

José Manuel Dias Escada

**Detetores Gasosos de Radiação:
Efeitos da retrodifusão na emissão de fotoeletrões
por fotocátodos de CsI em meio gasoso e
eletroluminescência em Xe dopado com CH₄ e CF₄**



Universidade de Coimbra

2012

José Manuel Dias Escada

**Detetores Gasosos de Radiação:
Efeitos da retrodifusão na emissão de fotoeletrões
por fotocátodos de CsI em meio gasoso e
eletroluminescência em Xe dopado com CH₄ e CF₄**

Dissertação de Doutoramento em Física, especialidade de Física Tecnológica, orientada por
Doutora Teresa M. H. V. Teixeira Dias e Prof. Doutor José A. Matias Lopes e submetida à
Faculdade de Ciências e Tecnologia da Universidade de Coimbra



Universidade de Coimbra

2012

Este trabalho foi financiado pela Fundação para a Ciência e Tecnologia e pelo Programa Operacional Potencial Humano, com financiamento do Fundo Social Europeu, através da bolsa SFRH/BD/22177/2005



À Florbela

À Matilde

À minha Família

Agradecimentos

À Doutora Teresa Teixeira Dias e ao Professor Doutor José Lopes, por terem aceitado a orientação deste trabalho, a forma dedicada como a concretizaram e a revisão cuidada desta Tese. À Doutora Teresa Teixeira Dias, o meu muito obrigado pela constante disponibilidade, interesse e preocupação demonstrados, bem como as muitas sugestões e ensinamentos partilhados. Ao Professor Doutor José Lopes, o meu muito obrigado pelo apoio e incentivo revelados em alguns momentos difíceis deste trabalho, bem como pelas suas sugestões.

À Professora Doutora Filomena Santos, a disponibilidade sempre demonstrada, os incentivos frequentes e as discussões proveitosas, bem como a revisão desta Tese.

Ao Professor Doutor Joaquim Santos, o apoio prestado e os profícuos conselhos relativamente ao trabalho experimental.

Ao Professor Doutor Carlos Conde, pelos seus ensinamentos, interesse e atenção dispensados.

Aos Professor Doutor Amos Breskin, Professor Doutor Allan Stauffer e Professor Doutor David Nygren, pelo apoio e interesse demonstrados e pelas valiosas discussões facultadas.

Ao Mestre Luís Coelho, pelo apoio valioso e sempre disponível na iniciação do trabalho experimental, particularmente na montagem do sistema experimental.

Ao Mestre Paulo Rachinhas, pelo seu apoio pessoal e ajuda relativamente aos programas de simulação e leitura de dados.

Ao Paulo Gomes, pelo seu apoio essencial relativamente aos meios informáticos e amizade.

A todos os que, ao longo da execução deste trabalho, pela sua amizade e colaboração pontual, de algum modo contribuíram para a sua realização, nomeadamente, Professora Doutora Filipa Borges, Professor Doutor João Veloso, Doutor Pedro Neves, Doutor Sérgio Carmo, Licenciada Liliana Carita, Licenciado Gustavo Botte, Professor Doutor Jorge Maia, Doutora Cristina Monteiro, Mestre Ana Santos, Doutor Fernando Amaro, Doutor Hugo Natal da Luz, Mestre Elizabete Freitas, Mestre Alexandre Trindade, Doutor Carlos Azevedo, Doutor Alexey Lyashenko e Doutor Marco Cortesi.

À minha família, pela paciência e compreensão face aos condicionalismos a que esteve sujeita, inerentes à realização deste trabalho e elaboração da presente Dissertação. À Florbela, em particular, pela valiosa ajuda na edição desta Tese e conselhos ao nível da adequação linguística.

Índice

Lista de acrónimos/siglas e símbolos de grandezas físicas (mais utilizados)	xiv
Sumário	xv
Abstract	xvii
<i>Capítulo 1– Introdução</i>	<i>1</i>
<i>Capítulo 2 – Eletroluminescência e fotodeteção em meio gasoso</i>	<i>5</i>
2.1 Eletroluminescência em meio gasoso	5
2.1.1 Contador gasoso de cintilação proporcional (GPSC)	6
2.1.2 Mecanismos de eletroluminescência nos gases raros	8
2.1.3 Eletroluminescência na presença de gases moleculares	9
2.2 Fotodeteção em meio gasoso	10
2.2.1 Meio fotossensor	10
2.2.2 Fotocátodos	11
2.2.3 Fotocátodos em meio gasoso	12
2.2.3.1 Retrodifusão dos fotoelétrões	12
2.2.3.2 Realimentação positiva por fótons	12
2.2.3.3 Fluxo de íons positivos	13
2.2.4 Fotodetetores gasosos	14
Referências	18
<i>Capítulo 3 – Modelo de simulação de Monte Carlo: Estrutura e teste</i>	<i>23</i>
3.1 Secções eficazes de difusão de eletrões	23
3.1.1 Gases nobres	24
3.1.1.1 Xénon (Xe)	27
3.1.1.2 Árgon (Ar)	28
3.1.1.3 Néon (Ne)	29
3.1.2 Gases Moleculares	29
3.1.2.1 Metano (CH ₄)	32
3.1.2.2 Tetrafluoreto de carbono (CF ₄)	34
3.1.2.3 Dióxido de carbono (CO ₂)	37
3.2 Modelo da simulação de Monte Carlo	40
3.2.1 Condições iniciais dos eletrões	40

3.2.2 Deriva dos eletrões	43
3.2.3 Critérios de paragem da simulação	46
3.3 Parâmetros de deriva de eletrões	47
3.3.1 Cálculo pelo do método de Monte Carlo	48
3.3.2 Comparação entre resultados calculados e experimentais	50
3.3.3 Efeito das interações inelásticas	62
Referências	65

Capítulo 4 – Extração de fotoeletrões emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso

4.1 Estudo por simulação de Monte Carlo	78
4.1.1 Resultados para a eficiência de extração f	78
4.1.1.1 Gases puros: Xe, Ar, Ne e CH ₄ , CF ₄ , CO ₂	79
4.1.1.2 Misturas de um gás nobre com um gás molecular	79
4.1.2 Discussão	102
4.1.2.1 Correlação de f com colisões inelásticas e penetração inicial dos fotoeletrões	105
<i>Gases nobres</i>	105
<i>Gases moleculares e suas misturas com gases nobres</i>	107
4.1.2.2 Correlação de f com outros parâmetros	114
<i>Energia de emissão ε_0 dos fotoeletrões</i>	114
<i>Distribuição angular de emissão dos fotoeletrões</i>	115
<i>Reflexão de fotoeletrões no fotocátodo</i>	116
4.1.2.3 Número de colisões e alcance dos fotoeletrões recapturados	118
4.2 Estudo experimental	123
4.2.1 Sistema experimental e procedimentos	124
4.2.1.1 Detetor com fotocátodo refletivo de CsI	124
4.2.1.2 Produção dos filmes de CsI	126
4.2.1.3 Sistema de vazio/enchimento	127
4.2.1.4 Metodologia	128
4.2.2 Resultados para a eficiência de extração f	129
4.2.3 Discussão	136
4.3 Conclusões	138
Referências	140

Capítulo 5 – Eletroluminescência em Xe dopado com CH₄ ou CF₄:	145
<i>Estudo de Monte Carlo</i>	
5.1 Efeito da dopagem nos parâmetros de deriva	147
5.2 Efeito da dopagem na eletroluminescência	148
5.2.1 Emissão de cintilação	150
5.2.2 Resultados e análise	151
5.3 Conclusões	155
Referências	157
Capítulo – 6 Conclusões finais e trabalho futuro	159
<i>Trabalho futuro</i>	162

Lista de acrónimos/siglas

APD	Avalanche Photodiode
EL	Electroluminescence
FWHM	Full Width at Half Maximum
G-APD	Geiger-mode operating Avalanche Photodiode
GEM	Gas Electron Multiplier
GIAN	Grupo de Instrumentação Atómica e Nuclear
GPM	Gaseous Photomultiplier
GPSC	Gas Proportional Scintillation Counter
HPD	Hybrid Photo-Detector
IBF	Ion Back-Flow Fraction
LAAPD	Large Area Avalanche Photodiode
MC	Monte Carlo
MHSP	Micro-hole and Strip Plate
MWPC	Multi-wire Proportional Chamber
NEXT	Neutrino Experiment with a Xenon TPC
PC	Proportional Counter
PMT	Photomultiplier Tube
RICH	Ring Imaging Cherenkov
TEA	Triethylamine
THGEM	Thick Gas Electron Multiplier
TMAE	Tetrakis (dimethylamine)ethylene
TOF	Time-of-Flight
TPC	Time Projection Chamber
VUV	Vacuum Ultra Violet

Símbolos das grandezas físicas (mais utilizados)

E/N	campo elétrico E reduzido ao número N de átomos/moléculas por unidade de volume ($1 \text{ Td} = 10^{-17} \text{ V cm}^2$)
E/p	campo elétrico E reduzido à pressão p do gás
E_{ph}	energia de fótons
f	eficiência de extração
η	concentração de gás molecular
\mathcal{H}	número de fótons de cintilação emitidos durante a deriva de um eletrão primário

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

José Manuel Dias Escada

Departamento de Física

Faculdade de Ciências e Tecnologia – Universidade de Coimbra

Sumário

Neste trabalho investiga-se a extração de fotoelétrons emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso, quando o fotocátodo é irradiado por radiação VUV, e o efeito da dopagem de Xe com CH₄ ou CF₄ na eletroluminescência. A deriva dos elétrons nos meios gasosos é investigada por simulação de Monte Carlo, permitindo obter e discutir em detalhe os resultados para a eficiência de extração f e para o rendimento de eletroluminescência \mathcal{H} . A extração de fotoelétrons é também investigada experimentalmente, permitindo confirmar os comportamentos previstos por simulação para f .

Para validar o modelo de Monte Carlo e as secções eficazes de difusão de elétrons usadas nas simulações, são calculados parâmetros de deriva de elétrons nos meios gasosos, que são analisados e comparados com dados experimentais da literatura.

A eficiência de extração f é determinada nos gases moleculares CH₄, CF₄, CO₂ e N₂ e suas misturas binárias com os gases nobres Xe, Ar e Ne, sendo calculada por simulação para fotões absorvidos monocromáticos com energias E_{ph} na gama 6.7-9.8 eV e medidos experimentalmente para fotões VUV de uma lâmpada de Hg(Ar) de distribuição espectral (gaussiana) centrada em $E_{ph} = 6.7$ eV, considerando os campos elétricos reduzidos E/N na gama 0.1-40 Td. Exceto para N₂ e Ne-N₂, meios não examinados por simulação, os resultados experimentais de f são comparados com resultados de Monte Carlo, verificando-se em geral bom acordo.

A dependência de f com E/N , composição da mistura e E_{ph} é analisada. Mostra-se que geralmente f aumenta com E/N , gradualmente nos gases nobres e de um modo repentino a baixo E/N nos gases moleculares e misturas. A eficiência f diminui com E_{ph} , exceto em algumas gamas restritas a baixos E/N . Verifica-se que f_{CH_4} e f_{CF_4} são consideravelmente superiores a f nos gases nobres e que f_{CO_2} é inferior a f_{CH_4} e a f_{CF_4} a menores E_{ph} mas é idêntico para maiores E_{ph} . A adição de um dos gases moleculares CH₄, CF₄ ou CO₂ a um dos gases nobres Xe, Ar ou Ne, ainda que em pequenas concentrações, permite aumentar f significativamente, por vezes com f nas misturas a ultrapassar f nos

gases moleculares puros. Por outro lado, verificou-se experimentalmente (para $E_{\text{ph}} \sim 6.7$ eV) que f_{N_2} é menor do que f nos outros gases investigados e que nenhum benefício em f é obtido adicionando N_2 a Ne .

A extração de fotoelétrons depende do campo elétrico E/N que guia os elétrons e da energia de emissão ε_0 dos fotoelétrons (que cresce com E_{ph}), dois fatores independentes do meio gasoso. A eficiência f tende a diminuir com ε_0 , porque os fotoelétrons têm de perder mais energia até o retorno ao fotocátodo se tornar energeticamente proibido.

A dependência da extração dos fotoelétrons com o meio gasoso é explicada através da correlação de f com a penetração inicial λ no gás, relacionada com a secção eficaz total de difusão, e com a eficácia de perda de energia dos fotoelétrons no gás, relacionada com a competição entre os processos elásticos e inelásticos no gás. A extração dos fotoelétrons é favorecida por uma penetração inicial λ longa e pela redução rápida da energia dos fotoelétrons em colisões inelásticas. As simulações mostram que a ocorrência de colisões inelásticas a baixa energia nas primeiras colisões desempenha um papel decisivo no aumento de f , como acontece com as excitações vibracionais em CH_4 , CF_4 e CO_2 e nas suas misturas com Xe , Ar e Ne , que competem eficientemente com a difusão elástica. Em contraste, nos gases nobres as colisões inelásticas são pouco frequentes para as gamas de E/N e E_{ph} investigadas, porque os seus limiares são apenas atingidos a maiores E/N e após numerosas colisões elásticas.

Neste trabalho é também investigada a viabilidade da dopagem de Xe com CH_4 ou CF_4 em detetores gasosos em que a amplificação é conseguida através da produção de eletroluminescência em regime sem multiplicação de carga. A adição de gases moleculares a Xe aumenta a velocidade de deriva e reduz a difusão dos elétrons, um efeito que é desejável em detetores de grandes dimensões onde os elétrons primários derivam longas distâncias na região de absorção/deriva. No entanto, é necessário encontrar um compromisso, pois a presença das moléculas deteriora a resolução em energia, porque reduz o rendimento de eletroluminescência \mathcal{H} e aumenta as flutuações associadas. Estes efeitos são devidos à introdução não só de colisões dos elétrons com excitação vibracional das moléculas e captura de elétron por moléculas, como também a processos alternativos de desativação dos estados excitados de Xe em colisões a 2 ou 3 corpos envolvendo moléculas, processos que inibem a formação dos excímeros de Xe que são as espécies emissoras da cintilação. No caso de CF_4 , a redução de \mathcal{H} e o aumento das flutuações são muito pronunciados devido ao efeito muito significativo da captura de elétrons, afastando CF_4 como aditivo aceitável. No entanto, a adição de CH_4 afeta \mathcal{H} e as suas flutuações em muito menor extensão, indicando os cálculos que a adição de CH_4 em concentrações menores do que $\sim 1\%$ pode ser uma escolha apropriada.

Gaseous Radiation Detectors:
Backscattering effects in photoelectron emission from CsI photocathodes into
gaseous medium and electroluminescence in Xe doped with CH₄ and CF₄

José Manuel Dias Escada

Physics Department

Faculty of Sciences and Technology – University of Coimbra

Abstract

This work investigates the photoelectron extraction from CsI photocathodes into gaseous medium, when CsI is irradiated by VUV photons, and the effect that doping Xe with CH₄ or CF₄ in particular will cause on the electroluminescence. The electron drift in the gaseous media is investigated by Monte Carlo simulation, allowing to obtain and to discuss in detail the results for the extraction efficiency f and electroluminescence yield \mathcal{H} . The photoelectron extraction is also investigated experimentally, allowing confirmation of the behaviors predicted by simulation for f .

To validate the Monte Carlo model and electron scattering cross-sections used in the simulations, electron drift parameters in the gaseous media are also calculated, which are analyzed and compared with available published experimental data.

The extraction efficiency f is obtained for the molecular gases CH₄, CF₄, CO₂ and N₂ and their binary mixtures with the noble gases Xe, Ar and Ne. It is calculated by simulation for absorbed monochromatic photons with energies E_{ph} in the range 6.7-9.8 eV and is measured experimentally for photons from a continuous VUV Hg(Ar) lamp with a spectral distribution peaked at $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV, considering reduced electric fields E/N in the 0.1-40 Td range. Except for pure N₂ and the Ne-N₂ mixtures, not examined by simulation, the f experimental results are compared with Monte Carlo results and a good agreement is found in general.

The dependence of f on E/N , mixture composition and E_{ph} is analyzed. It is showed that f increases in general with E/N , rising gradually in a noble gas and more quickly at lower E/N in the molecular gases and mixtures. The efficiency f decreases with E_{ph} , except in some restricted ranges at low E/N . It is verified that f_{CH_4} and f_{CF_4} are considerably higher than f in noble gases and that f_{CO_2} is lower than f_{CH_4} and f_{CF_4} at lower E_{ph} but reaches identical levels at higher E_{ph} . The addition of one of the molecular gases CH₄, CF₄ or CO₂ to the noble gases Xe, Ar or Ne, even in low concentrations, may significantly increase f , sometimes with f in the mixtures rising above f in the pure molecular gas.

On the other hand, it was verified experimentally (for $E_{\text{ph}} \sim 6.7$ eV) that f_{N_2} is lower than f in any of the other gases under investigation and that f is not improved by the addition of N_2 to Ne.

The photoelectron extraction is dependent on the guiding electric field E/N and on the photoelectron emission energy ε_0 (which increases with E_{ph}), two factors independent of the gas medium. The efficiency f tends to decrease with ε_0 , because the photoelectrons must lose more energy before the return to the photocathode becomes energetically forbidden.

The dependence of the photoelectron extraction on the gas medium is explained by the correlation of f with the initial penetration λ into the gas, which is related to the electron total scattering cross-section, and with the efficiency of photoelectron energy loss in the gas, related to the competition between elastic and inelastic processes in the gas. The photoelectron extraction is favored by longer λ and by a swift drop in photoelectron energy in inelastic collisions. The simulations show that the occurrence of inelastic collisions at low energy in the first collisions plays a decisive role in the improvement of f , namely vibrational excitation collisions in CH_4 , CF_4 and CO_2 and in their mixtures with Xe, Ar and Ne, which compete efficiently with elastic scattering. In contrast, in noble gases the inelastic collisions are only sporadic over the ranges of E/N and E_{ph} investigated, because their thresholds are only reached at higher E/N and after numerous elastic collisions.

This work also investigates the viability of doping Xe with CH_4 or CF_4 in gaseous detectors where amplification is achieved through the production of electroluminescence under a charge-multiplication free regime. The addition of the molecular gases to Xe increases the drift velocity and reduces the diffusion of the electrons, a desirable effect in large size detectors where primary electrons drift across a long absorption/drift region. However, a compromise must be found, since the presence of the molecules deteriorates the energy resolution by reducing the electroluminescence yield \mathcal{H} and increasing its fluctuations. These effects are due to electron collisions with vibrational excitation of the molecules and to electron attachment by the molecules, as well as to the deactivation of Xe excited states by alternative processes involving 2- or 3-body collisions with the molecules, processes which quench the formation of the Xe excimers which are the scintillation emitting species. In the case of CF_4 , the reduction of \mathcal{H} and the increase of its fluctuations are very strong due to the very significant effect of electron attachment, ruling out CF_4 as an acceptable additive. However, the addition of CH_4 affects \mathcal{H} and its fluctuations to a much lower extent, and the calculations indicate that the addition of CH_4 in concentrations lower than $\sim 1\%$ may be an appropriate choice.

Capítulo 1

Introdução

A investigação científica no âmbito dos detetores de radiação baseados na produção de fótons VUV é extensa e variada, com diversos campos de aplicação, como, por exemplo, física das partículas, astrofísica, medicina, etc. O contador gasoso de cintilação proporcional é um exemplo desses detetores, sendo o seu princípio de funcionamento baseado na eletroluminescência de gases nobres. Outro exemplo é o dos sistemas RICH, baseados na radiação de Cherenkov que também tem emissão na região do VUV. A este tipo de detetores encontram-se obrigatoriamente associados fotodetetores que realizam a conversão dos fótons em elétrons por efeito fotoelétrico; a carga elétrica resultante é recolhida geralmente após um estágio de amplificação, seguindo-se-lhe o processamento do correspondente sinal elétrico. Um detetor de radiação é avaliado por algumas das suas características, nomeadamente resolução (em energia, temporal e espacial), ganho, tempo de resposta, taxa de contagem máxima, custo, dimensão, etc. No caso particular de um fotodetetor, as necessidades experimentais requerem por vezes uma grande área de deteção, sensibilidade a fóton único e insensibilidade a campos magnéticos.

As propriedades vantajosas que o iodeto de cézio (CsI) oferece como meio fotoconversor da radiação VUV, como o facto de ser um material sólido de fácil manuseamento e de elevada eficiência quântica na região do VUV, fazem dele um material alvo de investigação intensa e com utilização alargada em fotocátodos tanto em configuração transmissiva como refletiva, a operar em vazio ou em ambiente gasoso e, neste caso, integrados ou não no volume do detetor onde é gerada a radiação VUV.

A inserção de fotocátodos em meio gasoso traz vantagens, mas acarreta também algumas desvantagens que limitam o seu funcionamento. De facto, ao contrário da operação em vazio, num gás uma fração dos fotoelétrons emitidos pelo fotocátodo é retrodifundida para o fotocátodo em consequência das colisões com átomos/moléculas do meio, não permitindo que todos os fotoelétrons ejetados sejam efetivamente extraídos e conduzidos pelo campo elétrico aplicado, efeito que reduz a eficiência quântica efetiva do fotocátodo. Recentemente, tem-se verificado uma grande evolução no

campo dos fotodetektres gasosos (GPM) integrando um fotocátodo de CsI, sendo em muitas aplicações preferidos aos seus concorrentes, particularmente quando são exigidas grandes áreas de deteção. Assim, é essencial um conhecimento detalhado do fenómeno da retrodifusão para fotocátodos e dos valores da correspondente eficiência de extração de fotoelétrões de CsI em meios gasosos de interesse.

Assim, esta dissertação investiga detalhadamente a retrodifusão dos fotoelétrões para fotocátodos de CsI em vários meios gasosos de gás molecular (CH_4 , CF_4 , CO_2 e N_2) e de misturas binárias destes com gases nobres (Xe, Ar e Ne), sendo obtidos resultados experimentais e de simulação de Monte Carlo para a eficiência de extração f dos fotoelétrões, bem como alguns parâmetros calculados por simulação que permitem uma ampla clarificação do fenómeno, que ocorre essencialmente antes de os elétrões terem atingido a energia de equilíbrio.

Usando essencialmente o mesmo modelo de simulação de deriva de elétrões em gases, esta dissertação estuda também o efeito nos parâmetros de deriva e no rendimento de cintilação proporcional, i.e. de de eletroluminescência (EL), e flutuações associadas causado pela dopagem de Xe com os gases moleculares CH_4 ou CF_4 em particular.

A motivação deste estudo resulta do facto de em detektres de grandes dimensões baseados na produção de EL de Xe, como, por exemplo, o detektor projetado para a experiência NEXT (*Neutrino Experiment with a Xenon TPC*), o baixo valor da velocidade de deriva e a elevada difusão dos elétrões em Xe puro serem inconvenientes, uma vez que nestes detektres os elétrões derivam distâncias superiores a dezenas de cm até atingirem a região de cintilação. No entanto, os parâmetros de deriva podem ser melhorados pela adição a Xe de gases moleculares em pequenas concentrações, sendo contudo necessário encontrar um compromisso, pois a presença dos gases moleculares deteriora a resolução em energia ao reduzir o rendimento de EL e aumentar as flutuações associadas. O objetivo do estudo é encontrar misturas com uma composição que torne viável a sua utilização no enchimento de detektres baseados na produção de EL de Xe.

Para os meios gasosos investigados é também realizado um estudo por simulação de Monte Carlo dos parâmetros de deriva de elétrões, que permite validar as secções eficazes adotadas e o modelo da simulação através da concordância encontrada na comparação com resultados experimentais da literatura. Torna-se ainda possível uma análise mais aprofundada do comportamento dos parâmetros de deriva que é útil para a compreensão da fenomenologia em estudo nesta dissertação.

No **capítulo 2** é apresentado um resumo de alguns conceitos importantes relativos à área onde se desenvolve a presente investigação, de modo a enquadrar os assuntos a desenvolver na presente dissertação. Assim, são descritas as principais características do contador gasoso de cintilação proporcional, bem como a evolução dos fotodetektres gasosos de radiação VUV.

O **capítulo 3** descreve de uma forma sucinta o modelo de simulação de Monte Carlo usado e apresenta as secções eficazes de difusão de eletrões para os processos físicos elásticos, inelásticos e superelásticos tidos em conta. São ainda calculados e analisados os parâmetros de deriva de eletrões nos meios gasosos examinados por simulação, sendo comparados com resultados experimentais publicados na literatura, de forma a testar as secções eficazes e o modelo de simulação.

O **capítulo 4** é destinado ao estudo, experimental e por simulação de Monte Carlo, da extração por um campo elétrico dos fotoeletrões emitidos por um fotocátodo de CsI em meio gasoso, quando nele incide radiação VUV. A eficiência de extração f dos fotoeletrões nos gases moleculares CH_4 , CF_4 , CO_2 e N_2 e em misturas binárias destes com os gases nobres Xe, Ar e Ne é apresentada e analisada em função do campo elétrico reduzido, da concentração de gás molecular e, no estudo por simulação, também em função da energia dos fotões absorvidos em CsI. No estudo por simulação, são também calculados alguns parâmetros que ajudam a justificar os comportamentos de f . É também realizada uma comparação entre os resultados de f obtidos experimentalmente e por simulação.

O estudo, por simulação de Monte Carlo, do efeito da dopagem de Xe com CH_4 ou CF_4 na eletroluminescência (EL) e nos parâmetros de deriva é apresentado no **capítulo 5**. É avaliada a viabilidade da dopagem do Xe no que respeita ao rendimento de EL e flutuações associadas, procurando um compromisso entre o benefício (diminuição da difusão e aumento da velocidade de deriva) e o prejuízo (aumento da resolução em energia) proporcionados pela dopagem.

No **capítulo 6** são apresentadas as principais conclusões das investigações realizadas e as perspetivas de trabalho futuro relacionadas com esta dissertação.

Os estudos desenvolvidos no âmbito desta dissertação foram realizados no Grupo de Instrumentação Atómica e Nuclear (GIAN) do Departamento de Física da Universidade Coimbra.

Os estudos apresentados nesta dissertação já resultaram nas seguintes publicações (estando outras em preparação):

Publicações em revistas internacionais com arbitragem científica

J. Escada, L.C.C. Coelho, T.H.V.T. Dias, J.A.M. Lopes, J.M.F. dos Santos e A. Breskin, *Measurements of photoelectron extraction efficiency from CsI into mixtures of Ne with CH_4 , CF_4 , CO_2 and N_2* , **JINST** **4** (2009) **P11025**.

J. Escada, T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, L.C.C. Coelho, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *A Monte Carlo study of photoelectron extraction efficiency from CsI photocathodes into Xe- CH_4 and Ne- CH_4 mixtures*, **J. Phys. D** **43** (2010) **065502**.

J. Escada, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, P.J.B.M. Rachinhas, C.A.N. Conde e A.D. 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** (2011) **P08006**.

Publicações em atas de congressos internacionais

P.J.B.M. Rachinhas, **J.M.D. Escada**, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Photoelectron collection efficiency in CH₄ and Xe-CH₄ mixtures*, **2005 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Porto Rico) **3** (2006) **1271-4**.

J. Escada, P.J.B.M. Rachinhas, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Photoelectron collection efficiency in mixtures of noble gases with CF₄*, **2006 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (San Diego, USA) **2** (2007) **1035-8**.

J. Escada, P.J.B.M. Rachinhas, T.H.V.T. Dias, J.A.M. Lopes, F.P. Santos, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Photoelectron collection efficiency in Xe-CF₄ mixtures*, **2007 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Honolulu, USA) **1** (2008) **585-9**.

J. Escada, P.J.B.M. Rachinhas, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Monte Carlo photoelectron transmission efficiency in CO₂ and Ar-CO₂ mixtures*, **2008 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Dresden, Germany) **1** (2009) **951-4**.

J. Escada, T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, F.P. Santos, F.G.I.M. Borges, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *A study of the electroluminescence yield and fluctuations Xe doped with CH₄ or CF₄: The role of electron cooling and attachment*, **2009 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Orlando, USA) **1** (2010) **729-33**.

Capítulo 2

Eletroluminescência e fotodeteção em meio gasoso

Com o propósito de facilitar uma melhor compreensão dos assuntos investigados nesta dissertação e do seu interesse científico, são apresentados neste capítulo alguns conceitos importantes no âmbito dos detetores gasosos de radiação, área em que aqueles assuntos se enquadram. Nesse sentido, são descritas a técnica de amplificação pelo processo de eletroluminescência e as principais características do Contador Gasoso de Cintilação Proporcional que nela se baseia (**secção 2.1**), bem como questões relacionadas com a detecção de radiação VUV utilizando fotocátodos de CsI em meio gasoso (**secção 2.2**).

2.1 Eletroluminescência em meio gasoso

Nos detetores gasosos, a interação da radiação com o meio conduz à excitação e ionização de átomos/moléculas desse meio, do que resulta um conjunto de elétrons livres com energias subionizantes – *elétrons primários* – cujo número, em boa aproximação proporcional à energia absorvida no meio, representa uma medida desta energia. No entanto, aquele número não é geralmente suficiente para que a sua recolha direta produza sinais de dimensão apropriada, tornando-se indispensável a existência de um estágio adicional de amplificação. Por outro lado, a intensidade da *cintilação primária* resultante da desexcitação radiativa do meio é também geralmente insuficiente para nela se basear a técnica de detecção, podendo contudo o sinal de curta duração que lhe corresponde (alguns nanosegundos) ser útil em sistemas que recorram a técnicas de coincidência.

Em detetores de uso comum como o Contador Proporcional (PC) ou a Câmara Proporcional Multifios (MWPC), o estágio de amplificação é conseguido através de multiplicação em carga, alcançada com recurso à aplicação de um campo elétrico suficientemente intenso para que cada eletrão primário adquira energia suficiente para ionizar os átomos/moléculas do meio e criar uma avalanche de *eletrões secundários*. A nuvem de eletrões final, cuja carga elétrica é já suscetível de ser medida com precisão, é proporcional à energia depositada, possibilitando a sua medida.

No fim dos anos 60, Conde e Policarpo [1-5] propuseram o denominado Contador Gasoso de Cintilação Proporcional (GPSC), um detetor de radiação que, em alternativa ao princípio da amplificação em carga, se socorre de uma técnica de amplificação baseada na *eletroluminescência* (EL) – processo de produção de fotões de *cintilação secundária* resultantes da desexcitação radiativa que se segue à excitação eletrónica do meio gasoso por impacto de eletrões que, sendo inicialmente de baixa energia, são acelerados pela ação de um campo elétrico moderado. Neste processo, são emitidos fotões VUV ao longo da trajetória dos eletrões primários numa região delimitada, onde o campo elétrico é tal que permite aos eletrões excitar mas não ionizar o meio, geralmente gás nobre como Xe, Kr ou Ar a pressões próximas da pressão atmosférica. A eficiência de excitação dos gases nobres por impacto de eletrão é elevada e a técnica resulta em altos rendimentos de EL (tipicamente 300 a 500 fotões/cm/eletrão em Xe a 1 atm) e flutuações muito menores que as envolvidas na formação de avalanches de eletrões, cuja variância é próxima do fator de Fano [6,7]. Em consequência, um GPSC pode atingir resoluções em energia que são da ordem de metade das obtidas num PC convencional.

O GPSC, a emissão de EL em gases nobres e os mecanismos de cintilação, que têm sido alvo de numerosas investigações e aplicações [8-34], são aqui resumidamente apresentados.

2.1.1 Contador gasoso de cintilação proporcional (GPSC)

Um *Contador Gasoso de Cintilação Proporcional* (GPSC) tem geralmente duas regiões distintas: a *região de absorção/deriva* e a *região de cintilação*.

A absorção da radiação incidente na região de absorção/deriva resulta numa nuvem de eletrões primários que é encaminhada para a região de cintilação pela ação de um campo elétrico cuja intensidade, sendo suficiente para minimizar o efeito da recombinação eletrão-ião, não permite no entanto a ocorrência de excitação eletrónica do meio gasoso. Um estudo pormenorizado da formação da nuvem de eletrões primários em Xe foi realizado por simulação de Monte Carlo em [19].

Na região de cintilação, o campo elétrico é mais intenso, situando-se entre os limiares de excitação eletrónica e de ionização do gás e tão próximo deste quanto possível, de modo a otimizar o número de excitações eletrónicas e de fotões de EL emitidos, ou seja, de modo a otimizar a amplificação.

A geometria típica de um GPSC é plana, com a região de cintilação delimitada por duas grelhas paralelas entre as quais se estabelece um campo elétrico uniforme. Em geometria cilíndrica, por vezes também usada, a região de cintilação é confinada à região próxima do ânodo onde o campo é superior ao limiar de excitação eletrônica, estabelecendo-se à superfície do ânodo central um campo próximo, mas inferior, ao limiar de ionização. O GPSC opera geralmente à temperatura ambiente e a pressões de enchimento próximas da pressão atmosférica ou superiores.

Os gases nobres puros Xe, Kr e Ar são o enchimento usual dos GPSCs, pois permitem a maximização do número de elétrons primários e de fótons de EL, em virtude de vários fatores: elevadas secções eficazes de fotoionização, baixos valores da energia média despendida para produzir um elétron primário, elevada eficiência de excitação eletrônica dos átomos por impacto de elétron (não ocorre excitação de níveis vibracionais ou rotacionais e nas colisões elásticas as perdas de energia do elétron são muito pequenas) e emissão de um fóton de EL por cada excitação eletrônica. De entre os três gases, Xe é o enchimento preferencial dos GPSCs pois, sendo o que possui maior massa atômica e mais baixos limiares de excitação e ionização, permite a obtenção de um maior número de elétrons primários e de fótons de cintilação secundária.

No caso de geometria plana (campo elétrico uniforme), a intensidade da EL em Xe apresenta uma dependência aproximadamente linear com o campo elétrico reduzido, como estabelecido em [4] e posteriormente comprovado em várias investigações experimentais (ver p. ex. [20,30]).

Relativamente aos detetores gasosos baseados na amplificação do número de elétrons (PC, MWPC, etc), um GPSC não apresenta problemas de carga espacial resultante da formação de avalanches, podendo suportar elevadas taxas de contagem ($\sim 10^4$ a 10^5 /s) sem deterioração apreciável do sinal. Contudo, a característica que tem sido evidenciada como de maior relevância é a melhoria apreciável conseguida na resolução em energia.

Resolução intrínseca do GPSC

Vários são os fatores que experimentalmente contribuem para a dispersão da resposta de um sistema de espectroscopia de radiação, mas no limite estão as flutuações estatísticas associadas aos processos físicos envolvidos na técnica de deteção escolhida. A resolução em energia R , parâmetro essencial na caracterização de um sistema de espectroscopia, quantifica a dispersão relativa da resposta do sistema à absorção de uma radiação incidente monoenergética, sendo definida pela razão entre a largura a meia altura ($FWHM$) e o centroide (E_0) da distribuição (também descrita em termos de desvio padrão σ de uma gaussiana) [5]:

$$R = \frac{FWHM}{E_0} = 2.35 \frac{\sigma}{E_0} . \quad (2.1)$$

A resolução *intrínseca* R_{int} (ou *limite*) de um GPSC tem em conta apenas a contribuição dos processos físicos (de natureza estatística) associados ao seu princípio de funcionamento (excluindo o fotossensor, a eletrônica associada, etc): a produção de elétrons primários, na região de absorção/deriva, e a produção de fótons de EL, na região de cintilação. Deste modo, R_{int} é dada pela **Eq. 2.2**, que envolve apenas as variâncias relativas $F = \sigma_n^2/\bar{n}$ (fator de Fano) e $J = \sigma_{\mathcal{H}}^2/\bar{\mathcal{H}}$ no número n de elétrons primários e \mathcal{H} de fótons de EL emitidos durante a deriva de um elétron primário em torno das respectivas médias \bar{n} e $\bar{\mathcal{H}}$ [5-7,15]:

$$R_{\text{int}}^2 = 2.35^2 (1/\bar{n})(F + J/\bar{\mathcal{H}}) = 2.35^2 (1/\bar{n})(F + Q). \quad (2.2)$$

Em gases nobres, o parâmetro J toma valores muito baixos e o termo $Q = J/\bar{\mathcal{H}}$ é desprezável [15] quando comparado com o fator de Fano F (como se verá no **capítulo 5** para Xe puro), resultando $R_{\text{int}}^2 \cong 2.35^2 (F/\bar{n})$. Deste modo, os GPSCs atingem valores R_{int} consideravelmente inferiores aos obtidos em detetores como o PC e a MWPC, onde o termo relacionado com a amplificação em carga está longe de ser desprezável face ao fator de Fano. Assim, enquanto um GPSC com enchimento a Xe atinge resoluções experimentais típicas de $R \sim 8\%$ para raios X de 5.9 keV [12,25], um PC não vai além de $R \sim 14\%$ para a mesma energia [35].

2.1.2 Mecanismos de eletroluminescência nos gases raros

Os mecanismos de emissão de cintilação secundária nos gases nobres a pressões da ordem da atmosférica têm sido amplamente descritos e discutidos [8-11]. Segue-se uma descrição sumária.

Para as relativamente baixas energias dos elétrons na região de cintilação, os átomos são excitados maioritariamente para os quatro estados excitados atômicos de mais baixa energia: os metaestáveis $1s_5$ (3P_2) e $1s_3$ (3P_0), de longa vida média ($\sim 100 \mu\text{s}$), e os ressonantes $1s_4$ (3P_1) e $1s_2$ (1P_1), que, por efeito de retenção de radiação (repetida emissão radiativa para o estado fundamental e reabsorção), têm uma vida média efetiva comparável à dos metaestáveis. Através de transições de natureza colisional, acabam por predominar os estados $1s_5$ (3P_2) e $1s_4$ (3P_1).

Para pressão superior a ~ 50 Torr, são favorecidas as colisões a 3 corpos dos átomos excitados X^* com átomos no estado fundamental X , originando a formação de excímeros X_2^* (dímeros excitados) nos estados moleculares $^1\Sigma_u^+$ e $^3\Sigma_u^+$, cujos precursores diretos são $1s_5$ e $1s_4$:



Os excímeros decaem para o estado molecular fundamental dissociativo através da emissão radiativa de dois contínuos na região VUV: o *primeiro contínuo* (de maior energia), com origem em estados vibracionais excitados dos excímeros, e o *segundo contínuo* (de menor energia), com origem no estado vibracional fundamental dos excímeros.

Com o aumento da pressão, devido a relaxação dos estados vibracionalmente excitados para o estado fundamental, a emissão do primeiro contínuo diminui progressivamente e, para pressão superior a algumas centenas de Torr, só a emissão do segundo contínuo ocorre. As distribuições espectrais do segundo contínuo em Xe, Kr e Ar estão centradas em 172, 148 e 128 nm, respectivamente, e estão representadas na **Fig. 2.1**.

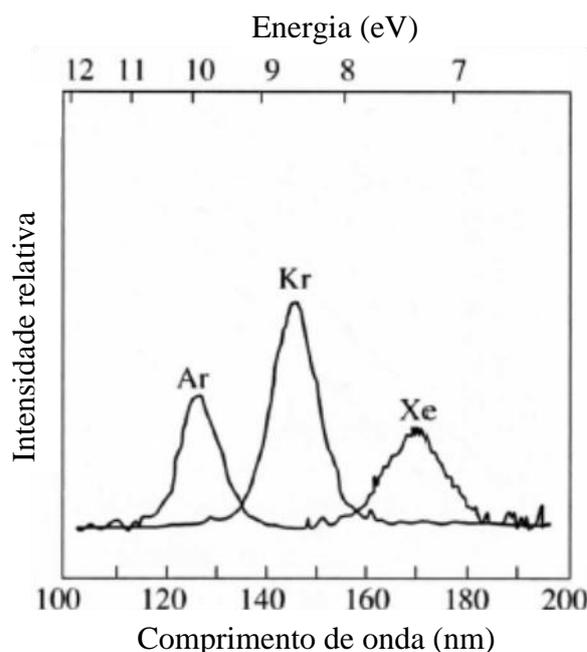


Figura 2.1 – Espectro de cintilação dos gases raros Ar (760 Torr), Kr (560 Torr) e Xe (300 Torr) baseado em [8].

Em conclusão, pode dizer-se que ao longo da deriva dos elétrons primários na região de cintilação dum GPSC (enchimento com gás nobre a ~1 atm), por cada excitação de um átomo do gás por impacto de elétron é emitido um fóton de EL no segundo contínuo.

No que se refere à cintilação primária, observações experimentais indicam que o seu espectro de emissão é semelhante ao da cintilação secundária para pressão superior a 300 Torr [13].

2.1.3 Eletroluminescência na presença de aditivos moleculares

A presença de impurezas ou aditivos moleculares num GPSC, mesmo em concentrações residuais, é geralmente indesejável, porque reduz a emissão de fótons de EL e introduz flutuações adicionais nessa emissão, causando necessariamente uma degradação da resolução em energia. Contudo, a dopagem do gás nobre com alguns gases moleculares específicos é considerada em algumas aplicações para alcançar benefícios relativamente aos parâmetros de deriva, procurando-se nesse caso um compromisso com a inevitável degradação da resolução. É nesse contexto que será analisada no **capítulo 5** a adição de CH_4 e CF_4 a Xe.

São vários os efeitos que contribuem para a redução da emissão de cintilação secundária e aumento das suas flutuações na presença de gases moleculares, como se resume a seguir.

No caso dos gases nobres mais pesados, a excitação eletrónica dos átomos na região de cintilação de um GPSC é o principal canal de dissipação da energia dos elétrons [17,19,21,22], sendo

muito elevada a eficiência de excitação, uma vez que, embora as colisões elásticas sejam muito mais numerosas, os elétrons (de massa m) perdem em média uma fração muito pequena ($\sim 2m/M$) da sua energia nessas colisões com os átomos (de massa M). Contudo, na presença de gases moleculares os elétrons sofrem colisões que excitam os níveis vibracionais e rotacionais do aditivo e que competem eficientemente com as colisões elásticas, reduzindo a eficiência de excitação eletrônica dos átomos e, conseqüentemente, a emissão de fótons de EL.

Por outro lado, como veremos no **capítulo 5**, podem ser efeitos importantes a perda de elétrons por captura pelas moléculas do aditivo e a inibição (*quenching*) da emissão da cintilação secundária através de mecanismos alternativos à formação dos excímeros responsáveis pela cintilação (**Eq. 2.3**). Os estados atômicos excitados $1s_5$ (3P_2) e $1s_4$ (3P_1), precursores diretos dos excímeros X_2^* , podem ser desativados através de mecanismos de colisão de 2 ou 3 corpos envolvendo moléculas Y de gás molecular [36-43]:



2.2 Fotodeteção em meio gasoso

Em detetores cujo princípio de funcionamento é baseado na produção de fótons, tais como GPSC, detetor RICH e cintiladores sólidos, é necessário recorrer a um fotossensor que recolha os fótons emitidos e converta, por efeito fotoelétrico, o sinal luminoso num sinal elétrico que lhe seja proporcional, que será processado por um circuito eletrônico adequado. Contudo, de modo a distinguir o sinal face ao ruído eletrônico, não desprezável à temperatura ambiente, é geralmente necessário incluir um estágio de amplificação do sinal. A deteção da radiação de Cherenkov, particularmente em sistemas RICH com sensibilidade a fóton único, tem exigido intensa investigação no campo dos fotodetetores gasosos [44-46].

2.2.1 Meio fotossensor

O iodeto de cézio (CsI) é conhecido como fotoconversor desde os anos cinquenta do século passado [47-49], mas o interesse no seu uso apenas se intensificou no final da década de oitenta, em diferentes campos de aplicação, tais como a deteção da cintilação VUV de xénon [50] e de fótons VUV em detetores RICH [51] e em cintiladores sólidos [52]. As propriedades que os filmes de CsI manifestam e que os qualificam vantajosamente como fotocátodos conduziram a uma intensa investigação cujos resultados se encontram sumariados em [53].

O CsI apresenta elevada eficiência quântica na região do VUV [54], já que conjuga uma grande probabilidade de escape para os fotoelétrons originados no seu interior [55-57] com uma afinidade eletrônica reduzida, de cerca de 0.1-0.2 eV [53]. Para fótons com comprimento de onda superior a ~150 nm, a eficiência quântica do CsI é apenas suplantada pela do fotoconversor gasoso conhecido por TMAE [58], que no entanto não é geralmente preferido ao CsI, devido aos inconvenientes que apresenta.

O fotoconversor gasoso TMAE, devido ao baixo valor de pressão de vapor à temperatura ambiente (0.55 Torr a 300 K), obriga ao recurso a fotodetetores mais longos e/ou operação a temperatura superior à ambiente para assegurar uma boa eficiência de fotoconversão. O aumento do tempo de deriva dos fotoelétrons implica maiores tempos de reposta e, por outro lado, o aumento considerável da temperatura pode prejudicar o bom funcionamento do detetor. Além disso, a fotoconversão pelo gás piora a resolução temporal e espacial relativamente a um filme de fotoconversor sólido (com localização precisa) e, ao acumular carga espacial no gás, exclui a operação do fotodetector para maior fluxo de fótons. Por outro lado, o gás TMAE é extremamente reativo quimicamente, exigindo um alto controle da pureza dos gases no detetor.

Para além da elevada eficiência quântica, os filmes de CsI apresentam outras características que tornam vantajosa a sua utilização como fotocátodos: são fáceis de produzir através de evaporação térmica em vácuo; não são quimicamente reativos; são relativamente estáveis quando expostos a gases secos e, como não são demasiado higroscópicos, suportam o contacto com o ar ambiente durante alguns minutos sem danos irreversíveis; o baixo valor da sua resistividade (10^{10} - 10^{11} Ω m [59]) possibilita a operação sob a incidência de altos fluxos de fótons; a sua insensibilidade à luz visível não obriga a um isolamento ótico rigoroso.

As propriedades vantajosas dos filmes de CsI, que os tornam preferidos como fotocátodos, têm conduzido a uma intensa investigação sumariada em diversas publicações [53,60-64] e suas referências.

2.2.2 Fotocátodos

Um fotocátodo é geralmente um filme de semicondutor fotossensível depositado num substrato e opera em configuração *refletiva* (ou *opaca*) ou *transmissiva* (ou *semi-transparente*). Num fotocátodo refletivo os fótons incidem no filme do mesmo lado da emissão dos fotoelétrons, enquanto um fotocátodo transmissivo é irradiado através do substrato óticamente transparente.

Nos fotocátodos transmissivos, o filme fotossensível tem uma espessura otimizada (dependente do comprimento de onda da radiação VUV), resultante do compromisso entre uma eficiente absorção da radiação incidente, favorecida por uma maior espessura, e a criação da maioria

dos fotoelétrons numa região que permita o seu escape para a superfície de emissão, o que implica espessuras não muito superiores ao comprimento de escape dos fotoelétrons [56,57]. Neste sentido, a produção de fotocátodos transmissivos é uma tarefa delicada. Os fotocátodos refletivos, para além de apresentarem melhor eficiência quântica que os transmissivos, não manifestam alterações da eficiência quântica com a variação da espessura, desde que esta se mantenha superior a um valor mínimo, dependente do meio fotoconversor.

