2003). [doi:10.1088/0953-4075/36/2/307](https://doi.org/10.1088/0953-4075/36/2/307)
- [88] W. Chupka, e J. Berkowitz, “Photoionization of Methane: Ionization Potential and Proton Affinity of CH₄,” *J. Chem. Phys.* 54, pp. 4256-4259, (1971). [doi:10.1063/1.1674669](https://doi.org/10.1063/1.1674669)
- [89] P. Plesis, P. Marmet, e R. Dutil, “Ionisation and appearance potentials of CH₄ by electron impact,” *J. Phys. B: At. Mol. Phys* 16, pp. 1283-2294, (1983). [doi:10.1088/0022-3700/16/7/019](https://doi.org/10.1088/0022-3700/16/7/019)
- [90] F. Lossing, e G. Semeluk, “Threshold ionization efficiency curves for monoenergetic electron impact on H₂, D₂, CH₄ and CD₄,” *J. Mass. Spectrum. and Ion Phys.* 2, pp. 408-413, (1969). Disponível: <https://apps.dtic.mil/sti/citations/AD0694271> [Acedido em 19 12 2022].
- [91] H. Chattham, D. Hils, R. Robertson, e A. Gallagher, “Total and partial electron collisional ionization cross sections for CH₄, C₂H₆, SiH₄ and Si₂H₆,” *J. Chem. Phys.* 81, pp. 1770-1777, (1984). [doi:10.1063/1.447848](https://doi.org/10.1063/1.447848)
- [92] J. Morrison, e J. Traeger, “Ionization and dissociation by electron impact III. CH₄ and SiH₄,” *Int. J. Mass Spectrom. and Ion Phys.* 11, pp. 289-300, (1973). [doi:10.1016/0020-7381\(73\)80067-1](https://doi.org/10.1016/0020-7381(73)80067-1)
- [93] J. Maier, e D. Turner, “Steric Inhibition of Resonance Studied by Molecular Photoelectron Spectroscopy,” *J. Chem. Soc., Faraday Trans.* 2, pp. 521-531, (1973). [doi:10.1039/F29736900521](https://doi.org/10.1039/F29736900521)
- [94] K. Watanabe, e J. Mottl, “Ionization Potentials of Ammonia and Some Amines,” *J. Chem. Phys.* 122, pp. 1773-1774, (1957). [doi:10.1063/1.1743639](https://doi.org/10.1063/1.1743639)
- [95] A. Loudon, e K. Webb, “The nature of the [C₂H₆N]⁺ and [CH₄N]⁺ ions formed by electron impact on methylated formides, acetamides, ureas, thioureas and hexamethylphosphoramide,” *Org. Mass Spectro.* 12, p. 283, (1977). [doi:10.1002/oms.1210120506](https://doi.org/10.1002/oms.1210120506)

- [96] R. Taft, R. Martin, e F. Lampe, “Stabilization Energies of Substituted Methyl Cations. The effect os Strong Demand on the Resonance Order,” *J. Am. Chem. Soc.* *87*, p. 2490, (1965). [doi:10.1021/ja01089a033](https://doi.org/10.1021/ja01089a033)
- [97] D. Sharma, e J. Franklin, “Heats of Formation of Free Radicals by Mass Spectrometry,” *J. Am. Chem. Soc.* *95*, p. 6562, (1973). [doi:10.1021/ja00801a007](https://doi.org/10.1021/ja00801a007)
- [98] B. Gowenlock, P. Jones, e J. Majer, “Bond dissociation energies in some molecules containing alkyl substituted CH₃, NH₂ and OH,” *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* *57*, p. 23, (1961). [doi:10.1039/TF9615700023](https://doi.org/10.1039/TF9615700023)
- [99] R. Xueguang, et al., “High-resolution (2, 2e + ion) study of electron-impact ionization and fragmentation of methane,” *J. Chem. Phys.* *142*, (2015). [doi:10.1063/1.4919691](https://doi.org/10.1063/1.4919691)
- [100] D. Nygren, “Can the 'intrinsic' energy resolution in xenon be surpassed?,” *J. Physics: Conf. Ser.* *309 012006*, (2011). [doi:10.1088/1742-6596/309/1/012006](https://doi.org/10.1088/1742-6596/309/1/012006)