2.2.3 Fotocátodos em meio gasoso

A emissão de fotoelétrons por um fotocátodo integrado em meio gasoso, traz vantagens que à frente serão abordadas, mas acarreta também algumas desvantagens que são limitativas do funcionamento de fotocátodos nesse meio. Essas limitações são aqui expostas e são discutidos aspetos que podem reduzir ou até superar os problemas que se levantam.

2.2.3.1 Retrodifusão dos fotoelétrons

Uma fração dos fotoelétrons emitidos por um fotocátodo num meio gasoso, ao contrário do que acontece em vazio, é alvo de retrodifusão para o fotocátodo, devido às colisões com átomos/moléculas do meio, o que significa que nem todos os fotoelétrons ejetados são efetivamente extraídos do fotocátodo pelo campo elétrico aplicado, sendo a retrodifusão em certas condições responsável pela perda de grande parte dos fotoelétrons e, conseqüentemente, por uma redução da eficiência quântica efetiva. A eficiência de extração dos fotoelétrons depende do material do fotocátodo, do meio gasoso, do campo elétrico reduzido, da energia dos fótons absorvidos no fotocátodo e eventualmente de uma reflexão dos fotoelétrons na superfície do fotocátodo. A extração de fotoelétrons de fotocátodos de CsI é objeto de estudo nesta dissertação (**capítulo 4**).

2.2.3.2 Realimentação positiva por fótons

Para valores de campo elétrico reduzido superiores ao limiar de excitação, em alguns meios gasosos de enchimento ocorre emissão de cintilação secundária que, ao incidir no fotocátodo, provoca a emissão de novos fotoelétrons, criando o fenómeno de realimentação positiva por fótons (*photon-feedback*) e que pode ser observado na **secção 4.2.2** para os gases nobres puros e algumas misturas destes com um gás molecular em pequena concentração. Para que este fenómeno aconteça, é necessário que a emissão de cintilação não seja inibida ou os fótons não sejam absorvidos pelo meio e que o fotocátodo seja sensível a essa cintilação. Nos detetores baseados em eletroluminescência,

ocorrerá realimentação positiva que pode levar à deterioração da operação do detetor e à formação de descargas indesejáveis. A realimentação positiva conduz ainda à deterioração das resoluções espacial e temporal.

Contudo, a realimentação positiva por fótons pode ser suprimida através da escolha de um meio gasoso apropriado e/ou de uma geometria adequada do fotodetetor que evite a chegada de fótons secundários ao fotocátodo. Quando se pretende detetar a cintilação num fotodetetor integrado num GPSC, a opção por um meio gasoso em que a cintilação seja inibida ou absorvida não faz sentido, pois inviabilizaria o princípio de funcionamento do GPSC, restando apenas a hipótese da opção por uma geometria propícia à supressão da realimentação positiva. Neste sentido tem sido realizada investigação profícua, com sugestão de fotodetetores com configurações, abaixo assinaladas, designadas para esse fim.

2.2.3.3 Fluxo de iões positivos

Os iões positivos gerados na multiplicação em carga durante as avalanches nos fotodetetores induzem efeitos secundários que prejudicam o desempenho do detetor. O fluxo lento dos iões positivos, no sentido contrário ao dos eletrões, leva à acumulação significativa de carga espacial, com a conseqüente distorção do campo elétrico e instabilidades inerentes. Por outro lado, os iões positivos ao colidirem com o fotocátodo podem libertar fotoeletrões secundários, num processo de realimentação semelhante ao originado pelos fótons de cintilação, que se pode chamar de *ion-feedback* e que pode também conduzir a descargas indesejadas. Estes efeitos secundários confinam o funcionamento estável do fotodetetor a ganhos limitados, o que pode implicar a integração do sinal durante tempos mais longos, impedindo a utilização do fotodetetor para fluxos elevados de fótons. A fração média de iões originados nas avalanches que atingem o fotocátodo é usualmente representada por IBF (*ion back-flow fraction*).

O bombardeamento da superfície do fotocátodo pelos iões positivos conduz ao envelhecimento do detetor, de forma semelhante à da incidência de fluxos elevados de fótons, provocando um severo decréscimo da eficiência quântica e limitando a vida do fotocátodo [65,66].

Em determinados detetores, como câmaras de placas paralelas ou MWPCs, praticamente todos os iões positivos formados atingem o fotocátodo, com as conseqüências negativas que daí advêm. Apesar de este ser um problema de solução mais difícil do que a realimentação positiva por fótons, da sua investigação intensa têm também surgido soluções adequadas, através de montagens em cascata, que permitem reduzir significativamente os seus efeitos negativos.

2.2.4 Fotodetektoretos gasosos

O *fotodetektor gasoso* usualmente denominado *fotomultiplicador gasoso* (GPM), constituído, nas suas configurações mais recentes, por um fotocátodo sólido (geralmente CsI) acoplado em meio gasoso a microestruturas planares perfuradas dispostas em cascata, é o resultado de investigação intensiva, cujos aspetos essenciais serão aqui sumariamente descritos. A disposição em cascata tem o propósito de alcançar a multiplicação de carga em vários estágios e simultaneamente conseguir a supressão ou a redução significativa dos aspetos limitativos que acabámos de abordar. Os GPMs mais recentes competem com os fotodetektoretos de estado sólido (fotodíodo, fotodíodos de avalanche – APD, LAAPD e G-APD –, etc), com o fotomultiplicador (PMT) e com o fotodetektor híbrido (HPD).

O interesse nos GPMs está associado às suas características e ao facto de representarem a solução de mais baixo custo no que respeita a grandes áreas de deteção [64], características que são indicadas em várias publicações de revisão (ver p. ex. [60-64]) e que são aqui sumariadas. O alto ganho proporcionado num GPM, excedendo 10^6 , garante a sensibilidade a fotoelétrão único. Num GPM podem ser conseguidas respostas temporais muito rápidas, o que possibilita uma alta frequência de contagem e boas resoluções espaciais. Os GPMs podem operar sob a influência de campos magnéticos elevados. Não obstante, a principal vantagem dos GPMs é a capacidade de operar à pressão atmosférica, com dimensões tão elevadas que, em geometria plana, a sua área ativa pode ser da ordem de alguns m^2 . Outra vantagem dos GPMs é o facto de poderem ser integrados no volume ativo do detektor (GPSC, RICH, etc) onde são produzidos os fotões a detetar, dispensando a janela de separação.

A principal desvantagem dos GPMs está relacionada com o valor apreciável das flutuações inerentes à multiplicação em carga, princípio em que se baseiam.

Há já algumas décadas que os GPMs vêm sendo selecionados como detektoretos de fotões num grande número de experiências, em particular na representação de imagem em sistemas RICH [44,45], à medida que alguns aspetos limitativos do seu funcionamento foram sendo ultrapassados. A evolução dos GPMs é usualmente decomposta em três fases [63,64]. Na fase inicial, os GPMs recorrem a fotoconvertedores gasosos, como TMAE e TEA, que, como já evidenciado, têm desvantagens em relação aos filmes de CsI, que os substituem nas duas fases seguintes. Na segunda fase, os fotocátodos de CsI são acoplados a MWPCs, com o desenvolvimento das avalanches a ocorrer junto aos ânodos, perto do fotocátodo, numa geometria que não permite a proteção do fotocátodo relativamente à incidência dos fotões e dos iões positivos oriundas da avalanche. Os GPMs de terceira fase surgem com a inclusão de GEMs [67] ou seus derivados, cuja montagem em cascata permite, se não ultrapassar totalmente aquelas limitações, reduzi-las significativamente.

Dos GPMs de terceira fase, a configuração mais convencional e pioneira é mostrada na **Fig. 2.2** e consiste numa cascata de GEMs, um ânodo (segmentado) e um fotocátodo, em configuração transmissiva (**Fig. 2.2a**) ou refletiva (**Fig. 2.2b**), em meio gasoso.

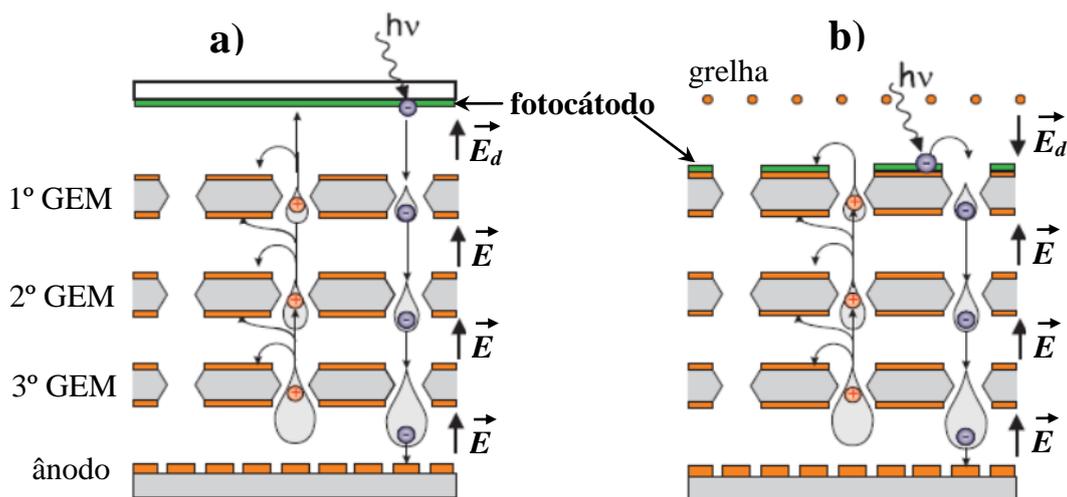


Figura 2.2 – Representação esquemática de um GPM com três GEMs em cascata acoplados a um fotocátodo **a)** transmissivo e **b)** refletivo. Encontram-se representadas as trajetórias dos elétrons e algumas possíveis dos íons positivos formados nas avalanches (Fig. 3.11 de [68]).

Os fotoeltrões extraídos do fotocátodo são encaminhados para os orifícios do 1º GEM pelo campo elétrico resultante do campo de deriva \vec{E}_d (**Fig. 2.2b**) e do campo \vec{E}_{GEM} (**Fig. 2.3**). Nos orifícios de cada GEM, devido ao elevado campo elétrico \vec{E}_{GEM} , formam-se avalanches de elétrons, elétrons que são conduzidos de cada GEM da cascata para o seguinte, onde se estabelecem avalanches de maior dimensão, sendo a totalidade dos elétrons finalmente recolhida no ânodo. Os íons positivos provenientes das avalanches movem-se no sentido contrário ao dos elétrons, podendo ser recolhidos em várias partes da cascata e no fotocátodo, como indicado na **Fig. 2.2**.

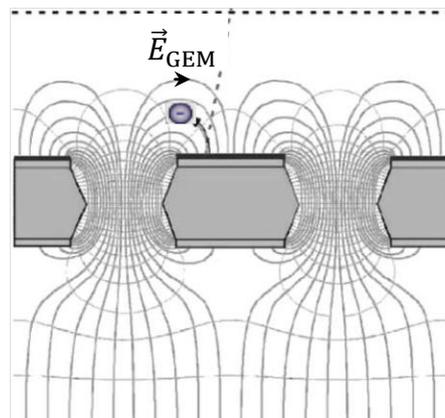


Figura 2.3 – Representação esquemática das linhas de campo elétrico \vec{E}_{GEM} e superfícies equipotenciais do primeiro GEM da cascata acoplado a um fotocátodo refletivo [69].

Este tipo de detetor (considerado como de geometria fechada, em contraste com as MWPCs de geometria aberta) permite uma eficiente blindagem ótica aos fótons provenientes das avalanches, o que evita os efeitos prejudiciais da realimentação positiva por fótons atrás referida. Nestas condições torna-se exequível a obtenção de ganhos elevados, da ordem de 10^6 , possibilitando sensibilidade a fotoeltrão único. Na deteção de fotoeltrão único é ainda crucial que a eficiência de extração dos fotoeltrões do fotocátodo seja elevada.

Nestes GPMs, a sensibilidade de deteção dos fótons é ditada essencialmente por três eficiências parciais: a eficiência quântica do fotocátodo (**secção 2.2.2**), a eficiência de extração dos fotoeltrões do fotocátodo (**secção 2.2.3.1**) e a eficiência de encaminhamento dos fotoeltrões para os orifícios do 1º GEM. A eficiência de extração dos fotoeltrões pode aproximar-se da unidade em determinados meios gasosos e condições, como se verá no **capítulo 4**. A eficiência de encaminhamento dos fotoeltrões para os orifícios do 1º GEM depende da geometria do detetor (principalmente

do diâmetro dos orifícios), dos campos elétricos (\vec{E}_d e \vec{E}_{GEM}) e do meio gasoso de enchimento [60]. Em condições apropriadas, cada fotoeltrão extraído do fotocátodo é eficientemente transferido através do 1º GEM para os elementos seguintes da cascata de amplificação [60].

Alguns estudos experimentais (ver por ex. [70,71]) mostram que na configuração refletiva (**Fig. 2.2b**) o aumento do campo elétrico \vec{E}_d , apesar de permitir um ligeiro aumento da corrente dos fotoeltrões extraídos, conduz a uma perda considerável de fotoeltrões para a grelha acima do fotocátodo, afetando de forma notória a desejada transferência dos fotoeltrões para os orifícios do 1º GEM.

Globalmente, a configuração do GPM com fotocátodo refletivo (**Fig. 2.2b**) oferece vantagens relativamente à configuração com fotocátodo transmissivo (**Fig. 2.2a**). Apesar de o fotocátodo refletivo oferecer uma secção fotossensível ativa diminuída (em cerca de 20%) devido aos orifícios, o fotocátodo refletivo possui uma eficiência quântica superior e é de produção mais simples, como já referido na **secção 2.2.2**. Para além disso, na configuração da **Fig. 2.2b**, o *photon-feedback* é totalmente cancelado e o sentido do campo elétrico \vec{E}_d torna o detetor insensível à radiação ionizante de fundo depositada no GPM [60,63].

A estrutura compacta dos GEMs em cascata e a reduzida difusão transversal e longitudinal das avalanches proporciona rápidos impulsos de corrente com cerca de 10-20 ns de largura, dependendo do meio gasoso e do número de GEMs em cascata [60]. Como consequência, estes GPMs permitem uma boa resolução temporal (com valores frequentemente inferiores a 1 ns [60]), que possibilita a sua operação com taxas de fotões superiores a 1 MHz/mm², e, quando incorporam um ânodo devidamente segmentado, oferecem excelentes características espaciais (incerteza de 70-100 µm [60]).

No entanto, os GPMs com GEMs em cascata, apesar da redução apreciável da IBF que atinge o fotocátodo, não permitem reduzi-la abaixo de 2% com fotocátodo transmissivo e de 10% com refletivo [63], sem diminuição do campo elétrico de extração (ou seja, sem prejuízo da eficiência de extração dos fotoeltrões) [63,64]. Para conseguir uma redução mais significativa é necessário recorrer a microestruturas mais elaboradas, como a MHSP [72] ou a Cobra [73], mostradas na **Fig. 2.4** juntamente com o GEM. A inclusão da Cobra na cascata permite a maior redução da IBF, mas, por outro lado, determina uma perda significativa da eficiência de deteção dos fotoeltrões [63]. Quando são necessários ganhos muito elevados em condições que exijam uma maior supressão da IBF, algumas configurações incluindo microestruturas derivadas da MHSP podem ser utilizadas [63].

Recentemente, uma nova microestrutura, o THGEM [74], tem sido alvo de grande atenção devido à sua simplicidade e robustez [63,64,75], podendo ser utilizado em cascata, como mostrado na **Fig. 2.2** para o GEM. O THGEM (**Fig. 2.4d**) tem uma estrutura de orifícios similar à do GEM e difere deste pelas dimensões dos orifícios (uma ordem de grandeza superior), material e tecnologia de fabrico.

A maior largura dos orifícios, superior à difusão transversal dos elétrons, permite um eficiente encaminhamento dos elétrons na cascata de THGEMs pelo que, para atingir o mesmo ganho total, a multiplicação dos elétrons num orifício não necessita de ser tão elevada como num GEM, com a consequente diminuição do número de iões positivos formados [75]. O anel (*rim*) que geralmente envolve os orifícios do THGEM tem como função reduzir significativamente a probabilidade de ocorrência de descargas elétricas, resultando na possibilidade de operação a maiores ganhos [75]. Pode concluir-se que os THGEMs podem substituir os GEMs com vantagem, desde que não sejam requeridas resoluções espaciais muito exigentes, no que o THGEM oferece pior desempenho que o GEM [64,75]. Os GPMs com THGEMs acoplados a fotocátodos de CsI têm sido investigados recentemente em diversas aplicações, incluindo deteção de radiação Cherenkov em sistemas RICH e de cintilação em detetores de líquidos nobres [76].

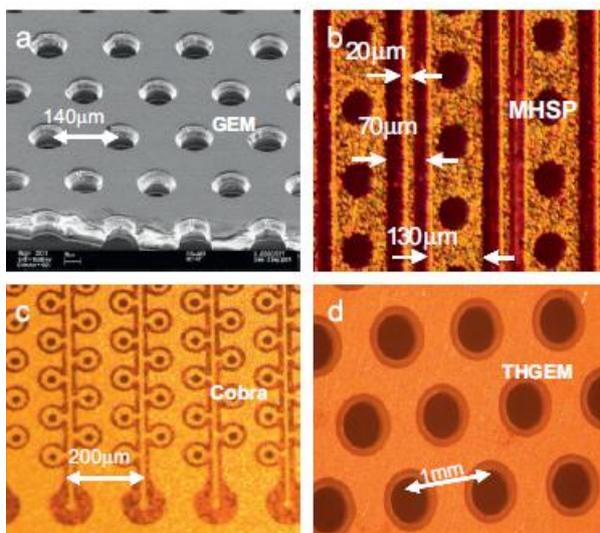


Figura 2.4 – Fotografias das microestruturas: **a)** GEM, **b)** MHSP, **c)** Cobra e **d)** THGEM. [63].

Referências

- [1] C.A.N. Conde e A.J.P.L. Policarpo, *A Gas Proportional Scintillation Counter*, **Nucl. Instrum. Meth.** **53** (1967) 7-12.
- [2] A.J.P.L. Policarpo, M.A.F. Alves e C.A.N. Conde, *The argon-nitrogen Proportional Scintillation Counter*, **Nucl. Instrum. Meth.** **55** (1967) 105-19.
- [3] A.J.P.L. Policarpo, C.A.N. Conde e M.A.F. Alves, *Large light output Gas Proportional Scintillation Counters*, **Nucl. Instrum. Meth.** **58** (1968) 151-6.
- [4] C.A.N. Conde, L.R. Ferreira e M.F.A. Ferreira, *The secondary scintillation output of xenon in a uniform field Gas Proportional Scintillation Counter*, **IEEE Trans. Nucl. Sci.** **24** (1977) 221-4.
- [5] G.F. Knoll, *Radiation detection and measurement* (John Wiley & Sons, New York) **2000**.
- [6] E.P. de Lima, M.S.S.C.P. Leite, M.A.F. Alves e A.J.P.L. Policarpo, *Fano factors of rare gases and their mixtures*, **Nucl. Instrum. Meth.** **192** (1982) 575-81.
- [7] T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *The Fano factor in gaseous xenon: A Monte Carlo calculation for X-rays in the 0.1 to 25 keV energy range*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **307** (1991) 341-6.
- [8] M. Suzuki e S. Kubota, *Mechanism of proportional scintillation in argon, krypton and xenon*, **Nucl. Instrum. Meth.** **164** (1979) 197-9.
- [9] M.S.S.C.P. Leite, *Radioluminescence of rare gases*, **Port. Phys.** **11** (1980) 53-73.
- [10] A.J.P.L. Policarpo, *Light production and gaseous detectors*, **Phys. Scripta** **23** (1981) 539-49.
- [11] Y.K. Akimov, *Scintillations in noble gases and their application (Review)*, **Instrum. Exp. Tech.** **41** (1998) 1-32.
- [12] H.E. Palmer e L.A. Braby, *A parallel plate Gas Scintillation Proportional Counter for improved resolution of low-energy photons*, **Nucl. Instrum. Meth.** **116** (1974) 587-9.
- [13] P.K. Lechner e R.J. Ericson, *Time dependence of the vacuum-ultraviolet emissions in krypton excited by 250-keV electrons*, **Phys. Rev. A** **9** (1974) 251-9.
- [14] G. Hordósy e G. Hrehuss, *Energy resolution and light-gain of Gas Proportional Scintillation Counters*, **Nucl. Instrum. Meth.** **177** (1980) 449-57.
- [15] A.J.P.L. Policarpo, *Ionizations scintillation detectors*, **Nucl. Instrum. Meth.** **196** (1982) 53-62.
- [16] M.A. Feio, A.J.P.L. Policarpo e M.A.F. Alves, *Thresholds for secondary light emission by noble gases*, **Jpn. J. Appl. Phys.** **21** (1982) 1184-90.
- [17] T.H.V.T. Dias, *Simulação do transporte de elétrons em gases raros*, **Tese de Doutorado**, Universidade de Coimbra, **1986**.
- [18] F. Favata, A. Smith, M. Bavdaz e T.Z. Kowalski, *Light yield as a function of gas pressure and electric field in Gas Scintillation Proportional Counters*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **294** (1990) 595-601.
- [19] T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Monte Carlo simulation of X-ray absorption and electron drift in gaseous xenon*, **Phys. Rev. A** **48** (1993) 2887-902.
- [20] T.H.V.T. Dias, *Physics of noble gas X-ray detectors: A Monte Carlo simulation study* em *Linking the gaseous and condensed phases of matter: The behavior of slow electrons*, editado por L.G. Christophorou, E. Illenberger & W.F. Schmidt (Plenum Press, New York) **1994**.
- [21] F.P. Santos, *Detetores gasosos para raios X: Simulação e estudo experimental*, **Tese de Doutorado**, Universidade de Coimbra, **1994**.

- [22] F.P. Santos, T.H.V.T. Dias, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Three-dimensional Monte Carlo calculation of the VUV electroluminescence and other electron transport parameters in xenon*, *J. Phys. D* **27** (1994) 42-8.
- [23] T.H.V.T. Dias, J.M.F. dos Santos, P.J.B.M. Rachinhas, F.P. Santos, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Full-energy absorption of X-ray energies near the Xe L- and K-photoionization thresholds in xenon gas detectors: Simulation and experimental results*, *J. Appl. Phys.* **82** (1997) 2742-53.
- [24] T.H.V.T. Dias, *Radiation detection with noble gases: Modeling and measurements*, *AIP Conf. Proc.* **475** (1999) 854-7.
- [25] F.I.G.M. Borges, J.M.F. dos Santos, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, P.J.B.M. Rachinhas e C.A.N. Conde, *Operation of Gas Proportional Scintillation Counters in a low charge multiplication regime*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **422** (1999) 321-5.
- [26] P.J.B.M. Rachinhas, P.C.P.S. Simões, J.A.M. Lopes, T.H.V.T. Dias, R.E. Morgado, J.M.F. dos Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Simulation and experimental results for the detection of conversion electrons with Gas Proportional Scintillation Counters*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **441** (2000) 468-78.
- [27] J.M.F. dos Santos, J.A.M. Lopes, J.F.C.A. Veloso, P.C.P.S. Simões, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, P.J.B.M. Rachinhas, L.F.R. Ferreira e C.A.N. Conde, *Development of portable Gas Proportional Scintillation Counters for X-ray spectrometry (Review)*, *X-Ray Spectrom.* **30** (2001) 373-81.
- [28] J.A.M. Lopes, J.M.F. dos Santos, R.E. Morgado e C.A.N. Conde, *A xenon Gas Proportional Scintillation Counter with a UV-sensitive large-area avalanche photodiode*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **48** (2001) 312-9.
- [29] J.A.M. Lopes, *Contadores Gasosos de Cintilação Proporcional: Novas aplicações e tecnologias de fotossensores integrados*, *Tese de Doutorado*, Universidade de Coimbra, 2002.
- [30] C.A.N. Conde, *Gas Proportional Scintillation Counters for X-ray spectrometry em X-ray spectrometry: Recent technological advances*, editado por K. Tsuji, J. Injuk & R. Van Grieken (John Wiley & Sons, New York) 2004.
- [31] C.M.B. Monteiro, L.M.P. Fernandes, J.A.M. Lopes, L.C.C. Coelho, J.F.C.A. Veloso, J.M.F. dos Santos, K. Giboni e E. Aprile, *Secondary scintillation yield in pure xenon*, *JINST* **2** (2007) P05001.
- [32] C.M.B. Monteiro, J.A.M. Lopes, J.F.C.A. Veloso e J.M.F. dos Santos, *Secondary scintillation yield in pure argon*, *Phys. Lett. B* **668** (2008) 167-70.
- [33] C.M.B. Monteiro, *Determination of argon and xenon absolute electroluminescence yields in Gas Proportional Scintillation Counters*, *Tese de Doutorado*, Universidade de Coimbra, 2010.
- [34] A. Buzulutskov, A. Bondar e A. Grebenuk, *Infrared scintillation yield in gaseous and liquid argon*, *Europhys. Lett.* **94** (2011) 52001.
- [35] L.L. Packer, M.L. Jarvinen e H Sipila, *Application of Penning mixture Proportional Counters for gas turbine engine X-ray fluorescence spectrometer wear metal monitor*, *Anal. Chem.* **57** (1985) 1427-33.
- [36] J.E. Velazco e D.W. Setser, *Quenching cross sections for Xe(³P₂) metastable atoms with simple molecules*, *Chem. Phys. Lett.* **25** (1974) 197-200.
- [37] J.H. Kolts, J.E. Velazco e D.W. Setser, *Reactive quenching studies of Xe(6s,³P₂) metastable atoms by chlorine containing molecules*, *J. Chem. Phys.* **71** (1979) 1247-63.
- [38] X. Chen e D.W. Setser, *Electronic quenching rate constants for Xe(³P₂), Ar(³P₀), and Ar(³P₂) atoms by fluorine-containing molecules, SiH₄, SiH₂Cl₂, SiHCl₃, and SiCl₄*, *J. Phys. Chem.* **95** (1991) 8473-82.
- [39] V.A. Alekseev e D.W. Setser, *A pulsed source for Xe(6s[3/2]₁) and Xe(6s'[1/2]₁) resonance state atoms using two-photon driven amplified spontaneous emission from the Xe(6p) and Xe(6p') states*, *J. Chem. Phys.* **105** (1996) 4613-25.

- [40] K. Wojciechowski e M. Foryś, *The mechanism of three-body process of energy transfer from excited xenon atoms to molecules*, **Rad. Phys. Chem.** **54** (1999) 1-10.
- [41] K. Wojciechowski, D. Sugier, K. Wnorowski, J. Kowalczyk e A. Jówko, *The mechanism and kinetics of ozone formation in a pulse radiolysis study of the Ar-O₂ system*, **Nukleonika** **50** (Suppl. 2) (2005) S29-S33 (http://www.ichtj.waw.pl/ichtj/nukleon/back/full/vol50_2005/vol50s2p29f.pdf).
- [42] K.N. Pushkin, N. Hasebe, C. Tezuka, S. Kobayashi, M. Mimura, T. Hosojima, T. Doke, M. Miyajima, *et al.*, *A scintillation response and an ionization yield in pure xenon and mixtures of it with methane*, **Instrum. Exp. Tech.** **49** (2006) 489-93.
- [43] K.N. Pushkin, D.Y. Akimov, A.A. Burenkov, V.V. Dmitrenko, A.G. Kovalenko, V.N. Lebedenko, I.S. Kuznetsov, V.N. Stekhanov, C. Tezuka, S.E. Ulin, Z.M. Uteshev e K.F. Vlasik, *Scintillation light, ionization yield and scintillation decay times in high pressure xenon and xenon methane*, **IEEE Trans. Nucl. Sci.** **54** (2007) 744-50.
- [44] Proc. of Intern. RICH Workshops: **Nucl. Instrum. Meth. A** **343** (1993); **371** (1996); **433** (1999); **502** (2003); **553** (2005).
- [45] F. Piuz, *Ring Imaging Cherenkov systems based on gaseous photo-detectors: Trends and limits around particle accelerators*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **502** (2003) 76-90.
- [46] E. Nappi e J. Seguinot, *Ring imaging Cherenkov detectors: The state of the art and perspectives*, **Rivista del Nuovo Cimento** **28** (2005) 1-130.
- [47] H.R. Philipp e E.A. Taft, *Photoelectric emission from the valence band of cesium iodide*, **J. Phys. Chem. Solids** **1** (1956) 159-63.
- [48] E.A. Taft e H.R. Philipp, *Photoelectric emission from the valence band of some alkali halides*, **J. Phys. Chem. Solids** **3** (1957) 1-6.
- [49] G.R. Carruthers, *Mesh-based semitransparent photocathodes*, **Appl. Opt.** **14** (1975) 1667-72.
- [50] V. Dangendorf, A. Breskin, R. Chechik e H. Schmidt-Böcking, *A gas-filled UV-photon detector with CsI photocathode for the detection of Xe light*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **289** (1990) 322-4.
- [51] J. Séguinot, G. Charpak, Y. Giomataris, V. Peskov, J. Tischhauser e T. Ypsilantis, *Reflective UV photocathodes with gas-phase electron extraction: Solid, liquid, and absorbed thin films*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **297** (1990) 133-47.
- [52] G. Charpak, V. Peskov, D. Scigocki e J. Valbis, *New scintillators for photosensitive gaseous detectors*, **Proc. of Symp. on Particle Identification at High-Luminosity Hadron Colliders** (Batavia IL, USA) (1989) 295-311; G. Charpak, V. Peskov e D. Scigocki, *Study of BaF₂ Calorimeters in future Hadron Colliders*, **Proc. of 9th Workshop INFN: Perspectives for New Detectors in Future Supercolliders** (Erice, Italy) 1989, Preprint CERN-EP/90-41 (1990).
- [53] A. Breskin, *CsI UV photocathodes: History and mystery*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **371** (1996) 116-36.
- [54] P. Miné, *Photoemissive materials and their application to gaseous detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **343** (1994) 99-108.
- [55] A. Akkerman, T. Boutboul, A. Breskin, R. Chechik e A. Gibrekhterman, *Low-energy electron transport in alkali halides*, **J. Appl. Phys.** **76** (1994) 4656-62.
- [56] T. Boutboul, A. Akkerman, A. Breskin e R. Chechik, *Escape length of ultraviolet induced photoelectrons in alkali iodide and CsBr evaporated films: Measurements and modeling*, **J. Appl. Phys.** **84** (1998) 2890-6.
- [57] T. Boutboul, A. Akkerman, A. Gibrekhterman, A. Breskin e R. Chechik, *An improved model for ultraviolet- and X-ray-induced electron emission from CsI*, **J. Appl. Phys.** **86** (1999) 5841-9.

- [58] R.A. Holroyd, J.M. Preses, C.L. Woody e R.A. Johnson, *Measurement of the absorption length and absolute quantum efficiency of TMAE and TEA from threshold to 120 nm*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **261** (1987) 440-4.
- [59] J. Va'vra, A. Breskin, A. Buzulutskov, R. Chechik e E. Shefer, *Study of CsI photocathodes: Volume resistivity and ageing*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **387** (1997) 154-62.
- [60] A. Breskin, M. Balcerzyk, R. Chechik, G.P. Guedes, J. Maia e D. Mörmann, *Recent advances in gaseous imaging photomultipliers*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **513** (2003) 250-5.
- [61] A.F. Buzulutskov, *Radiation detectors based on gas electron multipliers (Review)*, **Instrum. Exp. Tech.** **50** (2007) 287-310.
- [62] A.F. Buzulutskov, *Gaseous photodetectors with solid photocathodes*, **Phys. Particles Nuclei** **39** (2008) 424-53.
- [63] R. Chechik e A. Breskin, *Advances in gaseous photomultipliers*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **595** (2008) 116-27.
- [64] S. Dalla Torre, *Status and perspectives of gaseous photon detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **639** (2011) 111-6.
- [65] B.K. Singh, E. Shefer, A. Breskin, R. Chechik e N. Avraham, *CsBr and CsI UV photocathodes: New results on quantum efficiency and ageing*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **454** (2000) 364-78.
- [66] A. Breskin, D. Mörmann, A. Lyashenko, R. Chechik, F.D. Amaro, J.M. Maia, J.F.C.A. Veloso e J.M.F. dos Santos, *Ion-induced effects in GEM and GEM/MHSP gaseous photomultipliers for the UV and the visible spectral range*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **553** (2005) 46-52.
- [67] F. Sauli, *GEM: A new concept for electron amplification in gas detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **386** (1997) 531-4.
- [68] A. Lyashenko, *Development of gas-avalanche photomultipliers sensitive in the visible spectral range*, **Ph.D Thesis**, Weizmann Institute of Science (Rehovot, Israel) 2009.
- [69] T. Meinschad, L. Ropelewski e F. Sauli, *GEM-based photon detector for RICH applications*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **535** (2004) 324-9.
- [70] D. Mörmann, A. Breskin, R. Chechik, P. Cwetanski e B.K. Singh, *A gas avalanche photomultiplier with a CsI-coated GEM*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **478** (2002) 230-4.
- [71] D. Mörmann, A. Breskin, R. Chechik e C. Shalem, *Operation principles and properties of the multi-GEM gaseous photomultiplier with reflective photocathode*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **530** (2004) 258-74.
- [72] J.F.C.A. Veloso, J.M.F. dos Santos e C.A.N. Conde, *A proposed new microstructure for gas radiation detectors: The microhole and strip plate*, **Rev. Sci. Instrum.** **71** (2000) 2371-6.
- [73] A. Lyashenko, A. Breskin, R. Chechik, J.M.F. dos Santos, F.D. Amaro e J.F.C.A. Veloso, *Efficient ion blocking in gaseous detectors and its application to gas-avalanche photomultipliers sensitive in the visible-light range*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **598** (2009) 116-20.
- [74] R. Chechik, A. Breskin, C. Shalem e D. Mörmann, *Thick GEM-like hole multipliers: Properties and possible applications*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **535** (2004) 303-8.
- [75] A. Breskin, R. Alon, M. Cortesi, R. Chechik, J. Miyamoto, V. Dangendorf, J.M. Maia e J.M.F. dos Santos, *A concise review on THGEM detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **598** (2009) 107-11.
- [76] A. Breskin, V. Peskov, M. Cortesi, R. Budnik, R. Chechik, S. Duval, D. Thers, A.E.C. Coimbra, J.M.F. dos Santos, J.A.M. Lopes, C.D.R. Azevedo e J.F.C.A. Veloso, *CsI-THGEM gaseous photomultipliers for RICH and noble-liquid detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **639** (2011) 117-20.

Capítulo 3

Modelo de simulação de Monte Carlo: Estrutura e teste

De modo a estudar de uma forma detalhada, clarificando o comportamento de alguns parâmetros relevantes, a retrodifusão de fotoelétrons emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso (**capítulo 4**) e a eletroluminescência produzida em Xe puro e em Xe dopado com CH₄ ou CF₄ (**capítulo 5**), recorre-se ao método de Monte Carlo que, de um modo versátil, socorrendo-se da comparação de números gerados aleatoriamente com as apropriadas distribuições cumulativas de probabilidade, permite simular o comportamento de fenómenos de natureza probabilística, como é o caso dos envolvidos no presente estudo.

Este capítulo é destinado a descrever de uma forma sucinta as ferramentas usadas na simulação e a testá-las adequadamente. Nesse sentido, na **secção 3.1** são apresentados os processos físicos tidos em conta na simulação, acompanhados das correspondentes secções eficazes integrais, parciais e diferenciais angulares. Na **secção 3.2** é descrito o modelo de simulação de Monte Carlo usado para reproduzir a deriva dos elétrons no meio gasoso sob influência do campo elétrico, incluindo as condições iniciais e os critérios de paragem da simulação para cada um dos estudos realizados. Para finalizar, na **secção 3.3** são mostrados os resultados obtidos por simulação para os parâmetros de deriva de elétrons nos meios gasosos examinados e comparados com resultados experimentais publicados na literatura, de forma a testar o modelo de simulação e as secções eficazes adotadas.

3.1 Secções eficazes de difusão de elétrons

No estudo de qualquer fenómeno físico através do método de simulação de Monte Carlo é necessário conhecer as secções eficazes para os processos em causa, de modo a poder reproduzi-los

adequadamente na simulação, sendo vantajoso que elas sejam ajustadas por expressões analíticas simples para facilitar o cálculo computacional.

Na presente investigação é simulada a deriva de eletrões em meios gasosos que contêm os gases nobres xénon (Xe), árgon (Ar) ou néon (Ne), e os gases moleculares metano (CH₄), tetrafluoreto de carbono (CF₄) ou dióxido de carbono (CO₂), pelo que nesta secção são apresentadas as secções eficazes de difusão de eletrões nestes gases.

Nos principais estudos levados a cabo nesta dissertação por simulação de Monte Carlo, nomeadamente estudo da extração dos fotoeletrões e estudo da eletroluminescência de Xe, a gama de campo elétrico reduzido considerada é inferior a $E/N = 40$ Td ($1 \text{ Td} = 10^{-17} \text{ V cm}^2$), sendo N o número de átomos/moléculas por unidade de volume. No entanto, com o intuito de testar as secções eficazes que serão usadas, foram calculados alguns parâmetros de deriva de eletrões para E/N até 100 Td. Dentro desta gama de E/N , são apresentadas na **Fig. 3.1** as distribuições $\mathcal{A}(\varepsilon)$ de energia ε dos eletrões em gases puros ao colidirem com átomos/moléculas para 20 e 100 Td. Para E/N inferior a 20 Td, não ocorrem ionizações nos gases moleculares puros, quase não ocorrem em Xe e Ar puros e são pouco frequentes em Ne puro, como se pode inferir da **Fig. 3.1**. Para 100 Td, a ionização é pouco frequente nos gases moleculares, mas é significativa nos gases nobres, principalmente em Ne. Nas misturas entre um gás nobre e um gás molecular, o comportamento será intermédio, sobrepondo-se, contudo, o efeito dos gases moleculares, como se verificará na **secção 3.3**.

Dada a escassez de informação relativa à deflexão angular na difusão elástica dos eletrões nos gases moleculares estudados, considera-se que é isotrópica nestes gases e a anisotropia é tida em conta através do uso da secção eficaz de transferência de quantidade de movimento de difusão elástica. Este método permite resultados equivalentes aos conseguidos usando a secção eficaz diferencial angular juntamente com a secção eficaz elástica integral, quando a anisotropia da difusão angular elástica não é elevada, como acontece para a gama de valores intermédios de E/N considerada na presente dissertação [1,2].

3.1.1 Gases nobres

Na colisão de um eletrão com um átomo dum gás nobre podem ocorrer os processos de difusão elástica, excitação eletrónica e ionização do átomo.

Uma vez que serão examinadas misturas de gases nobres com gases moleculares, usam-se também secções eficazes de transferência de quantidade de movimento associadas a isotropia para representar a difusão elástica com átomos de gases nobres.

Na gama de energia de interesse dos estudos por simulação de Monte Carlo apresentados nesta dissertação, os processos inelásticos de excitação e ionização são pouco frequentes, predominando a

difusão elástica. No entanto, é de salientar que no estudo da eletroluminescência de xénon os processos inelásticos em Xe são de grande importância, pois é a excitação dos átomos que é responsável pela eletroluminescência.

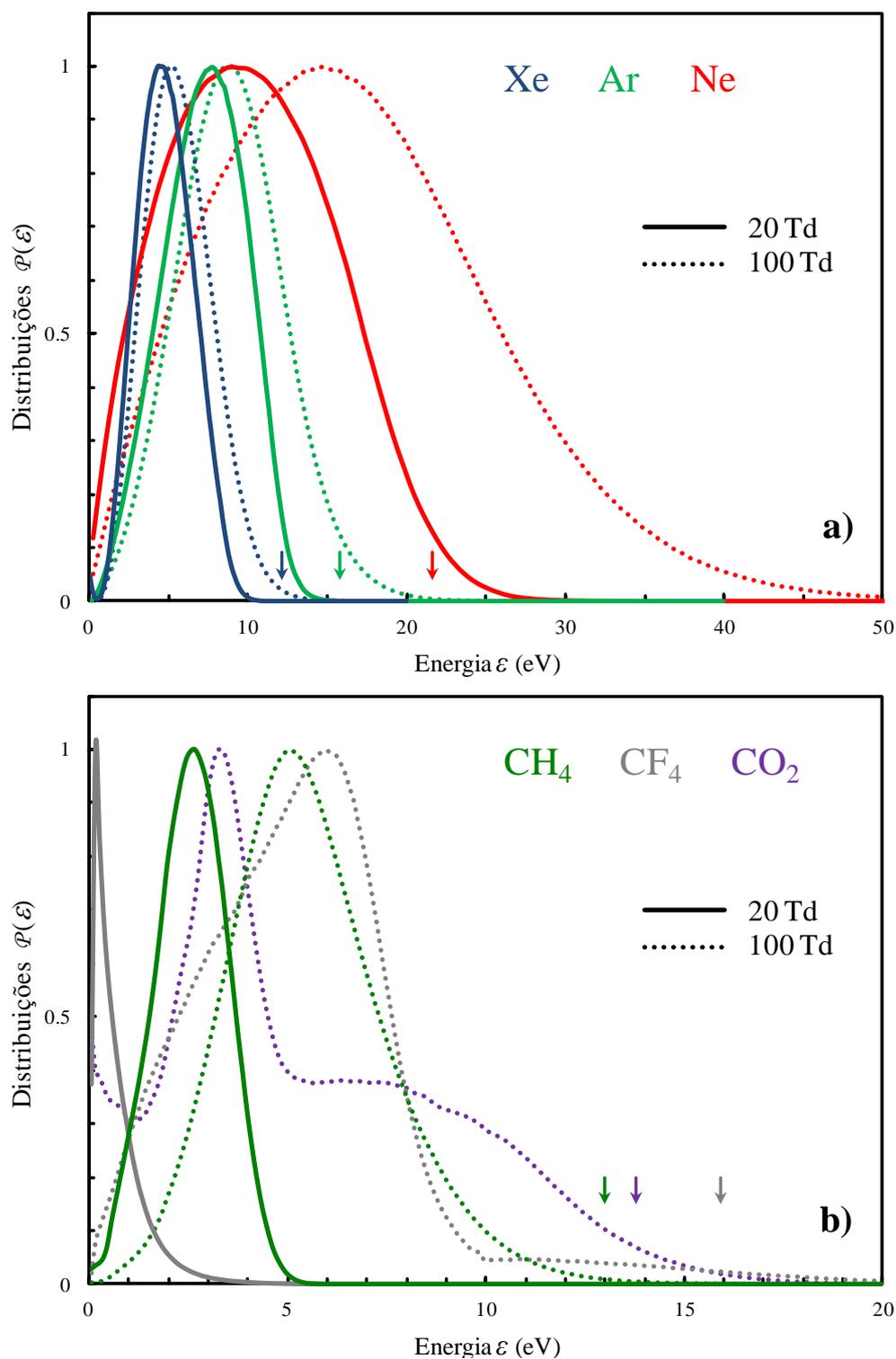


Figura 3.1 – Distribuições $\varphi(\epsilon)$ de energia ϵ dos eletrões ao colidir com átomos/moléculas dos gases puros a) Xe, Ar e Ne, e b) CH_4 , CF_4 e CO_2 , para 20 e 100 Td, juntamente com indicação (seta) dos respectivos limiares de ionização. Para 20 Td, a distribuição de energias em CO_2 não é representada por estas serem muito baixas.

Na simulação não são usadas secções eficazes parciais de ionização, uma vez que a ionização múltipla ou de camada interna é desprezável na gama de energia considerada.

Numa ionização, a energia excedente ($\varepsilon - \varepsilon_{\text{ion}}$) é repartida pelos dois eletrões resultantes, de acordo com a secção eficaz diferencial de partição de energia anteriormente elaborada para eletrões em Xe [3] (baseada na forma da secção eficaz obtida em He por [4] e normalizada ao valor medido em Xe pelos mesmos autores para $\varepsilon = 500$ eV). Esta aproximação, que resulta da escassez de dados na literatura, revelou-se aceitável, dada a pouca sensibilidade evidenciada pelos parâmetros de deriva aos detalhes desta secção eficaz, como é referido em [5] para N_2 , em [1] para CF_4 , e como foi por nós confirmado em Ne (o gás investigado com maior taxa de ionização na gama de energia em análise), ao compararmos os parâmetros obtidos com aquela secção eficaz com os obtidos quando a energia em excesso é partilhada a 50% pelos dois eletrões.

Relativamente à difusão angular dos eletrões após uma ionização, assume-se que a quantidade de movimento total dos eletrões tem a direção e sentido de incidência, difundindo-se o de maior energia segundo uma direção próxima da de incidência e, conseqüentemente, o menos energético com ângulos polar e azimutal, respetivamente, complementar e suplementar aos de difusão daquele.

As secções eficazes de difusão dos eletrões em xénon, árgon e néon adotadas são a seguir descritas de uma forma breve, encontrando-se representadas na **Fig. 3.2** as secções eficazes totais de cada um dos processos.