- [101] W. Blum, e L. Rolandi, *Particle detection with drift chambers*, Berlin, Germany, Springer-Verlag, (1994). ISBN: 9783540583226
- [102] F. Granena, et al., “NEXT, a HPGXe TPC for neutrinoless double beta decay searches,” *arXiv*. [doi:10.48550/arXiv.0907.4054](https://doi.org/10.48550/arXiv.0907.4054)
- [103] V. Alvarez, et al., “The NEXT-100 experiment for neutrinoless double beta decay searches (conceptual design report),” *arXiv*. [doi:10.48550/arXiv.1106.3630](https://doi.org/10.48550/arXiv.1106.3630)
- [104] J. Renner, et al., “Ionization and scintillation of nuclear recoils in gaseous xenon,” *Nucl. Instrum. Meth. A* *793*, 62, (2015). [doi:10.1016/j.nima.2015.04.057](https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.04.057)
- [105] V. Gehman, A. Goldschmidt, D. Nygren, C. Oliveira, e J. Renner, “A plan for directional dark matter sensitivity in high-pressure xenon detectors through the addition of wavelength shifting gaseous molecules,” *J. Instrum.* *8*, C10001, (2013). [doi:10.1088/1748-0221/8/10/C10001](https://doi.org/10.1088/1748-0221/8/10/C10001)
- [106] S. Celebrian, et al., “Micromegas-TPC operation at higt pressure in xenon-trimethylamine mixtures,” *J. Instrum.* *8*, P01012, (2013). [doi:10.1088/1748-0221/8/01/P01012](https://doi.org/10.1088/1748-0221/8/01/P01012)
- [107] V. Alvarez, et al., “Description and commissioning of NEXT-MM prototype: first results from operation in a xenon-trimethylamine gas mixture,” *J. Instrum.* *9*, P03010, (2014). [doi:10.1088/1748-0221/9/03/P03010](https://doi.org/10.1088/1748-0221/9/03/P03010)
- [108] P. Neves, A. Garcia, A. Trindade, J. Baratas, L. Távora, e C. Conde, “Experimental measurement of the Ne⁺ and Ne²⁺ mobilities in Ne and the reaction rate coefficient for Ne⁺ + 2Ne - Ne²⁺,” *Trans. Nucl. Sci.* *58*, (2011) 2060. [doi:10.1109/TNS.2011.2158849](https://doi.org/10.1109/TNS.2011.2158849)

- [109] P. Neves, C. Conde, e L. Távora, “Experimental measurements of the mobilities of atomic and dimer Ar, Kr and Xe ions in their parent gases,” *J. Chem. Phys.* *133*, (2010) 124316. [doi:10.1063/1.3497651](https://doi.org/10.1063/1.3497651)
- [110] A. Cortez, et al., “Experimental measurements of the mobility of ions originated in ethane in their parent gas,” *J. Instrum.* *8*, P12012, (2013). [doi:10.1088/1748-0221/8/07/P07013](https://doi.org/10.1088/1748-0221/8/07/P07013)
- [111] A. Trindade, et al., “Experimental measurements of the mobility of methane ions in methane,” *J. Instrum.* *7*, P06010, (2012). [doi:10.1088/1748-0221/7/06/P06010](https://doi.org/10.1088/1748-0221/7/06/P06010)
- [112] A. Trindade, et al., “Experimental studies on ion mobility in xenon-trimethylamine mixtures,” *J. Instrum.* *12*, P07007, (2017). [doi:10.1088/1748-0221/12/07/P07007](https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/07/P07007)
- [113] P. Mohr, B. Taylor e D. Newell, “CODATA recommended values of the fundamental physical constants,” *Rev. Mod. Phys.*, *80*, 633-730 (2008). [doi:10.1103/RevModPhys.80.633](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.80.633)
- [114] P. Langevin, “Une formule fondamentale de théorie cinétique,” *Annal. Chimie. Physique* *5*, p. 245, (1905). Disponível: <https://rcin.org.pl/dlibra/doccontent?id=194880> [Acedido em 19 12 2022].