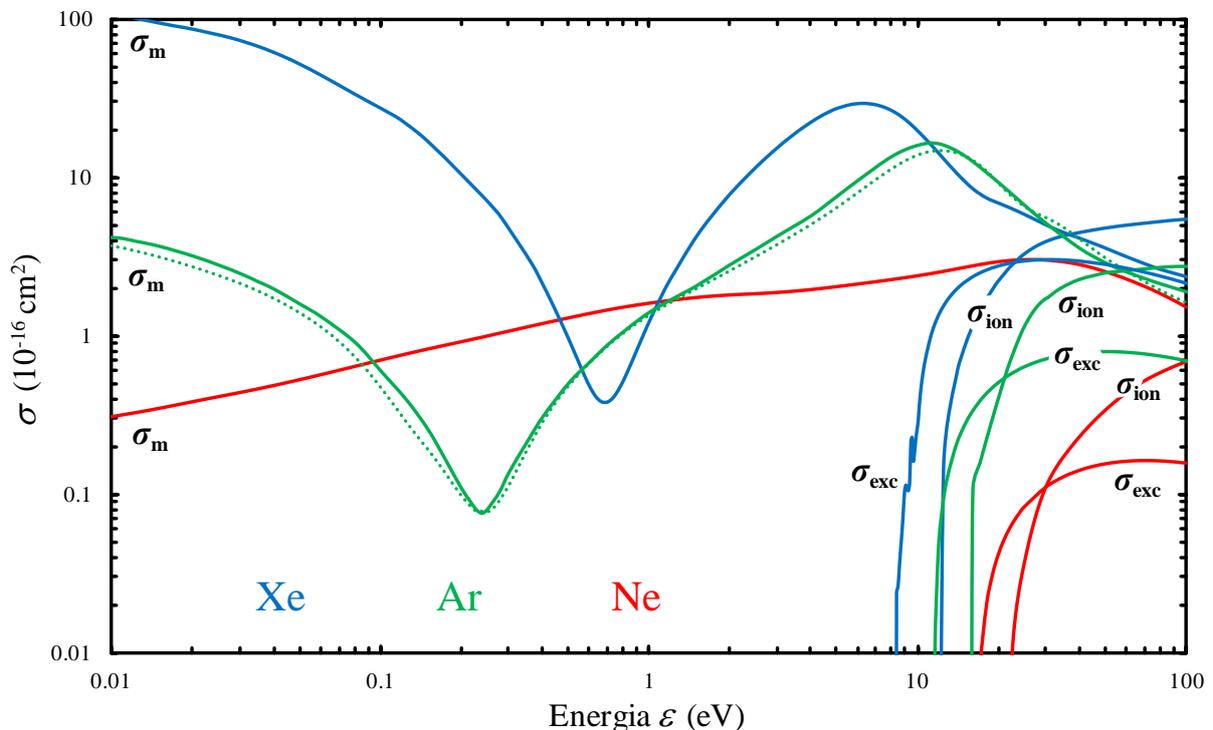


Figura 3.2 – Secções eficazes de difusão de eletrões em Xe, Ar e Ne: transferência de quantidade de movimento na difusão elástica (σ_m), excitação eletrónica (σ_{exc}) e ionização (σ_{ion}). São apresentadas duas secções eficazes σ_m de difusão em Ar, a agora preferida (traço contínuo) e a que foi adotada anteriormente [6,7] (a pontilhado).

3.1.1.1 Xénon (Xe)

As secções eficazes usadas nas simulações para representar a difusão inelástica de elétrons em Xe foram adotadas e descritas anteriormente em [3] ou [8], utilizando-se agora a correspondente secção eficaz de transferência de quantidade de movimento e isotropia para representar a difusão elástica, em alternativa ao conjunto integral elástica e diferencial angular.

Os limiares de excitação e ionização em Xe são $\varepsilon_{\text{exc}} = 8.32$ eV e $\varepsilon_{\text{ion}} = 12.1$ eV.

Difusão elástica

A secção eficaz de transferência de quantidade de movimento de difusão elástica σ_m (**Fig. 3.2**) é baseada em [9-11] para energias $\varepsilon < 2$ eV e em [12,13] para energias $\varepsilon > 2$ eV.

Excitação

As secções eficazes parciais de excitação para 13 estados de Xe são estabelecidas através das expressões semi-empíricas de [14], sendo a secção eficaz total de excitação σ_{exc} (**Fig. 3.2**) a soma das parciais.

Para reproduzir a difusão angular do elétron nas colisões com excitação de átomos de Xe é usada uma secção eficaz diferencial angular descrita por $d\sigma/d\Omega(\theta) = a(1 - b\theta)$, com dependência linear com o ângulo de difusão θ e onde o declive b é uma função quadrática da energia de impacto do elétron ε

$$b(\varepsilon) = \frac{180}{\pi} \left[1 - \left(\frac{\varepsilon - A}{A - \varepsilon_{\text{exc}}} \right)^2 \right] \quad (3.1)$$

com $A = 2000$ eV, seguindo a escolha de [15] que reproduziu simplificada a dependência angular referida em [16].

Ionização

A secção eficaz total de ionização σ_{ion} (**Fig. 3.2**) adotada é um ajuste aos valores experimentais de [17].

3.1.1.2 Árgon (Ar)

O conjunto de secções eficazes adotado nesta dissertação para representar a difusão de eletrões em Ar foi adotado e descrito anteriormente em [6,7,18], sendo agora apenas alterada a secção eficaz de transferência de quantidade de movimento de difusão elástica.

Os limiares dos processos inelásticos em Ar são $\varepsilon_{\text{exc}} = 11.55$ eV e $\varepsilon_{\text{ion}} = 15.8$ eV.

Difusão elástica

Para descrever a difusão elástica dos eletrões em Ar usou-se a secção eficaz de transferência de quantidade de movimento σ_m (**Fig. 3.2**) de [19], em alternativa à anteriormente adotada baseada em [20] para $\varepsilon < 5$ eV e em [12] para $\varepsilon > 5$ eV. É de referir que os resultados para a eficiência de extração de fotoeletrões em ambiente de Ar-CH₄ aqui novamente apresentados foram calculados com recurso à anterior secção eficaz.

Excitação

Para reproduzir a excitação dos átomos de Ar por impacto de eletrão, é utilizada a secção eficaz total de excitação σ_{exc} (**Fig. 3.2**) descrita pela expressão analítica de [21]

$$\sigma_{\text{exc}}(\varepsilon) = \frac{\ln(\varepsilon/\varepsilon_{\text{exc}})}{A(B + \varepsilon)}, \quad (3.2)$$

que é um ajuste aos valores semi-empíricos de [22] com $A = 0.02519$ (10^{-16} cm² eV)⁻¹ e $B = 23.6$ eV. As secções eficazes parciais de excitação do átomo de Ar seguem as expressões semi-empíricas de [23].

A difusão angular do eletrão em colisões com excitação do átomo de Ar é descrita de modo semelhante à indicada para Xe, substituindo na **Eq. 3.1** o limiar de excitação pelo de Ar.

Ionização

A ionização dos átomos de Ar por impacto de eletrão é representada pela secção eficaz total de ionização σ_{ion} (**Fig. 3.2**) de [24].

3.1.1.3 Néon (Ne)

As secções eficazes de difusão inelástica de eletrões em Ne estão descritas em [18].

Os limiares de excitação e de ionização em Ne são $\varepsilon_{\text{exc}} = 16.62$ eV e $\varepsilon_{\text{ion}} = 21.615$ eV.

Difusão elástica

A secção eficaz de transferência de quantidade de movimento de difusão elástica σ_m (**Fig. 3.2**) é baseada em [25] para $\varepsilon < 20$ eV e em [12] para $\varepsilon > 20$ eV.

Excitação

Tal como em Ar, a secção eficaz total de excitação σ_{exc} (**Fig. 3.2**) segue a expressão analítica de [21] representada na **Eq. 3.2**, que ajusta os valores semi-empíricos de [22] usando o limiar ε_{exc} de Ne, $A = 0.08597 (10^{-16} \text{ cm}^2 \text{ eV})^{-1}$ e $B = 31.7$ eV. As secções eficazes parciais de excitação para 24 estados de Ne seguem as expressões semi-empíricas de [14].

A difusão angular do eletrão em colisões com excitação do átomo de Ne é descrita de modo semelhante à indicada para Xe, substituindo na **Eq. 3.1** o limiar de excitação pelo de Ne.

Ionização

A ionização dos átomos de Ne por impacto de eletrão é representada pela secção eficaz total de ionização σ_{ion} (**Fig. 3.2**) baseada em [17,24].

3.1.2 Gases Moleculares

As secções eficazes que descrevem as colisões dos eletrões com moléculas de metano foram escolhidas anteriormente a este trabalho em [6,7], sendo todavia aqui apresentadas novamente juntamente com as secções eficazes de difusão dos eletrões em CF_4 e CO_2 .

Nas colisões eletrão-molécula, para além dos processos de difusão elástica, excitação eletrónica e ionização que podem surgir na colisão com um átomo, também podem ocorrer os processos de excitação rotacional e excitação vibracional da molécula e, para os gases aqui investigados, também a captura de eletrão pela molécula (*attachment*). Nos gases em estudo, podem também ocorrer, mesmo à temperatura ambiente, colisões superelásticas de eletrões com moléculas em estados rotacionais e/ou vibracionais excitados, em que os eletrões ganham energia das moléculas.

O processo de excitação rotacional das moléculas não é incluído diretamente na simulação, sendo, contudo, considerado de um modo implícito. Uma vez que as moléculas dos gases investigados não possuem momentos dipolar e quadrupolar permanentes, as secções eficazes de excitação rotacional das suas moléculas são relativamente pequenas, principalmente para baixas energias dos eletrões [26], como se pode observar em [27,28] para CH₄ (o valor da secção eficaz é pelo menos uma ordem de grandeza inferior à de difusão elástica pura, quase não ocorrendo para energias inferiores a 2 eV). Para além disso, a energia envolvida numa transição rotacional das moléculas destes gases, traduzida pela constante rotacional, é muito pequena, sendo da ordem de 1 a 10 meV em CH₄ [28,29] e cerca de uma ordem de grandeza inferior em CO₂ [29,30] e CF₄ [29,31]. No entanto, as secções eficazes de difusão elástica dos eletrões adotadas incluem as secções eficazes para as várias transições rotacionais (incluindo as superelásticas), quer pela manifesta dificuldade de distinguir essas transições de energia das ocorridas nas colisões elásticas, quer experimentalmente quer pelo método de *swarm* (método iterativo usado para calcular secções eficazes a partir dos parâmetros de deriva de eletrões).

Quando existe um número significativo de moléculas vibracionalmente excitadas, as colisões dos eletrões com essas moléculas tornam-se importantes, uma vez que as secções eficazes de difusão de eletrões por moléculas vibracionalmente excitadas podem ser diferentes das de difusão por moléculas no estado fundamental (consideravelmente maiores na difusão elástica em CO₂ por exemplo [32,33]). Todavia, face à escassez de informação sobre aquelas secções eficazes e à usual inclusão do efeito da difusão elástica por moléculas vibracionalmente excitadas nas secções eficazes de difusão elástica, à temperatura ambiente esse efeito não é tido em conta na simulação de forma direta, exceto no que se refere às interações superelásticas, onde os eletrões ganham a energia correspondente à desexcitação da molécula. As secções eficazes $\sigma'(\varepsilon')$ do processo de desexcitação das moléculas (colisões superelásticas) por eletrões de energia ε' podem ser obtidas a partir das secções eficazes $\sigma(\varepsilon)$ do processo (inverso) de excitação por eletrões de energia ε conforme o princípio de *detailed balance* (ver p. ex. [26,34]):

$$g \varepsilon \sigma(\varepsilon) = g' \varepsilon' \sigma'(\varepsilon'), \quad \varepsilon = \varepsilon' + \Delta\varepsilon, \quad (3.3)$$

onde g e g' representam o peso estatístico (degenerescência), respetivamente, dos estados fundamental e excitado da molécula e $\Delta\varepsilon$ a diferença de energia entre os dois estados.

Num gás molecular em equilíbrio térmico à temperatura ambiente, os modos vibracionais de baixa energia das moléculas são povoados de acordo com distribuição de Maxwell-Boltzmann:

$$P_\nu = \frac{g_\nu e^{-\Delta\varepsilon/(KT)}}{\sum_\nu g_\nu e^{-\Delta\varepsilon/(KT)}}, \quad (3.4)$$

onde P_ν e g_ν são, respetivamente, a fração da população e o peso estatístico do modo vibracional ν , $\Delta\varepsilon$ a diferença de energia do modo ν para o estado fundamental, K a constante de Boltzmann e T a temperatura do gás.

Quando os níveis de energia dos modos vibracionais das moléculas são baixos (< 150 meV) e as secções eficazes de excitação desses modos são significativas, as colisões superelásticas tornam-se relevantes, particularmente para baixas energias devido ao fator ε/ε' , e têm de ser consideradas.

Em CH_4 à temperatura ambiente, a fração de moléculas vibracionalmente excitadas é reduzida, pelo que as colisões superelásticas foram desprezadas na simulação. Situação diferente ocorre em CF_4 e CO_2 , onde é significativa a excitação térmica de alguns modos vibracionais, pelo que foram incluídas na simulação as secções eficazes de desexcitação (colisões superelásticas) dos modos vibracionais ν_3 e ν_4 em CF_4 e ν_1 e ν_2 em CO_2 , obtidas de acordo com a **Eq. 3.3** e normalizadas à população dos estados vibracionais de acordo com a **Eq. 3.4**.

Para os gases moleculares investigados, a excitação eletrónica da molécula pode conduzir à dissociação em dois ou mais fragmentos, podendo algum dos fragmentos ser iónico (com carga elétrica positiva) – *ionização dissociativa* – ou não – *dissociação neutra*. É de referir que, devido a dificuldades experimentais, são escassas as medidas diretas da secção eficaz da dissociação neutra por impacto de eletrão.

Na ionização das moléculas, a partilha de energia pelos eletrões e a difusão angular destes são tratadas na simulação do mesmo modo que foi descrito para os gases nobres.

Para a gama de energia de impacto relevante nas presentes simulações, a excitação/dissociação e a ionização das moléculas dos gases investigados são processos pouco frequentes. Quanto à captura do eletrão pelas moléculas, o processo é pouco frequente em CH_4 por ter um limiar de ocorrência de 7.75 eV e uma secção eficaz algumas ordens de grandeza inferior às dos restantes processos considerados. Todavia, em CO_2 e CF_4 ocorre com maior frequência, devido aos menores limiares (4.3 eV para CF_4 e 3.3 eV para CO_2) e às maiores secções eficazes. Assim, constata-se que em meio contendo um dos três gases moleculares, os processos de maior relevância são a difusão elástica e a excitação vibracional da molécula, embora a ionização e, principalmente, a captura de eletrão, pelo seu carácter especial na criação/extinção de eletrões, tenham um papel significativo no que respeita à extração de eletrões de fotocátodos e ao estudo da cintilação secundária de Xe, como se verá, respetivamente, nos **capítulos 4 e 5**. Para baixas energias de impacto, são também de importância considerável as interações superelásticas com moléculas de CF_4 e CO_2 vibracionalmente excitadas.

Assume-se isotropia na difusão angular dos eletrões nas colisões com excitação eletrónica das moléculas, porque a informação é escassa e este processo não é dos de maior relevância na presente investigação. No entanto, no caso de CO_2 , como a secção eficaz adotada é obtida através do método de *swarm*, a difusão angular está considerada implicitamente.

A seguir são apresentadas as secções eficazes adotadas para descrever nas simulações a difusão de eletrões em CH_4 , CF_4 e CO_2 .

3.1.2.1 Metano (CH₄)

As secções eficazes utilizadas na simulação para descrever a difusão de eletrões em CH₄ são representadas na **Fig. 3.3**. À exceção das de excitação vibracional, elas baseiam-se na compilação de Shirai *et al.* [35], onde cada secção eficaz recomendada é representada por uma expressão analítica.

Quanto à excitação eletrónica, é de referir que os estados excitados de CH₄ geralmente conduzem à dissociação da molécula de CH₄ em dois ou mais fragmentos [36,37]. Na descrição que se segue, a ionização total engloba a ionização direta e a ionização dissociativa, sendo a dissociação neutra considerada separadamente.

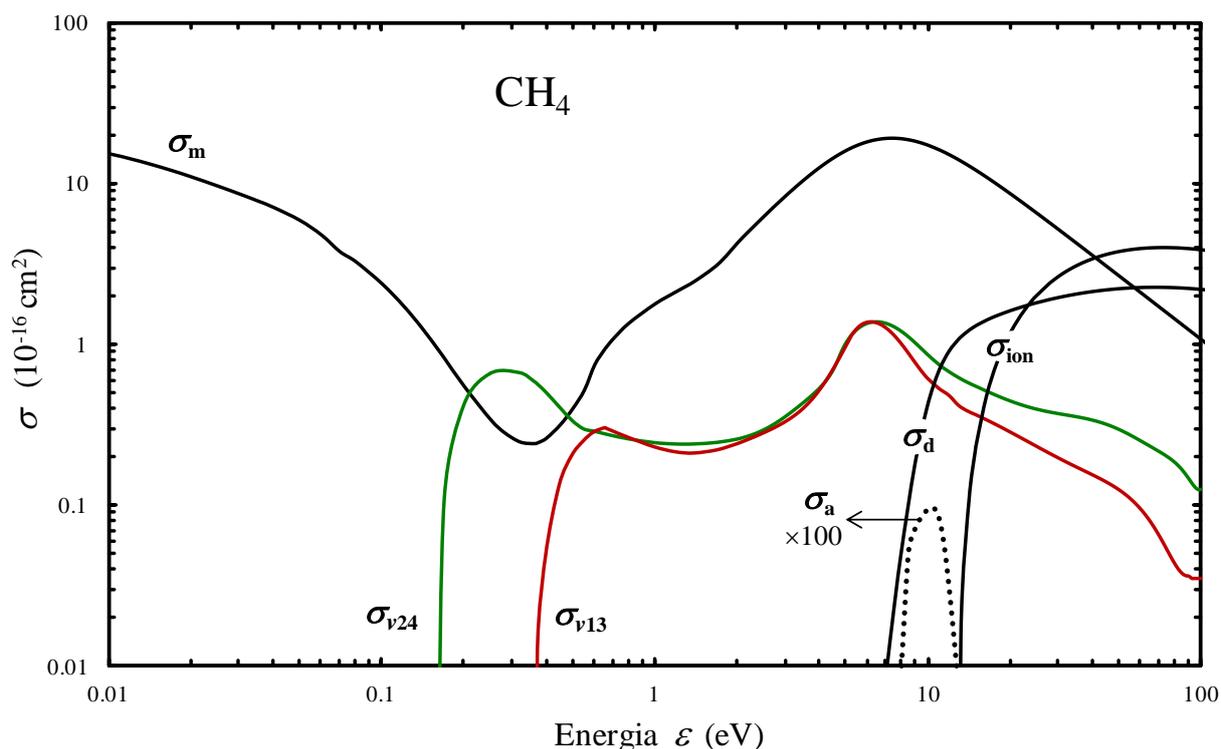


Figura 3.3 – Secções eficazes de difusão de eletrões em CH₄: transferência de quantidade de movimento na difusão elástica (σ_m), excitação vibracional (σ_{v13} e σ_{v24}), captura de eletrão (σ_a , multiplicada por 100), dissociação neutra (σ_d) e ionização total (σ_{ion}).

Difusão elástica

Para representar a difusão elástica de eletrões em CH₄ foi usada a secção eficaz de transferência de quantidade de movimento σ_m (**Fig. 3.3**) recomendada em [35], que segue [38] para $\varepsilon < 2$ eV e [39] para $2 < \varepsilon < 100$ eV. Para $\varepsilon < 2$ eV, a expressão analítica de [35] foi no entanto substituída por um ajuste que reproduz melhor os valores de [38] e que permite que a simulação reproduza mais fielmente os parâmetros de deriva de eletrões em CH₄.

Excitação vibracional

Dos nove modos normais de vibração fundamentais da molécula de CH₄, quatro são independentes: ν_1 (362 meV; elongação simétrica); ν_2 (190 meV; flexão simétrica, duplamente degenerada); ν_3 (374 meV; elongação assimétrica, triplamente degenerada) e ν_4 (162 meV; flexão assimétrica, triplamente degenerada) [40,41]. Apenas os modos ν_3 e ν_4 são óticamente ativos, mas não com muita intensidade. Devido à proximidade entre ν_1 e ν_3 e entre ν_2 e ν_4 , cada par é geralmente descrito por uma só secção eficaz.

Dada a grande discordância entre diferentes publicações, a compilação de Shirai *et al.* [35] não sugere um conjunto particular para as secções eficazes de excitação vibracional, tendo-se adotado as secções eficazes $\sigma_{\nu_{13}}$ e $\sigma_{\nu_{24}}$ (**Fig. 3.3**) de [42] sugeridas em [39] por serem, entre várias testadas na simulação, aquelas que melhor reproduziram a deriva dos eletrões em CH₄.

Na simulação, a difusão angular do eletrão que excita vibracionalmente a molécula de CH₄ foi considerada isotrópica, uma vez que a influência da anisotropia na deriva do eletrão é fraca [38] e é implicitamente considerada nas secções eficazes integrais utilizadas (obtidas através do método de *swarm*).

Captura de eletrão (attachment)

O processo de captura de eletrão pela molécula de CH₄ ocorre principalmente entre 8 e 14 eV, com conseqüente dissociação e formação dos iões negativos H⁻ ou CH₂⁻, e é traduzido na simulação pela secção eficaz σ_a (**Fig. 3.3**) de [43], recomendada em [35].

Ionização total

A ionização total da molécula de CH₄ por impacto de eletrão engloba o processo de ionização direta (formação do ião CH₄⁺) e os vários processos de ionização dissociativa (dissociação com produção de algum fragmento iónico de carga eléctrica positiva) e é traduzida pela secção eficaz σ_{ion} (**Fig. 3.3**) de [35], uma expressão analítica que representa os dados de [44].

A ionização direta e a dissociação com produção do ião CH₃⁺, com limiares, respetivamente, de 13 e 14.2 eV [35], são os processos de ionização de CH₄ predominantes. Uma vez que, na gama de energia de interesse do presente estudo, a ionização de CH₄ é pouco frequente e dada a proximidade desses dois limiares, na simulação não foram utilizadas secções eficazes parciais de ionização dissociativa de CH₄.

Dissociação neutra

A dissociação da molécula de CH₄ por impacto de eletrão com produção unicamente de fragmentos eletricamente neutros – *dissociação neutra* – ocorre para energia superior a 4.5 eV e consiste essencialmente no processo [45]



Motlagh e Moore [45] mediram valores relativos da secção eficaz de produção do radical metil CH₃ por impacto de eletrão, que envolve o processo descrito pela **Eq. 3.5** e também o seguinte processo, muito menos provável, de ionização dissociativa:



Tendo em conta resultados de [46] para a secção eficaz total de dissociação e de [47] para secções eficazes parciais de ionização, Motlagh e Moore normalizaram os seus resultados para uma energia intermédia conseguindo assim valores absolutos para a secção eficaz de produção de CH₃.

A secção eficaz σ_a de dissociação neutra da molécula de CH₄ usada na simulação (**Fig. 3.3**) adota a expressão de [35] para a secção eficaz de [45], uma vez que, se por um lado, esta secção eficaz de produção de CH₃ é ligeiramente superior à do processo da **Eq. 3.5** (principalmente para $\varepsilon < 50$ eV), por outro lado, este processo não representa toda a dissociação neutra.

3.1.2.2 Tetrafluoreto de carbono (CF₄)

O conjunto de secções eficazes de difusão de eletrões em CF₄ utilizado na simulação está representado na **Fig. 3.4** e é constituído quase totalmente por secções eficazes da compilação de Christophorou *et al.* [48] e sua atualização [49], onde os valores recomendados ou sugeridos são determinados preferencialmente a partir de dados experimentais e são apresentados em tabelas.

Relativamente à excitação eletrónica e à ionização das moléculas, aparentemente todos os processos levam à dissociação, uma vez que os estados eletrónicos excitados de CF₄ e do ião molecular CF₄⁺ são instáveis, assim como o estado fundamental do ião [46,48,50]. A dissociação da molécula de CF₄ é separada em dissociação neutra e em ionização dissociativa que, para CF₄, coincide com a ionização total.

Difusão elástica

A difusão elástica de eletrões em CF₄ é representada pela secção eficaz de transferência de quantidade de movimento σ_m (**Fig. 3.4**) recomendada por [48], baseada em secções eficazes determinadas experimentalmente ($\varepsilon < 0.5$ eV [51], $\varepsilon > 1.5$ eV [52,53]).

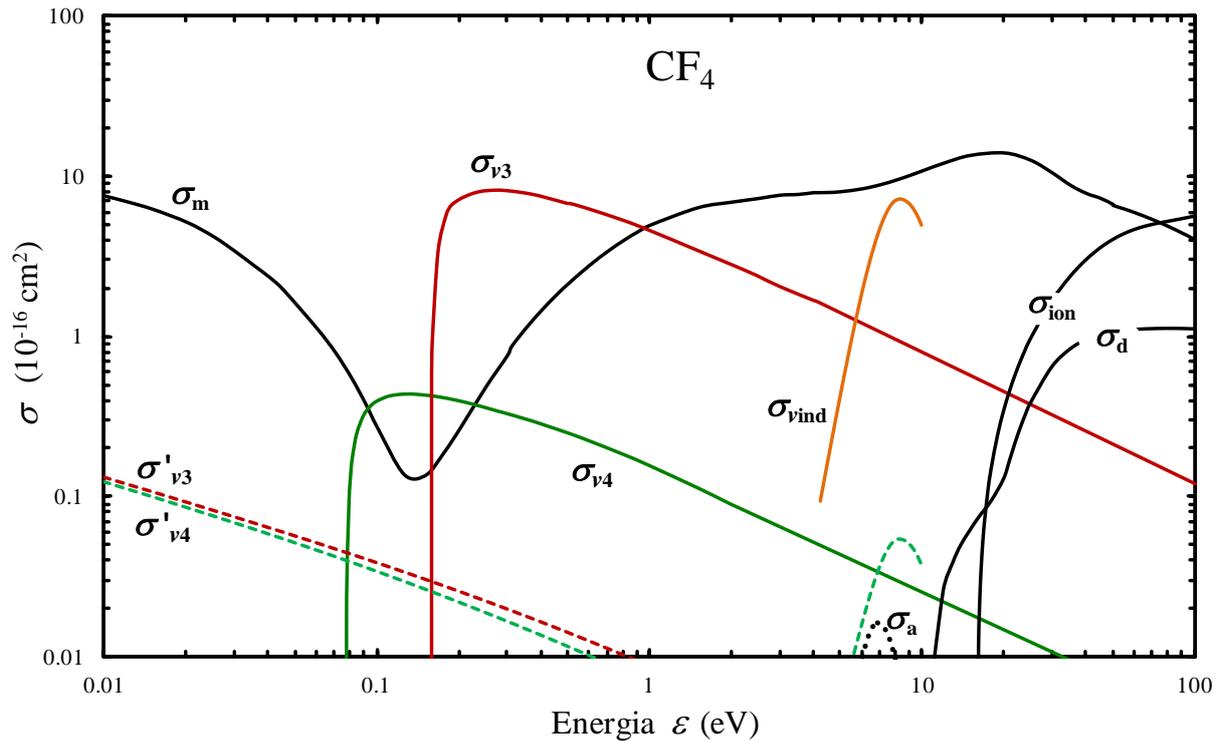


Figura 3.4 – Seções eficazes de difusão de elétrons em CF_4 : transferência de quantidade de movimento na difusão elástica (σ_m), excitação vibracional (σ_{v3} , σ_{v4} e σ_{vind}), interação superelástica vibracional normalizada à população de estados excitados a 20°C (σ'_{v3} e σ'_{v4}), captura de elétron (σ_a), dissociação neutra (σ_d) e ionização total (σ_{ion}).

Excitação vibracional

A molécula de CF_4 tem, como a molécula de CH_4 , quatro modos de vibração normais fundamentais independentes: ν_1 (113 meV; alongação simétrica); ν_2 (54 meV; flexão simétrica, duplamente degenerada); ν_3 (159 meV; alongação assimétrica, triplamente degenerada) e ν_4 (78 meV; flexão assimétrica, triplamente degenerada) [52]. Apenas os modos ν_3 e ν_4 são oticamente ativos, tendo ν_3 grande atividade, ausente em CH_4 .

Na colisão elétron- CF_4 , a molécula pode ser excitada vibracionalmente, principalmente através de um mecanismo de *excitação direta* – via momento dipolar devido ao campo elétrico induzido pelo elétron – ou de um mecanismo de *excitação indireta* – via ressonância envolvendo a captura temporária do elétron pela molécula (estado intermédio que também pode levar à captura do elétron pela molécula com dissociação desta) – [54]. Apenas os modos ν_3 (muito intenso) e ν_4 contribuem significativamente para a excitação direta, com maior intensidade próximo dos limiares de excitação [52,54], o que está de acordo com a sua atividade ótica (proporcional às transições do momento dipolar e, conseqüentemente, à intensidade da difusão). A excitação vibracional indireta ocorre na região de energia 5-12 eV, com contribuições notórias dos modos ν_3 , ν_4 e ν_1 , bem como de alguns dos seus harmônicos e modos mistos [52,54].

A aproximação de Born-dipolo descreve bem a excitação direta da molécula de CF_4 mas não é válida para traduzir a excitação indireta, como o comprovam as comparações realizadas entre resultados experimentais e teóricos [50,54]. Assim, para descrever a excitação vibracional direta da molécula de CF_4 adotaram-se as secções eficazes σ_{v_3} e σ_{v_4} recomendadas em [48] e calculadas por Bonham [50] usando a aproximação de Born-dipolo, respetivamente, para os modos v_3 e v_4 . Para descrever a excitação vibracional indireta usou-se a secção eficaz σ_{vind} determinada em [49] a partir de outras secções eficazes aí recomendadas (subtraindo à secção eficaz total de difusão as restantes secções eficazes inelásticas e a secção eficaz integral elástica). Na **Fig. 3.4** estão representadas as secções eficazes σ_{v_3} , σ_{v_4} e σ_{vind} , bem como as correspondentes σ'_{v_3} e σ'_{v_4} que descrevem as interações superelásticas e que foram calculadas de acordo com as **Eqs. 3.3** e **3.4**.

Baseando-se em estudos experimentais ($\varepsilon > 2$ eV) e teóricos, [52] e [54] concluíram que a excitação direta é predominantemente anisotrópica (com uma forte componente com pequeno desvio angular) e que a excitação indireta é predominantemente isotrópica.

Para descrever a dependência angular da difusão do eletrão na excitação direta, a simulação recorreu inicialmente à aproximação de Born-dipolo [54,55], mas os valores calculados para a velocidade de deriva dos eletrões em CF_4 resultaram consideravelmente superiores aos experimentais da literatura. Por essa razão, e tendo em conta que para $\varepsilon < 2$ eV não existem dados experimentais para a difusão angular, optou-se por considerar uma anisotropia menos pronunciada do que aquela junto ao limiar. Assim, adotou-se para a excitação direta uma difusão angular semelhante à usada para a excitação eletrónica dos átomos dos gases nobres, onde no parâmetro b dado pela **Eq. 3.1** se considera agora o limiar de excitação de v_3 ou v_4 e se escolheu $A = 100$ eV de modo a reproduzir aproximadamente a velocidade de deriva dos eletrões em CF_4 no cálculo por simulação.

Quando na simulação ocorre excitação indireta, considera-se que a difusão do eletrão é isotrópica e que a perda de energia do eletrão é 0.4 eV [1], valor baseado no espectro de perdas de energia dos eletrões com contribuições dos vários modos excitados [52].

Captura de eletrão (attachment)

A captura de eletrão pela molécula de CF_4 ocorre principalmente entre 6 e 8 eV via ressonância, resultando na formação de iões negativos F^- ou CF_3^- a partir da dissociação de iões CF_4^- .

O processo de captura de eletrão é traduzido na simulação através da secção eficaz absoluta σ_c (**Fig. 3.4**) recomendada em [48], obtida em [56] através da normalização de uma secção eficaz relativa experimental a uma secção eficaz obtida através do método de *swarm*.

Ionização total

A ionização total de CF_4 , com limiar $\varepsilon_{\text{ion}} = 15.9$ eV [49], corresponde ao conjunto de processos de dissociação ionizante, com produção de algum dos fragmentos iônicos CF_3^+ , CF_2^+ , CF^+ , C^+ , F^+ ou F_2^+ . Uma vez que CF_3^+ é o produto iônico dominante da dissociação por impacto eletrônico (principalmente para $\varepsilon < 50$ eV), considerou-se não ser necessária a utilização de secções eficazes parciais de dissociação na gama de energia de interesse desta simulação.

A secção eficaz de ionização total σ_{ion} (**Fig. 3.4**) usada na simulação é determinada e recomendada em [49], sendo baseada nas secções eficazes experimentais de quatro trabalhos independentes.

Dissociação neutra

A dissociação neutra da molécula de CF_4 por impacto de elétron é descrita pela secção eficaz σ_{d} (**Fig. 3.4**), que segue a sugestão e o ajuste indicado em [49] para a secção eficaz de [45] para a produção por dissociação neutra do fragmento CF_3 (limiar de ocorrência $\varepsilon_{\text{d}} = 10$ eV [1]). Assumindo que a produção de CF_3 é dominante na dissociação neutra [57], em [45] Motlagh e Moore normalizaram as suas medidas relativas às medidas absolutas da secção eficaz de dissociação neutra de CF_4 efetuadas em [58] para três valores de energia.

3.1.2.3 Dióxido de carbono (CO_2)

As várias secções eficazes utilizadas na simulação para descrever as colisões dos elétrons com as moléculas de CO_2 encontram-se representadas na **Fig. 3.5** e foram escolhidas com base nas compilações de Itikawa [59] e Shirai *et al.* [60] e, na ausência de sugestões destes, em dados obtidos por Phelps [61] através do método de *swarm*.

Difusão elástica

A difusão elástica de elétrons em CO_2 é representada pela secção eficaz de transferência de quantidade de movimento σ_{m} (**Fig. 3.5**) recomendada por Itikawa [59]. Esta secção eficaz foi determinada por Elford *et al.* [62] a partir de vários trabalhos, baseando-se, para $\varepsilon < 10$ eV, em dados obtidos através do método de *swarm* [63].

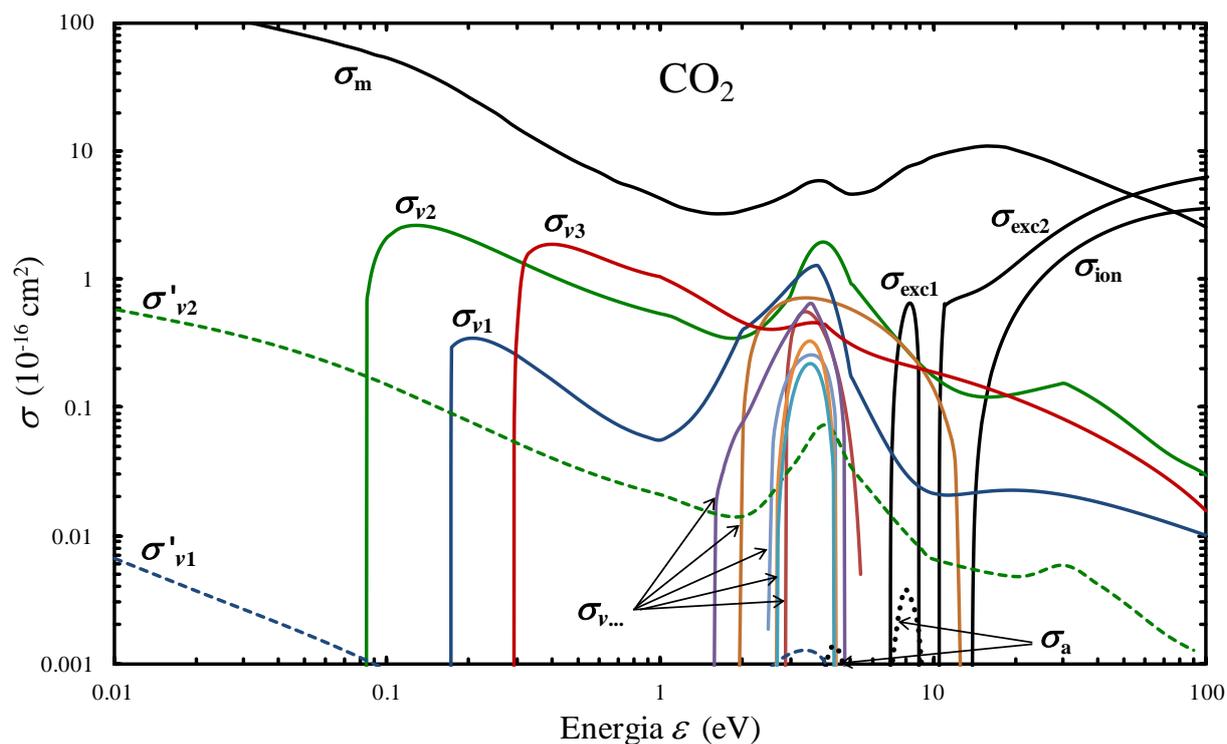


Figura 3.5 – Secções eficazes de difusão de eletrões em CO_2 : transferência de quantidade de movimento na difusão elástica (σ_m), excitação vibracional (σ_{v1} , σ_{v2} , σ_{v3} e $\sigma_{v\dots}$), interação superelástica vibracional normalizada à população de estados excitados a 20 °C (σ'_{v1} e σ'_{v2}), captura de eletrão (σ_a), excitação eletrónica (σ_{exc1} e σ_{exc2}) e ionização total (σ_{ion}).

Excitação vibracional

Dos quatro modos normais de vibração fundamentais da molécula linear de CO_2 , três são independentes: ν_1 (172 meV; elongação simétrica); ν_2 (83 meV; flexão, duplamente degenerada); ν_3 (291 meV; elongação assimétrica) [64-66]. Os modos ν_2 e ν_3 são opticamente muito ativos.

Para representar a excitação dos modos vibracionais fundamentais da molécula de CO_2 por impacto de eletrão adotaram-se as secções eficazes σ_{v1} , σ_{v2} e σ_{v3} (**Fig. 3.5**) baseadas em [63] (método de *swarm*) para $\varepsilon < 1$ eV e em [59] (baseadas nas secções eficazes diferenciais angulares experimentais de [66]) para $\varepsilon > 1.5$ eV. Esta escolha está de acordo com sugestão de [59], exceto para σ_{v1} na região $\varepsilon < 1.5$ eV, onde a opção preferida permitiu reproduzir melhor os parâmetros de deriva experimentais da literatura. Na região de ressonância (2-6 eV), alguns modos harmónicos e mistos têm secções eficazes relevantes (representadas por $\sigma_{v\dots}$ na **Fig. 3.5**): a da excitação do modo $2\nu_2$ é baseada nas medidas de [65] e [67] para escassos valores de energia; as demais, correspondentes aos modos $n\nu_1$ e $n\nu_1 + \nu_2$ (número quântico $n > 1$), seguem a compilação de [61] (método de *swarm*). Na **Fig. 3.5**, além de σ_{v1} , σ_{v2} , σ_{v3} e $\sigma_{v\dots}$, encontram-se representadas as secções eficazes σ'_{v1} e σ'_{v2} que descrevem as interações superelásticas com moléculas nos modos ν_1 e ν_2 e que são calculadas de acordo com as **Eqs. 3.3 e 3.4**.

As secções eficazes obtidas através do método de *swarm* contêm implicitamente a dependência angular da difusão, o que já não acontece com as secções eficazes medidas diretamente ($\varepsilon > 1.5$ eV). A difusão na excitação dos modos ν_2 , para $\varepsilon \sim 1.5$ eV, e ν_3 é muito anisotrópica, ocorrendo quase sempre com pequeno desvio angular, mas σ_{ν_3} e a anisotropia de ν_3 vão diminuindo com o aumento da energia [66]. Na região de ressonância, a difusão na excitação dos modos com maior secção eficaz integral (ν_1 , ν_2 e $2\nu_2$) aproxima-se da isotropia [66].

Tendo tudo isto em conta e por uma questão de simplicidade, considera-se na simulação que a difusão dos eletrões é isotrópica quando ocorre excitação vibracional da molécula, o que permitiu conseguir uma boa concordância entre os parâmetros de deriva calculados e os experimentais da literatura, como se verá na **secção 3.3.2**.

Captura de eletrão (attachment)

A captura de eletrão pela molécula de CO_2 é descrita pela secção eficaz σ_a (**Fig. 3.5**) obtida experimentalmente por [68] e recomendada em [59]. Este processo de captura é dissociativo e resulta quase exclusivamente na produção do ião O^- , como indica a semelhança entre a secção eficaz total σ_a aqui adotada e a parcial de [69] para a produção do ião O^- e também a reduzida secção eficaz (mais de duas ordens de grandeza inferior) medida por [70] para a produção do ião C^- , que ocorre para energias entre 14 e 21 eV e se despreza nesta simulação.

Excitação Eletrónica / Dissociação Neutra

A excitação eletrónica da molécula de CO_2 por impacto de eletrão, com possível dissociação em fragmentos neutros, é descrita pela secção eficaz da compilação de [61]. Esta secção eficaz foi determinada pelo método de *swarm* e é constituída por dois ramos, σ_{exc1} e σ_{exc2} (**Fig. 3.5**), com limiares, respetivamente, a 7 e 10.5 eV, de acordo com os espetros de perda de energia [71].

Ionização total

A ionização total da molécula de CO_2 por impacto eletrónico, com limiar $\varepsilon_{\text{ion}} = 13.8$ eV [60], abrange a ionização direta e a ionização dissociativa com formação principalmente dos iões CO^+ , C^+ ou O^+ e a sua secção eficaz, confirmada por vários autores e diferentes técnicas, tem valores bem estabelecidos. Na simulação, utiliza-se a secção eficaz σ_{ion} (**Fig. 3.5**) dada por expressão analítica de [60], baseada nas secções eficazes de ionização total de [72] e de [73]. Não são usadas secções eficazes parciais de dissociação, uma vez que para $\varepsilon < 25$ eV a secção eficaz de ionização total coincide com a de ionização direta.

3.2 Modelo de simulação de Monte Carlo

Para os presentes estudos foi utilizado um modelo físico que foi sendo anteriormente implementado [6,15,18,74-76] e agora adaptado para os objetivos da presente dissertação, envolvendo, nomeadamente a introdução de novos gases e reprodução de novos processos físicos. A simulação da deriva de eletrões foi já detalhadamente apresentada [74,76], optando-se agora por descrevê-la de uma forma sucinta e simples, considerando apenas os aspetos fundamentais.

Nos vários estudos levados a cabo através da simulação de Monte Carlo, considera-se que os eletrões, de massa m e carga $-e$, começam o seu movimento na origem do sistema de eixos cartesianos xyz e derivam no meio gasoso à temperatura T e pressão p sob a influência de um campo elétrico externo uniforme $\vec{E} = -E\hat{k}$ com a direção do eixo z .

Passa-se a descrever a forma como a deriva dos eletrões (**secção 3.2.2**), comum a qualquer dos estudos realizados, é tratada na simulação, bem como as condições iniciais (**secção 3.2.1**) e critérios de paragem desta (**secção 3.2.3**), correspondentes a cada tipo de estudo.

3.2.1 Condições iniciais dos eletrões

À exceção do estudo da extração de fotoeletrões, os eletrões iniciam o seu movimento na direção z e, dependendo do estudo, com energia nula, energia térmica ou energia média de equilíbrio da amostra para o campo elétrico considerado. Por outro lado, a emissão de fotoeletrões por fotocátodo de CsI em meio gasoso, pela sua especificidade e preponderância, é aqui objeto de um tratamento próprio.

Fotoeletrões emitidos por um fotocátodo de CsI em meio gasoso

A indução de um fotoeletrão de um semicondutor por um fóton de energia E_{ph} é esquematizada na **Fig. 3.6**, envolvendo a excitação do eletrão da banda de valência para a banda de condução, o seu transporte até à superfície do semicondutor e o seu escape para o exterior (gás ou vácuo).

Em CsI, a energia mínima para que um eletrão escape – *limiar de fotoemissão* – é $W = 6.1$ eV [77], correspondendo às parcelas largura da banda proibida (*band gap*) $E_g = 6.0$ eV, entre a banda de valência e a de condução, e a afinidade eletrónica $E_a = 0.1$ eV [78] – barreira de potencial a superar para que o eletrão escape do sólido.

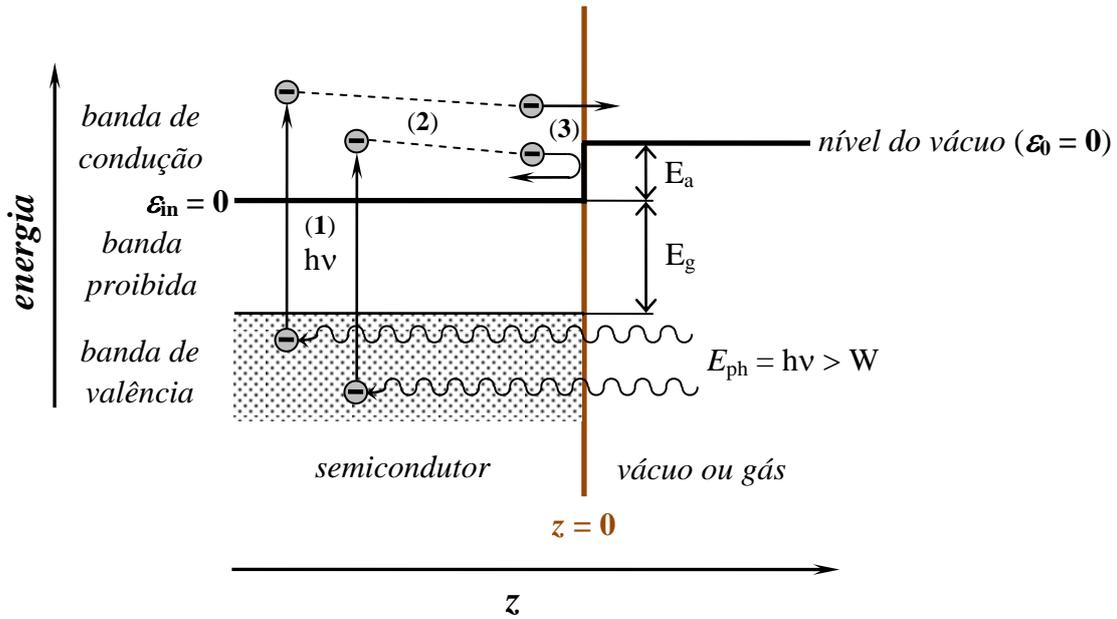


Figura 3.6 – Diagrama dos níveis de energia de um semicondutor, com esquema da emissão de fotoelétrons por fotões com energia E_{ph} superior ao limiar de fotoemissão W , expondo as etapas: (1) absorção de um fotão com criação de um par elétron-lacuna, (2) movimento do elétron para a superfície (plano $z = 0$) e (3) escape do elétron para o vácuo ou gás após superar a barreira de potencial representada pela afinidade eletrónica E_a . Encontra-se também representada a possibilidade de o elétron livre ser refletido pela superfície.