- [115] E. Mason, e E. McDaniel, “Transport properties of ions in gases,” New York, U.S.A., John Wiley and Sons Inc., (1988), p. 531. [doi:10.1002/3527602852](https://doi.org/10.1002/3527602852)
- [116] T. Olney, N. Cann, G. Cooper, e C. Brion, “Absolute scale determination for photoabsorption spectra and the calculation of molecular properties using dipole sum-rules,” *Chem. Phys.* *223*, p. 59, (1997). [doi:10.1016/S0301-0104\(97\)00145-6](https://doi.org/10.1016/S0301-0104(97)00145-6)
- [117] NIST, “Computational Chemistry Comparison and Benchmark DataBase,” [Online]. Disponível: <https://cccbdb.nist.gov/pollistx.asp>. [Acedido em 19 12 2022].
- [118] E. McDaniel, J. Mitchell, e M. Rudd, “Atomic collisions - heavy particle projectiles,” New York, U.S.A., John Wiley and Sons Inc., (1993), p. 498. ISBN: 9780471853084
- [119] A. Blanc, “Recherches sur le mobilités des ions les gaz,” *J. Phys. Theor. Appl.* *7*, p. 825, (1908). Disponível: <https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00241414/document> [Acedido em 19 12 2022].
- [120] A. Vitols, e H. Oskam, “Reaction Rate Constant for $Xe^+ + 2Xe \rightarrow Xe_2^+ + Xe$,” *Phys. Rev. A*, vol. 8, pp. 1860-1863, (1973). [doi:10.1103/PhysRevA.8.1860](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.8.1860)
- [121] H. Helm, “Formation of Xe_3^+ ions in xenon at temperatures between 210 and 293 K,” *Phys. Rev. A*, vol. 14, pp. 680-684, (1976). [doi:10.1103/PhysRevA.14.680](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.14.680)

- [122] A. Trindade, et al., “Study of the loss of Xenon Scintillation in Xenon-Trimethylamine Mixtures,” *Nucl. Instr. Meth. A*, vol. 905, pp. 22-28, (2018). [doi:10.1016/j.nima.2018.07.020](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.07.020)
- [123] A. Breskin, “CsI UV photocathodes: history and mystery,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 371, 116, (1996). [doi:10.1016/0168-9002\(95\)01145-5](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)01145-5)
- [124] M. Rozemberg, A. Loewenschuss, e C. Nielsen, “H-bonded clusters in the trimethylamine/water system: as matrix isolation and computational study,” *J. Phys. Chem. A* 116, n^o 4089, (2012). [doi:10.1021/jp3020035](https://doi.org/10.1021/jp3020035)
- [125] S. Biagi, “Magboltz cross section database, version 10.9,” CERN, [Online]. Disponível: <http://magboltz.web.cern.ch/magboltz/>. [Acedido em 19 12 2022].
- [126] J. Escada, et al., “A Monte Carlo study of photoelectron extraction efficiency from CsI photocathodes into Xe-CH₄ and Ne-CH₄ mixtures,” *J. Phys. D* 43, 065502, (2010). [doi:10.1088/0022-3727/43/6/065502](https://doi.org/10.1088/0022-3727/43/6/065502)
- [127] E. Tannenbaum, E. Coffin, e A. Harrison, “The Far Ultraviolet Absorption Spectra of simple Alkyl Amines,” *J. Chem. Phys.*, vol. 21, pp. 311-319, (1953). [doi:10.1063/1.1698878](https://doi.org/10.1063/1.1698878)
- [128] A. Halpern, M. Ondrechen, e L. Ziegler, “An analysis of the Absorption and Fluorescence Spectra of Trimethylamine: Determination of the A-X Origin and the Ground-State Inversion Barrier,” *J. Am. Chem.*, vol. 108, pp. 3907-3912, (1986). [doi:10.1021/ja00274a009](https://doi.org/10.1021/ja00274a009)
- [129] D. Grosjean, e P. Bletzinger, “Photoionization and photoabsorption characteristics of laser seed compounds” *IEEE J.Q.E.*, vol. 13, pp. 898-904, (1977). [doi:10.1109/JQE.1977.1069252](https://doi.org/10.1109/JQE.1977.1069252)
- [130] Y. Matsumi, e K. Obi, “Relaxation Processes of Electronically Excited Trimethylamine. I. Energy dependence of intramolecular processes in isolated molecule,” *Chem. Phys.*, vol. 49, pp. 87-93, (1980). [doi:10.1016/0301-0104\(80\)85042-7](https://doi.org/10.1016/0301-0104(80)85042-7)
- [131] Heraeus, “Quartz Glass for Optics Data and Properties,” [Online]. Disponível: https://www.heraeus.com/media/media/hqs/doc_hqs/products_and_solutions_8/optics/Data_and_Properties_Optics_fused_silica_EN.pdf. [Acedido em 19 12 2022].
- [132] Heraeus, “Quartz Glass for VUV Transmission,” [Online]. Disponível: https://www.heraeus.com/en/hca/fused_silica_quartz_knowledge_base_1/t_calc_1/transmission_calc_opt/transmission_calculator_opt.html?chartIndex=0&selection=suprasil_311_312&thickness=10&rangeX=120%2C4500. [Acedido em 19 12 2022].
- [133] Hamamatsu, “Photomultiplier Tube,” [Online]. Disponível: https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/R8520-406_TPMH1342E.pdf. [Acedido em 19 12 2022].

- [134] Edmund, “Edmund Optics, Bandpass Coating Curve,” [Online]. Disponível: <https://www.edmundoptics.com/p/u-330-uv-25mm-square-colored-glass-bandpass-filter/6570/> [Acedido em 19 12 2022].
- [135] SAMatra, “S. A. Matra VUV Bandpass, pg. 70,” [Online]. Disponível: https://estudogeral.sib.uc.pt/bitstream/10316/14202/1/Tese_C1%C3%A1udioSilva.PDF. [Acedido em 19 12 2022].
- [136] C. Cureton, K. Hara, D. O’Connor, e D. Philips, “The photophysics of tertiary aliphatic amines,” *Chem. Phys.* 63, pp. 31-49, (1981). [doi:10.1016/0301-0104\(81\)80306-0](https://doi.org/10.1016/0301-0104(81)80306-0)
- [137] J. Zwinkels, M. Noël, e C. Dodd, “Procedures and standards for accurate spectrophotometric measurements of specular reflectance,” *Appl. Opt.* 33, pp. 7933-7944, (1994). [doi:10.1364/AO.33.007933](https://doi.org/10.1364/AO.33.007933)
- [138] S. Bricola, et al., “Noble-gas liquid detectors: measurement of light diffusion and reflectivity on commonly adopted inner surface materials,” *Nucl. Phys. B - Proc. Suppl.* 172, pp. 260-262, (2007). [doi:10.1016/j.nuclphysbps.2007.08.059](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysbps.2007.08.059)
- [139] C. Conde, J. d. Santos, e A. Bento, “New Concepts for Design of Large Area Gas Proportional Scintillation Counters,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-40, vol. 452, (1993). [doi:10.1109/23.256599](https://doi.org/10.1109/23.256599)
- [140] H. G. M. N. Co., (2020). [Online]. Disponível: <https://www.generalmesh.com/wiremesh/ultra-thin-wire-mesh.html>. [Acedido em 19 12 2022].
- [141] B. Lab, “The Center for X-Ray Optics,” [Online]. Disponível: https://www.henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html. [Acedido em 19 12 2022].
- [142] S. Carmo, F. Borges, F. Santos, T. Dias, e C. Conde, “Absolute primary scintillation yield of gaseous xenon under low drift electric fields for 5.9 keV x-rays,” *J. Instrum.* 3, P07004, (2008). [doi:10.1088/1748-0221/3/07/P07004](https://doi.org/10.1088/1748-0221/3/07/P07004)
- [143] L. Fernandes, et al., “Primary and secondary scintillation measurements in a xenon gas proportional scintillation counter,” *J. Instrum.* 5, P09006, (2010). [doi:10.1088/1748-0221/5/09/P09006](https://doi.org/10.1088/1748-0221/5/09/P09006)
- [144] A. Parsons, et al., “High pressure gas scintillation drift chambers with wave-shifter fiber readout,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 37, 2, pp. 541-546, (1990). [doi:10.1109/23.106674](https://doi.org/10.1109/23.106674)
- [145] A. Trindade, J. Escada, M. Silva, A. Marques, F. Borges, e M. Santos, “Absolute Primary Scintillation Yield in Gaseous Xenon and in Xenon-Trimethylamine Mixtures,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, 1049 (2023) 168038. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2023.168038>
- [146] S. Carmo, “Studies on Low-Energy Particle-Induced Soft X-Ray Emission” Universidade de Coimbra - Departamento de Física, Tese de

- Doutoramento, (2010). Disponível: <http://hdl.handle.net/10316/14634>. [Acedido em 19 12 2022].