Todavia, dependendo da energia cinética ϵ_{in} e do ângulo θ_{in} com que o elétron incide, do lado do semicondutor, na superfície do fotocátodo (ver **Fig. 3.7**), assim ele será refletido/transmitido por esta quando a energia cinética associada à componente da velocidade segundo a direção z é inferior/superior a E_a , ou seja, só pode transpor a superfície se $\epsilon_{in} \cos^2 \theta_{in} > E_a$. A conservação da quantidade de movimento (p) do elétron segundo o plano $z = 0$ exige que, para um elétron transmitido com energia cinética $\epsilon_0 = \epsilon_{in} - E_a$ segundo um ângulo θ_0 , se tenha:

$$p_{in} \sin \theta_{in} = p_0 \sin \theta_0, \quad (3.7)$$

ou seja,

$$\sin \theta_0 = \sqrt{\frac{\epsilon_{in}}{\epsilon_0}} \sin \theta_{in} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 + E_a}{\epsilon_0}} \sin \theta_{in}, \quad (3.8)$$

do que resulta que $\theta_0 > \theta_{in}$ e que os elétrons que emergem da superfície com ângulo de emissão $\theta_0 \in [0, \pi/2]$ provêm do chamado cone de escape do sólido [79], de abertura

$$\theta_{in}^{\max} = \arcsin \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon_{in}}} = \arcsin \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon_0 + E_a}}. \quad (3.9)$$

No presente estudo da extração de fotoelétrons emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso, a absorção dos fotões e o transporte dos fotoelétrons no interior do fotocátodo semicondutor não são reproduzidos na simulação, emergindo os fotoelétrons a partir da superfície do fotocátodo (perpendicular ao campo elétrico, **Fig. 3.7**) com energia ϵ_0 e direção definida pelos ângulos polar θ_0 e azimutal ψ .

Para escolher na simulação a direção de emissão de um eletrão de energia ε_0 , é escolhido aleatoriamente um ângulo sólido de incidência (θ_{in} e ψ) de uma distribuição uniforme dentro do cone de escape do sólido recorrendo à **Eq. 3.9**, a partir do qual se determina a direção de emissão (θ_0 e ψ), de acordo com a **Eq. 3.8**.

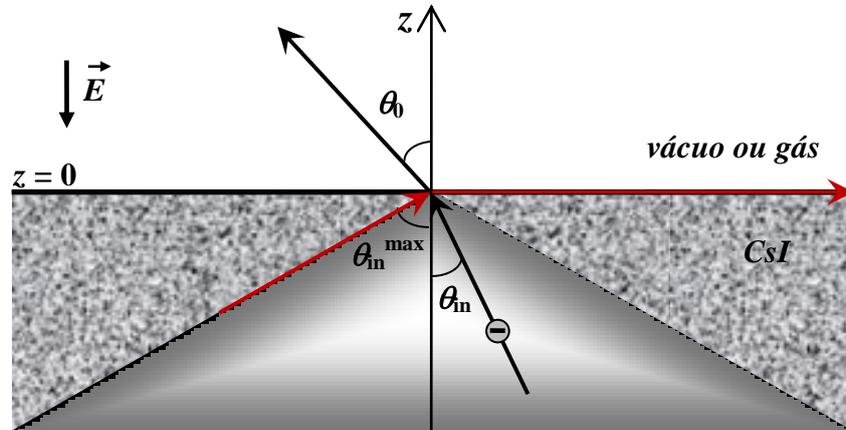


Figura 3.7 – Esquema da transmissão dos fotoeletrões para o vácuo ou gás através da superfície do fotocátodo de CsI, com o cone de escape representado para fotoeletrões ejetados com energia $\varepsilon_0 = E_a$.

A energia cinética ε_0 de emissão de cada fotoeletrão é sorteada a partir da distribuição correspondente à energia E_{ph} dos fotões absorvidos, distribuição limitada por 0 e $E_{ph}-W$. Para tal, foram usadas 16 distribuições de energia ε_0 medidas por DiStefano e Spicer [80] para um fotocátodo transmissivo de CsI de 11 nm de espessura e fotões monoenergéticos de E_{ph} na gama 6.8-9.8 eV. Para comparação com os resultados experimentais obtidos quando o fotocátodo é irradiado por fotões de uma lâmpada de Hg(Ar), foi usada a distribuição de energia ε_0 obtida experimentalmente por Shefer *et al.* [81] com um fotocátodo refletivo de CsI de 500 nm de espessura e fotões de energia $E_{ph} = 6.7$ eV (pico na região VUV da distribuição espectral da lâmpada). A **Fig. 3.8** mostra algumas destas distribuições de ε_0 incluídas na simulação, verificando-se que para $E_{ph} < 8.5$ eV as distribuições têm forma aproximadamente gaussiana e a posição do centróide aumenta de um modo aproximadamente linear com E_{ph} . O mesmo não se verifica para $E_{ph} > 8.5$ eV, com as distribuições a exibirem estruturas distintas geradas pelo aparecimento de um novo pico a baixa energia, que afasta o centróide das distribuições daquele comportamento aproximadamente linear com E_{ph} . Para $E_{ph} < 8.5$ eV as distribuições foram medidas à temperatura de 300 K e as restantes a 77 K, sendo de assinalar que, acima de 8.5 eV, as distribuições, apesar de manterem a mesma estrutura e posição dos picos, seriam mais largas à temperatura ambiente do que a 77 K, efeito em parte relacionado com o sistema de medida [80]. As distribuições medidas a 77 K são usadas no estudo da retrodifusão e, apesar da divergência assinalada, fornecem uma indicação valiosa para a análise dos resultados.

A qualidade das distribuições de ε_0 de DiStefano e Spicer [80] foi reforçada pela excelente concordância obtida entre elas e as calculadas quer teoricamente [82] quer, no caso da gama E_{ph} de 6.8 a 8.0 eV, também por simulação de Monte Carlo [83].

As 5 distribuições de energia ε_0 de DiStefano e Spicer [80] na gama $E_{\text{ph}} = 6.8\text{-}7.6$ eV foram aproximadas através de funções gaussianas com parâmetros dados em Akkerman *et al.* [84]. Para maior E_{ph} , devido à assimetria considerável (que aumenta com E_{ph}), as distribuições são representadas diretamente pelas suas probabilidades cumulativas, obtidas através de integração numérica e ajustadas por polinómios. Também a distribuição de Shefer *et al.* [81] é representada por um ajuste polinomial da sua probabilidade cumulativa.

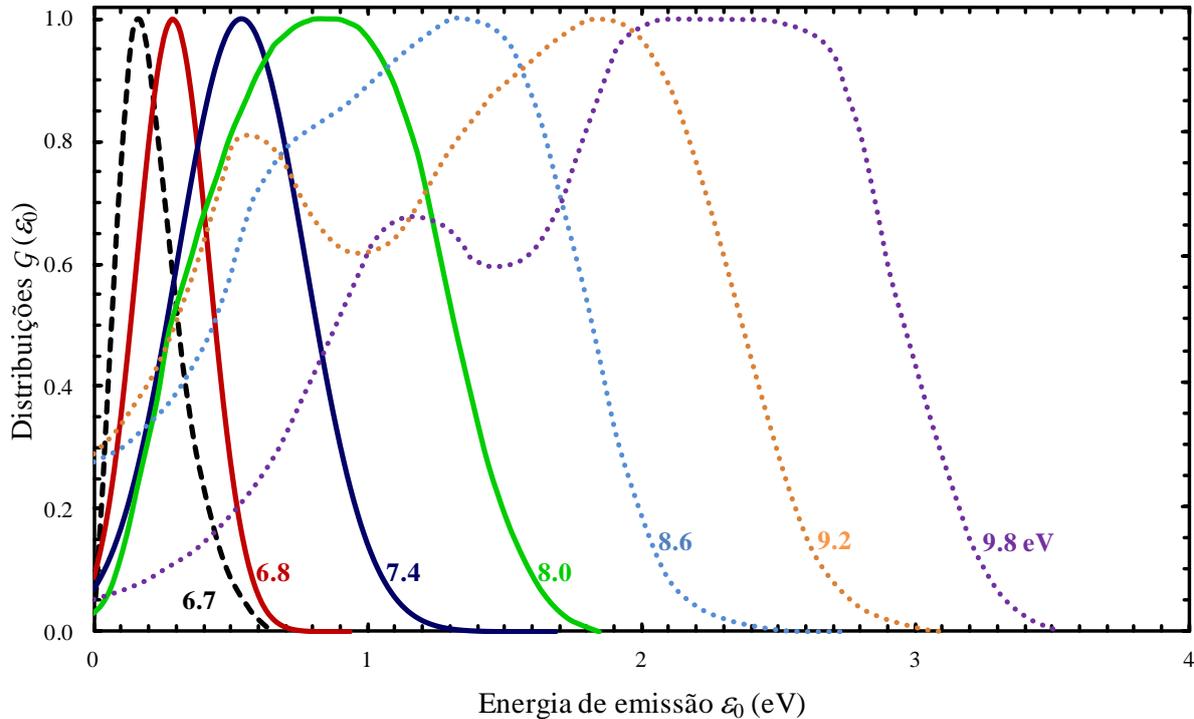


Figura 3.8 – Algumas das distribuições $G(\varepsilon_0)$ de energia de emissão ε_0 de fotoelétrões usadas na simulação, correspondentes a fótons monocromáticos com as energias E_{ph} indicadas, medidas para fotocátodos de CsI, um refletivo de 500 nm [81] (- - -) e um transmissivo de 11 nm [80] (curvas — e ····).

3.2.2 Deriva dos eletrões

Após a emissão, os eletrões derivam no meio gasoso ao longo de sucessivos percursos livres e colisões, como a seguir se resume.

A trajetória de cada eletrão entre duas colisões sucessivas – *percurso livre* – é determinada através das equações clássicas do movimento, que para cada instante t definem a posição \vec{r} e a velocidade \vec{v} a partir dos valores iniciais \vec{r}_0 e \vec{v}_0 e da aceleração devida ao campo elétrico.

A duração do percurso livre é calculada através do método das colisões nulas [85,86], método matematicamente exato que permite ultrapassar, de um modo expedito, a dificuldade que advém de a frequência de colisão ν ser uma função complexa da energia do eletrão, que varia ao longo da

trajetória. Este método socorre-se de colisões fictícias, denominadas nulas por não produzirem qualquer efeito, para criar uma frequência total de colisão constante, que é fácil de amostrar,

$$v_{\text{tot}} = v + v_{\text{nul}} = \text{const.}, \quad (3.10)$$

escolhida de entre os menores majorantes da frequência de colisão v , de modo a minimizar o tempo de computação.

A frequência de colisão v é dada pela soma das frequências de colisão parciais com cada um dos componentes i do meio gasoso, com N^i centros difusores (átomos ou moléculas) por unidade de volume, de acordo com a seguinte equação:

$$v = \sum_i v^i = \sum_i \sigma_T^i N^i v^i, \quad (3.11)$$

onde σ_T^i é a secção eficaz total de colisão com os centros difusores do componente i e v^i o módulo da velocidade relativa, dada por

$$\vec{v}^i = \vec{v} - \vec{V}_g^i, \quad (3.12)$$

onde \vec{V}_g^i é a velocidade dos átomos ou moléculas do componente i , sorteada a partir de uma distribuição de Maxwell.

Com recurso a números aleatórios r gerados uniformemente no intervalo]0, 1[e até que, após eventualmente algumas colisões nulas, ocorra uma colisão real, são determinados intervalos de tempo sucessivos de acordo com a equação

$$t = -\frac{\ln r}{v_{\text{tot}}}. \quad (3.13)$$

A soma destes intervalos parciais determina o tempo de duração do percurso livre e, conseqüentemente a posição \vec{r} , a velocidade \vec{v} e a energia cinética ε do eletrão antes da colisão real, bem como a frequência v .

No caso de misturas gasosas, quando ocorre uma colisão real sorteia-se com qual dos gases colide o eletrão (gás nobre ou gás molecular) de acordo com as respectivas probabilidades de ocorrência, p^{gn} e p^{gm} , determinadas em função das respectivas frequências de colisão, v^{gn} e v^{gm} para a energia ε ,

$$p^{gn} = \frac{v^{gn}}{v^{gn} + v^{gm}} = 1 - p^{gm}. \quad (3.14)$$

A partir daqui, é apenas necessário calcular a velocidade do eletrão após a colisão, determinando-se a energia e a direção do movimento do eletrão após a colisão, sendo, para isso, necessário conhecer o tipo de colisão.

A natureza da colisão é escolhida de acordo com a probabilidade p_j de ocorrência de cada um dos processos j possíveis para a energia ε de impacto da colisão no gás

$$p_j = \frac{v_j}{v} = \frac{\sigma_j}{\sigma_T}, \quad (3.15)$$

onde σ_j e σ_T são, respetivamente, as secções eficazes do processo j e total de colisão no gás.

Embora em colisões elásticas as trocas de energia entre elétron e centro difusor sejam pequenas, o número deste tipo de colisões é muito elevado e essas trocas tornam-se relevantes, pelo que as colisões elásticas são tratadas exatamente, no sistema do centro de massa e tendo em conta a distribuição (de Maxwell) da velocidade do gás. Por outro lado, nas colisões inelásticas ou superelásticas consideradas, a troca de energia é maior, pelo que as colisões são tratadas simplesmente no sistema do laboratório e se despreza a velocidade dos átomos/moléculas.

Quando ocorre uma colisão inelástica ou superelástica, a energia do elétron é, respetivamente, decrementada ou incrementada da energia correspondente à transição em causa, que é escolhida de entre as possíveis transições para a energia de impacto ε de acordo com as secções eficazes parciais, de modo análogo ao efetuado na escolha do tipo de colisão.

A difusão angular do elétron é definida relativamente à direção de incidência através dos ângulos polar θ e azimutal φ , determinados para a energia de impacto ε de acordo com a secção eficaz diferencial angular correspondente ao processo em causa, já descrita na **secção 3.1**. Uma vez que a difusão angular possui simetria axial, o ângulo φ é sorteado de uma distribuição uniforme em $]0, 2\pi[$, enquanto o ângulo polar θ é determinado de acordo com a probabilidade cumulativa angular de o elétron ser defletido segundo um ângulo inferior a $\theta \in]0, \pi[$. Quando a difusão é isotrópica, a distribuição uniforme de ângulo sólido é traduzida por um ângulo de deflexão θ sorteado a partir de uma distribuição uniforme em $\cos \theta$.

No que respeita ao caso particular da colisão com ionização do centro difusor, a energia excedente é partilhada pelos dois eletrões resultantes, de acordo com a secção eficaz diferencial de partilha de energia, como exposto na **secção 3.1**. De modo que a direção e o sentido da quantidade de movimento total dos dois eletrões resultantes sejam iguais às do elétron incidente, os dois eletrões são difundidos segundo direções perpendiculares entre si. No estudo de extração de fotoeletrões apenas o elétron mais energético resultante da ionização é considerado.

À colisão sucede um novo percurso livre, e assim sucessivamente, até que seja atingido o critério de paragem estabelecido para o estudo em causa. Caso existam eletrões secundários criados por ionização no meio gasoso, a sua história será também seguida na simulação. O processo repete-se até que se esgotem todos os eletrões da amostra e respetivos eletrões secundários.

No que respeita ao estudo da eletroluminescência (**capítulo 5**), a simulação conta os fótons de cintilação que são emitidos na sequência da excitação dos átomos de Xe, de acordo com os mecanismos de emissão de cintilação abordados na **secção 2.1** e caracterizados pelas constantes de reação apresentadas na **secção 5.2.1**.

3.2.3 Critérios de paragem da simulação

A simulação do movimento de cada eletrão cessa quando este é capturado por uma molécula do meio gasoso (*attachment*) ou quando é atingido o critério de paragem estabelecido para cada caso em análise, distinto para cada um dos diferentes estudos efetuados.

No cálculo dos parâmetros de deriva de eletrões (**secção 3.3**), a simulação finda após os eletrões derivarem durante um tempo limite de deriva previamente estabelecido, no mínimo cinco vezes o tempo de relaxação, como se verá na **secção 3.3.1**.

No estudo da eletroluminescência de xénon (**capítulo 5**), a simulação termina quando os eletrões atingem o ânodo à distância $D = 0.5$ cm.

Tal como anteriormente, também aqui, a extração dos eletrões de fotocátodos de CsI em meio gasoso (**capítulo 4**) reclama um tratamento separado.

Critério de paragem no estudo da retrodifusão de fotoeletrões em meio gasoso

Quando se tem em conta a reflexão dos eletrões que regressam ao fotocátodo ($z = 0$), a simulação decide, de acordo com o coeficiente de reflexão R , se o eletrão é ou não refletido pelo fotocátodo. Em caso afirmativo, de acordo com a lei da reflexão, o eletrão mantém a mesma energia e inverte a componente da velocidade segundo z , continuando o seu movimento no gás.

Um fotoeletrão termina a sua história, sendo contado como recapturado (não extraído), quando regressa ao fotocátodo ($z = 0$) e é absorvido por este, o que acontece quando não é refletido. Por outro lado, um fotoeletrão é contado como efetivamente extraído do fotocátodo, quando não é permitido ou é praticamente inviável energeticamente o seu regresso ao fotocátodo.

Quando um fotoeletrão é capturado por uma molécula do meio gasoso, ele é contado como efetivamente extraído; esta assunção não acarreta erros assinaláveis nos resultados, como se verá na **secção 4.1.2.3**. A geração de eletrões por ionização não afeta os resultados, pois apenas o eletrão mais energético resultante é considerado na simulação; é de referir que, para a gama de energias de emissão ϵ_0 consideradas, o eletrão menos energético resultante de ionização está energeticamente impossibilitado de regressar ao fotocátodo.

A extração de fotoeletrões de fotocátodos em meio gasoso é quantitativamente descrita pela eficiência de extração f , definida como a razão entre o número m de fotoeletrões que não são reabsorvidos pelo fotocátodo e o número m_0 dos fotoeletrões ejetados da superfície do fotocátodo:

$$f = \frac{m}{m_0}. \quad (3.16)$$

Se não houver retrodifusão dos fotoeletrões, como sucede em vácuo, a eficiência de extração é $f = 1$.

É energeticamente impossível a um fotoeltrão que atinge energia total ε_i (soma da energia cinética com a energia potencial) negativa regressar ao fotocátodo, a não ser que consiga recuperar energia suficiente em colisões no meio gasoso de modo a tornar ε_i novamente positiva. Embora o eletrão possa ganhar energia numa colisão elástica, o mais frequente é ele perder parte da que possui, pelo que, nos gases nobres, em metano e nas misturas entre eles (onde não são consideradas colisões superelásticas) considera-se que os fotoeltrões terminam a sua história quando atingem uma $\varepsilon_i < 0$ (essencialmente quando perdeu em colisões energia superior à sua energia ε_0 de emissão), sendo então contados como efetivamente extraídos. Esta aproximação é menos exata para os baixos valores de energia dos eletrões, acarretando, para $E_{ph} = 6.8$ eV, um erro relativo máximo para f em Xe, Ar, Ne e CH_4 de, respetivamente, cerca de 0.4% (0.1 Td), 1.5% (0.2 Td), 3.2% (0.1 Td) e 2.8% (0.1 Td); o erro relativo a $E/N = 1$ Td naqueles gases toma valores, respetivamente, de 0%, 0.8%, 0.9% e 0.02%. Todavia, uma vez que, para baixos valores de E/N , os valores de f nos gases nobres são baixos, os erros absolutos são reduzidos. No que se refere a CH_4 , apesar de o erro absoluto em f para $E/N = 0.1$ Td ser mais significativo porque f é maior, os resultados são também calculados com o critério de paragem descrito.

Nos estudos em que é significativa a energia ganha pelos eletrões em colisões superelásticas com as moléculas do meio gasoso, o que acontece quando o meio gasoso contém CF_4 ou CO_2 , o critério energético $\varepsilon_i < 0$ já não garante que os fotoeltrões não podem regressar ao fotocátodo. Nestas circunstâncias, os fotoeltrões são seguidos até uma distância D do fotocátodo, estabelecida em cada caso acima da distância máxima atingida pelos fotoeltrões recapturados pelo fotocátodo, mas não tão grande que desperdice tempo de computação.

3.3 Parâmetros de deriva de eletrões

Esta secção é destinada aos parâmetros de deriva de eletrões nos meios gasosos considerados nos estudos pelo método de Monte Carlo nesta dissertação, comparando resultados calculados com experimentais e analisando de uma forma sucinta a sua dependência com E/N e composição do meio gasoso.

Na deriva de uma amostra de eletrões (de carga elétrica $-e$) sob a influência de um campo elétrico uniforme (de intensidade E) num meio gasoso, após uma sequência de percursos livres e colisões, é atingido um estado de equilíbrio, em que a taxa média de energia perdida (em colisões) é igual à taxa média de energia ganha (do campo elétrico) pelos eletrões. A deriva dos eletrões no meio é caracterizada através de algumas grandezas físicas macroscópicas, denominadas *parâmetros de deriva* ou *parâmetros de transporte*, tais como: velocidade de deriva w e mobilidade μ (Eq. 3.17), energia média ε_m , coeficientes de difusão transversal D_T (no plano perpendicular ao campo elétrico) e

longitudinal D_L (na direção do campo elétrico), energias características ε_{kT} e ε_{kL} (Eqs. 3.18 e 3.19) e coeficientes de excitação e ionização.

$$w = \mu E \quad (3.17)$$

$$\varepsilon_{kT} = \frac{e D_T}{\mu} \quad (3.18)$$

$$\varepsilon_{kL} = \frac{e D_L}{\mu} \quad (3.19)$$

Para valores suficientemente baixos do campo elétrico reduzido E/N , o efeito das colisões predomina sobre a ação do campo elétrico e os eletrões entram em equilíbrio térmico com o gás, e os parâmetros de deriva dos eletrões são dependentes da temperatura T do gás. Nestas circunstâncias, a energia média ε_m dos eletrões iguala a energia térmica do gás ($\varepsilon_m = 3KT/2$, onde K é a constante de Boltzmann), a difusão macroscópica dos eletrões é isotrópica ($D_T = D_L$), as energias características atingem o limite térmico ($\varepsilon_{kT} = \varepsilon_{kL} = KT$), a mobilidade reduzida μN não varia com E/N e a velocidade de deriva w cresce linearmente com E/N (ver p. ex. [87]).

Para maiores valores de E/N , o efeito do campo elétrico torna-se dominante, cessando o equilíbrio térmico dos eletrões com o gás e a dependência com a temperatura. Assim, para um valor bem estabelecido de E/N (tanto maior quanto maiores forem as perdas de energia [88]) que depende do meio gasoso e da temperatura, passa a verificar-se um crescimento da energia média ε_m e das energias características ε_{kT} e ε_{kL} com E/N , e a difusão macroscópica torna-se anisotrópica ($D_T \neq D_L$). O comportamento dos parâmetros de deriva com E/N caracteriza o meio gasoso e está estreitamente ligado aos processos de difusão dos eletrões no meio, traduzidos pelas suas secções eficazes.

3.3.1 Cálculo pelo método de Monte Carlo

Com o objetivo de testar o modelo do transporte dos eletrões e em particular as secções eficazes de difusão dos eletrões nos vários meios gasosos estudados (gases puros e misturas de gás nobre com gás molecular), foram calculados por simulação de Monte Carlo alguns parâmetros de deriva e comparados com dados experimentais existentes na literatura. A gama de campo elétrico reduzido E/N de interesse para os estudos da presente dissertação está compreendida entre 0.1 e 40 Td, todavia no estudo dos parâmetros de deriva esta gama é alargada para E/N desde 0.01 Td (gases puros) ou 0.1 Td (misturas gasosas) até 100 Td. Para cada meio gasoso e campo elétrico reduzido, uma amostra de pelo menos 2×10^4 eletrões, inicialmente com energia nula, deriva sob a influência do campo elétrico uniforme (sentido $-z$) no meio gasoso à temperatura de 20 °C e à pressão de 1 atm.

Os parâmetros de deriva são calculados de acordo com uma análise TOF (*time-of-flight*) da deriva da amostra de eletrões. A velocidade de deriva w é definida como a velocidade do centro de massa do conjunto de eletrões e os coeficientes de difusão D_T e D_L são as derivadas em ordem ao

tempo das variâncias, respetivamente, das coordenadas transversal r ($r^2 = x^2 + y^2$) e longitudinal z da posição dos eletrões, de acordo com as seguintes equações (simplificadas considerando que no instante inicial os eletrões estão na origem dos eixos), onde a média de uma grandeza n é representada por \bar{n} :

$$w = \frac{d\bar{z}}{dt} \quad (3.20)$$

$$D_T = \frac{1}{4} \frac{d\bar{r}^2}{dt} \quad (3.21)$$

$$D_L = \frac{1}{2} \frac{d(\bar{z}^2 - \bar{z}^2)}{dt}. \quad (3.22)$$

Em cada simulação, a amostra de eletrões é seguida durante o tempo limite de deriva t_{lim} e as grandezas ε_m , \bar{z} , \bar{r}^2 e $\bar{z}^2 - \bar{z}^2$ são amostradas em 50 instantes igualmente espaçados e ajustadas a retas, desprezando-se no ajuste a região inicial de não-equilíbrio (tempo de relaxação) em que as grandezas amostradas não variam linearmente com o tempo. Para o efeito, em cada caso, o tempo t_{lim} é estabelecido de modo a ser no mínimo cinco vezes o tempo de relaxação. A energia média ε_m é dada pela ordenada na origem da respetiva reta (horizontal) de ajuste, enquanto as variáveis w , D_T e D_L são determinados a partir dos declives das retas de ajuste a \bar{z} , \bar{r}^2 e $\bar{z}^2 - \bar{z}^2$. Este procedimento é exemplificado na **Fig. 3.9**, para $E/N = 0.5$ Td na mistura Xe-5%CF₄.

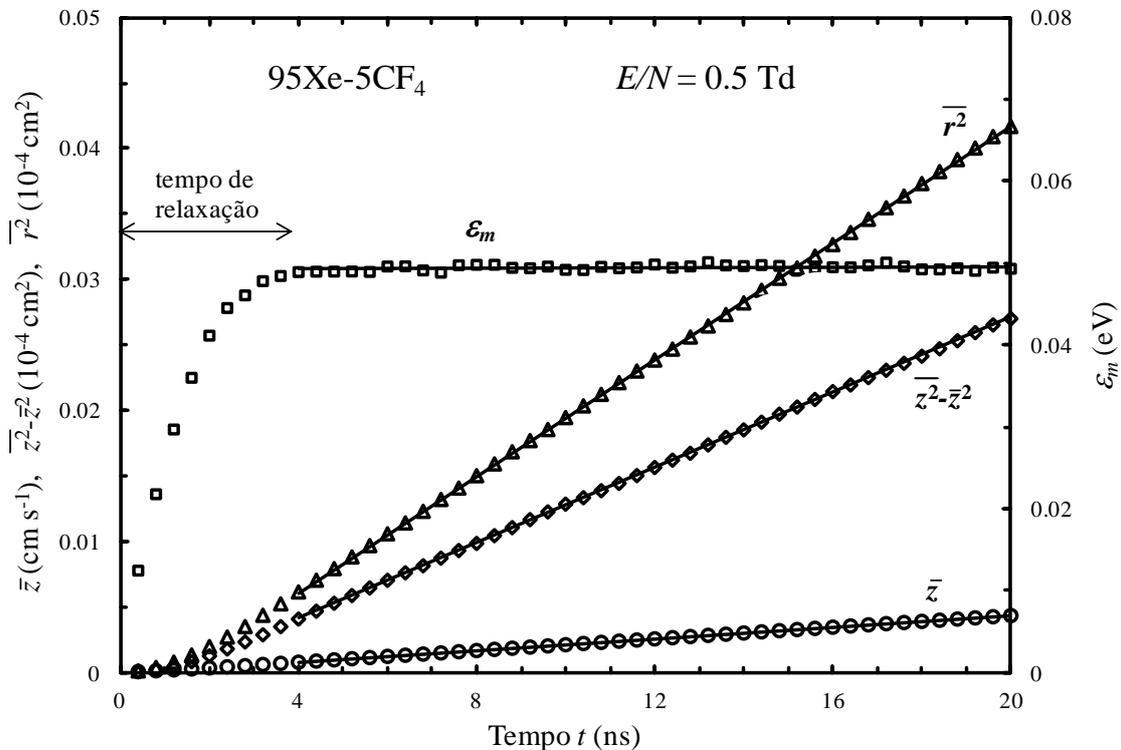


Figura 3.9 – Resultados de Monte Carlo (símbolos) para as grandezas ε_m , \bar{z} , \bar{r}^2 e $\bar{z}^2 - \bar{z}^2$ em função do tempo t de deriva, quando uma amostra de 20000 eletrões deriva durante $t_{\text{lim}} = 20$ ns na mistura Xe-5%CF₄ sob influência do campo elétrico reduzido $E/N = 0.5$ Td, juntamente com as respetivas retas de ajuste que excluem o tempo de relaxação.

3.3.2 Comparação entre resultados calculados e experimentais

Os parâmetros de deriva são definidos de forma diferente consoante o princípio de análise da amostra de elétrons considerado, podendo, por isso, assumir valores diferentes quando o número de elétrons da amostra não se conserva [2,89-91]. É frequentemente considerado que a captura de elétrons por moléculas de um gás tem efeito desprezável no valor dos parâmetros de deriva de elétrons aqui apresentados [57,92]. Nos presentes estudos, a ionização não é apreciável, exceto para os maiores valores da gama de E/N (fora da gama de interesse) quando Ne predomina. Assim, não é essencial restringir a comparação dos resultados de Monte Carlo apenas a parâmetros de transporte obtidos por métodos experimentais baseados no princípio de análise da amostra de elétrons considerado na simulação (TOF).

Nas **Figs. 3.10 a 3.19** mostram-se, em função de E/N , os resultados da simulação de Monte Carlo (curvas) para os parâmetros de deriva de elétrons nos gases puros Ar, Xe, Ne, CF_4 e CO_2 e em misturas binárias de CH_4 com Xe ou Ne, e de CO_2 ou CF_4 com Xe, Ar ou Ne. À exceção da energia média ε_m dos elétrons, os resultados obtidos são comparados com dados experimentais publicados (símbolos). Resultados em Ar haviam já sido publicados em [6,7], mas novos resultados são agora apresentados com recurso a uma nova secção eficaz de transferência de quantidade de movimento para representar a difusão elástica, conforme referido anteriormente na **secção 3.1.1.2**.

É a seguir apresentada uma análise pormenorizada da concordância entre resultados de Monte Carlo (MC) e experimentais para os parâmetros de deriva nos vários meios gasosos.

Na **Fig. 3.10**, para Xe puro, observa-se que existe um muito bom acordo entre os valores de MC e os experimentais para w e μN (**Fig. 3.10a**), principalmente se nos confinarmos aos mais divulgados [11,99,102], e que os resultados de MC para ε_{kL} e ε_{kT} (**Fig. 3.10b**) reproduzem bem os experimentais, apesar do desvio patente para E/N mais baixo (fora da região de interesse) e da grande dispersão das medidas (especialmente em [11]).

No que respeita aos parâmetros w , μN , ε_{kL} e ε_{kT} em Ar, observa-se na **Fig. 3.11** que a nova secção eficaz para a difusão elástica permitiu melhorar o acordo entre resultados experimentais e de MC, apenas quebrado relativamente a w e μN na região de E/N mais elevada (fora da região de interesse), e ε_{kT} superior a 2 Td, onde os dados experimentais são de um único trabalho.

Na **Fig. 3.12a** as curvas de MC para w e μN em Ne evidenciam uma concordância muito boa com os dados experimentais mais divulgados [105,118,119], exceto para E/N próximo de 100 Td (fora da região de interesse). A **Fig. 3.12b** mostra que, quando existem dados experimentais, a concordância destes com os valores de MC em Ne é excelente para ε_{kT} e apenas razoável para ε_{kL} , para a qual os dados exibem grande dispersão. No que respeita à mistura Ne-10% CH_4 , pode afirmar-se que as curvas de MC para ε_{kT} e ε_{kL} são compatíveis com os dados experimentais.

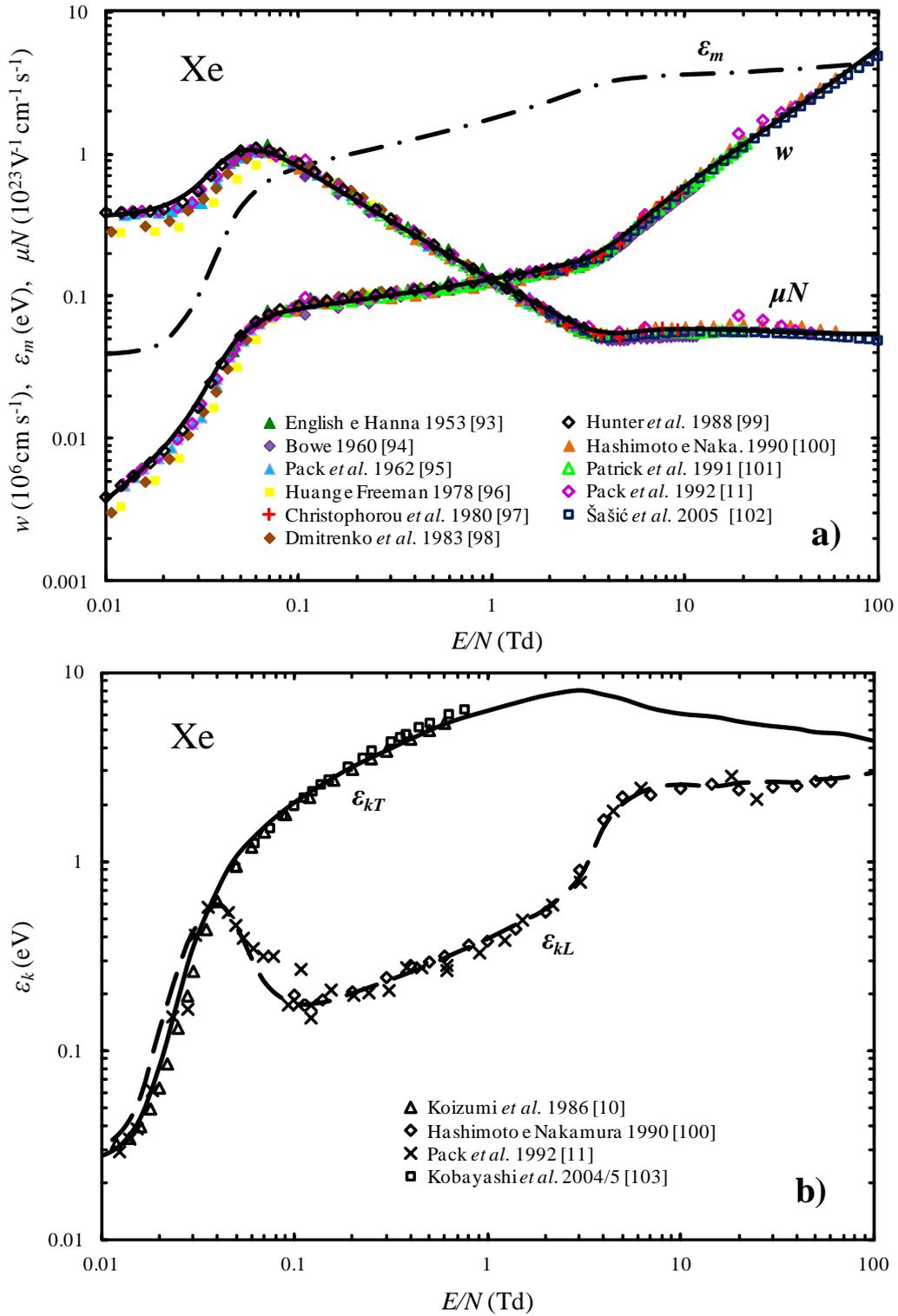


Figura 3.10 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para elétrons em Xe, em função do campo elétrico reduzido E/N : **a)** energia média ε_m , velocidade de deriva w e mobilidade reduzida μN ; **b)** energias características ε_{kT} e ε_{kL} .

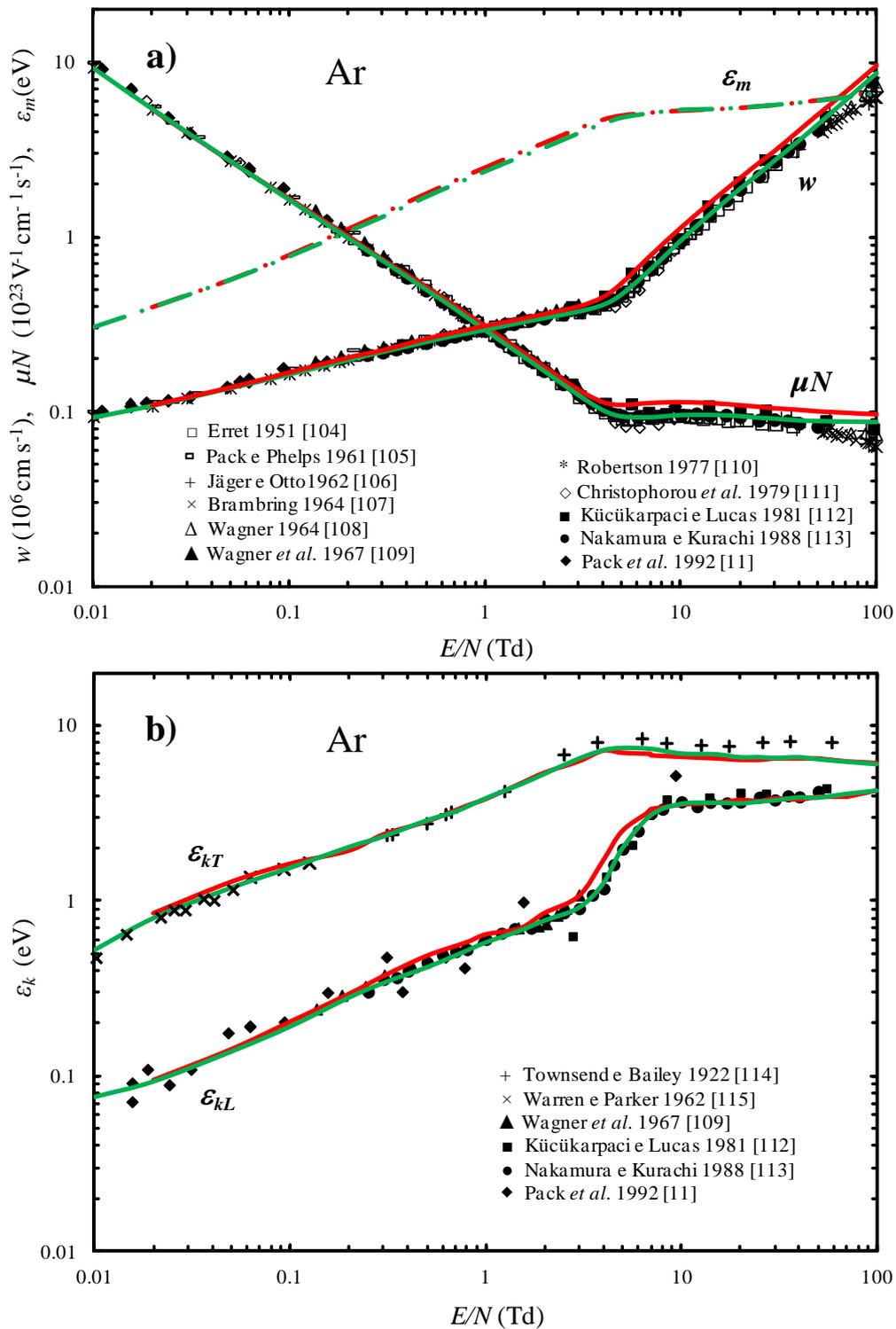


Figura 3.11 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para eletrões em Ar, em função do campo elétrico reduzido E/N : **a)** energia média ε_m , velocidade de deriva w e mobilidade reduzida μN ; **b)** energias características ε_{kT} e ε_{kL} . As curvas a vermelho correspondem a resultados calculados com recurso ao conjunto de secções eficazes anteriormente adotado, agora substituído por um novo a que correspondem as curvas a verde.

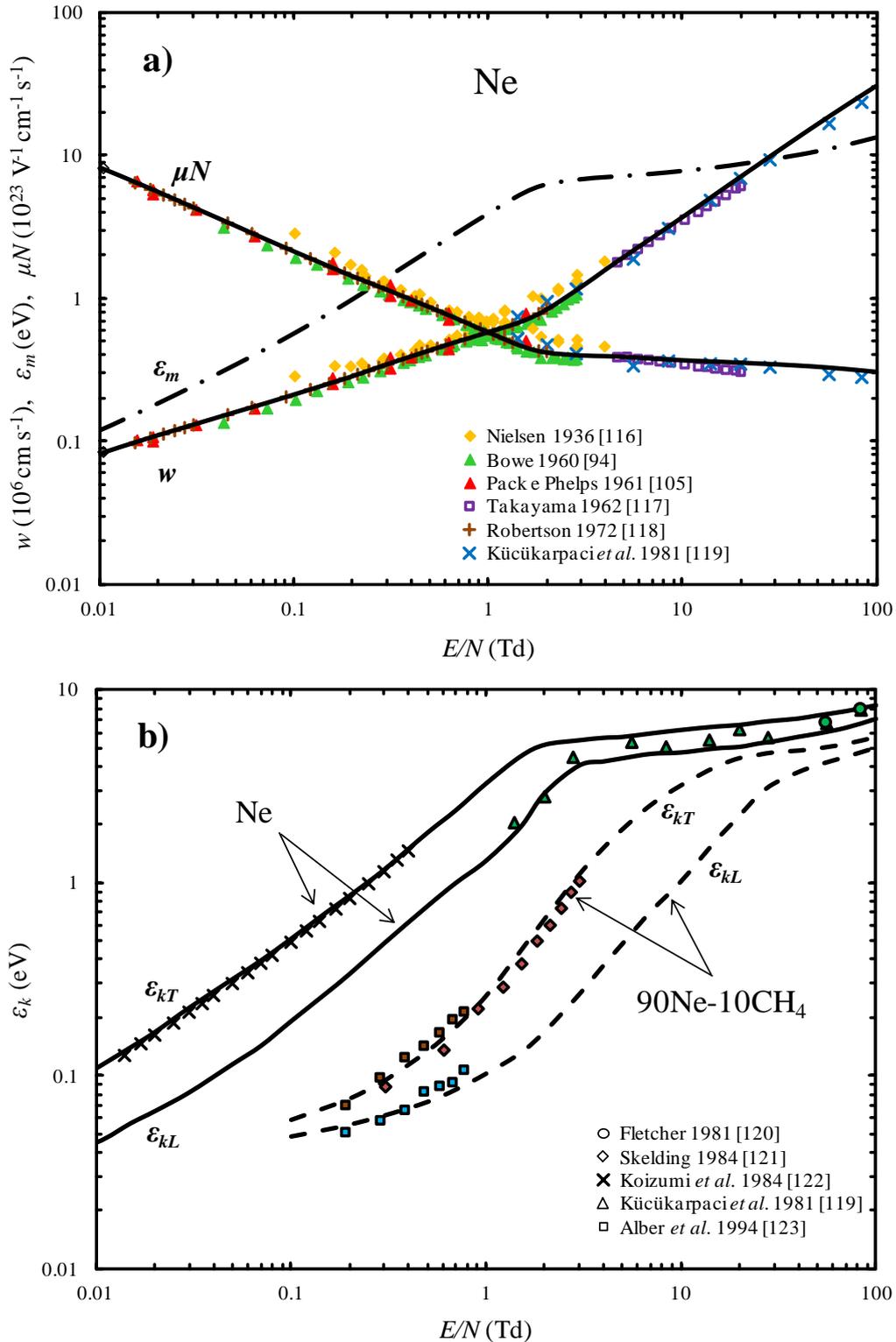


Figura 3.12 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para elétrons, em função do campo elétrico reduzido E/N : **a)** energia média ϵ_m , velocidade de deriva w e mobilidade reduzida μN em Ne; **b)** energias características ϵ_{kT} e ϵ_{kL} em Ne e em Ne-10%CH₄.

Na **Fig. 3.13** observa-se alguma diferença entre as várias medidas de w e μN em CF₄, verificando-se porém que as curvas de MC seguem de perto os dados de [124] que são recomendados

em [48]. Na **Fig. 3.14** é patente uma significativa discrepância entre as diferentes medidas de ε_{kT} em CF_4 , possibilitando-nos apenas atestar que os valores de MC estão muito próximos dos de [132]. A curva de MC de ε_{kL} em CF_4 segue relativamente bem os dados bastante dispersos de [130] e também, para E/N inferior a 1.5 Td, os dados de [125] e [128] que para maiores valores de E/N divergem significativamente dos de [130] de uma forma aparentemente irregular. De modo a mostrar em CF_4 a influência das interações superelásticas para os baixos E/N e da anisotropia nas interações com excitação vibracional direta para elevado E/N , nas **Figs. 3.13** e **3.14** são também apresentados resultados de MC calculados sem considerar estas influências. A exclusão das colisões superelásticas é fisicamente irrealista, verificando-se claramente que os resultados de MC não traduzem a aproximação ao equilíbrio térmico dos elétrons com o gás para baixos valores de E/N , região em que $\varepsilon_m = 3KT/2$, $\varepsilon_{kT} = \varepsilon_{kL} = KT$ e μN é constante.

Os valores calculados para w em CO_2 exibem na **Fig. 3.15** um acordo quase perfeito com o comportamento médio dos valores experimentais de vários autores, exceto para E/N superior a 50 Td (fora da região de interesse). A **Fig. 3.16** mostra que em CO_2 para ε_{kT} existe uma muito boa concordância entre os resultados de MC e os experimentais, enquanto para ε_{kL} , devido à grande discrepância entre os resultados dos vários autores, apenas se pode inferir que os resultados de MC são compatíveis com o conjunto dos experimentais. Na **Fig. 3.16b** são também apresentadas as medidas

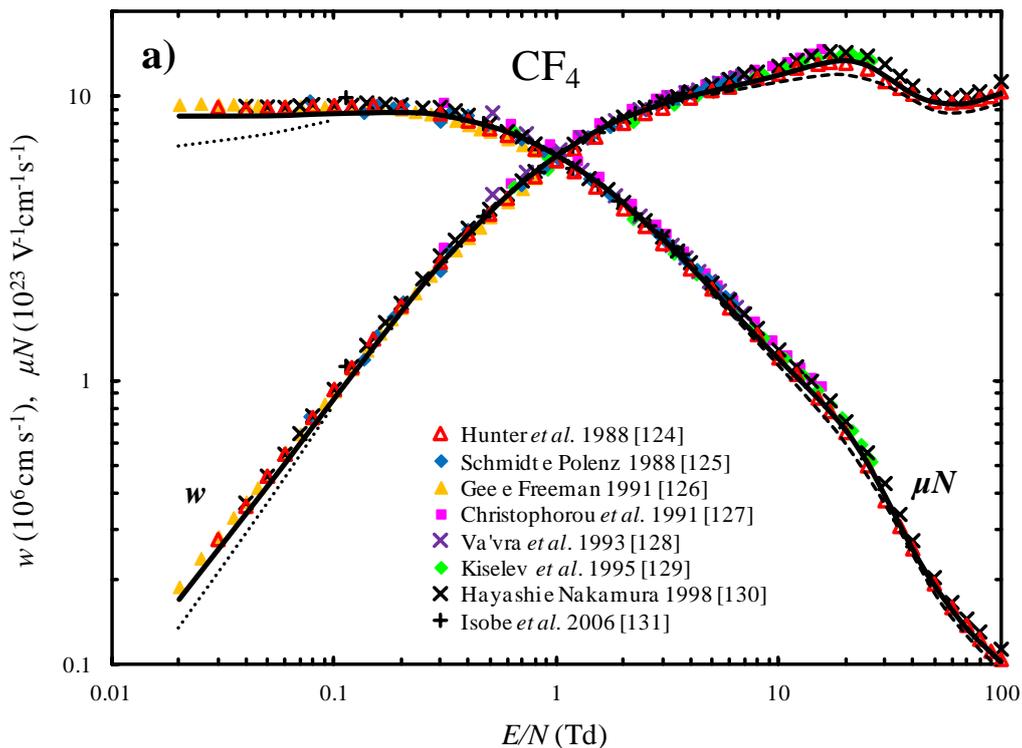


Figura 3.13 – Resultados de Monte Carlo (curvas) para velocidade de deriva w e mobilidade reduzida μN de elétrons em CF_4 em função do campo elétrico reduzido E/N , juntamente com dados experimentais da literatura (símbolos). São também incluídos resultados de Monte Carlo sem considerar interações superelásticas (···) e com isotropia nas interações com excitação vibracional direta (- - -).

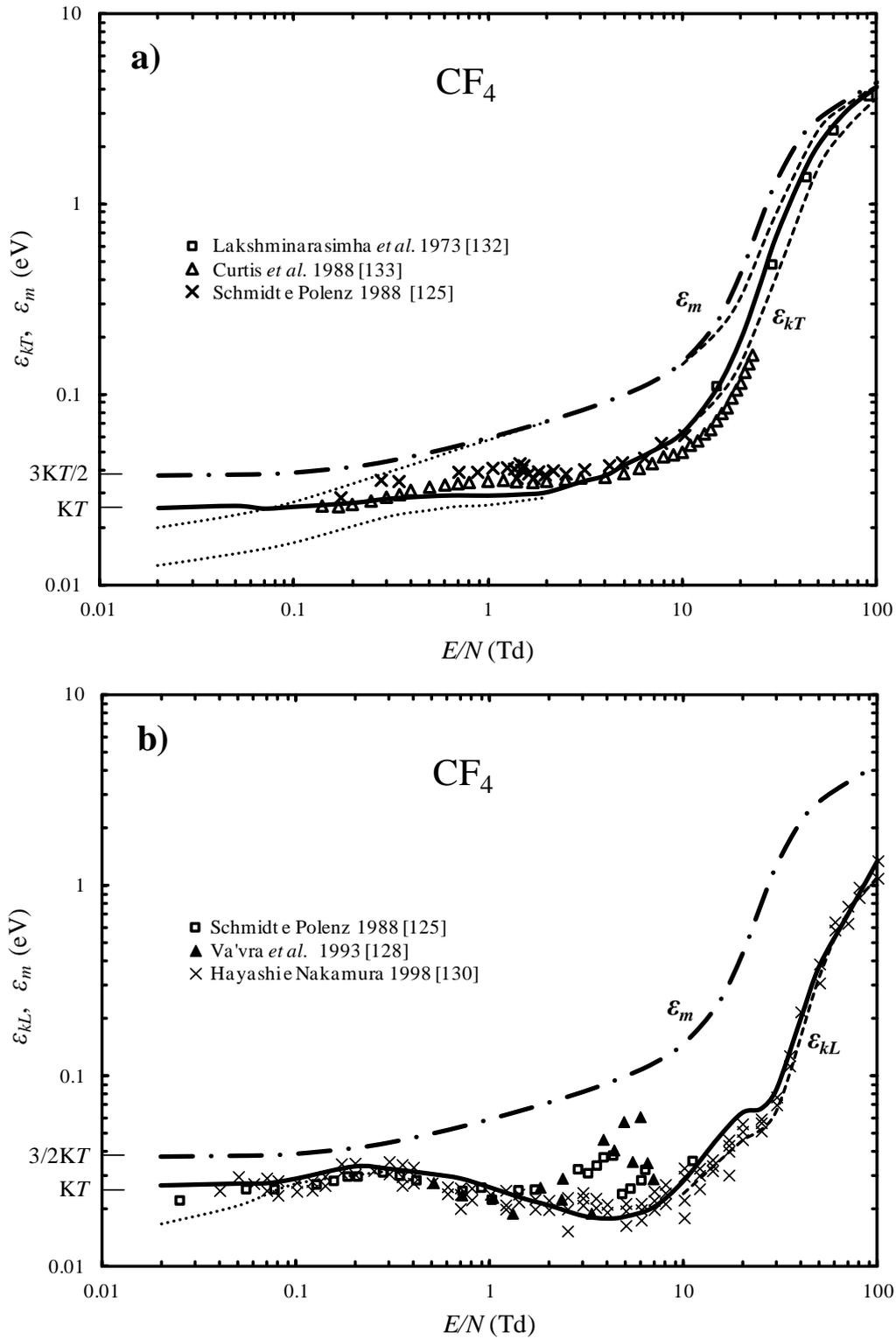


Figura 3.14 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para a energia média ϵ_m e energias características **a)** ϵ_{kT} e **b)** ϵ_{kL} de elétrons em CF_4 , em função do campo elétrico reduzido E/N . São também apresentados resultados de Monte Carlo excluindo interações superelásticas (····) e com isotropia nas interações com excitação vibracional direta (- - -).

de ND_L que foram usadas no cálculo de ε_{kL} , mas não afetadas pelos distintos valores de w dos mesmos autores. É de salientar que das medidas de ε_{kL} realizadas por Hasegawa *et al.*, as mais recentes [146] para $E/N \geq 100$ Td são relativamente superiores às anteriores [139] e coincidem com os resultados de MC.

Na **Fig. 3.17**, as curvas de MC para w em misturas Xe-CH₄ e Ne-CH₄ têm um bom acordo com o comportamento dos dados experimentais, excetuando alguns pontos (de [97] e de [149] em Xe-CH₄, e de [152] em Ne-CH₄) que exibem um desvio significativo em relação ao comportamento geral.

No que respeita aos resultados para w em misturas de Xe, Ar e Ne com CF₄ mostrados nas **Fig. 3.18**, verifica-se que para o caso das misturas Xe-CF₄ e Ne-CF₄, dado que só foi possível comparar com medidas de um autor [97], o deficiente acordo entre resultados calculados e experimentais não é, só por si, conclusivo. É de salientar que, como acontece para as misturas Ar-CH₄, os dados experimentais de Christophorou *et al.* [97,111] são algo superiores aos de MC e restantes experimentais (e até muito superiores para a mistura Ar-1%CF₄ que, por isso, não são aqui apresentados). Nas misturas Ar-CF₄, há em geral um acordo razoável entre resultados calculados e medidos, notando-se todavia uma tendência para os experimentais serem um pouco superiores, assinalando-se que, para os valores mais elevados de E/N , os dados de MC coincidem com os de [130] e divergem dos de [154].

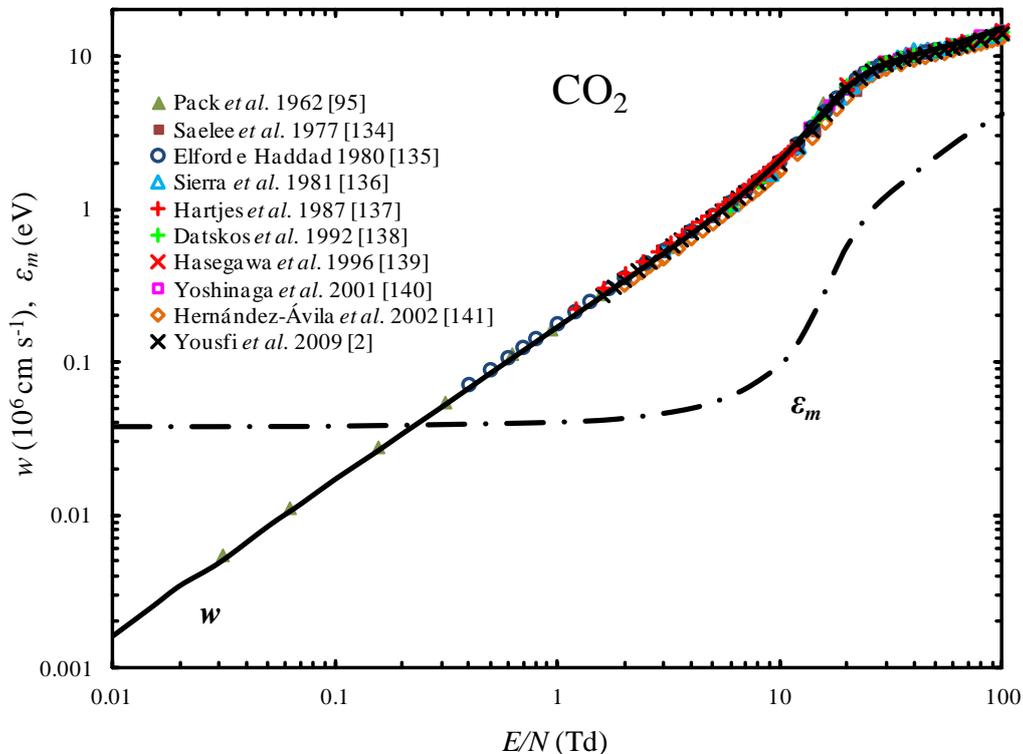


Figura 3.15 – Resultados de Monte Carlo (curvas) para energia média ε_m e velocidade de deriva w de elétrons em CO₂ em função do campo elétrico reduzido E/N , juntamente com dados experimentais da literatura (símbolos).

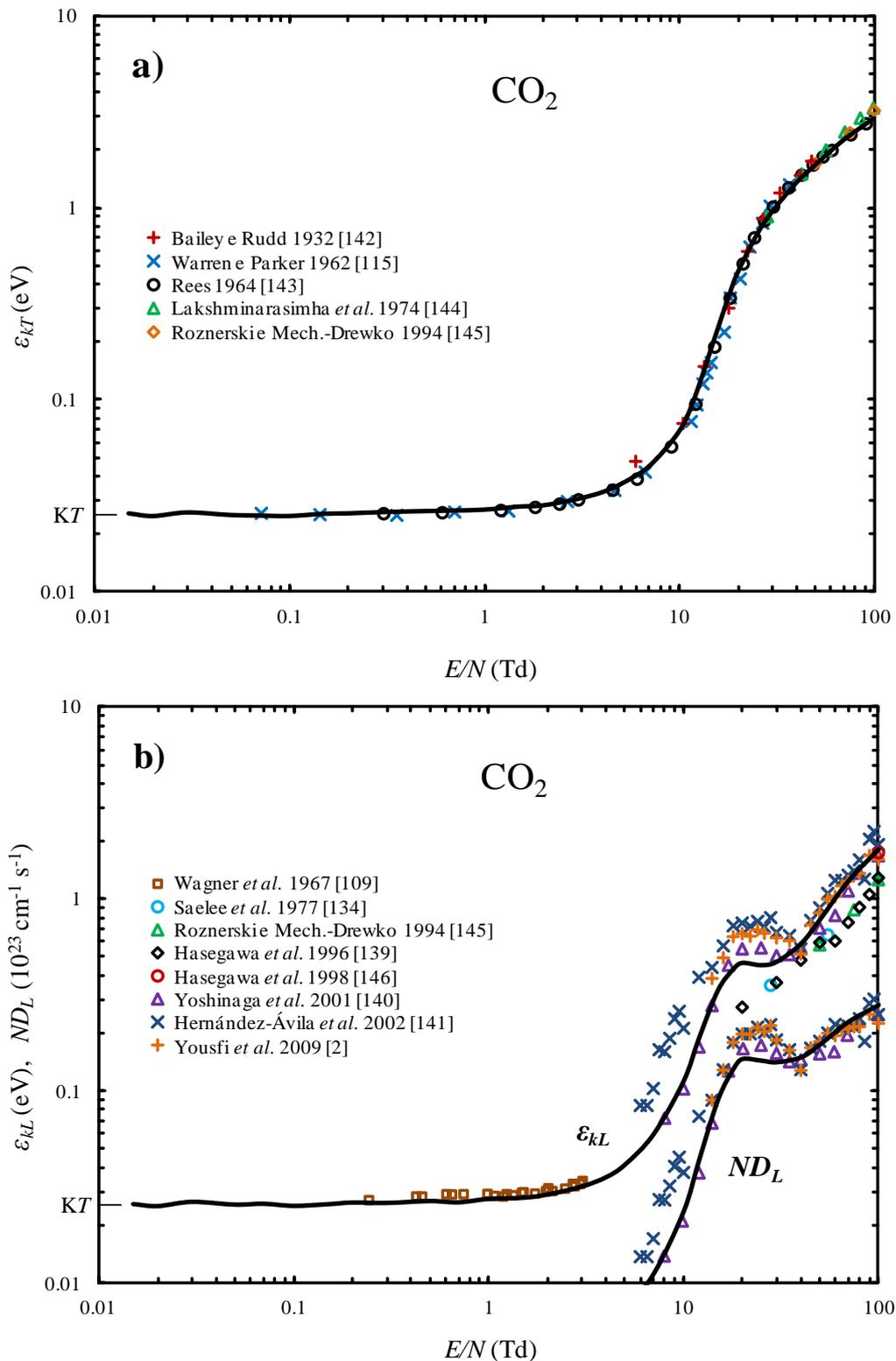


Figura 3.16 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para elétrons em CO_2 , em função do campo elétrico reduzido E/N : **a)** energia característica ϵ_{kT} ; **b)** energia característica ϵ_{kL} e coeficiente de difusão longitudinal reduzido ND_L .

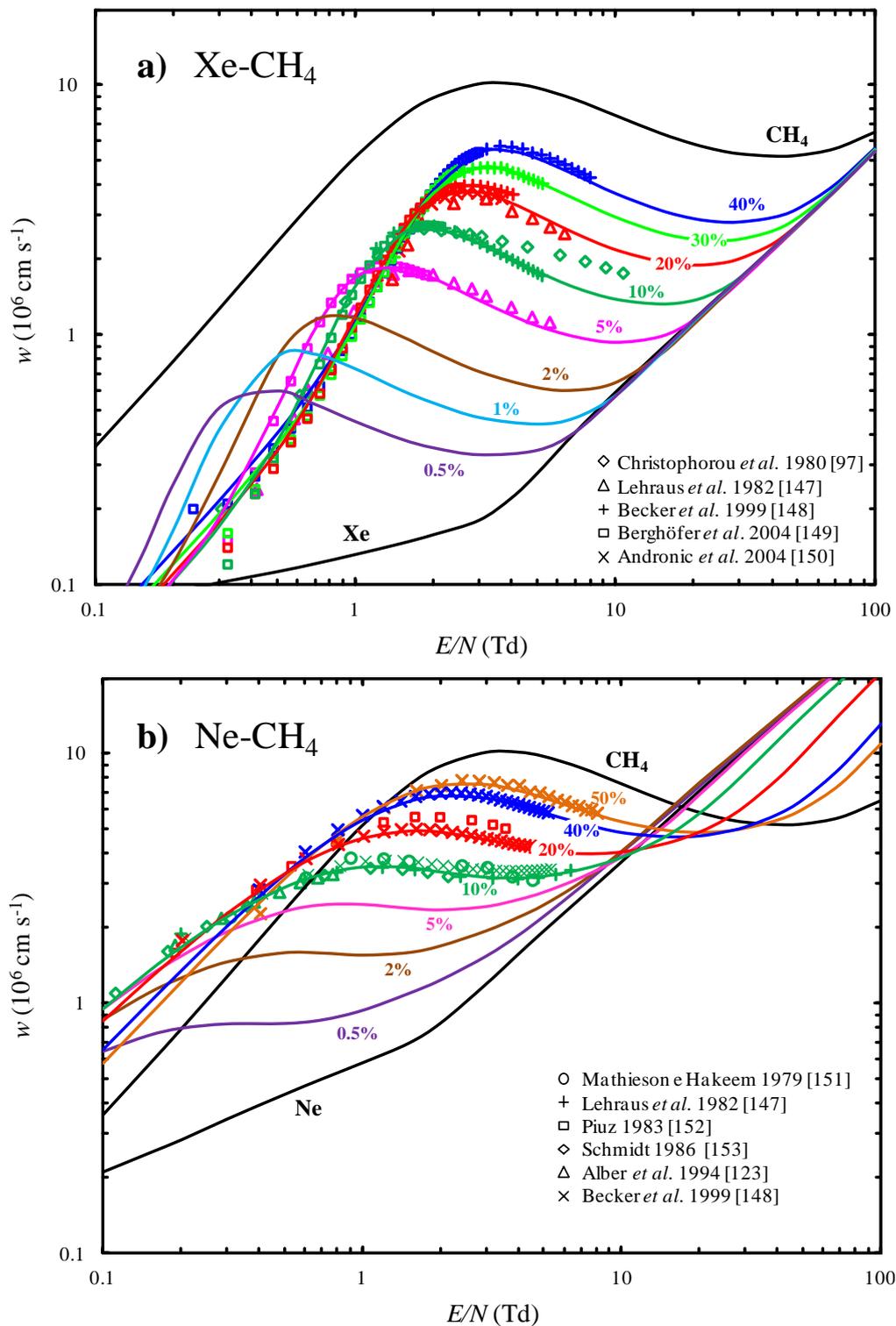
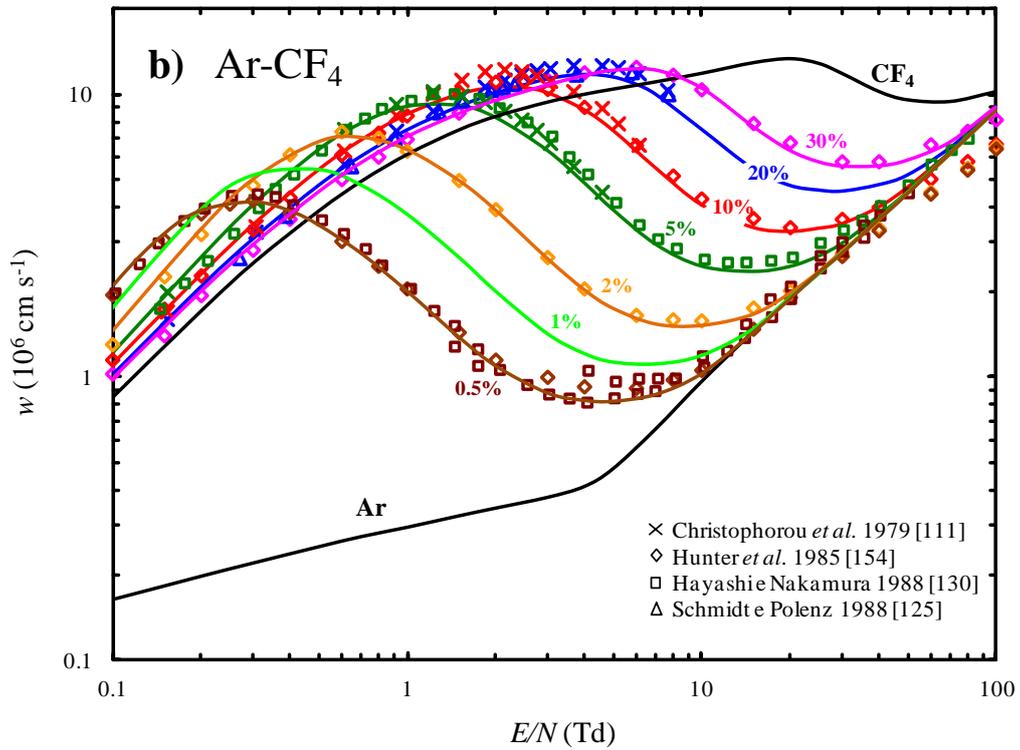
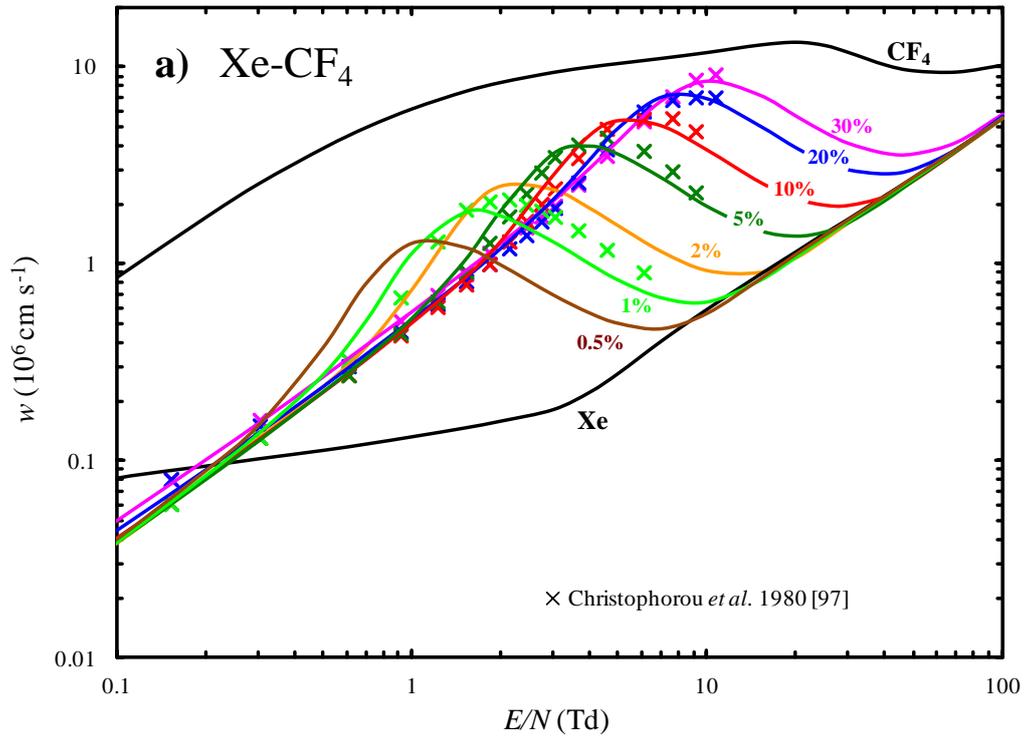


Figura 3.17 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para velocidade de deriva w de elétrons em função do campo elétrico reduzido E/N , nas misturas **a)** Xe-CH₄ e **b)** Ne-CH₄, com as concentrações de CH₄ indicadas. São também incluídos como referência os resultados de Monte Carlo para os gases puros Xe, Ne e CH₄.



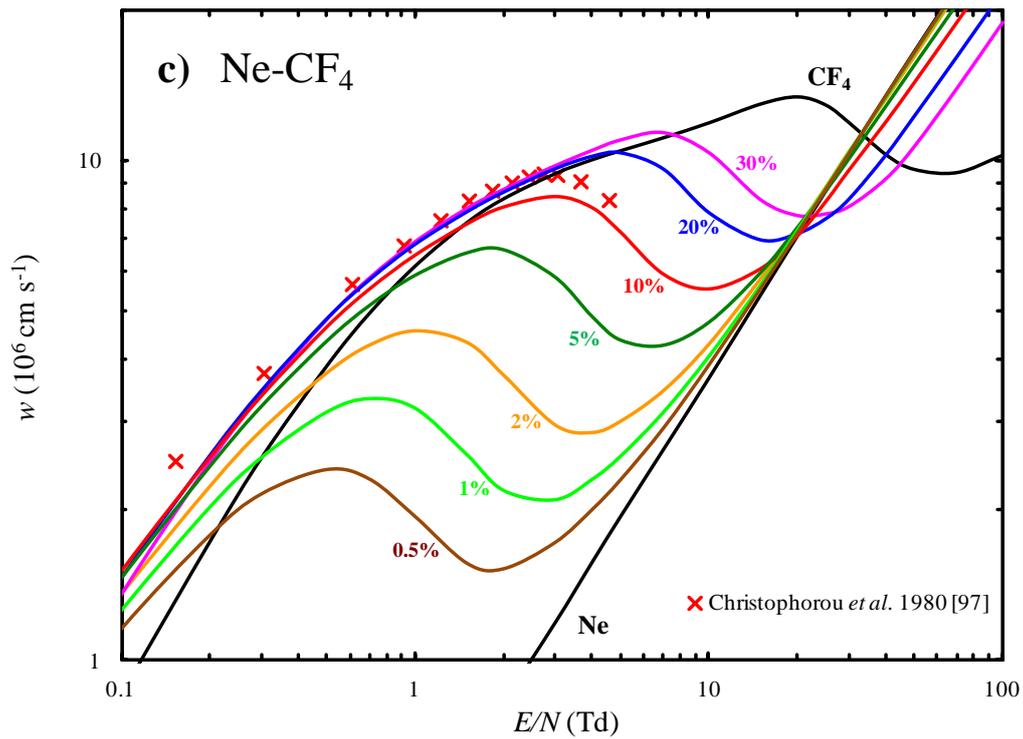
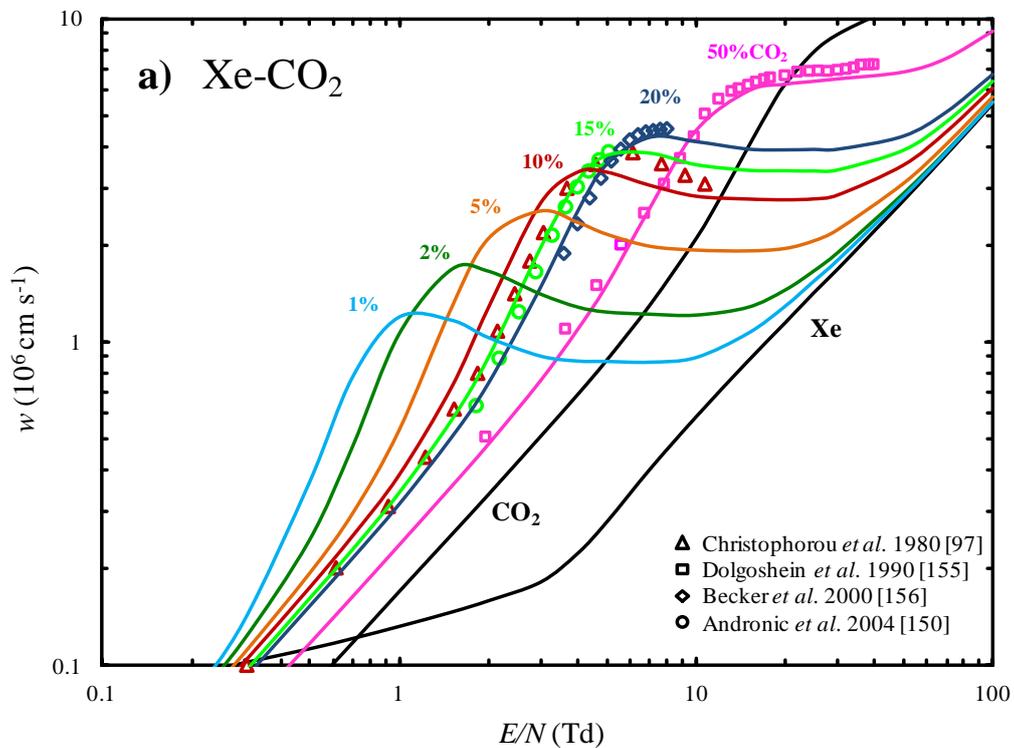


Figura 3.18 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para velocidade de deriva w de elétrons em função do campo elétrico reduzido E/N , nas misturas **a)** Xe-CF₄, **b)** Ar-CF₄ e **c)** Ne-CF₄, com as concentrações de CF₄ indicadas. São também incluídos como referência os resultados de Monte Carlo para os gases puros Xe, Ar, Ne e CF₄.



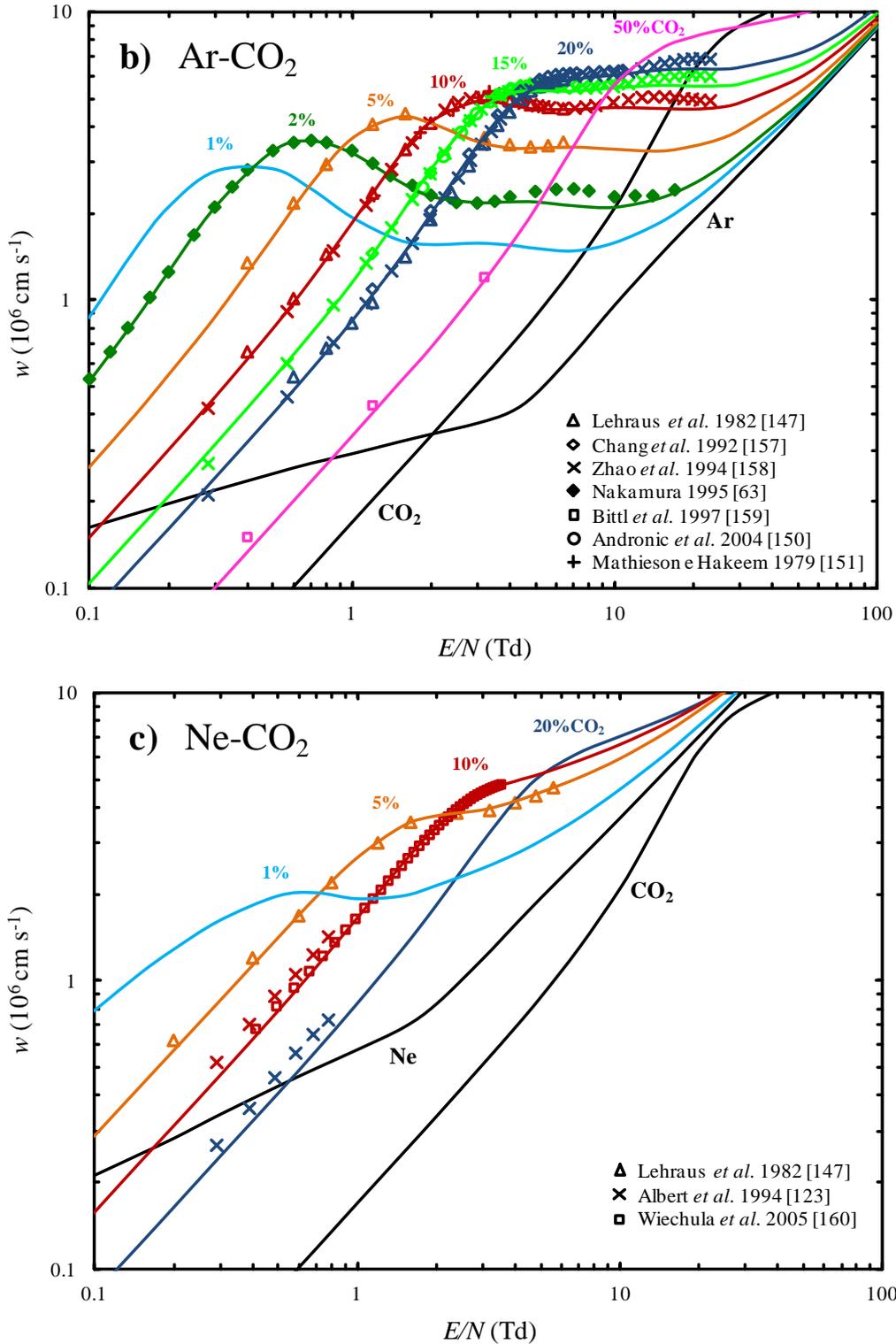


Figura 3.19 – Resultados de Monte Carlo (curvas) e experimentais da literatura (símbolos) para velocidade de deriva w de elétrons em função do campo elétrico reduzido E/N , nas misturas **a)** Xe-CO₂, **b)** Ar-CO₂ e **c)** Ne-CO₂, com as concentrações de CO₂ indicadas. São também incluídos como referência os resultados de Monte Carlo para os gases puros Xe, Ar, Ne e CO₂.

Na **Fig. 3.19** são comparando os dados de MC e experimentais para w em misturas com CO₂, verificando-se que: em Xe-CO₂ o acordo é razoável, exceto para os dados de [97]; em Ar-CO₂ a concordância é excelente, exceto numa pequena região de E/N , correspondente nas várias misturas à

mesma região de energia média dos elétrons (2-4 eV); em Ne-CO₂ a concordância é muito boa, exceto relativamente aos dados de [123].

Relativamente aos parâmetros de deriva em CH₄ puro, a comparação entre resultados de MC e experimentais foi apresentada anteriormente em [6,7], mostrando em geral uma boa concordância; não tendo havido entretanto qualquer alteração às secções eficazes de difusão de elétrons neste gás, a análise não será aqui repetida.

Como se verifica, muitas medidas da velocidade de deriva w de elétrons nos gases puros investigados estão disponíveis na literatura, abrangendo toda a gama de E/N aqui considerada. Tal não acontece para as misturas gasosas, onde os dados publicados são escassos e abrangem normalmente uma gama restrita de E/N . No que diz respeito aos coeficientes de difusão dos elétrons e às energias características ε_{kL} e ε_{kT} que lhe estão associadas, são escassas as medidas em gases puros e quase inexistentes em misturas, havendo em geral uma considerável discordância entre elas. Devido a dificuldades experimentais não existem valores medidos para a energia média ε_m para comparação.

Com suporte no bom acordo geral evidenciado na comparação entre resultados experimentais e calculados nos meios gasosos investigados nesta dissertação, principalmente para w em gases puros, pode-se concluir que os testes realizados garantem a boa precisão do modelo de Monte Carlo desenvolvido e das secções eficazes utilizadas para descrever os processos físicos fundamentais a ter em conta na difusão de elétrons nesses meios gasosos.

3.3.3 Efeito das interações inelásticas

Os parâmetros de deriva de elétrons estudados exibem um comportamento diversificado com E/N , dependente do meio gasoso. É particularmente notória a distinção quando se passa de um gás atômico para um gás molecular, devido à diferente competição entre os vários tipos de interações elásticas, inelásticas ou superelásticas. Este assunto é a seguir objeto de uma breve abordagem, dada a pertinência que terá na discussão dos resultados dos estudos da retrodifusão de elétrons para o fotocátodo, no **capítulo 4**, e da eletroluminescência de Xe, no **capítulo 5**.

Com o intuito de mostrar a correlação existente entre os parâmetros velocidade de deriva w e energia média ε_m e a fração de colisões inelásticas, e tomando como exemplos várias misturas entre um dos gases atômicos (Xe) e um dos gases moleculares (CF₄), são exibidas na **Fig. 3.20** as curvas de w e ε_m juntamente com as frações efetivas γ_v e γ_{exc} , respetivamente, de colisões com excitação vibracional das moléculas e com excitação eletrónica dos átomos de Xe, que são as interações inelásticas relevantes na gama de E/N representada. As frações γ_v e γ_{exc} são definidas como $\gamma_{exc} = n_{exc}/n_t$ e $\gamma_v = (n_v - n_s)/n_t$, onde n_{exc} , n_v , n_s e n_t representam o número, respetivamente, de colisões com excitação eletrónica de Xe, de colisões com excitação vibracional, de colisões superelásticas e

total de colisões. A fração efetiva γ_v tem em conta que uma colisão superelástica anula em média o efeito de uma colisão inelástica correspondente.

A **Fig. 3.20** mostra que a adição de CF_4 a Xe, ainda que em concentração tão diminuta como 0.1%, altera significativamente os valores da energia média ε_m e da velocidade de deriva w dos elétrons, diminuindo ε_m e aumentando w , alteração que ocorre numa gama de E/N que se estende até um valor que vai aumentando com a concentração de CF_4 .

Pela forma eficaz com que, em contraste com as colisões elásticas, possibilitam a perda de energia dos elétrons, as colisões inelásticas dos elétrons no gás são de relevância decisiva no comportamento dos parâmetros de deriva, tendo como consequência a diminuição de ε_m , que facilita o encaminhamento dos elétrons pelo campo elétrico, o que leva ao aumento de w e à diminuição da difusão [57,161]. Estes efeitos podem ser observados na **Fig. 3.20**, onde se verifica que os perfis de ε_m e w estão claramente associados ao perfil das frações de colisões inelásticas experimentadas pelos elétrons, quer de γ_v , na região de E/N onde as colisões com excitação vibracional têm maior efeito, quer de γ_{exc} , na região de E/N acima do limiar de excitação eletrônica. A manifesta alteração de comportamento exibida pelos parâmetros de transporte na **Fig. 3.20** quando a um gás atômico é adicionado um gás molecular é justificada pela ocorrência, a baixa energia de impacto, de interações inelásticas com excitação vibracional que competem eficazmente com as elásticas, em particular na região do mínimo de Ramsauer-Townsend (ver **Figs. 3.2 e 3.4**). O mesmo não acontece num gás

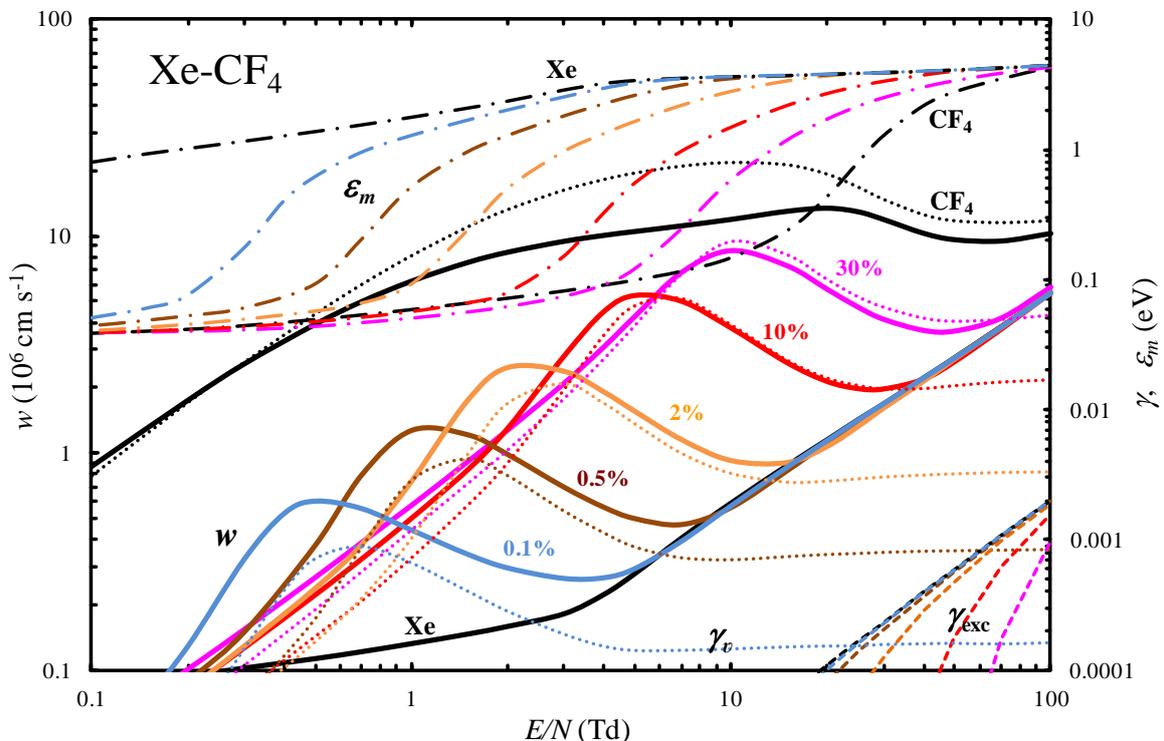


Figura 3.20 – Resultados de Monte Carlo em Xe, CF_4 e misturas Xe- CF_4 com a concentração de CF_4 indicada (a cada mistura corresponde uma cor), em função do campo elétrico reduzido E/N , para energia média ε_m (— · —), velocidade de deriva w (—) de elétrons e frações efetivas γ_v (····) e γ_{exc} (- - -) de colisões (como mencionado no texto), respetivamente, com excitação vibracional das moléculas de CF_4 e excitação eletrônica dos átomos de Xe.

atômico puro, onde as interações inelásticas apenas surgem a partir de limiares consideravelmente mais elevados. Acima de um determinado valor de E/N , dependente da composição da mistura, as colisões com excitação vibracional tornam-se menos relevantes (menos frequentes e menos efetivas na perda de energia), conduzindo ao aparecimento de uma região de E/N onde ε_m , ε_{kL} e ε_{kT} crescem rapidamente e w até diminui com E/N , efeito analisado em detalhe em [154,161-163]. A eficaz perda de energia e menor frequência de colisão dos elétrons, responsáveis pelo aumento de w e diminuição de ε_m observados na **Fig. 3.20**, contribuem também para aumentar a eficiência de extração f dos fotoelétrons, como se verá no **capítulo 4**.

De modo a clarificar a análise da eficaz perda de energia dos elétrons através de colisões inelásticas, em oposição ao que sucede em colisões elásticas, são mostradas na **Fig. 3.21** as principais contribuições para a perda de energia experimentada por uma amostra de elétrons na sua deriva na mistura Xe-5%CF₄. Verifica-se que até cerca de 20 Td a excitação vibracional das moléculas de CF₄ ($\chi_v = \sum \chi_{vi}$) é quase exclusivamente responsável pela perda de energia sofrida pelos elétrons, sendo este canal de perda de energia apenas superado a partir de cerca de 40 Td pela perda em colisões com excitação eletrónica dos átomos de Xe (χ_{exc}). A **Fig. 3.21** mostra ainda que, para baixos valores de E/N , o ganho em energia em colisões superelásticas com as moléculas (ζ_{se}) é de importância relevante no balanço energético, compensando quase completamente as perdas de energia.

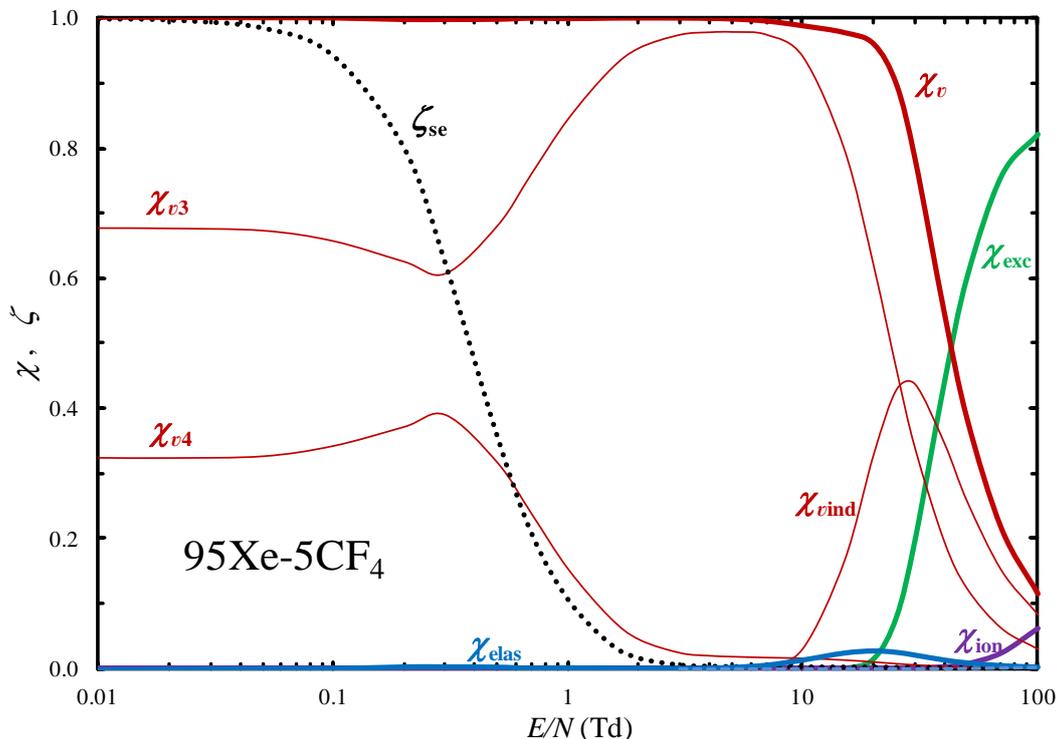


Figura 3.21 – Resultados de Monte Carlo para os valores relativos das perdas χ e ganhos ζ de energia de uma amostra de elétrons em Xe-5%CF₄, em função do campo elétrico reduzido E/N , em colisões: elásticas (χ_{elas}), com excitação vibracional de CF₄ (χ_v e suas três componentes χ_{v3} , χ_{v4} , χ_{vind}), com excitação eletrónica de Xe (χ_{exc}), com ionização de Xe (χ_{ion}) e superelásticas com desexcitação vibracional de CF₄ (ζ_{se}). As curvas estão normalizadas ao total das perdas de energia.