- [147] F. Santos, T. Dias, A. Stauffer, e C. Conde, “Three-dimensional Monte Carlo calculation of VUV electroluminescence and other electron transport parameters in xenon,” *J. Phys D*, vol. 27, pp. 42-48, (1994). [doi:10.1088/0022-3727/27/1/007](https://doi.org/10.1088/0022-3727/27/1/007)
- [148] C. Monteiro, et al., “Secondary scintillation yield in pure xenon,” *J. Instrum.*, vol. 2, p. 05001, (2007). [doi:10.1088/1748-0221/2/05/P05001](https://doi.org/10.1088/1748-0221/2/05/P05001)
- [149] F. Vinagre, e C. Conde, “A technique for the absolute measurement of the w-value for X-rays in counting gases,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 450, pp. 365-372, (2000). [doi:10.1016/S0168-9002\(00\)00310-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(00)00310-7)
- [150] NIST, “XCOM,” [Online]. Disponível: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html>. [Acedido em 19 12 2022].
- [151] M. Yang, A. Gatto, e N. Kaiser, “Highly reflecting aluminum-protected optical coatings for the vacuum-ultraviolet spectral range,” *Appl. Optics.*, vol. 45, pp. 178-183, (2006). [doi:10.1364/AO.45.000178](https://doi.org/10.1364/AO.45.000178)
- [152] I. Malitson, “Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica,” *Journ. Optical Soc. Amer.* 55, vol. 10, pp. 1205-1209, (1965). [doi:10.1364/JOSA.55.001205](https://doi.org/10.1364/JOSA.55.001205)
- [153] J. Pack, R. Voshall, A. Phelps, e L. Kline, “Longitudinal electron diffusion coefficients in gases: noble gases,” *J. Appl. Phys.*, vol. 71 (11), pp. 5363-5371, (1992). [doi:10.1063/1.350555](https://doi.org/10.1063/1.350555)
- [154] V. Puech, e S. Mizzi, “Collision cross sections and transport parameters in neon and xenon,” *J. Phys. D: Appl. Phys.* 24, pp. 1974-1985, (1991). [doi:10.1088/0022-3727/24/11/011](https://doi.org/10.1088/0022-3727/24/11/011)
- [155] U. Becker, R. Dinner, E. Fortunato, J. Kirchner, K. Rosera, e Y. Uchida, “Consistent measurements comparing the drift features of noble gas mixtures,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 421, pp. 54-59, (1999). [doi:10.1016/S0168-9002\(98\)01162-0](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)01162-0)
- [156] Th. Berghöfer, J. Blümer, e J. Hörandel, “A measurement of drift velocities of electrons in xenon-methane mixtures,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 525, pp. 544-552, (2004). [doi:10.1016/j.nima.2004.02.007](https://doi.org/10.1016/j.nima.2004.02.007)
- [157] A. Piesert, e F. Sauli, “Drift and Diffusion of Electrons in Gases: A Compilation,” CERN 84-08, (1985). Disponível: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/15/073/15073101.pdf [Acedido 19 12 2022].