Referências

- [1] M.-C. Bordage, P. Ségur, L.G. Christophorou e J.K. Olthoff, *Boltzmann analysis of electron swarm parameters in CF₄ using independently assessed electron-collision cross sections*, **J. Appl. Phys.** **86** (1999) 3558-66.
- [2] M. Yousfi, J. de Urquijo, A. Juárez, E. Basurto e J.L. Hernández-Ávila, *Electron swarm coefficients in CO₂-N₂ and CO₂-O₂ mixtures*, **IEEE Trans. Plasma Sci.** **37** (2009) 764-72.
- [3] P.J.B.M. Rachinhas, P.C.P.S. Simões, J.A.M. Lopes, T.H.V.T. Dias, R.E. Morgado, J.M.F. dos Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Simulation and experimental results for the detection of conversion electrons with gas proportional scintillation counters*, **Nucl. Inst. Meth. A** **441** (2000) 468-478.
- [4] C.B. Opal, W.K. Peterson e E.C. Beaty, *Measurements of secondary-electron spectra produced by electron impact ionization of a number of simple gases*, **J. Chem. Phys.** **55** (1971) 4100-6.
- [5] S. Yoshida, A.V. Phelps e L.C. Pitchford, *Effect of electrons produced by ionization on calculated electron-energy distributions*, **Phys. Rev. A** **27** (1983) 2858-67.
- [6] J. Escada, *Simulação de Monte Carlo da transmissão de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em CH₄ e misturas Ar-CH₄*, **Tese de Mestrado**, Universidade de Coimbra, 2004.
- [7] J. Escada, T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, J.A.M. Lopes, F.P. Santos, L.M.N. Távora, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *A Monte Carlo study of backscattering effects in the photoelectron emission from CsI into CH₄ and Ar-CH₄ mixtures*, **JINST** **2** (2007) P08001.
- [8] F.P. Santos, T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *The electroluminescence of Xe-Ne gas mixtures: A Monte Carlo simulation study*, **IEEE Trans. Nucl. Sci.** **45** (1998) 176-85.
- [9] R.P. McEachran e A.D. Stauffer, *Relativistic low-energy elastic and momentum transfer cross sections for electron scattering from xenon*, **J. Phys. B** **20** (1987) 3483-6.
- [10] 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** **19** (1986) 2331-42.
- [11] J.L. Pack, R.E. Voshall, A.V. Phelps e L.E. Kline, *Longitudinal electron diffusion coefficients in gases: Noble gases*, **J. Appl. Phys.** **71** (1992) 5363-71.
- [12] M. Hayashi, *Recommended values of transport cross sections for elastic collision and total collision cross section of electrons in atomic and molecular gases*, **Report IPPJ-AM-19**, Institute of Plasma Physics Japan, Nagoya University (1981).
- [13] M. Hayashi, *Determination of electron-xenon total excitation cross-sections, from threshold to 100 eV, from experimental values of Townsend's α* , **J. Phys. D** **16** (1983) 581-89.
- [14] V. Puech e S. Mizzi, *Collision cross sections and transport parameters in neon and xenon*, **J. Phys. D** **24** (1991) 1974-85.
- [15] T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Monte Carlo simulation of X-ray absorption and electron drift in gaseous xenon*, **Phys. Rev. A** **48** (1993) 2887-902.
- [16] D. Filipović, B. Marinković, V. Pejčev e L. Vušković, *Electron-impact excitation of xenon at incident energies between 15 and 80 eV*, **Phys. Rev. A** **37** (1988) 356-64.
- [17] D. Rapp e P. Englander-Golden, *Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact. I. Positive ionization*, **J. Chem. Phys.** **43** (1965) 1464-79.
- [18] T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, J.A.M. Lopes, F.P. Santos, L.M.N. Távora, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *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* **37** (2004) 540-49.
- [19] M. Hayashi, *Base de dados de JILA* (http://jila.colorado.edu/~avp/collision_data/electronneutral/hayashi.txt).
- [20] D.J.R. Mimmagh, R.P. McEachran e A.D. Stauffer, *Elastic electron scattering from the noble gases including dynamic distortion, J. Phys. B* **26** (1993) 1727-41.
- [21] R.S. Brusa, G.P. Karwasz e A. Zecca, *Analytical partitioning of total cross sections for electron scattering on noble gases, Z. Phys. D* **38** (1996) 279-87.
- [22] F.J. de Heer, R.H.J. Jansen e W. van der Kaay, *Total cross sections for electron scattering by Ne, Ar, Kr and Xe, J. Phys. B* **12** (1979) 979-1002.
- [23] J. Bretagne, G. Callede, M. Legentil e V. Puech, *Relativistic electron-beam-produced plasmas. I. Collision cross sections and loss function in argon, J. Phys. D* **19** (1986) 761-77.
- [24] E. Krishnakumar e S.K. Srivastava, *Ionisation cross sections of rare-gas atoms by electron impact, J. Phys. B* **21** (1988) 1055-82.
- [25] R.P. McEachran e A.D. Stauffer, *Electron scattering from neon, Phys. Lett. A* **107** (1985) 397-9.
- [26] Y. Itikawa, *Molecular processes in plasmas: Collisions of charged particles with molecules* (Springer) 2007.
- [27] A. Jain e D.G. Thompson, *Rotational excitation of CH₄ and H₂O by slow electron impact, J. Phys. B* **16** (1983) 3077-98.
- [28] R. Müller, K. Jung, K.-H. Kochem, W. Sohn e H. Ehrhardt, *Rotational excitation of CH₄ by low-energy-electron collisions, J. Phys. B* **18** (1985) 3971-85.
- [29] *Base de dados de NIST, para a constante rotacional* (<http://cccbdb.nist.gov/rotcalc1.asp>).
- [30] M.A. Morrison e N.F. Lane, *Theoretical calculation of cross sections for rotational excitation in e-CO₂ scattering, Phys. Rev. A* **16** (1977) 975-80.
- [31] M.T.N. Varela, A.P.P. Natalense, M.H.F. Bettega e M.A.P. Lima, *Low-energy electron scattering by CF₄, CCl₄, SiCl₄, SiBr₄, and SiI₄, Phys. Rev. A* **60** (1999) 3684-93.
- [32] J. Ferch, C. Masche, W. Raith e L. Wiemann, *Electron scattering from vibrationally excited CO₂ in the energy range of the ²Π_u shape resonance, Phys. Rev. A* **40** (1989) 5407-10.
- [33] W.M. Johnstone, M.J. Brunger e W.R. Newell, *Differential electron scattering from the (010) excited vibrational mode of CO₂, J. Phys. B* **32** (1999) 5779-88.
- [34] M. Yousfi, A. Hennad e A. Alkaa, *Monte Carlo simulation of electron swarms at low reduced electric fields, Phys. Rev. E* **49** (1994) 3264-73.
- [35] T. Shirai, T. Tabata, H. Tawara e Y. Itikawa, *Analytic cross sections for electron collisions with hydrocarbons: CH₄, C₂H₆, C₂H₄, C₂H₂, C₃H₈, and C₃H₆, Atomic Data Nucl. Data Tables* **80** (2002) 147-204.
- [36] D.K. Davies, L.E. Kline e W.E. Bies, *Measurements of swarm parameters and derived electron collision cross sections in methane, J. Appl. Phys.* **65** (1989) 3311-23.
- [37] C. Winstead, Q. Sun, V. McKoy, J.L.S. Lino e M.A.P. Lima, *Electronic excitation of CH₄ by low-energy electron impact, J. Chem. Phys.* **98** (1993) 2132-7.
- [38] B. Schmidt, *Anisotropic low energy electron collision cross sections for methane derived from transport coefficients, J. Phys. B* **24** (1991) 4809-20.

- [39] H. Tawara, Y. Itikawa, H. Nishimura, H. Tanaka and Y. Nakamura, *Cross-section data for collisions of electrons with hydrocarbon molecules*, **Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion 2 (1992) 41**.
- [40] H. Tanaka, M. Kubo, N. Onodera e A. Suzuki, *Vibrational excitation of CH₄ by electron impact: 3-20 eV*, **J. Phys. B 16 (1983) 2861-9**.
- [41] T. Nishimura e F.A. Gianturco, *Vibrational excitations of CH₄ by electron impact: A close-coupling treatment*, **J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 35 (2002) 2873-87**.
- [42] Y. Nakamura, *Proc. of 2nd Australia-Japan Workshop on Gaseous Electronics and its Appl.* (Gotemba, Japan) (1990) **41**, como citado em [39].
- [43] T.E. Sharp e J.T. Dowell, *Isotope effects in dissociative attachment of electrons in methane*, **J. Chem. Phys. 46 (1967) 1530-1**.
- [44] H. Nishimura e H. Tawara, *Total electron impact ionization cross sections for simple hydrocarbon molecules*, **J. Phys. B 27 (1994) 2063-74**.
- [45] S. Motlagh e J.H. Moore, *Cross sections for radicals from electron impact on methane and fluoroalkanes*, **J. Chem. Phys. 109 (1998) 432-8**.
- [46] H.F. Winters, *Dissociation of methane by electron impact*, **J. Chem. Phys. 63 (1975) 3462-6**.
- [47] H.C. Straub, D. Lin, B.G. Lindsay, K.A. Smith e R.F. Stebbins, *Absolute partial cross sections for electron-impact ionization of CH₄ from threshold to 1000 eV*, **J. Chem. Phys. 106 (1997) 4430-5**.
- [48] L.G. Christophorou, J.K. Olthoff e M.V.V.S. Rao, *Electron interactions with CF₄*, **J. Phys. Chem. Ref. Data 25 (1996) 1341-88**.
- [49] L.G. Christophorou e J.K. Olthoff, *Electron interactions with plasma processing gases: An update for CF₄, CHF₃, C₂F₆, and C₃F₈*, **J. Phys. Chem. Ref. Data 28 (1999) 967-82**.
- [50] R.A. Bonham, *Electron impact cross section data for carbon tetrafluoride*, **Jpn. J. Appl. Phys. 33 (1994) 4157-64**.
- [51] A. Mann e F. Linder, *Low-energy electron scattering from halomethanes: I. Elastic differential cross section for e-CF₄ scattering*, **J. Phys. B 25 (1992) 533-43**.
- [52] L. Boesten, H. Tanaka, A. Kobayashi, M.A. Dillon e M. Kimura, *Crossed-beam experiment for the scattering of low energy electrons from CF₄*, **J. Phys. B 25 (1992) 1607-20**.
- [53] T. Sakae, S. Sumiyoshi, E. Murakami, Y. Matsumoto, K. Ishibashi e A. Katase, *Scattering of electrons by CH₄, CF₄ and SF₆ in the 75-700 eV range*, **J. Phys. B 22 (1989) 1385-94**.
- [54] A. Mann e F. Linder, *Low-energy electron scattering from halomethanes: II. Direct and resonant vibrational excitation in e-CF₄ scattering*, **J. Phys. B 25 (1992) 545-56**.
- [55] Y. Itikawa, *The Born cross section for vibrational excitation of a polyatomic molecule by electron collisions*, **J. Phys. Soc. Jpn. 36 (1974) 1121-6**.
- [56] S.R. Hunter e L.G. Christophorou, *Electron attachment to the perfluoroalkanes n-C_NF_{2N+2} (N = 1-6) using high pressure swarm techniques*, **J. Chem. Phys. 80 (1984) 6150-64**.
- [57] M.C. Bordage, P. Ségur e A. Chouki, *Determination of a set of electron impact cross sections in tetrafluoromethane consistent with experimental determination of swarm parameters*, **J. Appl. Phys. 80 (1996) 1325-36**.
- [58] L. Mi e R.A. Bonham, *Electron-ion coincidence measurements: The neutral dissociation cross section for CF₄*, **J. Chem. Phys. 108 (1998) 1910-4**.

- [59] Y. Itikawa, *Cross sections for electron collisions with carbon dioxide*, **J. Phys. Chem. Ref. Data** **31** (2002) 749-67.
- [60] T. Shirai, T. Tabata e H. Tawara, *Analytic cross sections for electron collisions with CO, CO₂, and H₂O relevant to edge plasma impurities*, **Atomic Data Nucl. Data Tables** **79** (2001) 143-84.
- [61] A.V. Phelps, **Base de dados de JILA**, *Compilação de secções eficazes de eletrões usadas por A.V. Phelps* (http://jila.colorado.edu/~avp/collision_data/electronneutral/ELECTRON.TXT).
- [62] M.T. Elford, S.J. Buckman e M.J. Brunger, *Photon and electron interactions with atoms, molecules and ions*, editado por Y. Itikawa, Landolt-Börnstein Vol. I/17 Subvolume D (Springer, Berlin) **2002**.
- [63] Y. Nakamura, *Drift velocity and longitudinal diffusion coefficient of electrons in CO₂-Ar mixtures and electron collision cross sections for CO₂ molecules*, **Aust. J. Phys.** **48** (1995) 357-63.
- [64] K.-H. Kochem, W. Sohn, N. Hebel, K. Jung e H. Ehrhardt, *Elastic electron scattering and vibrational excitation of CO₂ in the threshold energy region*, **J. Phys. B** **18** (1985) 4455-67.
- [65] Th. Antoni, K. Jung, H. Ehrhardt e E.S. Chang, *Rotational branch analysis of the excitation of the fundamental vibrational modes of CO₂ by slow electron collisions*, **J. Phys. B** **19** (1986) 1377-96.
- [66] M. Kitajima, S. Watanabe, H. Tanaka, M. Takekawa, M. Kimura e Y. Itikawa, *Differential cross sections for vibrational excitation of CO₂ by 1.5-30 eV electrons*, **J. Phys. B** **34** (2001) 1929-40.
- [67] D.F. Register, H. Nishimura e S. Trajmar, *Elastic scattering and vibrational excitation of CO₂ by 4, 10, 20 and 50 eV electrons*, **J. Phys. B** **13** (1980) 1651-62.
- [68] D. Rapp e D.D. Briglia, *Total cross sections for ionization and attachment in gases by electron impact. II. Negative-ion formation*, **J. Chem. Phys.** **43** (1965) 1480-9.
- [69] O.J. Orient e S.K. Srivastava, *Production of O⁻ from CO₂ by dissociative electron attachment*, **Chem. Phys. Lett.** **96** (1983) 681-4.
- [70] D. Spence e G.J. Schulz, *Cross sections for production of O₂⁻ and C⁻ by dissociative electron attachment in CO₂: An observation of the Renner-Teller effect*, **J. Chem. Phys.** **60** (1974) 216-20.
- [71] R.D. Hake Jr. e A.V. Phelps, *Momentum-transfer and inelastic-collision cross sections for electrons in O₂, CO, and CO₂*, **Phys. Rev.** **158** (1967) 70-84.
- [72] H.C. Straub, B.G. Lindsay, K.A. Smith e R.F. Stebbings, *Absolute partial cross sections for electron-impact ionization of CO₂ from threshold to 1000 eV*, **J. Chem. Phys.** **105** (1996) 4015-22.
- [73] C. Tian e C.R. Vidal, *Electron impact dissociative ionization of CO₂: Measurements with a focusing time-of-flight mass spectrometer*, **J. Chem. Phys.** **108** (1998) 927-36.
- [74] T.H.V.T. Dias, *Simulação do transporte de eletrões em gases raros*, **Tese de Doutorado**, Universidade de Coimbra, **1986**.
- [75] F.P. Santos, T.H.V.T. Dias, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Three-dimensional Monte Carlo calculation of the VUV electroluminescence and other electron transport parameters in xenon*, **J. Phys. D** **27** (1994) 42-8.
- [76] F.P. Santos, *Detetores gasosos para raios X: Simulação e estudo experimental*, **Tese de Doutorado**, Universidade de Coimbra, **1994**.
- [77] A. Buzulutskov, A. Breskin e R. Chechik, *Photoemission through thin dielectric coating films*, **J. Appl. Phys.** **81** (1997) 466-79.
- [78] R.T. Poole, J.G. Jenkin, J. Liesegang e R.C.G. Leckey, *Electronic band structure of the alkali halides. I. Experimental parameters*, **Phys. Rev. B** **11** (1975) 5179-89.
- [79] R. Shimizu e D. Ze-Jun, *Monte Carlo modelling of electron-solid interactions*, **Rep. Prog. Phys.** **55** (1992) 487-531.

- [80] T.H. DiStefano e W.E. Spicer, *Photoemission from CsI: Experiment*, *Phys. Rev. B* **7** (1973) 1554-64.
- [81] E. Shefer, A. Breskin, T. Boutboul, R. Chechik e B.K. Singh, *Photoelectron transport in CsI and CsBr coating films of alkali antimonide and CsI photocathodes*, *J. Appl. Phys.* **92** (2002) 4758-71.
- [82] T.H. DiStefano, *Photoemission from CsI: Calculation*, *Phys. Rev. B* **7** (1973) 1564-71.
- [83] T. Boutboul, A. Akkerman, A. Gibrekhterman, A. Breskin e R. Chechik, *An improved model for ultraviolet- and X-ray-induced electron emission from CsI*, *J. Appl. Phys.* **86** (1999) 5841-9.
- [84] A. Akkerman, T. Boutboul, A. Breskin, R. Chechik e A. Gibrekhterman, *Low-energy electron transport in alkali halides*, *J. Appl. Phys.* **76** (1994) 4656-62.
- [85] H.R. Skullerud, *The stochastic computer simulation of ion motion in a gas subjected to a constant electric field*, *J. Phys. D* **1** (1968) 1567-8.
- [86] S.L. Lin e J.N. Bardsley, *The null-event method in computer simulation*, *Comp. Phys. Commun.* **15** (1978) 161-3.
- [87] L.G.H. Huxley e R.W. Crompton, *The diffusion and drift of electrons in gases* (John Wiley & Sons, New York) 1974.
- [88] V.M. Atrazhev, I.V. Chernysheva e T. Doke, *Transport properties of electrons in gaseous xenon*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41** (2002) 1572-8.
- [89] Y. Sakai, H. Tagashira e S. Sakamoto, *The development of electron avalanches in argon at high E/N values: I. Monte Carlo simulation*, *J. Phys. D* **10** (1977) 1035-49.
- [90] H. Tagashira, Y. Sakai e S. Sakamoto, *The development of electron avalanches in argon at high E/N values: II. Boltzmann equation analysis*, *J. Phys. D* **10** (1977) 1051-63.
- [91] K. Satoh, Y. Ohmori, Y. Sakai e H. Tagashira, *Computer simulation study of correspondence between experimental and theoretical electron drift velocities in CH₄ gas*, *J. Phys. D* **24** (1991) 1354-9.
- [92] A.V. Vasenkov, *Monte Carlo simulation of electron transport in carbon tetrafluoride discharge plasma*, *J. Appl. Phys.* **88** (2000) 626-34.
- [93] W.N. English e G.C. Hanna, *Grid ionization chamber measurements of electron drift velocities in gas mixtures*, *Can. J. Phys.* **31** (1953) 768-97.
- [94] J.C. Bowe, *Drift velocity of electrons in nitrogen, helium, neon, argon, krypton, and xenon*, *Phys. Rev.* **117** (1960) 1411-5.
- [95] J.L. Pack, R.E. Voshall e A.V. Phelps, *Drift velocities of slow electrons in krypton, xenon, deuterium, carbon monoxide, carbon dioxide, water vapor, nitrous oxide, and ammonia*, *Phys. Rev.* **127** (1962) 2084-9.
- [96] S.S.-S. Huang e G.R. Freeman, *Electron mobilities in gaseous, critical, and liquid xenon: Density, electric field, and temperature effects: Quasilocalization*, *J. Chem. Phys.* **68** (1978) 1355-62.
- [97] L.G. Christophorou, D.V. Maxey, D.L. McCorkle e J.G. Carter, *Xe-containing fast gas mixtures for gas-filled detectors*, *Nucl. Instrum. Meth.* **171** (1980) 491-5.
- [98] V.V. Dmitrenko, A.S. Romanuk, S.I. Suchkov e Z.M. Uteshev, *Mobility of Electrons in a High-Density Gaseous Xenon*, *Zh. Tekh. Fiz.* **53** (1983) 2343 [*Sov. Phys. – Tech. Phys.* **28** (1983) 1440], como citado em [99].
- [99] S.R. Hunter, J.G. Carter e L.G. Christophorou, *Low-energy electron drift and scattering in krypton and xenon*, *Phys. Rev. A* **38** (1988) 5539-51.

- [100] T. Hashimoto e Y. Nakamura, *Papers of Gas Discharge Technical Committee ED-90-61* (IEE Japan, Tokyo) **1990**, como citado em M. Suzuki, T. Taniguchi, N. Yoshimura e H. Tagashira, *J. Phys. D* **25** (1992) 50-6.
- [101] E.L. Patrick, M.L. Andrews e A. Garscadden, *Electron drift velocities in xenon and xenon-nitrogen gas mixtures*, *Appl. Phys. Lett.* **59** (1991) 3239-40.
- [102] O. Šašić, J. Jovanović, Z.Lj. Petrović, J. de Urquijo, J.R. Castrejón-Pita, J.L. Hernández-Ávila e E. Basurto, *Electron drift velocities in mixtures of helium and xenon and experimental verification of corrections to Blanc's law*, *Phys. Rev. E* **71** (2005) 046408.
- [103] S. Kobayashi, N. Hasebe, T. Igarashi, T. Miyachi, M. Miyajima, H. Okada, T. Doke, E. Shibamura, V.V. Dmitrenko e K.F. Vlasik, *Ratio of transverse diffusion coefficient to mobility of electrons in high-pressure xenon*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43** (2004) 5568-72; S. Kobayashi et al., *Measurements of electron transport coefficients in high-pressure xenon gas*, *Proc. of XeSAT2005 – 2nd Int. Workshop on Appl. of Rare Gas Xenon to Sci. and Techn.* (Tokyo, Japan) (2005) 9-12.
- [104] D.D. Erret, *Ph.D. Thesis*, Purdue University (Indiana, USA) **1951**, como citado em J. Dutton, *A survey of electron swarm data*, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **4** (1975) 577-856.
- [105] J.L. Pack e A.V. Phelps, *Drift velocities of slow electrons in helium, neon, argon, hydrogen, and nitrogen*, *Phys. Rev.* **121** (1961) 798-806.
- [106] G. Jäger e W. Otto, *Driftgeschwindigkeiten von Ionen und Elektronen in Argon und Wasserstoff*, *Z. Physik* **169** (1962) 517-25.
- [107] J. Brambring, *Driftgeschwindigkeit von Elektronen in Argon*, *Z. Physik* **179** (1964) 539-43.
- [108] K.H. Wagner, *Mittlere Energien und Driftgeschwindigkeiten von Elektronen in Stickstoff, Argon und Xenon, ermittelt aus Bildverstärker-Aufnahmen von Elektronenlawinen*, *Z. Physik* **178** (1964) 64-81.
- [109] E.B. Wagner, F.J. Davis e G.S. Hurst, *Time-of-flight investigations of electron transport in some atomic and molecular gases*, *J. Chem. Phys.* **47** (1967) 3138-47.
- [110] A.G. Robertson, *Drift velocities of low energy electrons in argon at 293 and 90 K*, *Aust. J. Phys.* **30** (1977) 39-49.
- [111] L.G. Christophorou, D.L. McCorkle, D.V. Maxey e J.G. Carter, *Fast gas mixtures for gas-filled particle detectors*, *Nucl. Instrum. Meth.* **163** (1979) 141-9.
- [112] H.N. Küçükarpaci e J. Lucas, *Electron swarm parameters in argon and krypton*, *J. Phys. D* **14** (1981) 2001-14.
- [113] Y. Nakamura e M. Kurachi, *Electron transport parameters in argon and its momentum transfer cross section*, *J. Phys. D* **21** (1988) 718-23.
- [114] J.S. Townsend e V.A. Bailey, *The motion of electrons in argon and hydrogen*, *Phil. Mag.* **44** (1922) 1033-52.
- [115] R.W. Warren e J.H. Parker Jr., *Ratio of the diffusion coefficient to the mobility coefficient for electrons in He, Ar, N₂, H₂, D₂, CO, and CO₂ at low temperatures and low E/p*, *Phys. Rev.* **128** (1962) 2661-71.
- [116] R.A. Nielsen, *Absolute values of the electron drift velocity in nitrogen, helium, neon and argon*, *Phys. Rev.* **50** (1936) 950-4.
- [117] K. Takayama, *Probe measurements in quiescent plasmas*, *Rev. Electr. Commun. Lab.* (Tokyo) **10** (1962) 100, como citado em J. Dutton, *A survey of electron swarm data*, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **4** (1975) 577.
- [118] A.G. Robertson, *The momentum transfer cross section for low energy electrons in neon*, *J. Phys. B* **5** (1972) 648-64.

- [119] H.N. Küçükarpaci, H.T. Saelee e J. Lucas, *Electron swarm parameters in helium and neon*, **J. Phys. D** **14** (1981) 9-25.
- [120] T. Fletcher, em *Electron and Ion Swarms*, editado por L.G. Christophorou (Pergamon, New York) (1981) **1**, como citado em A. Peisert e F. Sauli, *Drift and diffusion of electrons in gases: A compilation CERN* **84-08** (1984) 17.
- [121] R. Skelding, *Ph.D Thesis*, University of Leicester (UK) **1984**, como citado em G.W. Fraser e E. Mathieson, *Nucl. Instr. Meth. A* **247** (1986) 566-75.
- [122] T. Koizumi, H. Murakoshi, S. Yamamoto e I. Ogawa, *The characteristic energy and momentum transfer cross section for low-energy electrons in neon*, **J. Phys. B** **17** (1984) 4387-93.
- [123] 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** **349** (1994) 56-61.
- [124] S.R. Hunter, J.G. Carter e L.G. Christophorou, *Electron motion in the gases CF_4 , C_2F_6 , C_3F_8 , and $n-C_4F_{10}$* , **Phys. Rev. A** **38** (1988) 58-69.
- [125] B. Schmidt e S. Polenz, *Electron motion in counting gases – New answers and new questions*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **273** (1988) 488-93.
- [126] N. Gee e G.R. Freeman, *Thermal electron mobility and scattering in carbon tetrafluoride gas*, **J. Chem. Phys.** **95** (1991) 102-5.
- [127] L.G. Christophorou, P.G. Datskos e J.G. Carter, *Gases of possible interest to SSC muon detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **309** (1991) 160-8.
- [128] J. Va'vra, P. Coyle, J. Kadyk e J. Wise, *Measurement of electron drift parameters for helium and CF_4 -based gases*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **324** (1993) 113-26.
- [129] O. Kiselev, O. Prokofiev e A. Vorobyov, *Measurement of electron drift velocities and Lorentz angles in fast gas mixtures*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **367** (1995) 306-10.
- [130] Y. Hayashi e Y. Nakamura, *Electron collision cross sections for the CF_4 molecule by electron swarm study*, **Proc. of Int. Conf. on Atomic Molec. Data and their Appl.** (Gaithersburg MD, USA) (1998) 248-51.
- [131] T. Isobe *et al.*, *Development of a Time Projection Chamber using CF_4 gas for relativistic heavy ion experiments*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **564** (2006) 190-6.
- [132] C.S. Lakshminarasimha, J. Lucas e D.A. Price, *New method for determining electron swarm parameters in attaching gases*, **Proc. of Inst. Electr. Eng.** (London, UK) **120** (1973) 1044-7, como citado em J.W. Gallagher, E.C. Beaty, J. Dutton e L.C. Pitchford, *An annotated compilation and appraisal of electron swarm data in electronegative gases*, **J. Phys. Chem. Ref. Data** **12** (1983) 109-52.
- [133] M.G. Curtis, I.C. Walker e K.J. Mathieson, *Electron swarm characteristic energies (D_0/μ) in tetrafluoromethane (CF_4) at low E/N* , **J. Phys. D** **21** (1988) 1271-4.
- [134] H.T. Saelee, J. Lucas e J.W. Limbeek, *Time-of-flight measurement of electron drift velocity and longitudinal diffusion coefficient in nitrogen, carbon monoxide, carbon dioxide and hydrogen*, **IEEE J. Solid-St. Electron. Dev.** **1** (1977) 111-6.
- [135] M.T. Elford e G.N. Haddad, *The drift velocity of electrons in carbon dioxide at temperatures between 193 and 573 K*, **Aust. J. Phys.** **33** (1980) 517-30.
- [136] R.A. Sierra, H.L. Brooks, A.J. Sommerer, S.R. Foltyn e K.J. Nygaard, *Effective swarm parameters and transport coefficients in CO_2 laser mixtures*, **J. Phys. D** **14** (1981) 1791-801.
- [137] F. Hartjes, J. Timmermans, F. Udo e N. Zonjee, *A drift chamber with variable drift velocity*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **256** (1987) 55-64.

- [138] P.G. Datskos, J.G. Carter e L.G. Christophorou, *Ionization coefficients in selected gas mixtures of interest to particle detectors*, *J. Appl. Phys.* **71** (1992) 15-21.
- [139] H. Hasegawa, H. Date, M. Shimozuma, K. Yoshida e H. Tagashira, *The drift velocity and longitudinal diffusion coefficient of electrons in nitrogen and carbon dioxide from 20 to 1000 Td*, *J. Phys. D* **29** (1996) 2664-7.
- [140] S. Yoshinaga, Y. Nakamura e M. Hayashi, *Proc. of 25th Int. Conf. on Phenomena in Ionized Gases* (Nagoya, Japan) **3** (2001) 284, como citado em [141].
- [141] J.L. Hernández-Ávila, E. Basurto e J. de Urquijo, *Electron transport and swarm parameters in CO₂ and its mixtures with SF₆*, *J. Phys. D* **35** (2002) 2264-9.
- [142] V.A. Bailey e J.B. Rudd, *The behaviour of electrons in nitrous oxide*, *Phil. Mag. (séries 7)* **14** (1932) 1033-46, como citado em [143].
- [143] J.A. Rees, *Measurements of Townsend's energy factor k_1 for electrons in carbon dioxide*, *Aust. J. Phys.* **17** (1964) 462-71.
- [144] C.S. Lakshminarasimha, J. Lucas e N. Kontoleon, *Diffusion and ionization studies for electron swarms in carbon monoxide and carbon dioxide*, *J. Phys. D* **7** (1974) 2545-53.
- [145] W. Roznerski e J. Mechlińska-Drewko, *Electron transport parameters in carbon dioxide for the attachment region*, *J. Phys. D* **27** (1994) 1862-5.
- [146] H. Hasegawa, H. Date, Y. Ohmori, P.L.G. Ventzek, M. Shimozuma e H. Tagashira, *Measurements of the drift velocity of electrons in mixtures of nitrogen and carbon dioxide from 100 to 1000 Td*, *J. Phys. D* **31** (1998) 737-41.
- [147] I. Lehraus, R. Matthewson e W. Tejessy, *dE/dx measurements in Ne, Ar, Kr, Xe and pure hydrocarbons*, *Nucl. Instrum. Meth.* **200** (1982) 199-210.
- [148] 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** (1999) 54-9. Gas R&D Home Page (<http://cyclo.mit.edu/drift/www>).
- [149] Th. Berghöfer, J. Blümer e J.R. Hörandel, *A measurement of drift velocities of electrons in xenon-methane mixtures*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **525** (2004) 544-52.
- [150] A. Andronic, S. Biagi, P. Braun-Munzinger, C. Garabatos e G. Tsileidakis, *Drift velocity and gain in argon- and xenon-based mixtures*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **523** (2004) 302-8.
- [151] E. Mathieson e N. El Hakeem, *Calculation of electron transport coefficients in counting gas mixtures*, *Nucl. Instrum. Meth.* **159** (1979) 489-96.
- [152] F. Piuz, *Measurement of the longitudinal diffusion of a single electron in gas mixtures used in proportional counters*, *Nucl. Instrum. Meth.* **205** (1983) 425-36.
- [153] B. Schmidt, *Drift properties of electrons in methane and methane noble gas mixtures*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **252** (1986) 579-85.
- [154] S.R. Hunter, J.G. Carter e L.G. Christophorou, *Electron transport studies of gas mixtures for use in e-beam controlled diffuse discharge switches*, *J. Appl. Phys.* **58** (1985) 3001-15.
- [155] B. Dolgoshein, M. Potekhin, A. Romanyuk e V. Sosnovtsev, *Gas mixtures for transition radiation detectors at high-luminosity colliders*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **294** (1990) 473-7.
- [156] U. Becker *et al.*, *Gas R&D Home Page* (<http://cyclo.mit.edu/drift/www>).
- [157] Y.-H. Chang, M.E. Sarakinos, U.J. Becker, G.E. Sasser e B.R. Smith, *Gases for muon drift chambers at high energy hadron colliders*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **311** (1992) 490-7.

- [158] T. Zhao, Y. Chen, S. Han e J. Hersch, *A study of electron drift velocity in Ar-CO₂ and Ar-CO₂-CF₄ gas mixtures*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **340** (1994) 485-90.
- [159] X. Bittl, V. Eckardt, H. Fessler, W.G. Gong, M. Konrad, A. Mock, A. Odian, P. Seyboth, J.E. Draper, M. Hildebrandt, K. Ness e B. Schmidt, *Diffusion and drift studies of Ar-DME/CO₂/CH₄ gas mixtures for a radical TPC in the $E \perp B$ field*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **398** (1997) 249-64.
- [160] J. Wiechula, P. Braun-Munzinger, H. Daues, U. Frankenfeld, C. Garabatos, J. Hehner, R. Renfordt, H.R. Schmidt, H. Stelzer e D. Vranić, *High-precision measurement of the electron drift velocity in Ne-CO₂*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **548** (2005) 582-9.
- [161] Z.Lj. Petrović, R.W. Crompton e G.N. Haddad, *Model calculations of negative differential conductivity in gases*, *Aust. J. Phys.* **37** (1984) 23-34.
- [162] P. Kleban e H.T. Davis, *Electron drift and diffusion in polyatomic gases: Calculations for CH₄, CD₄, and related models*, *J. Chem. Phys.* **68** (1978) 2999-3006.
- [163] R.E. Robson, *Generalized Einstein relation and negative differential conductivity in gases*, *Aust. J. Phys.* **37** (1984) 35-44.

Capítulo 4

Extração de fotoeletrões emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso

Este capítulo descreve o estudo, experimental e por simulação de Monte Carlo, da retrodifusão de fotoeletrões emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso, sob a influência de um campo elétrico, quando neles incide radiação VUV. O modelo de simulação de Monte Carlo e as secções eficazes utilizadas foram apresentados e testados no **capítulo 3**.

A retrodifusão de eletrões para o cátodo que os emitiu é caracterizada pela fração dos eletrões emitidos que regressam ao cátodo e são reabsorvidos, normalmente denominada *coeficiente de retrodifusão*, ou, mais geralmente, pela fração, complementar, dos que não são reabsorvidos, denominada na literatura ao longo do tempo por: *probabilidade de transmissão, fator de transmissão, rendimento líquido da corrente, coeficiente de escape, eficiência de transmissão, eficiência de recolha, eficiência de extração*, etc.

Em trabalhos anteriores, optámos de início pelas designações *eficiência de recolha* e *eficiência de transmissão*, designações que no entanto têm sido recentemente usadas na literatura para representar outros tipos de perda de eletrões que ocorrem até à recolha no ânodo. Para evitar ambiguidades adotamos aqui a designação mais objetiva *eficiência de extração*, comum na literatura mais recente, e que representamos pelo símbolo f .

O fenómeno de retrodifusão de eletrões para o cátodo em meio gasoso era já conhecido e investigado experimentalmente à entrada do século XX [1-4], sendo já considerada a sua dependência com a natureza do gás, a pressão e o campo elétrico de extração. É de destacar o trabalho de Varley [4], que mediu a corrente induzida por efeito fotoelétrico em cátodos metálicos (Zn, Pl, Al) em meio gasoso (ar, H₂, CO₂ e CO), para vários campos elétricos e pressões. O fenómeno foi também investigado teoricamente por Thomson [5], que propôs em 1906 uma equação simples baseada na teoria cinética dos gases. Esta equação foi reinterpretada por Loeb [6], mostrando que f depende da

relação entre a velocidade de deriva dos elétrons no meio gasoso e a sua velocidade média de emissão, expondo assim a dependência do fenômeno relativamente à energia de emissão dos elétrons. A retrodifusão de elétrons continuou a ser investigada experimentalmente [7-14], sendo a equação de Thomson testada em H₂, N₂ e Ar [6,8,10], concluindo-se que, apesar da concordância satisfatória no caso dos gases moleculares, os resultados em Ar [8,10] divergem dos previstos por aquela equação. Foi observado experimentalmente que a retrodifusão depende do campo elétrico reduzido E/p (e não do campo E e da pressão p separadamente) [6,8,10] e que depende também da distribuição da energia inicial ε_0 dos elétrons [8,10,12]. Note-se que uma aparente dependência com a pressão pode surgir quando a distância reduzida pD (D é a distância de deriva dos elétrons) é tão pequena que alguns elétrons atingem o ânodo após escasso número de colisões, i.e., quando à pressão p o alcance dos elétrons recapturados é superior à distância D cátodo-ânodo [9,15,16], alcance que depende do meio gasoso. Por outro lado, quando a pressão é superior a um determinado valor, da ordem de 10-20 atm, a retrodifusão torna-se também dependente da pressão [14], devido à alteração das secções eficazes que descrevem os processos físicos em causa. As dependências essenciais da retrodifusão dos elétrons para o cátodo – dependência do meio gasoso, de E/p e de ε_0 – estavam assim bem conhecidas, tornando-se importante o desenvolvimento de estudos teóricos detalhados do comportamento da eficiência de extração f .

Assim, foram surgindo equações alternativas à de Thomson [10-18], insuficientes no entanto para reproduzir todos os casos investigados, fundamentalmente por a retrodifusão ocorrer antes de os elétrons atingirem a energia de equilíbrio.

O método de simulação de Monte Carlo (MC) é uma ferramenta adequada para este tipo de estudo sendo muito utilizada para estimar resultados e clarificar profundamente fenômenos físicos, como é o caso dos que envolvem a difusão de elétrons em meio gasoso, particularmente quando os elétrons ainda não atingiram o equilíbrio.

Após o trabalho pioneiro de Itoh e Musha [19] na utilização método de Monte Carlo para reproduzir a deriva de elétrons em meio gasoso, alguns são os estudos que começaram a investigar o fenômeno da retrodifusão por simulação de MC [20-23]. Estes estudos, para além de mostrarem o efeito da energia inicial dos elétrons e do campo elétrico reduzido, mostram que os resultados em Ne não estão de acordo com a equação de Thomson [20]. Além disso, Kuntz e Schmidt [23], recorrendo já a uma distribuição empírica de energia de emissão de fotoelétrons ejetados do fotocátodo por radiação monocromática, relacionaram a retrodifusão em Ar e H₂ com a energia média que os fotoelétrons perdem por colisão no meio e com o número de colisões dos fotoelétrons até que o seu regresso ao cátodo seja energeticamente proibido.

A utilização bem-sucedida de fotocátodos sólidos, particularmente de CsI [24], a operar em meio gasoso em modo de multiplicação [25], impulsionou a sua investigação e aplicação [26,27]. A retrodifusão dos fotoelétrons para o fotocátodo de CsI, inicialmente objeto de estudo em [28-30], foi novamente investigada experimentalmente em vários meios gasosos em [31-34]. Di Mauro *et al.* [35] implementaram um programa de simulação de MC que, fazendo uso de uma distribuição de energia de

emissão de fotoelétrons extrapolada, reproduziu satisfatoriamente os resultados experimentais [35,36], confirmando que a perda de eficiência quântica efetiva de fotocátodos em meio gasoso resulta essencialmente da retrodifusão dos fotoelétrons e sugere algumas causas para o comportamento de f , sem contudo aprofundar a análise. Em 1997 surge o GEM (Gas Electron Multiplier [37]), que veio criar novas aplicações para o uso de fotocátodos, especialmente de CsI, em meio gasoso [38-44], aumentando o interesse de aprofundar o conhecimento do fenômeno da retrodifusão em variados meios gasosos.

É neste contexto que, perante a tradição no Departamento de Física na área dos detectores gasosos de radiação, se inicia no GIAN a investigação da retrodifusão dos fotoelétrons para fotocátodos de CsI [45], tendo como objetivo obter de uma forma sistemática resultados experimentais e de simulação de Monte Carlo que quantifiquem e clarifiquem o fenômeno nos seus vários aspectos e comportamentos. O estudo por simulação, que recorre a várias distribuições de energia de emissão ε_0 obtidas experimentalmente para CsI, foi inicialmente dirigido aos gases nobres Xe, Ne e Ar e suas misturas [45,46] e depois alargado a CH₄ e Ar-CH₄ [47]. Experimentalmente foram investigados os gases nobres e CH₄ [48] e misturas Ar-CH₄ e Xe-CH₄ [49].

O estudo apresentado neste capítulo (maioritariamente publicado em [50-54]) dá continuidade ao trabalho anterior, alargando-o a outros meios gasosos de interesse.

Em paralelo com a investigação desenvolvida no GIAN, têm sido realizadas medidas experimentais da eficiência de extração f em fotocátodos de CsI [55-59] e em fotocátodos bialcalinos K₂CsSb sensíveis à luz visível [60,61], sendo de destacar que [57] e [61], usando feixes de radiação monocromática, demonstraram que f é sensível à energia E_{ph} dos fótons absorvidos nos fotocátodos, aspeto que, entre outros, a presente dissertação irá analisar e aprofundar por simulação de Monte Carlo.

A retrodifusão de elétrons para um cátodo metálico ou semicondutor, sejam os elétrons ejetados por efeito fotoelétrico, por colisão de partículas energéticas (iões positivos, átomos ou moléculas) ou até por efeito termoiónico, tem tido uma importância acrescida nos últimos anos em vários campos de interesse da Física [62-64], que se estende para além de fotocátodos de CsI. Assim sendo, a análise qualitativa retirada da presente investigação pode também ser útil para a análise da retrodifusão de elétrons de um modo geral. Cabe aqui destacar alguns estudos teóricos da retrodifusão de elétrons para cátodos em geral, uns baseados na teoria cinética dos gases [65-70], outros utilizando simulação de Monte Carlo [63,64,70,71]. Estes últimos, que consideram emissão termoiónica em Ne, He e Hg [70] ou emissão com energia ε_0 constante e distribuição angular isotrópica em Ar [63,70], N₂ [64] e SF₆ e suas misturas com Ar [70], mostram a dependência de f com o campo elétrico reduzido, com as distribuições angular e de energia ε_0 inicial dos elétrons e reflexão no cátodo, analisando ainda alguns parâmetros como o alcance e o número médio de colisões dos elétrons recapturados pelo cátodo. Todavia, estes estudos de MC restringem a sua investigação a campos elétricos reduzidos relativamente altos e não abordam o importante papel das colisões inelásticas e da penetração dos elétrons no meio gasoso.

A retrodifusão dos fotoelétrons para o fotocátodo em meio gasoso, quantificada pela eficiência de extração f , é apresentada neste capítulo para vários meios gasosos em função do campo elétrico reduzido e , e, no caso de simulação, também em função da energia dos fótons da radiação absorvida em CsI.

No estudo por simulação de Monte Carlo (**secção 4.1**) são apresentados os valores calculados para f em vários meios gasosos e analisados e discutidos os fatores que influenciam a sua grandeza. O estudo experimental (**secção 4.2**) permite complementar e corroborar o estudo de Monte Carlo, respetivamente, através da determinação de f em meios gasosos não investigados na simulação (N_2 e misturas Ne- N_2) e da comparação entre dados experimentais e calculados por simulação.

4.1 Estudo por simulação de Monte Carlo

Esta secção é destinada ao estudo por simulação de Monte Carlo da retrodifusão dos fotoelétrons emitidos por um fotocátodo transmissivo de CsI em meio gasoso à pressão $p = 1$ atm e à temperatura $T = 20$ °C, recorrendo às distribuições de energia de emissão de fotoelétrons de DiStefano e Spicer [72] (descritas na **secção 3.2.1**). A extração dos fotoelétrons é analisada em ambiente de gás molecular de CH_4 , CF_4 e CO_2 e de misturas de cada um deles com cada um dos gases nobres Xe, Ar e Ne. Para uma análise mais completa, são também mostrados resultados anteriores em Xe, Ar e Ne [46] (recalculados agora usando as secções eficazes descritas na **secção 3.1.1**) e em CH_4 e suas misturas com Ar [47].

Os resultados para a eficiência f são apresentados e analisados na **secção 4.1.1**, seguindo-se a discussão justificativa do comportamento de f através da correlação com alguns parâmetros na **secção 4.1.2**. Os resultados para f não têm em conta reflexão dos elétrons no fotocátodo, no entanto o seu efeito é brevemente discutido na **secção 4.1.2.2**.

4.1.1 Resultados para a eficiência de extração f

Os resultados para a eficiência de extração f dos fotoelétrons, calculada como a fração dos fotoelétrons ejetados do fotocátodo que são efetivamente extraídos (ver **secção 3.2.3**), são a seguir apresentados em função do campo elétrico reduzido E/N , da energia E_{ph} dos fótons absorvidos no fotocátodo e da concentração η do gás molecular.

Os resultados foram calculados para 28 valores diferentes de E/N na gama de 0.1 a 40 Td e para valores de E_{ph} separados por 0.2 eV na gama de 6.8 a 9.8 eV, em gases puros e em misturas com concentração η de gás molecular de 1%, 2%, 3%, 5%, 7%, 10%, 15%, 20%, 30%, 40%, 50% e 70% e, para as misturas de Xe- CH_4 e Xe- CF_4 , também para 80%, 90% e 95%. Em cada caso, é considerada

uma amostra de pelo menos 2×10^5 fotoelétrons, mantendo uma incerteza estatística (desvio padrão) inferior a 1%.

4.1.1.1 Gases puros: Xe, Ar, Ne e CH₄, CF₄, CO₂

Os resultados para eficiência de extração f dos fotoelétrons nos gases nobres Xe, Ar e Ne e nos gases moleculares CH₄, CF₄ e CO₂ estão representados nas **Figs. 4.1** e **4.2**, em função do campo elétrico reduzido E/N e da energia E_{ph} dos fótons absorvidos em CsI. Em cada figura, as superfícies representadas nas alíneas **a)**, **b)** e **c)** são reunidas em **d)** para facilitar a comparação entre elas.

Nas **Figs. 4.1** e **4.2**, observa-se que f cresce sempre com E/N , de um modo gradual no caso de um gás nobre e de um modo repentino para os menores valores de E/N num gás molecular. Verifica-se também que nos gases puros, à exceção de CO₂, f diminui sempre com E_{ph} , de uma forma mais acentuada em CH₄ e geralmente de um modo mais lento para os menores valores de E/N . Relativamente a CO₂, a dependência de f com E_{ph} é mais reduzida do que para os restantes gases e varia progressivamente de uma diminuição com E_{ph} a alto E/N para um crescimento nos menores valores de E/N .

Neste estudo verifica-se que, na maior parte da região de E/N e E_{ph} considerada, f é maior em gases moleculares do que em gases nobres, especialmente para menor E/N , atingindo valores consideravelmente mais elevados em CH₄ e em CF₄ do que em CO₂. Todavia, para a região de maiores valores de E/N e E_{ph} , f_{CH_4} torna-se inferior a f_{CO_2} e até a f_{Ne} . No que respeita aos gases nobres, verifica-se que $f_{Xe} < f_{Ar} < f_{Ne}$, à exceção de uma região restringida a baixos valores de E/N e E_{ph} , onde f_{Ne} toma valores inferiores a f_{Ar} e até a f_{Xe} . Devido ao específico comportamento de f_{CO_2} com E_{ph} , numa pequena região de maiores valores de E/N e E_{ph} , f_{CO_2} chega a ultrapassar f em qualquer dos outros gases puros.

4.1.1.2 Misturas de um gás nobre com um gás molecular

São agora apresentados e analisados os resultados para a eficiência de extração f de fotoelétrons em várias misturas binárias entre um dos gases nobres Xe, Ar e Ne e um dos gases moleculares CH₄, CF₄ e CO₂ atrás referidos. Nas **Figs. 4.3** a **4.11** são mostrados os resultados de f para as misturas com concentrações de gás molecular $\eta = 2\%$, 10% e 50% , em função do campo elétrico reduzido E/N e da energia E_{ph} dos fótons absorvidos. Por outro lado, nas **Figs. 4.12** a **4.20** mostram-se os resultados de f , em função de E/N e de η , para $E_{ph} = 6.8$, 7.6 e 9.8 eV. Também em cada uma destas figuras se apresenta em **d)** o conjunto das superfícies de f em **a)**, **b)** e **c)**.