- [158] F. Sauli, “The gas electron multiplier (GEM): Operating principles and applications,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 805, pp. 2-24, (2016). [doi:10.1016/j.nima.2015.07.060](https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.07.060)

- [159] A. Breskin, et al., “The THGEM: A thick robust gaseous electron multiplier for radiation detectors,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 623, pp. 132-134, (2010). [doi:10.1016/j.nima.2010.02.172](https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.02.172)
- [160] R. Bellazzini, e F. Muleri, “X-ray polarimetry: A new window on the high energy sky,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 623, pp. 766-770, (2010). [doi:10.1016/j.nima.2010.04.006](https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.04.006)
- [161] P. Soffitta, et al., “XIPE: the x-ray imaging polarimetry explorer,” *SPIE*, Edinburgh, United Kindom, (2016). [doi:10.1117/12.2233046](https://doi.org/10.1117/12.2233046)
- [162] P. Serrano, D. Attié, D. Desforge, E. Ribas, F. Jeanneau, e O. Limousin, “Caliste-MM: a spectro-polarimeter based on the micromegas concept for soft X-ray astrophysics,” *Journ. Instrum.* 11, vol. P04016, (2016). [doi:10.1088/1748-0221/11/04/P04016](https://doi.org/10.1088/1748-0221/11/04/P04016)
- [163] C. Sgrò, et al., “The Imaging X-ray Polarimetry Explorer (IXPE),” *Nucl. Instrum. Meth. A* 936, pp. 212-215, (2019). [doi:10.1016/j.nima.2018.10.111](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.10.111)
- [164] H. Li, et al., “In-orbit operation and performance of the CubeSat Soft X-ray polarimeter PolarLight,” *Adv. Space Research* 67, pp. 708-714, (2021). [doi:10.1016/j.asr.2020.09.001](https://doi.org/10.1016/j.asr.2020.09.001)
- [165] J. Gallagher, E. Beaty, J. Dutton, e L. Pitchford, “An Annotated Compilation and Appraisal of Electron Swarm Data in Electronegative Gases,” *Journ. Phys. Chem. Refer. Data* 12, pp. 109-152, (1983). [doi:10.1063/1.555675](https://doi.org/10.1063/1.555675)
- [166] J. Dutton, “A Survey of Electron Swarm Data” *J. Phys. Chem.* 4 , pp. 577-586, (1975). [doi:10.1063/1.555525](https://doi.org/10.1063/1.555525)
- [167] A. Trindade, et al., “A new experimental system for electron transverse diffusion measurements,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 1045, vol. 167603, (2023). [doi:10.1016/j.nima.2022.167603](https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.167603)
- [168] A. Trindade, J. Escada, J. Maia, R. d. Silva, A. Marques, e F. Santos, “Development of a Device to measure the Electron Transverse Diffusion in Gas Media,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, Vol. 70, Issue 3 (2023). <https://doi.org/10.1109/TNS.2023.3244361>.
- [169] E. Schneider, “An Estimate of the Absorption of Air in the Extreme Ultraviolet,” *Jour. Opt. Soc. Ame.*, vol. 30, pp. 128-132, (1940). [doi:10.1364/JOSA.30.000128](https://doi.org/10.1364/JOSA.30.000128)
- [170] S. Rolt, P. Clark, J. Schmoll, e B. Shaw, “Xenon Arc Lamp Spectral Radiance Modeling for Satellite Instrument Calibration,” em *SPIE Vol. 9904 99044V-1*, 2016. [doi:10.1117/12.2232299](https://doi.org/10.1117/12.2232299)
- [171] C. Lu, e K. McDonald, “Properties of reflective and semitransparent CsI photocathodes,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 343, pp. 135-131, (1994). [doi:10.1016/0168-9002\(94\)90543-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)90543-6)

- [172] J. Seguinot, et al., “CsI reflective photocathodes and their use for RICH detectors. Experimental Studies,” *Nucl. Instrum. Meth. Phys. A* 371, pp. 64-78, (1996). [doi:10.1016/0168-9002\(95\)01499-3](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)01499-3)
- [173] Z. Xuanni, e L. Fan, “Improving the Quantum efficiency of Photocathode CsI,” *Advan. Engin. Res.*, vol. 119, pp. 80-82, (2017). [doi:10.2991/icacie-17.2017.18](https://doi.org/10.2991/icacie-17.2017.18)
- [174] F. Barbato, A. Valentini, G. Casamassima, L. Campajola, e F. Capua, “Study of semi-transparent conductive layers for the realization of high quantum efficiency transmission mode CsI photocathodes for vacuum photodetectors,” *J. Instrum* 12, vol. T07005, (2017). [doi:10.1088/1748-0221/12/07/T07005](https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/07/T07005)
- [175] T. Dias, et al., “The transmission of photoelectrons emitted from CsI photocathodes into Xe, Ar, Ne and their mixtures: a Monte Carlo study of the dependence on E/N and incident VUV photon energy,” *J. Phys. D: Appl. Phys.* 37, pp. 540-549, (2004). [doi:10.1088/0022-3727/37/4/006](https://doi.org/10.1088/0022-3727/37/4/006)
- [176] J. Escada, *Comunicação Privada*, (2022).