Apesar do comportamento diversificado evidenciado por f com o meio gasoso, refletindo a diversidade de comportamentos das secções eficazes dos processos físicos envolvidos nas colisões dos

elétrões com os átomos e moléculas do meio, podem ser inferidas algumas tendências gerais. De um modo geral, nas gamas de E/N e E_{ph} investigadas, a eficiência f nas misturas cresce com a concentração η do gás molecular e, à semelhança dos gases puros, cresce com E/N e decresce com E_{ph} . Pela comparação da **Fig. 4.1** com as **Figs. 4.3, 4.6 e 4.9**, verifica-se que a adição de 2% de gás molecular ao gás nobre é já suficiente para alterar de forma evidente o valor de f e a sua dependência com E/N e E_{ph} . Para concentrações η de cerca de 10% de gás molecular (**Figs. 4.4, 4.7 e 4.10**), o comportamento de f já se aproxima geralmente do evidenciado no gás molecular puro (**Fig. 4.2**), como mostrado pelo característico rápido crescimento de f com E/N para baixos valores de E/N , embora de forma não tão pronunciada nas misturas com Xe.

Todavia, em alguns meios gasosos e regiões específicas de E/N e E_{ph} observam-se desvios ao comportamento geral. Nas misturas contendo Xe, observa-se de uma forma clara nas **Figs. 4.3 a 4.11** a existência de uma região da superfície de f que sobressai; ao que se encontra associado um crescimento de f com E_{ph} e, para $\eta = 2\%$ e 10%, uma invulgar diminuição de f com E/N , o que não sucede em Xe puro. Também nas misturas Ar-CO₂ e Ne-CO₂ com $\eta = 10\%$ e 50% (**Figs. 4.10 e 4.11**), para os baixos valores de E/N e E_{ph} , se observa que as curvas $f(E_{ph})$ manifestam um crescimento suave com E_{ph} antes de passarem por um máximo.

O crescimento de f com η para baixos valores de η , que chega a ocorrer de um modo abrupto, está claro nas **Figs. 4.12 a 4.20** e permite que f nas misturas com baixos valores de η supere sempre f no gás nobre, mesmo quando f no gás nobre é superior a f no gás molecular, como sucede nas misturas Ne-CH₄ para os maiores valores de E/N e E_{ph} (**Figs. 4.3-4.5**). Após o rápido crescimento inicial com η , frequentemente f decresce com η , após atingir um valor máximo, com f na mistura a tornar-se superior a f no gás molecular. Este decréscimo de f com η é notório fundamentalmente para os menores E/N e E_{ph} nas misturas com CF₄ ou CO₂ (**Figs. 4.15, 4.16, 4.18 e 4.19**) e para os maiores E/N e E_{ph} nas misturas com Ne (**Figs. 4.14c, 4.17c e 4.20c**). Para baixos E/N e E_{ph} , em Xe-CF₄ (**Figs. 4.15a e 4.16a**) e, de um modo mais suave, em Xe-CH₄ (**Fig. 4.12a**) f acelera o crescimento com η ao aproximar-se de $\eta = 100\%$.

Relativamente a misturas que diferem apenas no gás nobre, verifica-se que f nas misturas com Xe, à exceção da região em que ocorre um máximo, é menor do que f nas misturas com Ar ou Ne. A região em que f é maior em misturas com Ar do que com Ne, que para pequeno valor de η se limita aos menores E/N e E_{ph} , é ampliada à medida que a concentração η de gás molecular aumenta.

Para facilitar a comparação de f nas misturas que diferem apenas no gás molecular, foram selecionados algumas superfícies de f na **Fig. 4.21**, em função de E/N e de E_{ph} . Verifica-se, em geral, que a pequena diferença entre superfícies de f para pequenos valores de η vai aumentando à medida que η aumenta. De um modo geral, f nas misturas aumenta ao passar de CH₄ para CO₂ e deste para CF₄. Contudo, com o aumento de η , verifica-se que: para os menores E/N e E_{ph} , f nas misturas com CH₄ supera grandemente f nas misturas com CO₂ e, em alguns casos, até supera f em misturas com CF₄; para os maiores E/N e E_{ph} , f nas misturas com CO₂ supera f em misturas com CF₄.

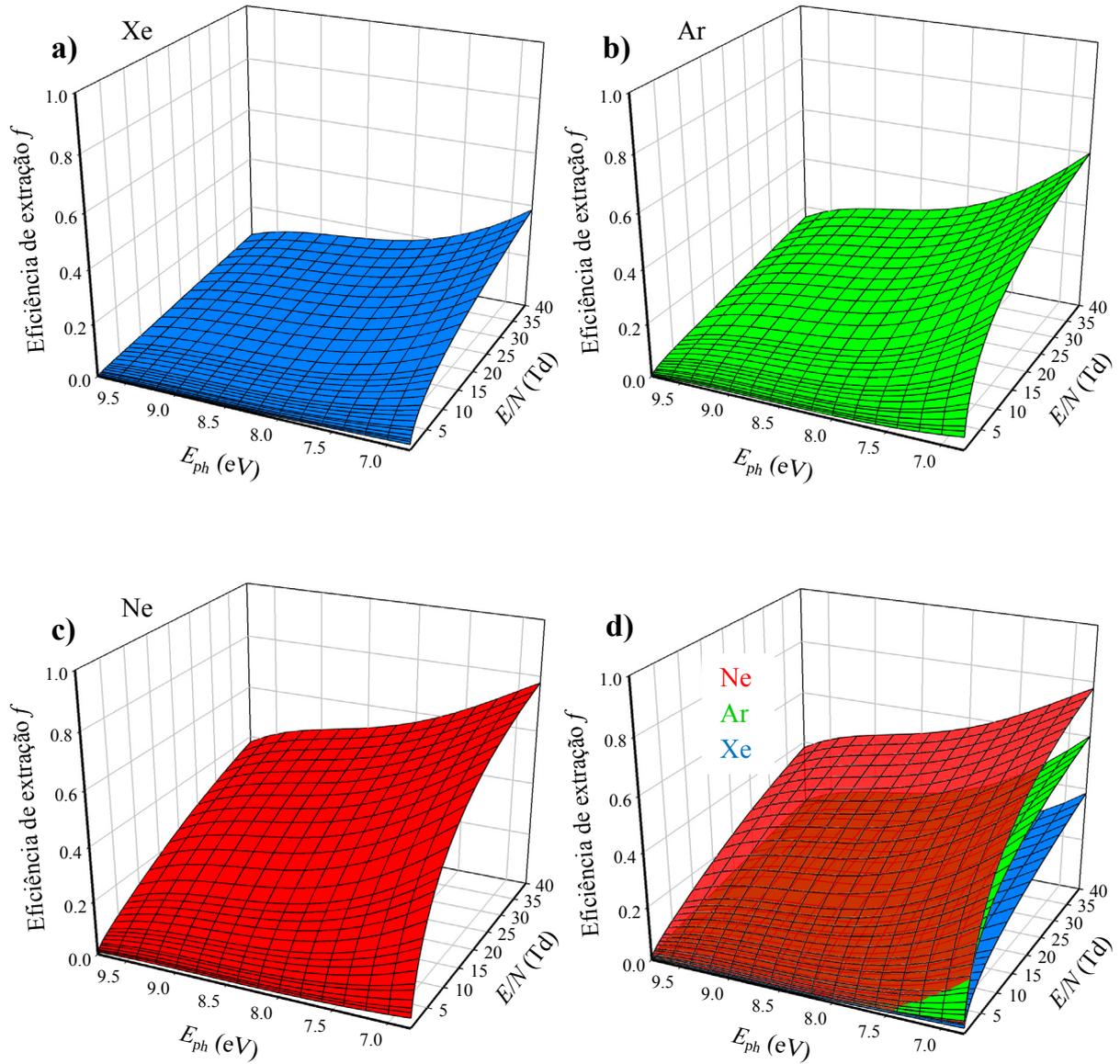


Figura 4.1 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoeletrões emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em a) Xe, b) Ar e c) Ne. d) Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

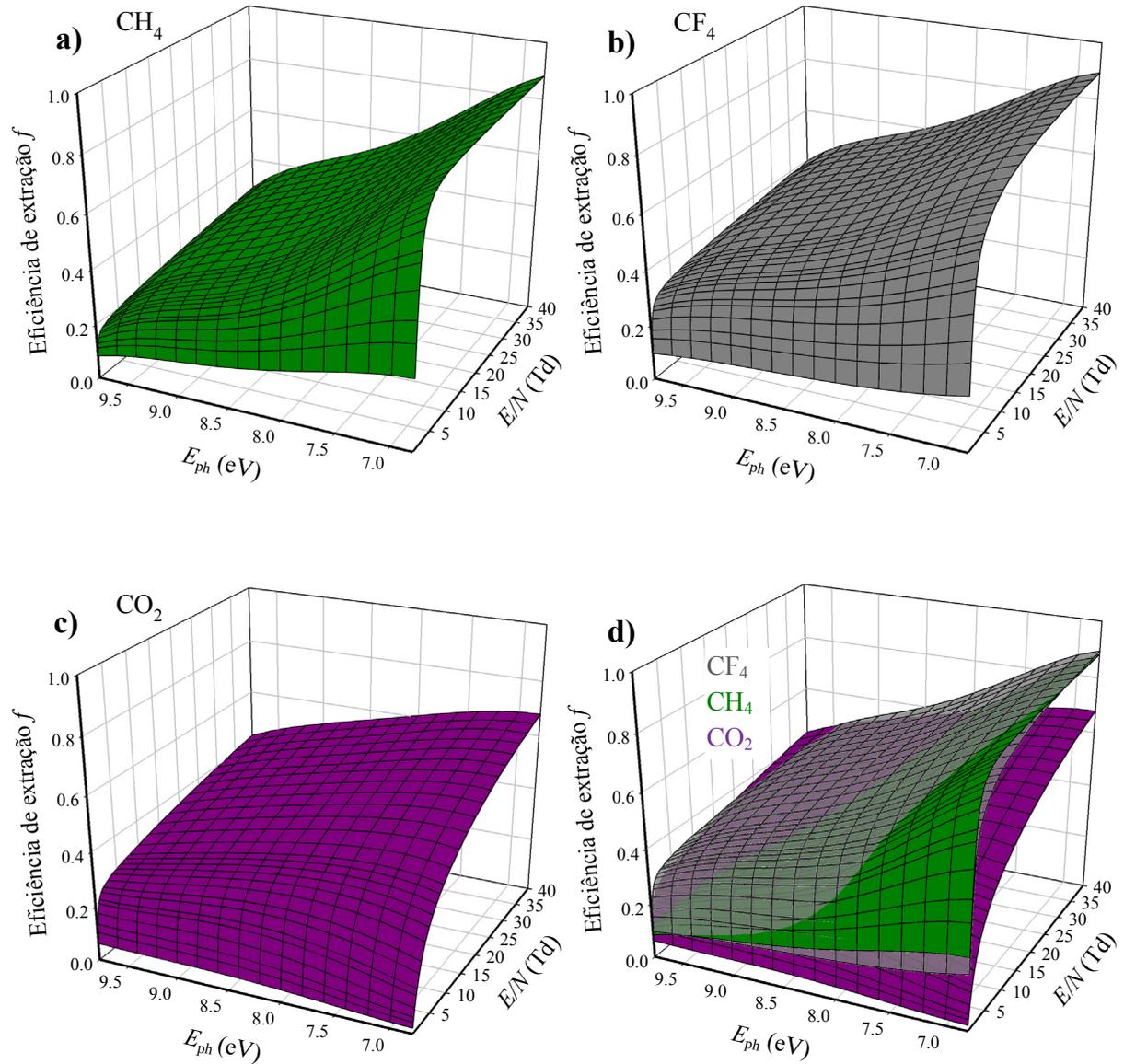


Figura 4.2 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em a) CH_4 , b) CF_4 e c) CO_2 . d) Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

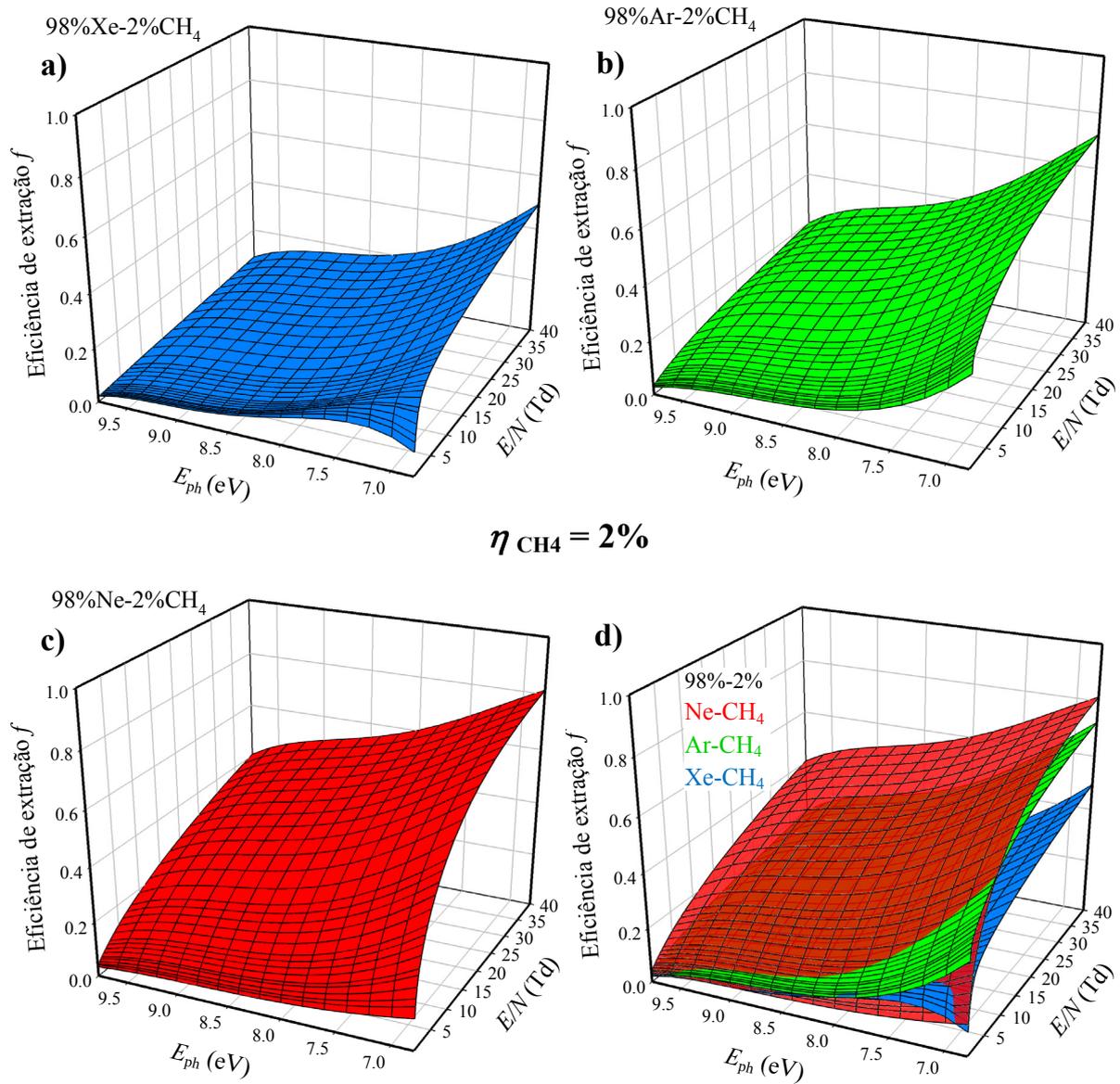


Figura 4.3 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 2% de CH_4 e 98% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

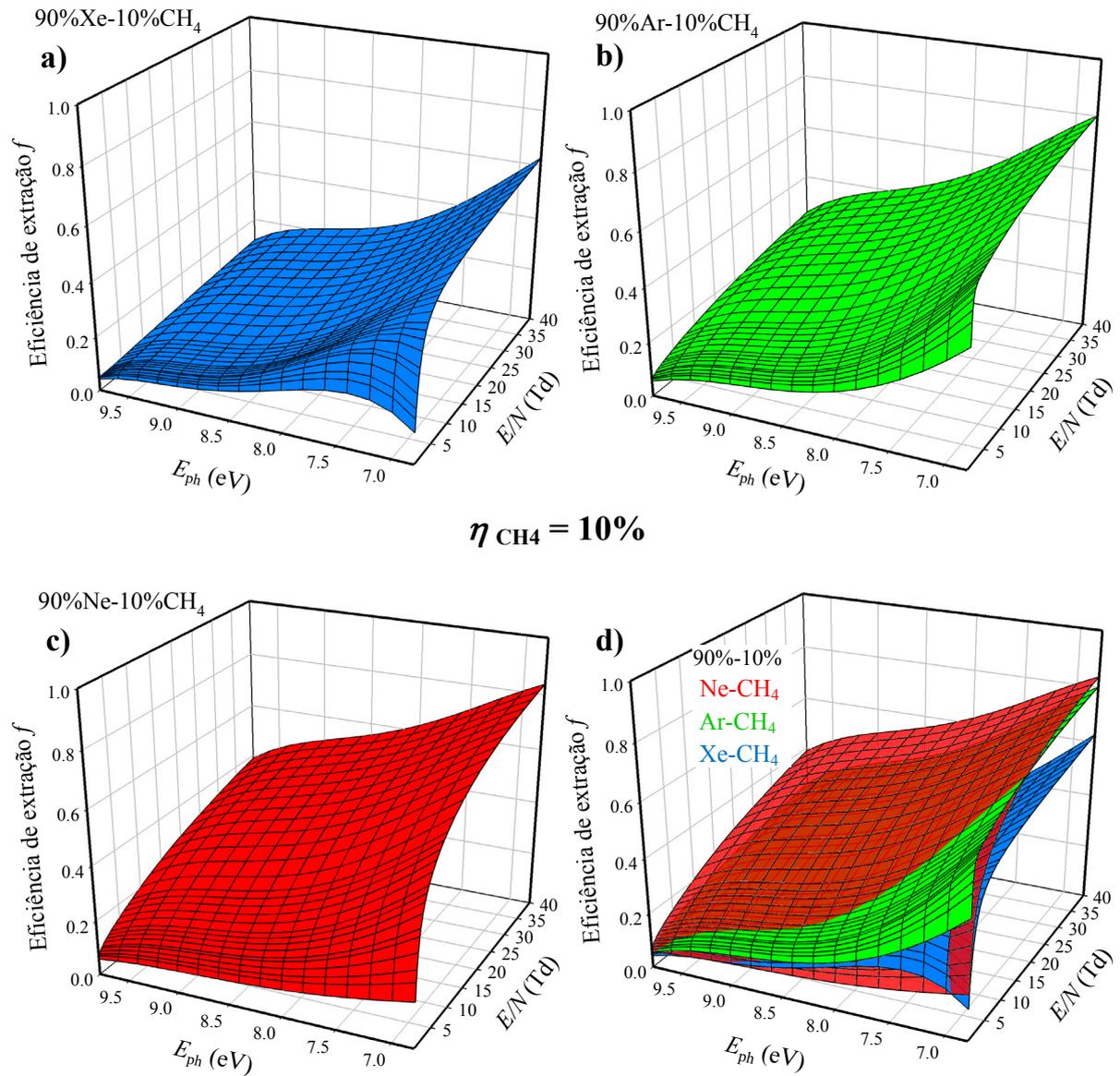


Figura 4.4 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 10% de CH_4 e 90% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

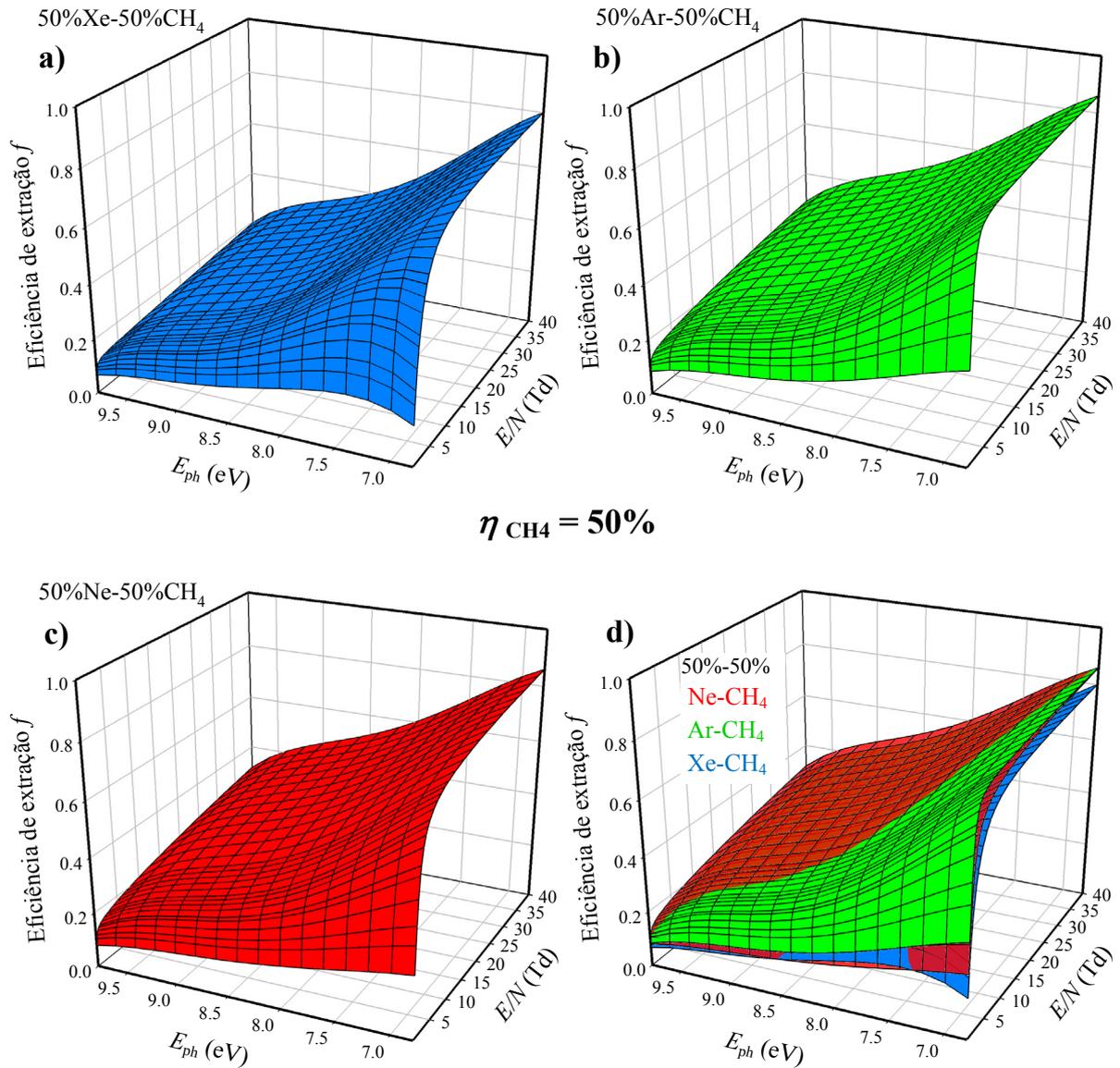


Figura 4.5 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 50% de CH_4 e 50% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

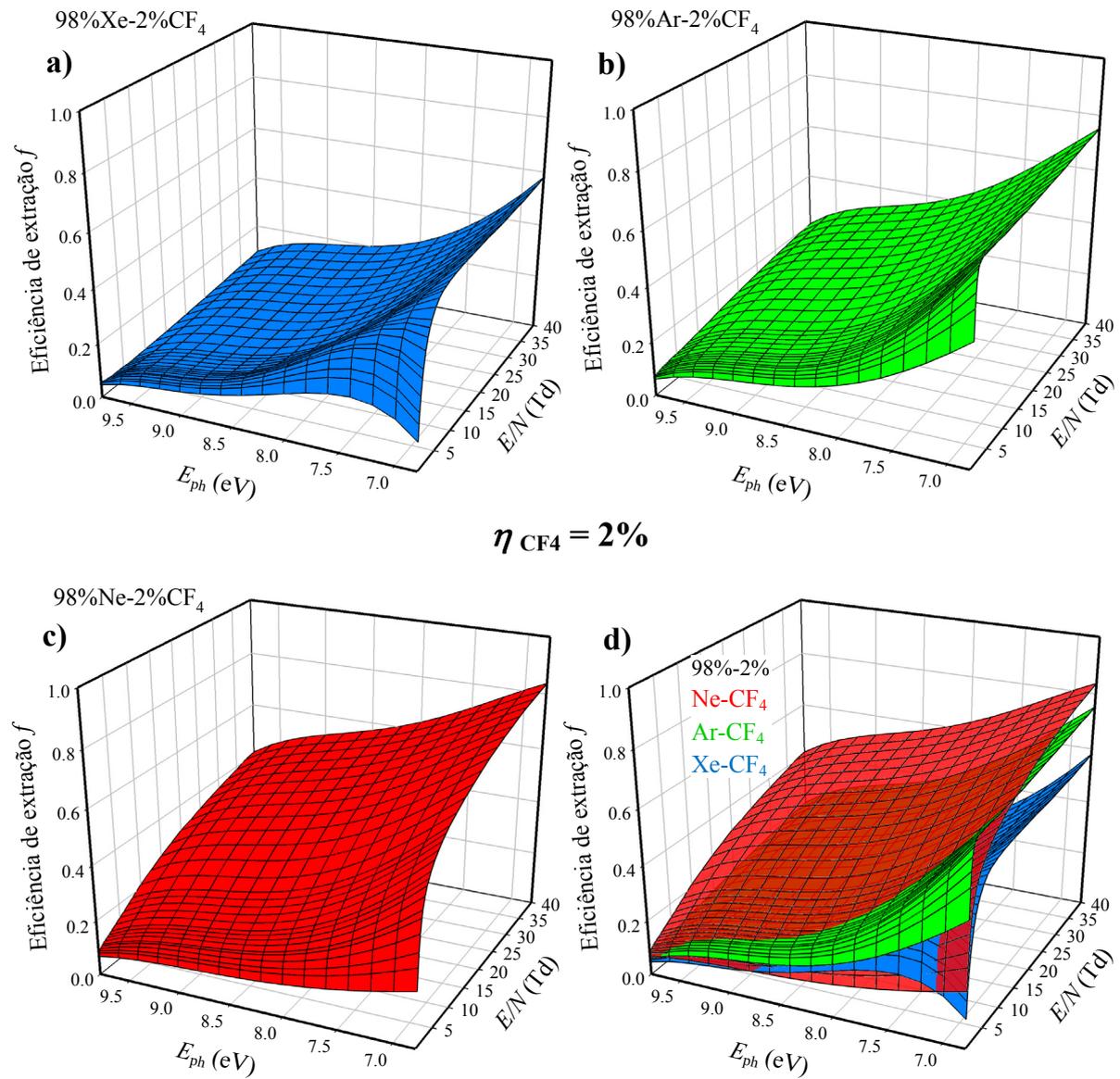


Figura 4.6 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 2% de CF_4 e 98% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

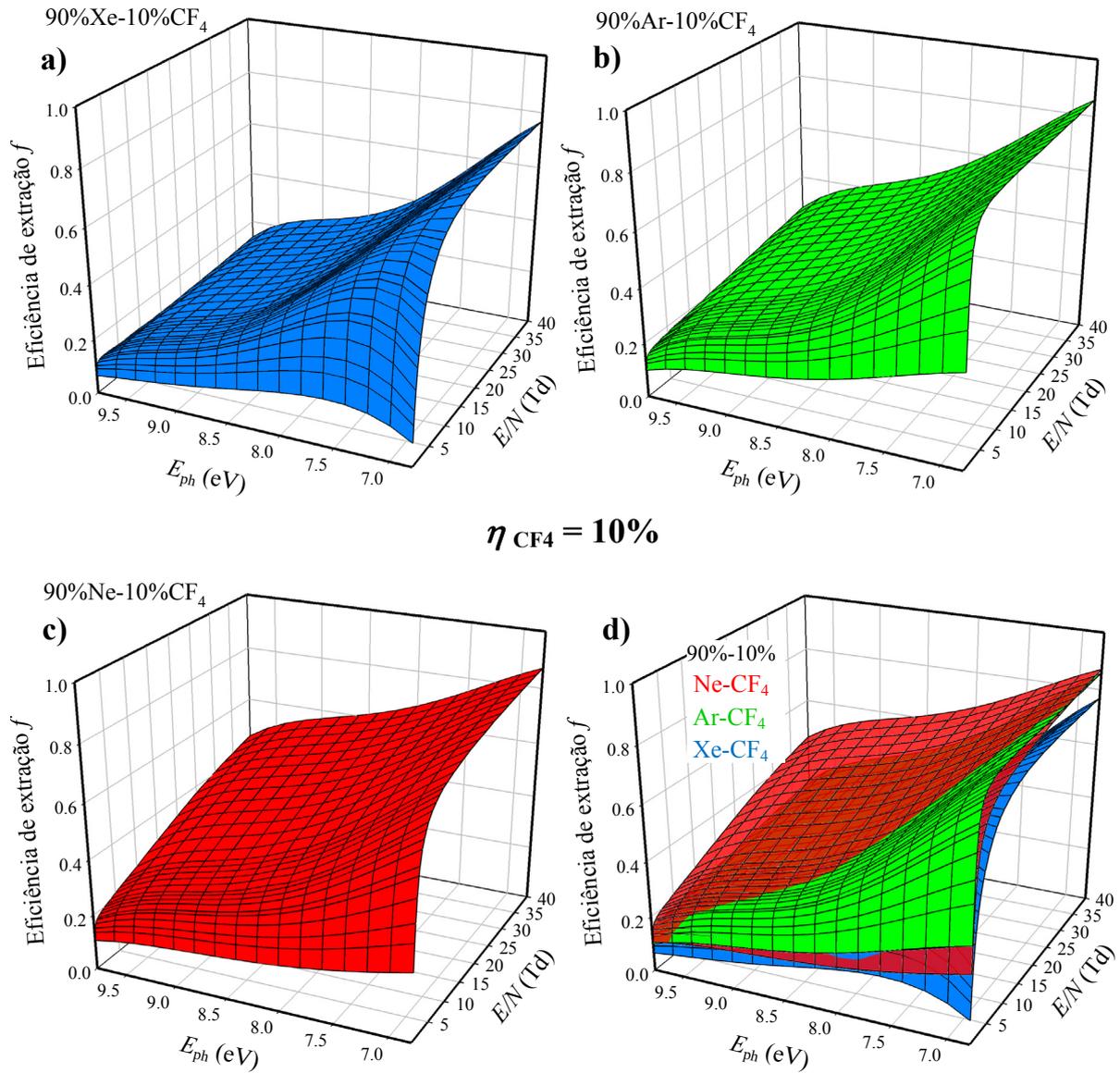


Figura 4.7 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 10% de CF_4 e 90% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

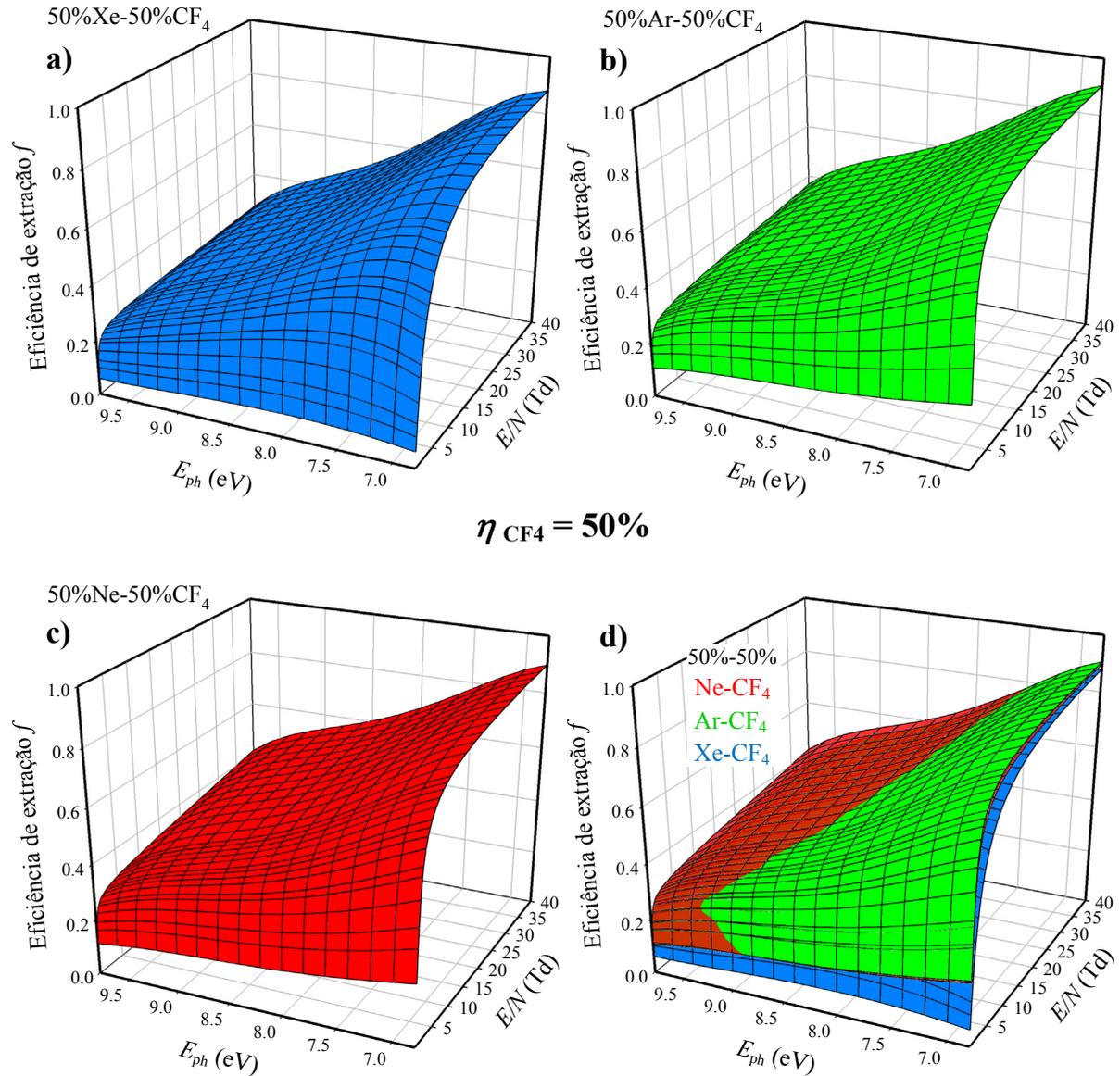


Figura 4.8 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 50% de CF_4 e 50% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

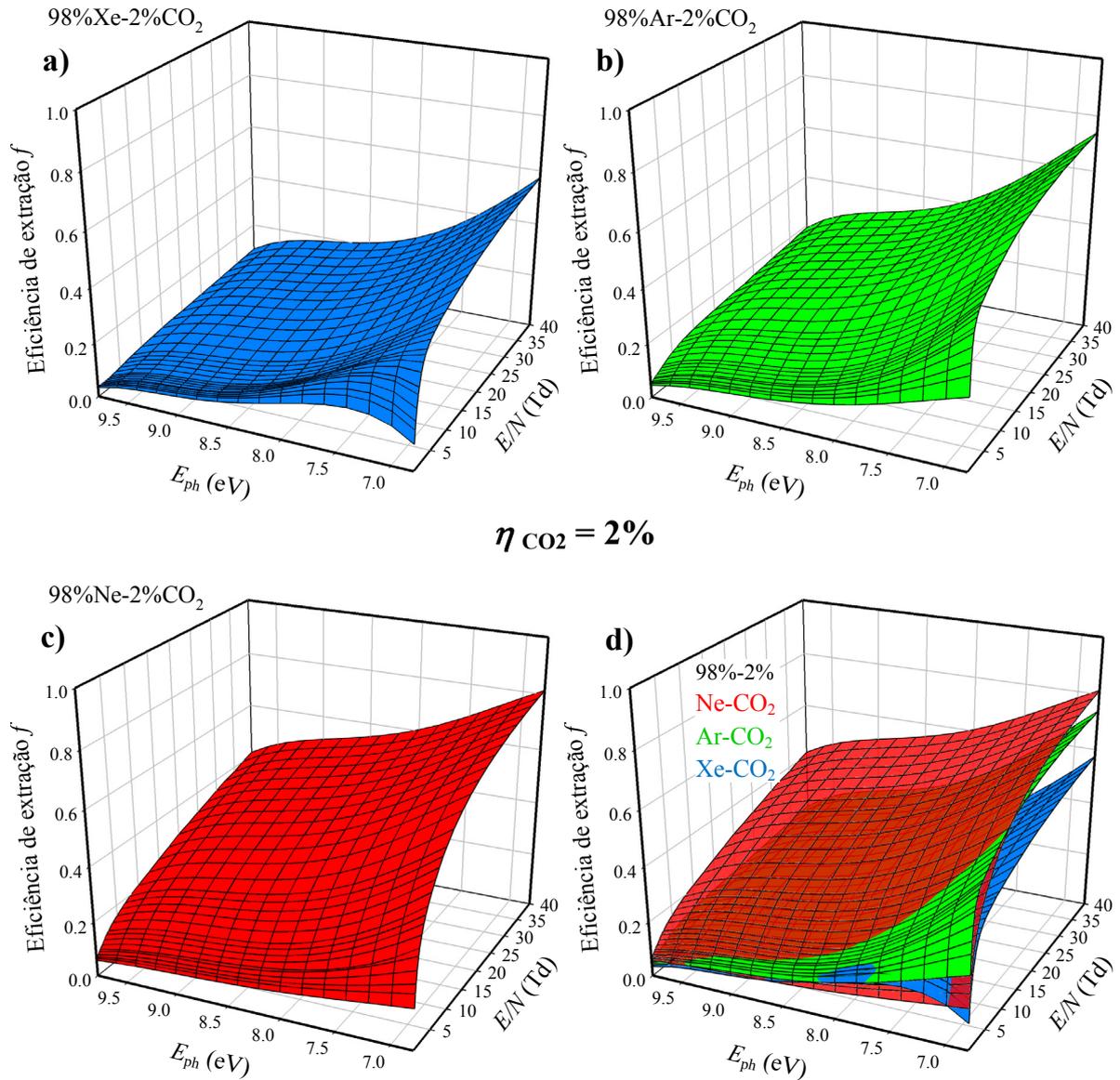


Figura 4.9 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 2% de CO_2 e 98% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

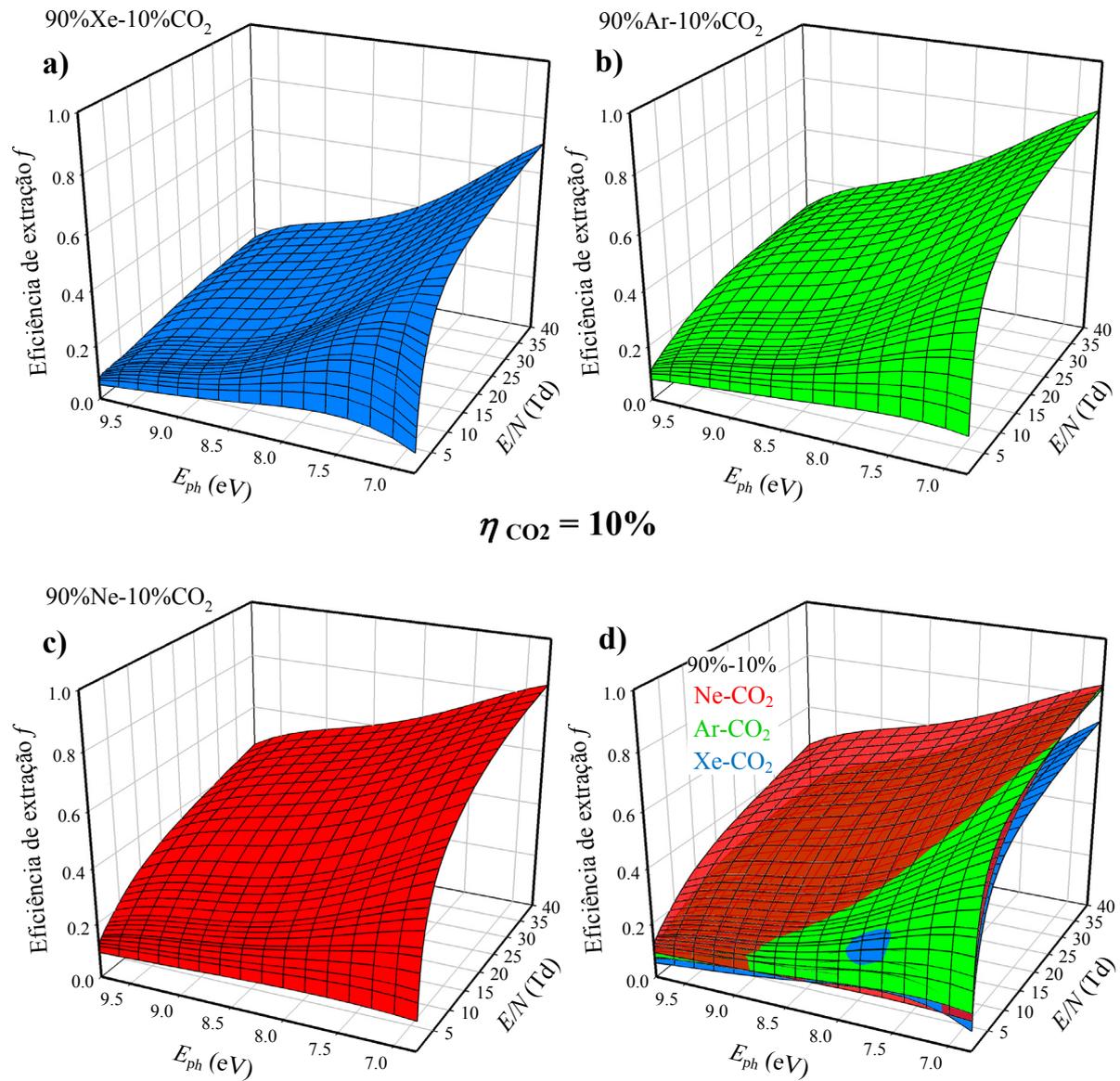


Figura 4.10 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 10% de CO_2 e 90% de **a)** Xe, **b)** Ar e **c)** Ne. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

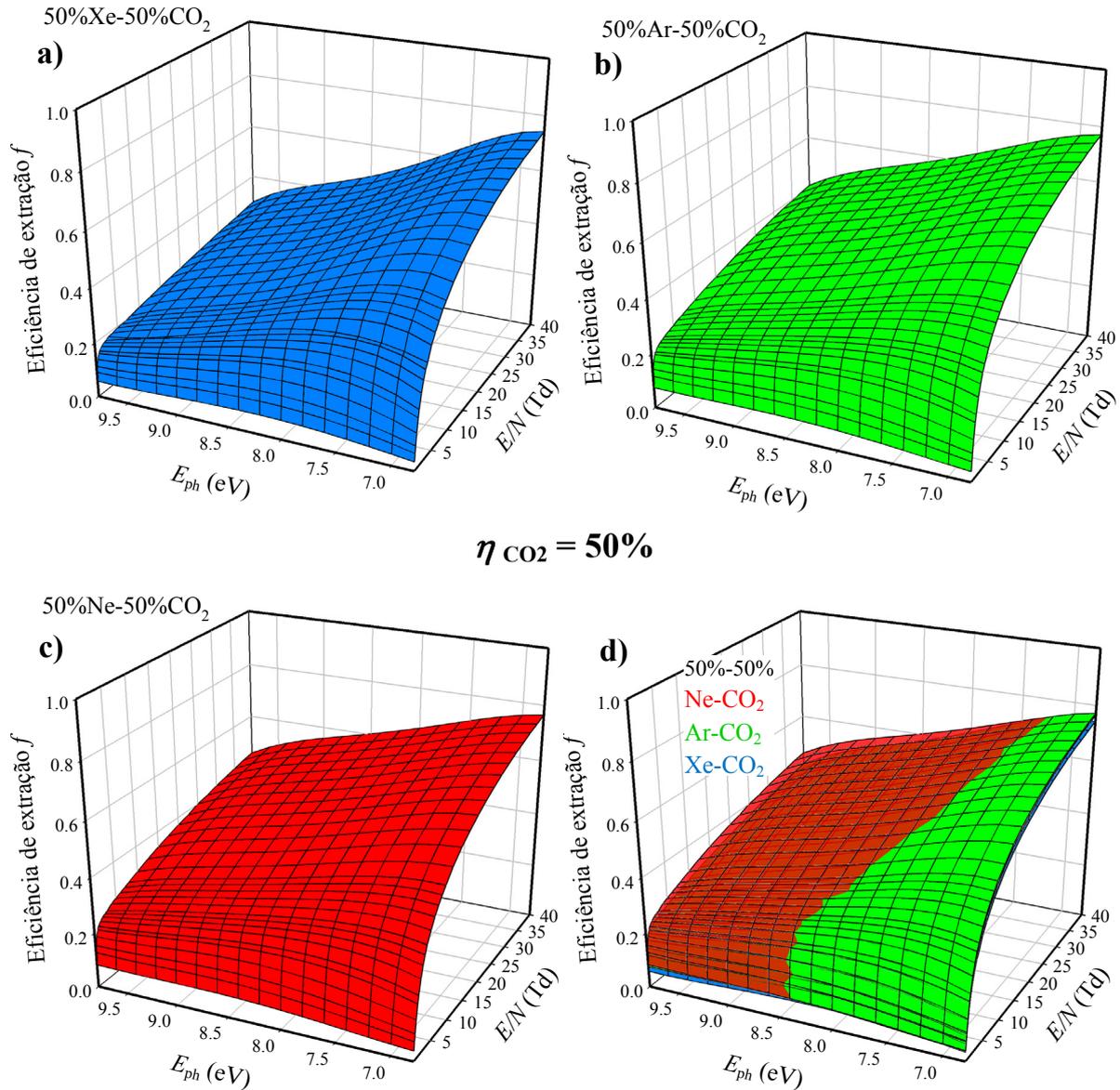


Figura 4.11 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo 50% de CO_2 e 50% de a) Xe, b) Ar e c) Ne. d) Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