- [177] Triloki, R. Rai, e B. Singh, “Optical and structural properties of CsI thin film photocathode,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 785, pp. 70-76, (2015). [doi:10.1016/j.nima.2015.02.059](https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.02.059)
- [178] P. Maier-Komor, et al., “Preparation of reflective CsI photocathodes with reproducible high quantum efficiency,” *Nucl. Instrum. Meth. A* 362, pp. 183-188, (1995). [doi:10.1016/0168-9002\(95\)00314-2](https://doi.org/10.1016/0168-9002(95)00314-2)
- [179] V. Razin, Yu. Gotocev, A. Kurepin, e A. Reshetin, “The influence of exposure to air on the quantum efficiency of thin CsI photocathodes,” *Nucl. Instru. Meth. A* 419, pp. 621-622, (1998). [doi:10.1016/S0168-9002\(98\)00876-6](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00876-6)
- [180] SALOME, “The Open Source Integration Platform for Numerical Simulation,” (2022). [Online]. Disponível: <http://www.salome-platform.org/>. [Acedido em 19 12 2022].
- [181] M. Malinen, e P. Raback, “Elmer finite element solver for multiphysics and multiscale problems,” em *Multiscale Modelling Methods for applications in Material Science*, (2013), pp. 101-114. Disponível: <https://juser.fz-juelich.de/record/138015/files/FZJ-2013-04293.pdf>. [Acedido em 19 12 2022].
- [182] J. Laulainen, T. Kalvas, H. Koivisto, J. Komppula, e O. Tarvainen, “Photoelectron emission from metal surfaces induced by VUV-emission of filament driven hydrogen arc discharge plasma,” em *AIP Conference Proceedings* 1655, 020007, 2015. [doi:10.1063/1.4916416](https://doi.org/10.1063/1.4916416)
- [183] K. Shanks, S. Senthilarasu, e T. Mallick, “Optics for concentrating photovoltaics: Trends, limits and opportunities for materials and design,”

- Renew. Sustain. Energy Rev.* 60, pp. 394-407, (2016).
[doi:10.1016/j.rser.2016.01.089](https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.01.089)
- [184] J. Escada, *Comunicação Privada*, (2022).
- [185] P. Virtanen, et al., “SciPy 1.0: fundamental algorithms for scientific computing in Python,” *Nature Methods* 17 (3), pp. 261-272, (2020).
[doi:10.1038/s41592-019-0686-2](https://doi.org/10.1038/s41592-019-0686-2)
- [186] E. Shimabura, T. Takahashi, S. Kubota, e T. Doke, “Ratio of diffusion coefficient to mobility for electrons in liquid argon,” *Phys. Review A* 20, vol. 6, pp. 2547-2554, (1979). [doi:10.1103/PhysRevA.20.2547](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.20.2547)
- [187] J. Albert, et al., “Measurement of the drift velocity and transverse diffusion of electrons in liquid xenon with the EXO-200 detector,” *Phys. Review C* 95, vol. 025502, (2017). [doi:10.1103/PhysRevC.95.025502](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.95.025502)
- [188] T. Alber, V. Eckardt, H. Fessler, S. Schönfelder, e P. Seyboth, “A study of argon, neon and helium based gas mixtures for improving the spatial resolution in time projection chambers,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 349, pp. 56-61, (1994). [doi:10.1016/0168-9002\(94\)90608-4](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)90608-4)
- [189] O. Bouhali, “Contribution to the study of the central tracking system of the CMS detector, at the future proton collider LHC,” University of Brussels, Bruxelas, Bélgica, Tese de Doutorado, (1999). Disponível: <https://inspirehep.net/files/7613cbe07e062f6a52280b984f22ee3c> [Acedido em 19 12 2022].
- [190] J. VA'VRA, “High Resolution Drift Chambers,” *Nucl. Instrum. Meth. Phys. A* 244, pp. 391-415, (1986). [doi:10.1016/0168-9002\(86\)91062-4](https://doi.org/10.1016/0168-9002(86)91062-4)
- [191] F. Amaro, et al., “Operation of a single-GEM in noble gases at high pressures,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 579, pp. 62-66 (2007).
doi.org/10.1016/j.nima.2007.04.013
- [192] J. Escada, “Detetores Gasosos de Radiação: Efeitos da retrodifusão na emissão de fotoelétrons por fotocátodos de CsI em meio gasoso e eletroluminescência em Xe dopado com CH₄ e CF₄,” Universidade de Coimbra - Departamento de Física, Tese de Doutorado, (2012). Disponível: <http://hdl.handle.net/10316/23601> [Acedido em 19 12 2022].
- [193] S. Kobayashi, et al., “Ratio of Transverse Diffusion Coefficient to Mobility of Electrons in High-Pressure Xenon and Xenon Doped with Hydrogen,” *Jpn. J. Appl. Phys. N.10A*, vol. 45, pp. 7894-7900, (2006).
[doi:10.1143/JJAP.45.7894](https://doi.org/10.1143/JJAP.45.7894)
- [194] T. Koizumi, E. Shirakawa, e I. Ogawa, “Momentum transfer cross sections for low-energy electrons in krypton and xenon from characteristic energies,” *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, vol. 19, pp. 2331-2342, (1986). [doi:10.1088/0022-3700/19/15/014](https://doi.org/10.1088/0022-3700/19/15/014)
- [195] M. Suzuki, T. Taniguchi, N. Yoshimura, e H. Tagashira, “Momentum transfer cross section of xenon deduced from electron drift velocity data,”

- J. Phys. D: Phys.*, vol. 25, pp. 50-56, (1992). [doi:10.1088/0022-3727/25/1/007](https://doi.org/10.1088/0022-3727/25/1/007)
- [196] A. Bondar, “High- and low-pressure operation of the gas electron multiplier,” *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 419, pp. 418-422 (1998). [doi.org/10.1016/S0168-9002\(98\)00817-1](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00817-1)
- [197] J. Escada, et al., “A Monte Carlo study of backscattering effects in the photoelectron emission from CsI into CH₄ and Ar-CH₄ mixtures,” *Journ. Instrum. 2 P08001*, (2007). [doi:10.1088/1748-0221/2/08/P08001](https://doi.org/10.1088/1748-0221/2/08/P08001)
- [198] C. Duncan, e I. Walker, “Collision cross-sections for low energy electrons in methane,” *J. Chem. Soc. Faraday Trans. (II) 68*, p. 1514, (1972). <https://doi.org/10.1039/F29726801514>
- [199] C. Lakshminarasimba, e J. Lucas, “The ratio of radial diffusion coefficient to mobility for electrons in helium, argon, air, methane and nitric oxide,” *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 10, pp. 1514-1521, (1977). [doi:10.1088/0022-3727/10/3/011](https://doi.org/10.1088/0022-3727/10/3/011)
- [200] G. Haddad, “Low energy electron collision cross sections for methane,” *Aust. Journ. Phys.*, vol. 38, pp. 677-685, (1985). [doi:10.1071/PH850677](https://doi.org/10.1071/PH850677)
- [201] S. Hunter, J. Carter, e L. Christophorou, “Electron transport studies of gas mixtures for use in e-beam controlled diffuse discharge switches,” *J. Appl. Phys 58*, pp. 3001-3015, (1985). [doi:10.1063/1.335849](https://doi.org/10.1063/1.335849)
- [202] P. Millicant, e I. Walker, “Electron swarm characteristic energies (D_r/u) in methane, perdeuteromethane, silane, perdeuterosilane, phosphine and hydrogen sulphide at low E/N,” *Journ. Phys. D*, vol. 20, pp. 193-196, (1987). [doi:10.1088/0022-3727/20/2/007](https://doi.org/10.1088/0022-3727/20/2/007)
- [203] B. Schmidt, e M. Roncossek, “Drift velocity, longitudinal and transverse diffusion in hydrocarbons derived from distributions of single electron,” *Aust. Journ. Phys.*, vol. 45, pp. 351-363, (1992). [doi:10.1071/PH920351](https://doi.org/10.1071/PH920351)
- [204] N. Hasebe, et al., “Electron Transport Parameters Measurements in High-Density Gaseous Xenon,” em *3rd Inter. Conf. XeSat*, Khon Kaen, Thailand, (2017). Disponível: https://indico.cern.ch/event/573069/sessions/230159/attachments/1439105/2214457/Electron_Transport_Parameters_F.pdf. [Acedido em 19 12 2022].