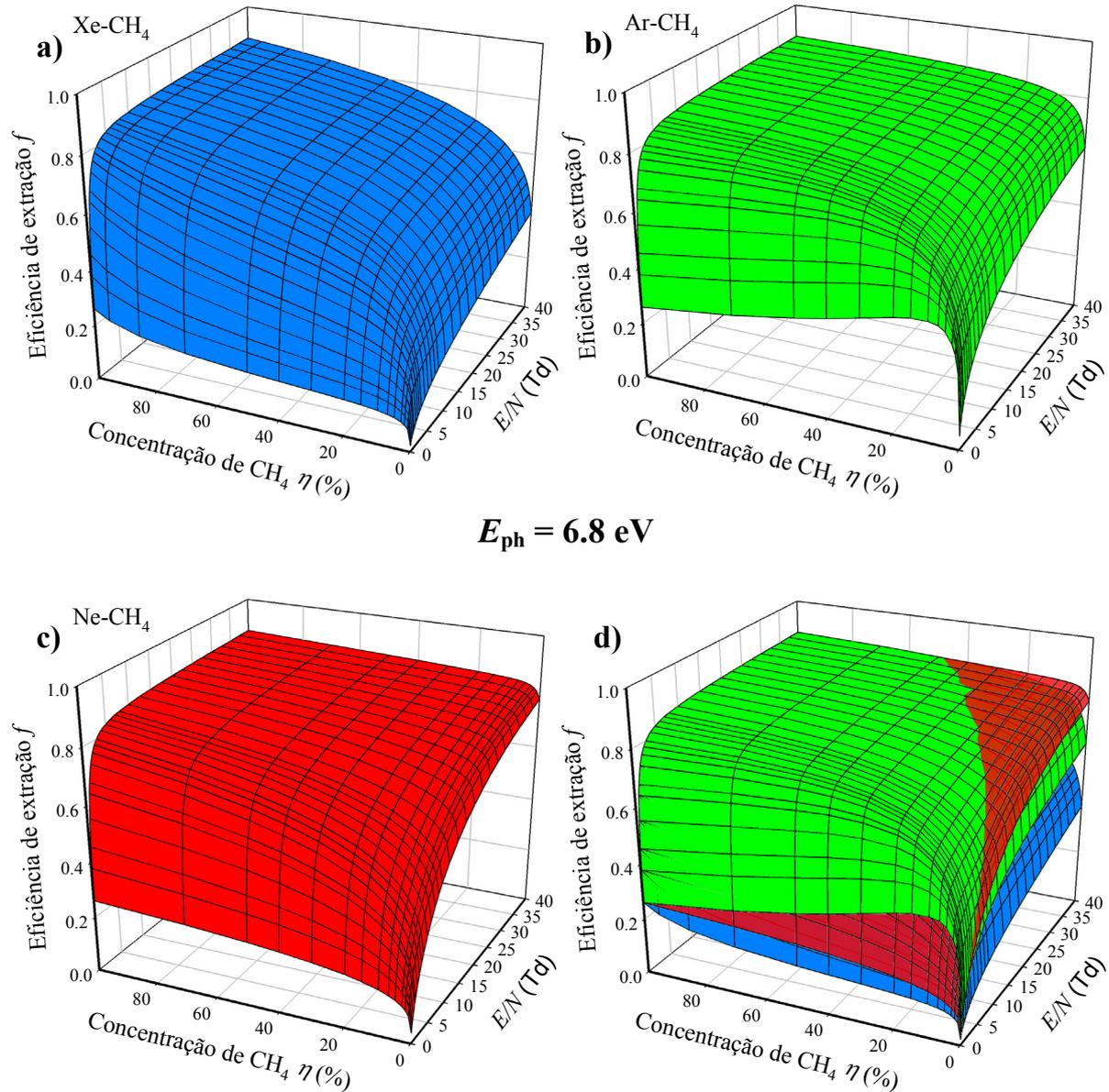


Figura 4.12 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 6.8 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas **a)** Xe-CH₄, **b)** Ar-CH₄ e **c)** Ne-CH₄. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

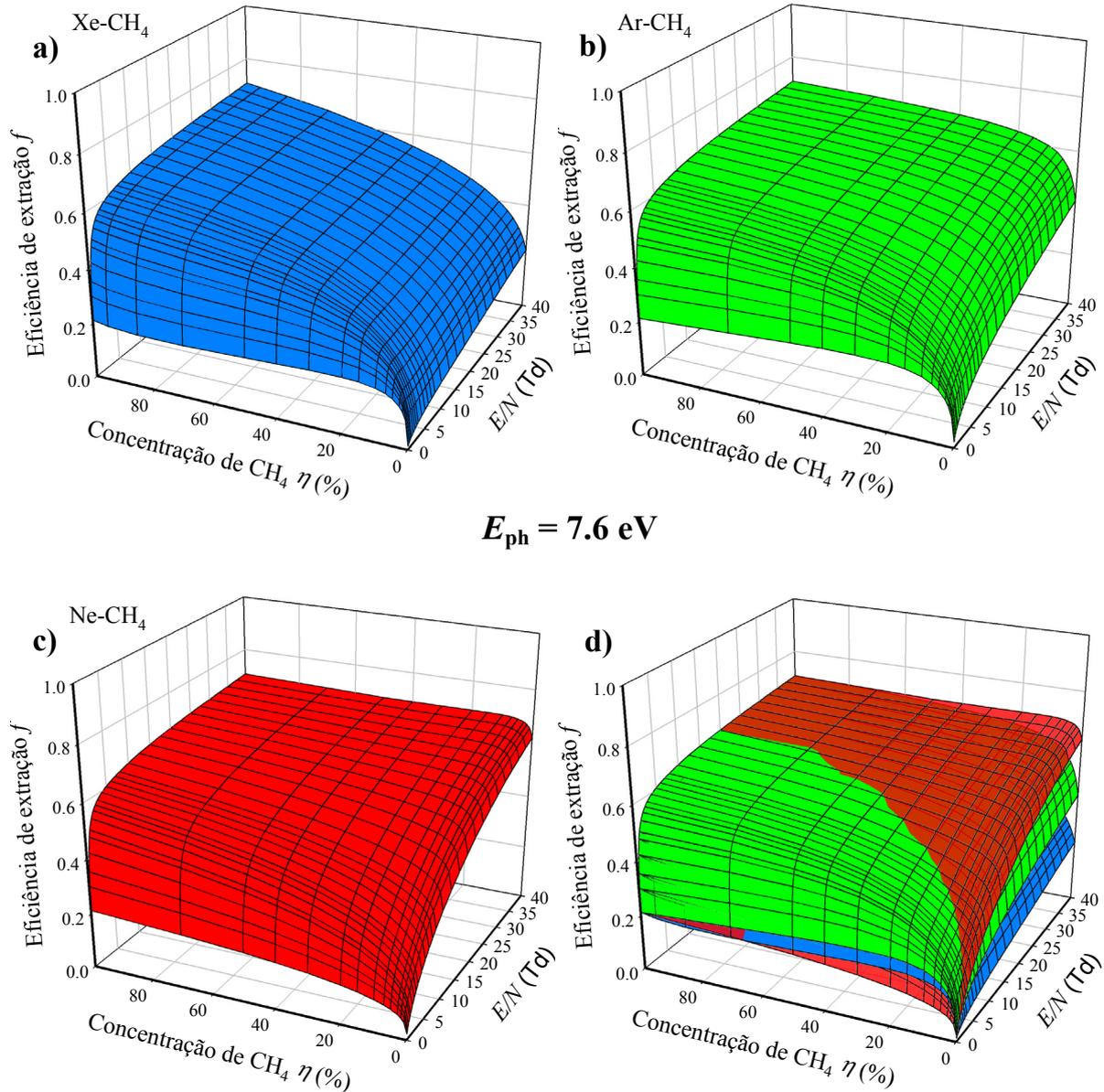


Figura 4.13 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 7.6 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas a) Xe-CH₄, b) Ar-CH₄ e c) Ne-CH₄. d) Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

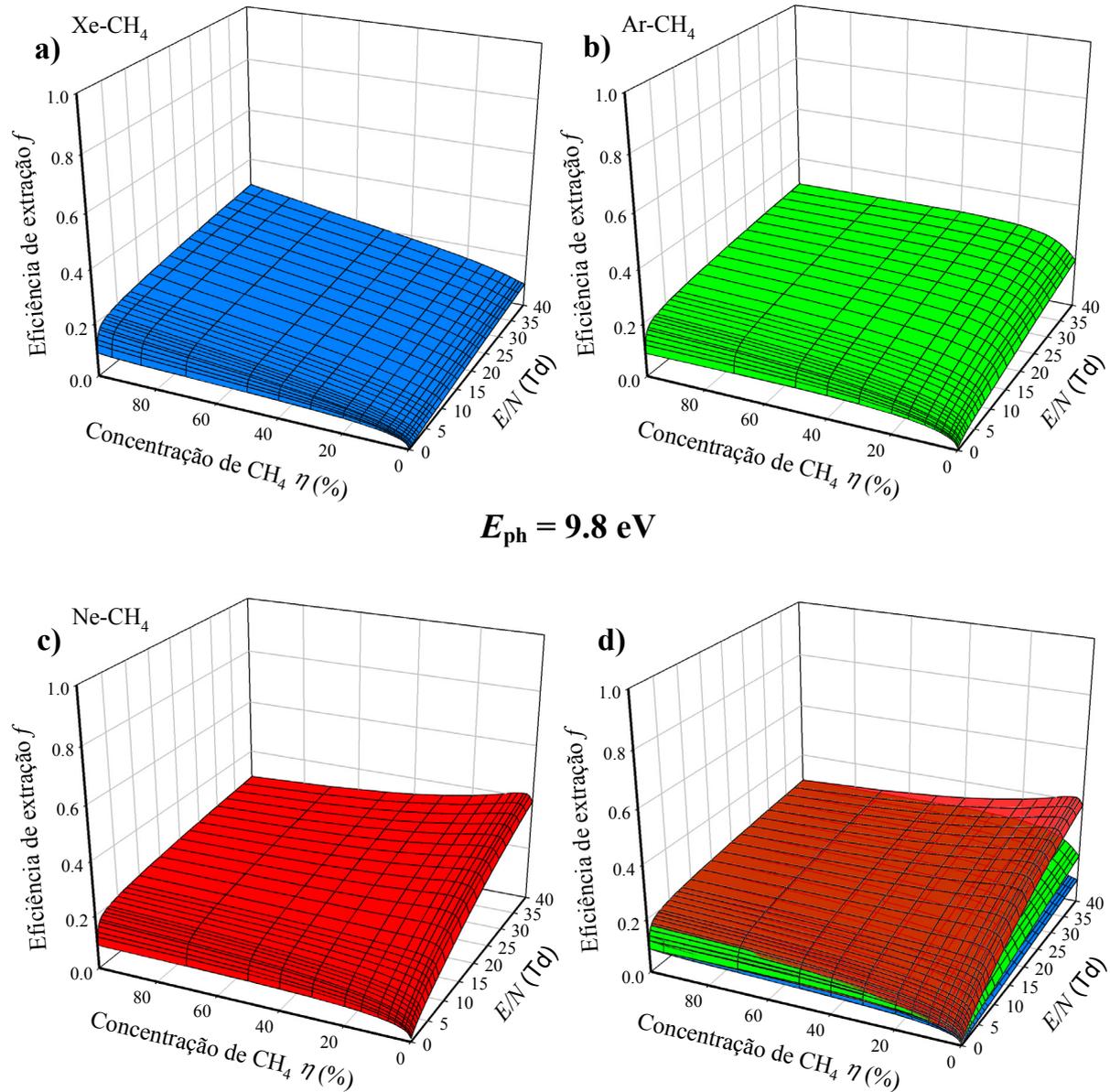


Figura 4.14 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{\text{ph}} = 9.8 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas a) Xe- CH_4 , b) Ar- CH_4 e c) Ne- CH_4 . d) Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

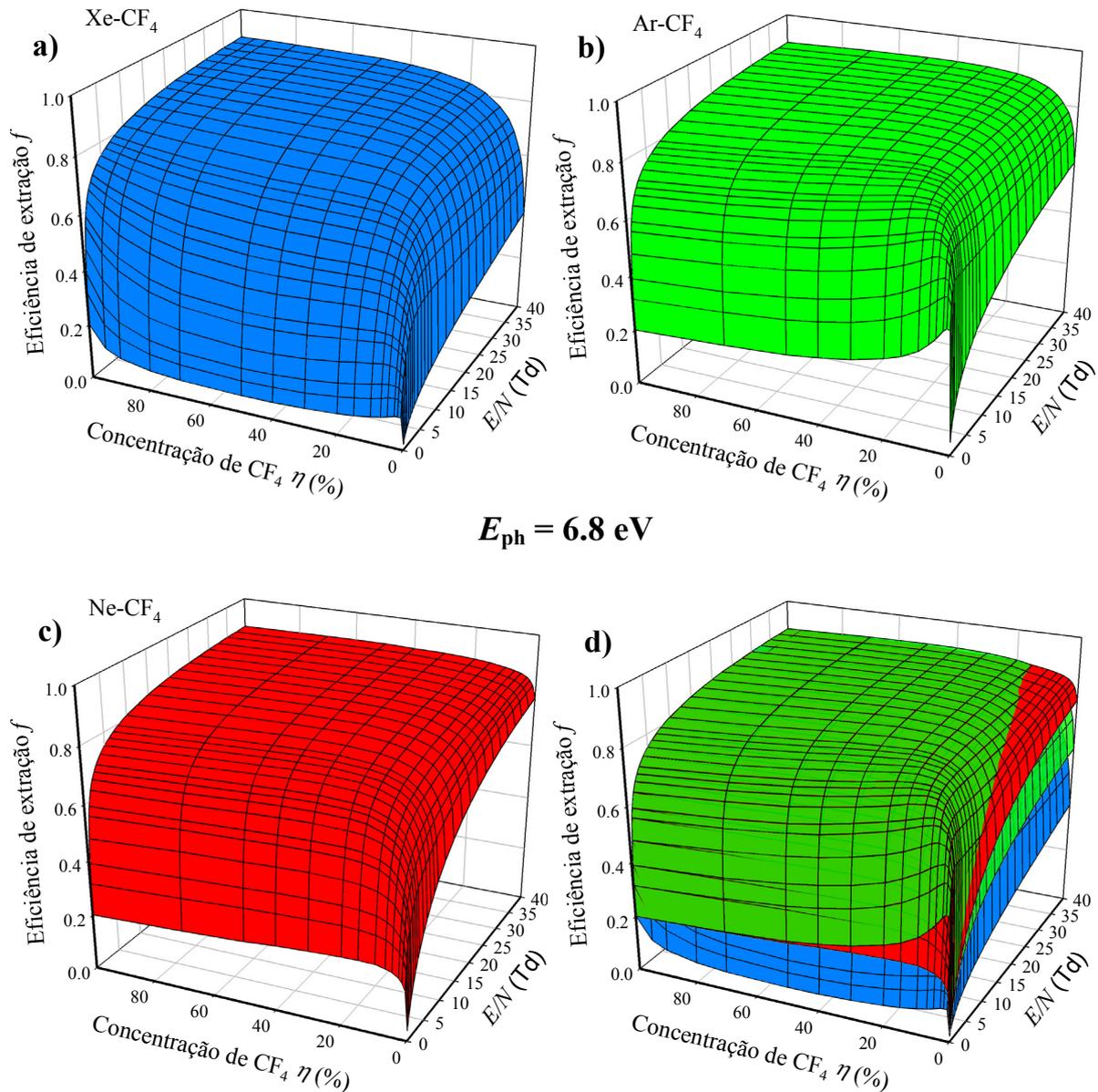


Figura 4.15 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 6.8 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas **a)** Xe-CF₄, **b)** Ar-CF₄ e **c)** Ne-CF₄. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

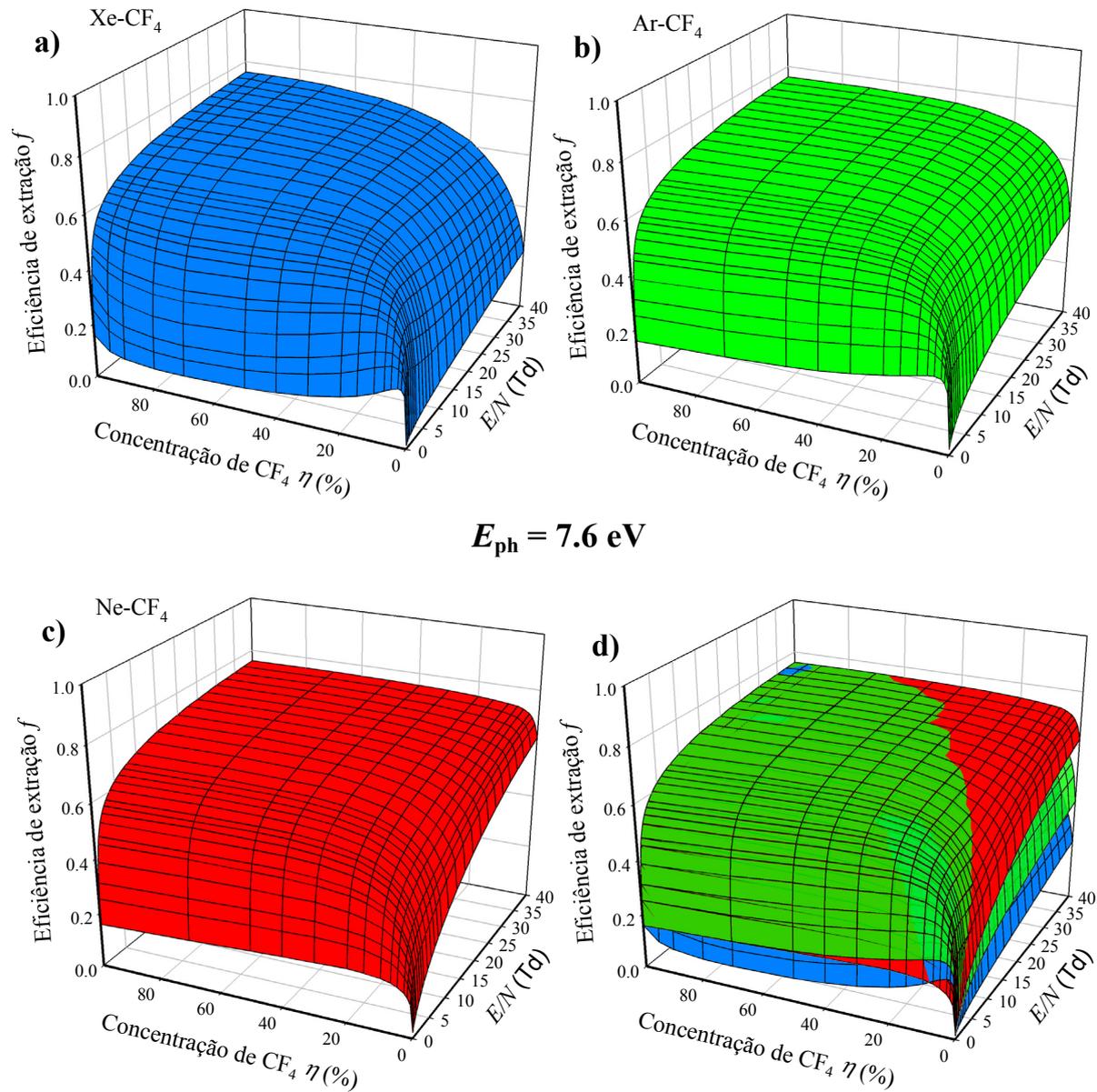


Figura 4.16 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 7.6 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas **a)** Xe- CF_4 , **b)** Ar- CF_4 e **c)** Ne- CF_4 . **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

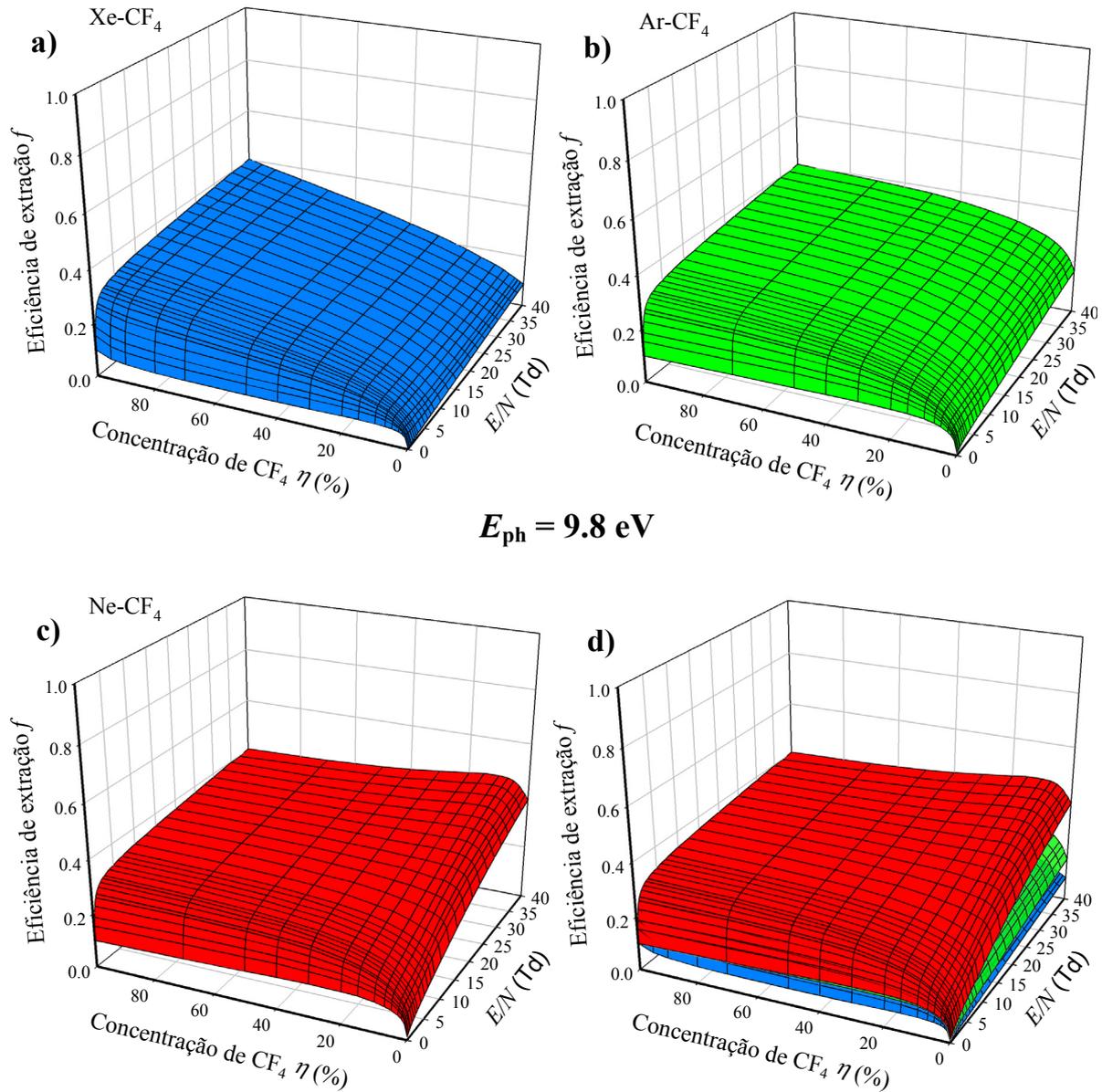


Figura 4.17 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 9.8 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas a) Xe-CF₄, b) Ar-CF₄ e c) Ne-CF₄. d) Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

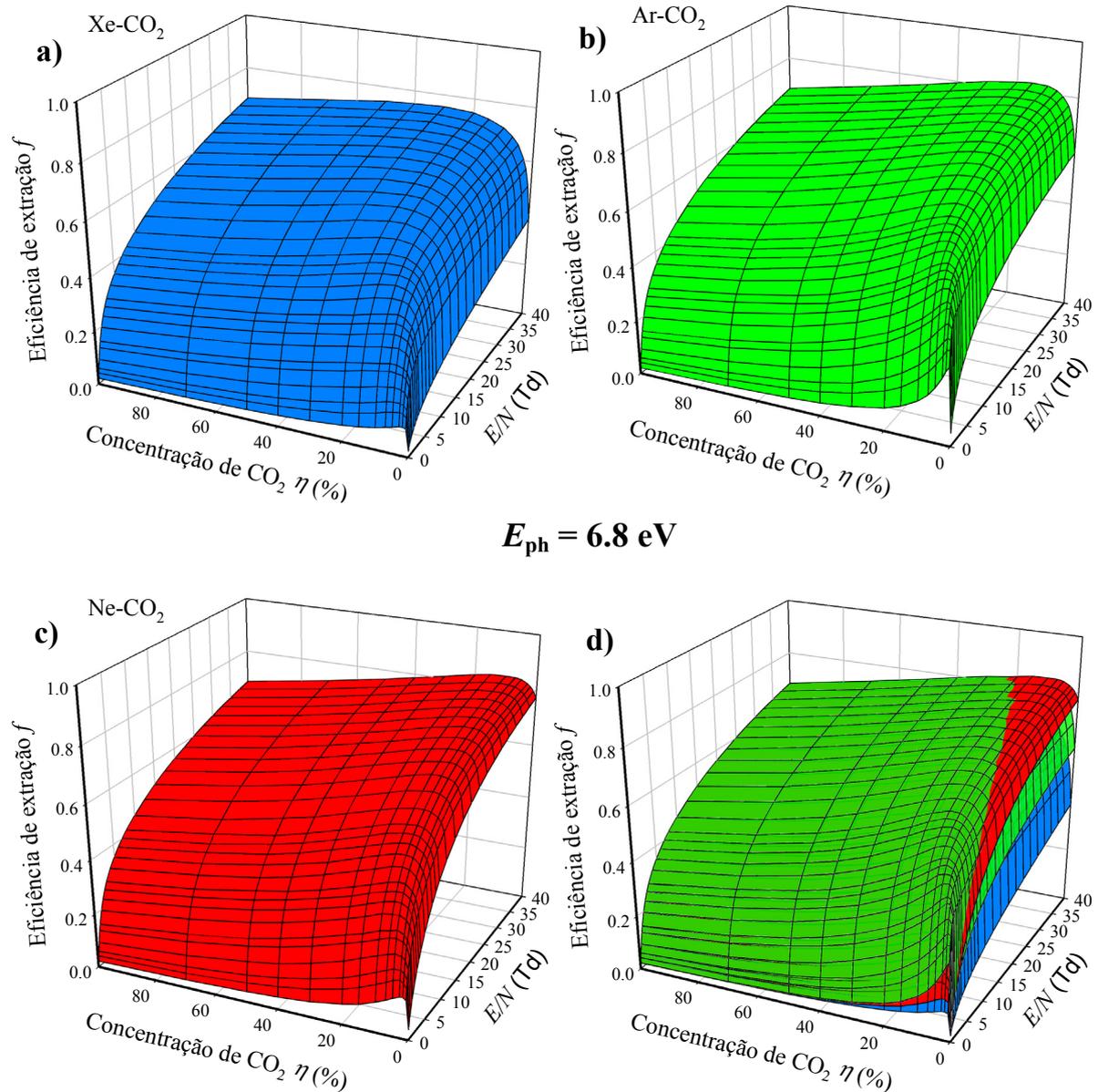


Figura 4.18 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 6.8 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas **a)** Xe-CO₂, **b)** Ar-CO₂ e **c)** Ne-CO₂. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

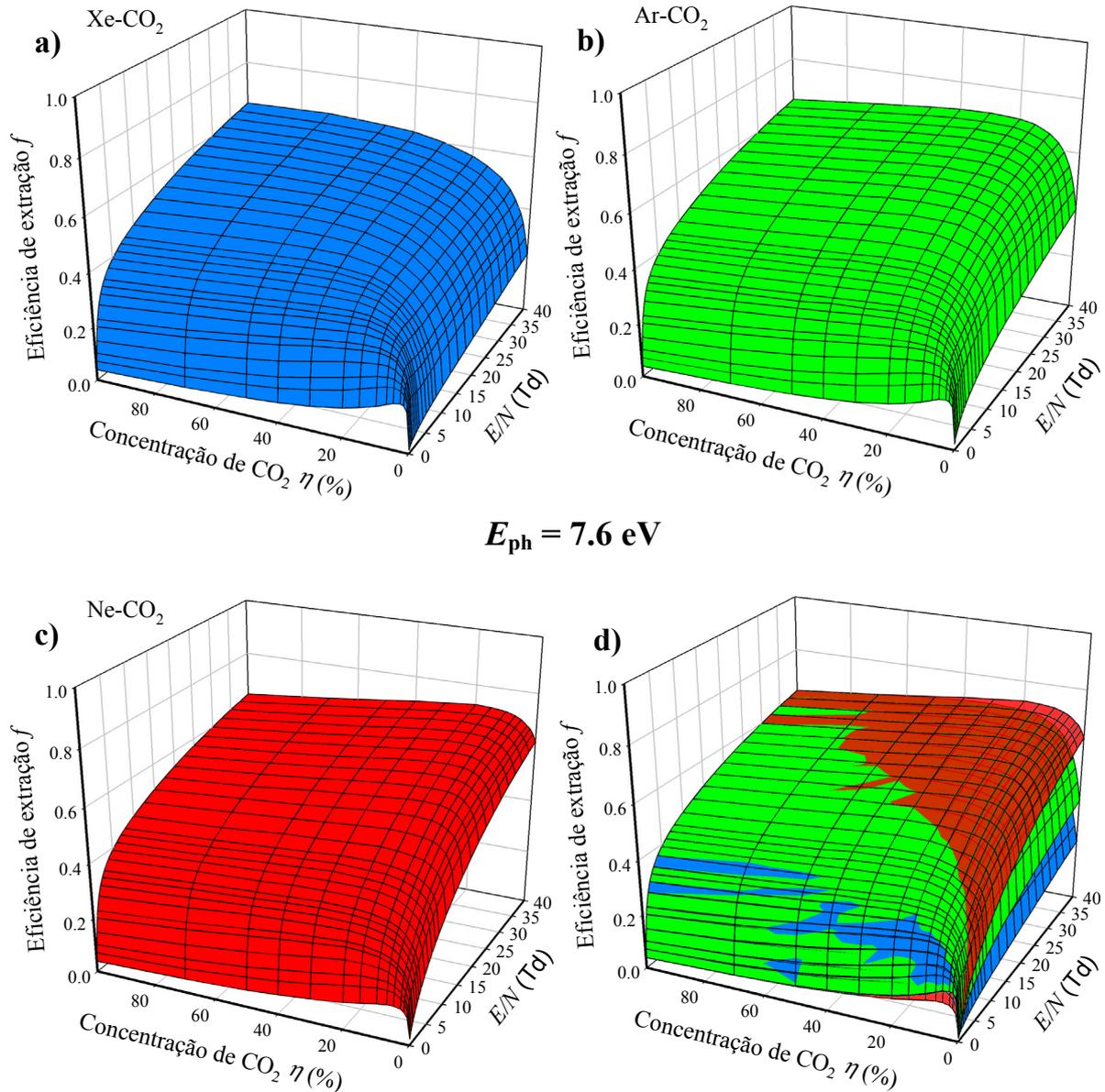


Figura 4.19 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{\text{ph}} = 7.6 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas **a)** Xe- CO_2 , **b)** Ar- CO_2 e **c)** Ne- CO_2 . **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

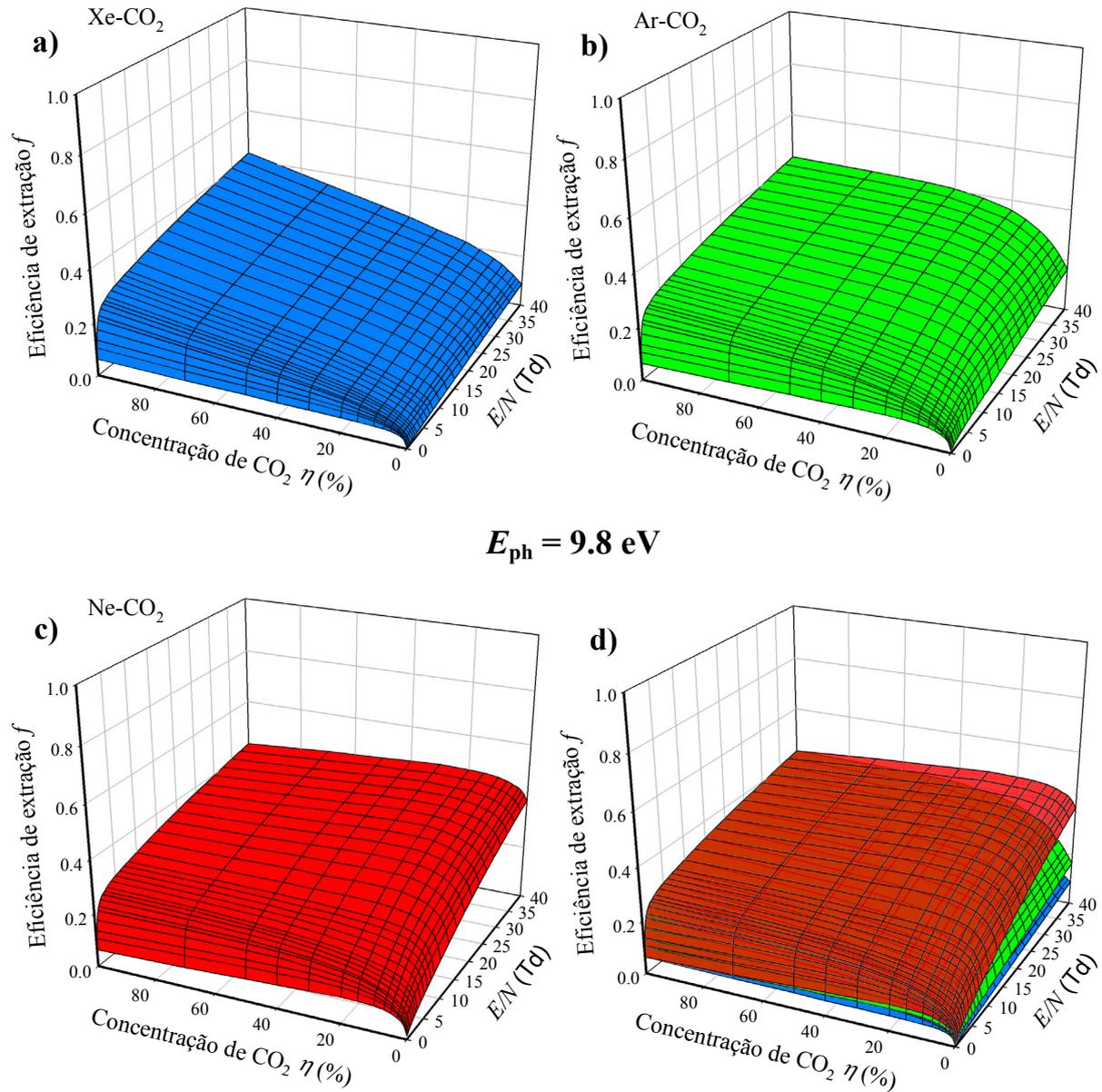


Figura 4.20 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, quando nele incidem fótons de energia $E_{ph} = 9.8 \text{ eV}$, em função do campo elétrico reduzido E/N e da concentração η de gás molecular, em misturas gasosas **a)** Xe-CO₂, **b)** Ar-CO₂ e **c)** Ne-CO₂. **d)** Reunião das superfícies representadas em a), b) e c).

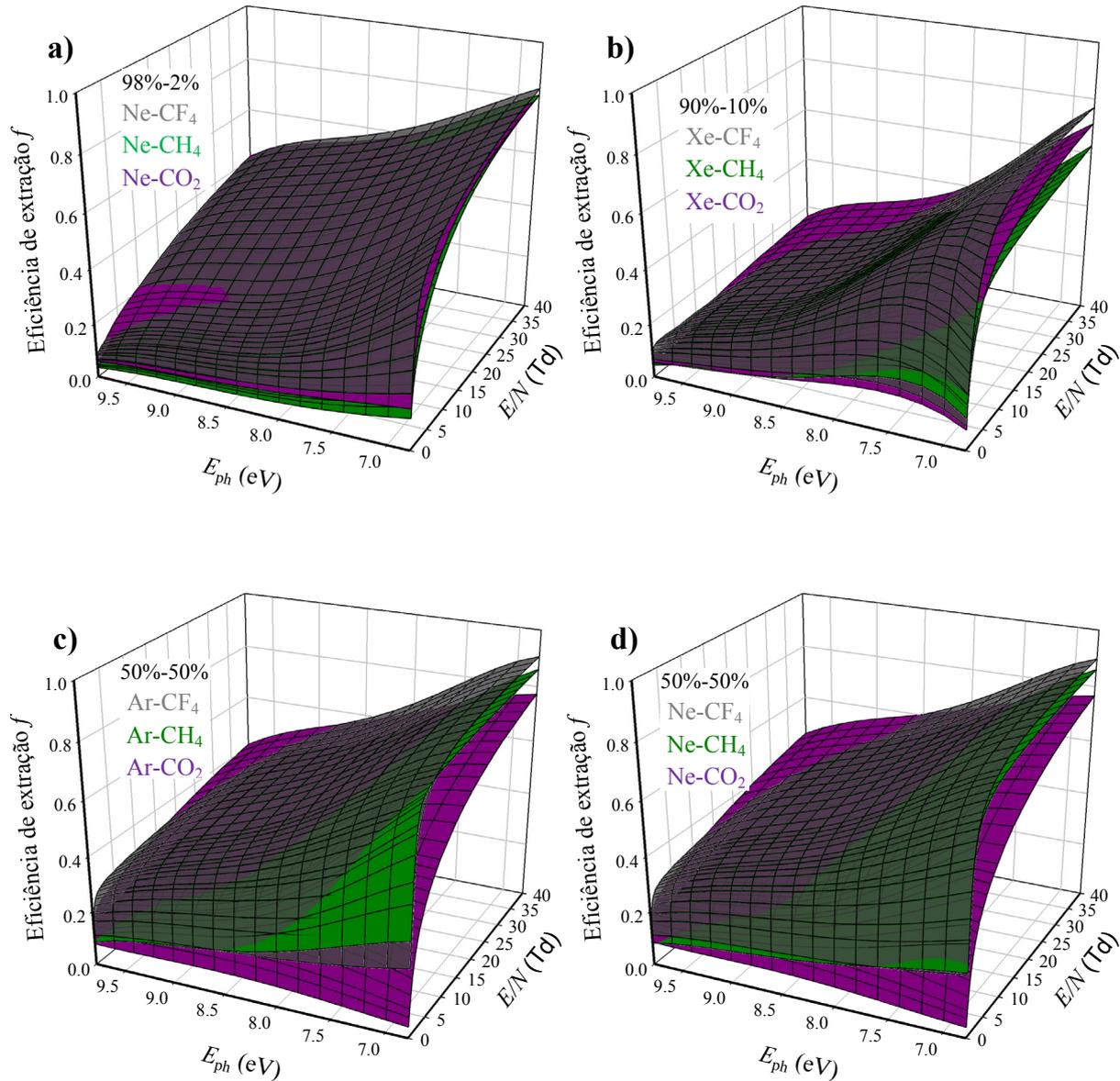


Figura 4.21 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos pelo fotocátodo e do campo elétrico reduzido E/N , em misturas gasosas contendo cada um dos gases moleculares CH_4 , CF_4 e CO_2 e **a)** 98%Ne, **b)** 90%Xe, **c)** 50%Ar e **d)** 50%Ne.

4.1.2 Discussão

Nas condições consideradas neste estudo, os fotoelétrões que são reabsorvidos pelo fotocátodo geralmente experimentaram apenas um pequeno número de colisões no meio gasoso, movimentando-se numa região limitada cuja dimensão depende essencialmente do meio gasoso e de E/N mas também de E_{ph} , como se analisará na **secção 4.1.2.3**. Assim, os fotoelétrões retornam ao fotocátodo geralmente antes de ser atingida uma situação de equilíbrio.

A eficiência de extração f de fotoelétrões do fotocátodo está dependente do campo elétrico que guia os fotoelétrões, da energia de emissão ε_0 dos fotoelétrões (relacionada com E_{ph}), da eficácia com que os fotoelétrões perdem a sua energia nas colisões e da penetração inicial λ dos fotoelétrões no gás. Os dois últimos fatores dependem da natureza do meio gasoso e estão associados à grandeza e relação entre as secções eficazes de difusão dos eletrões no meio, que são funções complexas da energia de impacto que depende de E/N e, enquanto os eletrões não atingirem o equilíbrio, também de E_{ph} .

Quanto menor for ε_0 (e E_{ph}) ou quanto mais eficaz for a perda de energia dos fotoelétrões, mais facilmente os fotoelétrões são guiados pelo campo elétrico e mais facilmente reduzem a energia a valores que proibam o seu regresso ao fotocátodo, o que favorece a extração dos fotoelétrões. A ocorrência de colisões inelásticas, com perdas assinaláveis de energia dos eletrões, é muito importante para moderar a energia dos eletrões.

A penetração inicial λ dos fotoelétrões no gás, aqui definida como o afastamento do eletrão ao fotocátodo quando ocorre a primeira colisão no gás, reflete o comprimento do primeiro percurso livre e inclui ainda o efeito de encaminhamento dos fotoelétrões pelo campo elétrico, facilitado pelos restantes fatores.

Para além dos fatores mencionados, f depende ainda da difusão angular dos fotoelétrões nas colisões elásticas e com excitação vibracional, em que o efeito da anisotropia da difusão dos fotoelétrões está já incluído no tamanho dos percursos livres e encontra-se refletida em λ , à exceção das colisões com excitação vibracional direta em CF_4 , em que a anisotropia (que aumenta com a energia de impacto, ver **secção 3.1.2.2**) está considerada explicitamente. Para este caso, em que a difusão ocorre preferencialmente para o hemisfério frontal, são comparadas na **Fig. 4.22** curvas da eficiência f em CF_4 calculadas com esta distribuição ou considerando isotropia. As curvas mostram claramente a relevância da distribuição angular nestas colisões, com a extração dos fotoelétrões a ser beneficiada pela difusão preferencial para o hemisfério frontal.

De modo a isolar o efeito de E_{ph} (relacionado com a energia de emissão ε_0 dos fotoelétrões) e de E/N na eficiência f , considerou-se uma simulação num gás fictício (com a mesma massa que Ne) onde os eletrões apenas colidem elasticamente de acordo com uma secção eficaz constante ($\sigma = 10^{-16} \text{ cm}^2$), excluindo-se assim os efeitos da natureza do gás associados à variação complexa e diversidade das secções eficazes. Nestas condições, partindo das distribuições $\mathcal{G}(\varepsilon_0)$ de energia de emissão ε_0 dos fotoelétrões de [72], calcularam-se as distribuições $\mathcal{E}(\varepsilon_0)$ dos fotoelétrões que são

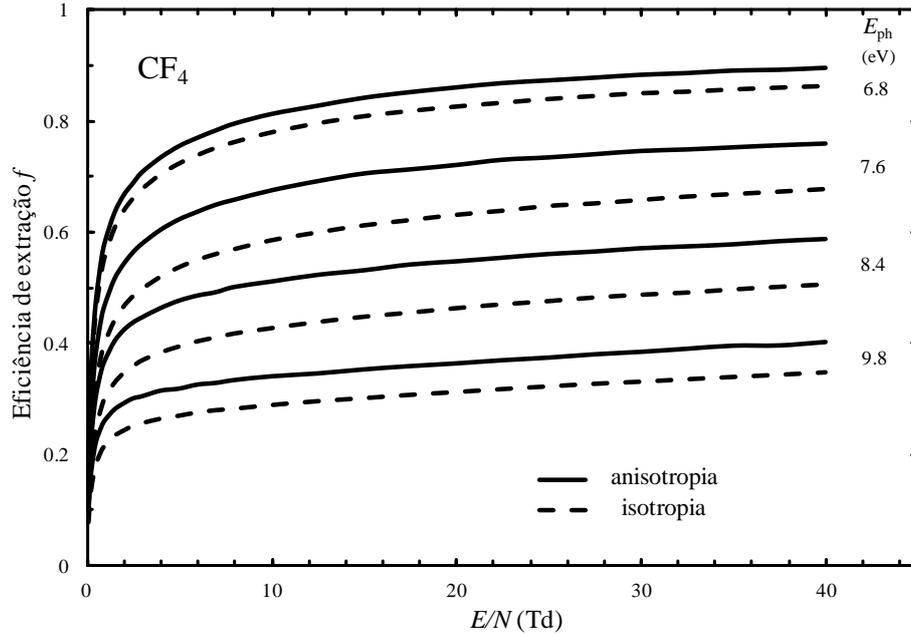


Figura 4.22 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em CF_4 , em função do campo elétrico reduzido E/N , para os valores indicados da energia E_{ph} dos fótons absorvidos, incluindo a anisotropia das colisões com excitação vibracional direta das moléculas de CF_4 e considerando isotropia nessas colisões.

efetivamente extraídos, a eficiência f e a penetração inicial λ . Os resultados para f e λ são apresentados na **Fig. 4.23a** em função de E/N para $E_{\text{ph}} = 8$ eV e na **Fig. 4.23b** em função de E_{ph} para $E/N = 5$ Td. Na **Fig. 4.23b** são também apresentados os resultados para os valores médios A_G e A_E das distribuições $\mathcal{G}(\varepsilon_0)$ e $\mathcal{E}(\varepsilon_0)$ para $E/N = 5$ Td e na **Fig. 4.23c**, tomando como exemplo $E_{\text{ph}} = 8$ eV, são apresentadas as distribuições de energia $\mathcal{G}(\varepsilon_0)$ e $\mathcal{E}(\varepsilon_0)$, juntamente com a distribuição $\mathcal{R}(\varepsilon_0)$ correspondente aos fotoelétrons recapturados ($\mathcal{E} + \mathcal{R} = \mathcal{G}$).

Apesar de a secção eficaz ser constante, o aumento da energia dos fotoelétrons, devido ao aumento de E/N ou de E_{ph} , leva a uma maior perda média de energia nas colisões (que são apenas elásticas), com algum benefício no aumento de f . No entanto, o aumento de f com E/N observado na **Fig. 4.23a** deve-se fundamentalmente ao efeito de encaminhamento do campo elétrico. Observa-se na **Fig. 4.23b** que o aumento com E_{ph} dos valores médios A_G das distribuições $\mathcal{G}(\varepsilon_0)$ é acompanhado pela diminuição de f , causada pelo aumento da energia que os elétrons terão de perder até ser energeticamente proibido o regresso ao fotocátodo. Uma vez que, nestas condições, o comprimento de um percurso livre ($1/(N\sigma)$) é independente de E/N e E_{ph} , o crescimento da penetração inicial λ com E/N reflete o mais fácil encaminhamento dos fotoelétrons pelo campo elétrico; o decréscimo de λ com E_{ph} traduz o mais difícil encaminhamento dos fotoelétrons mais energéticos pelo campo elétrico e o deslocamento da distribuição angular de emissão dos fotoelétrons para maiores ângulos, resultante do aumento de ε_0 (Eq. 3.9). Também se observa na **Fig. 4.23b** que, com o aumento de E_{ph} , a curva A_E se afasta gradualmente da curva A_G , mostrando que a possibilidade de recaptura é maior para os fotoelétrons de maior ε_0 , o que se pode ver na **Fig. 4.23c**, através da comparação entre as duas distribuições parciais $\mathcal{E}(\varepsilon_0)$ e $\mathcal{R}(\varepsilon_0)$.

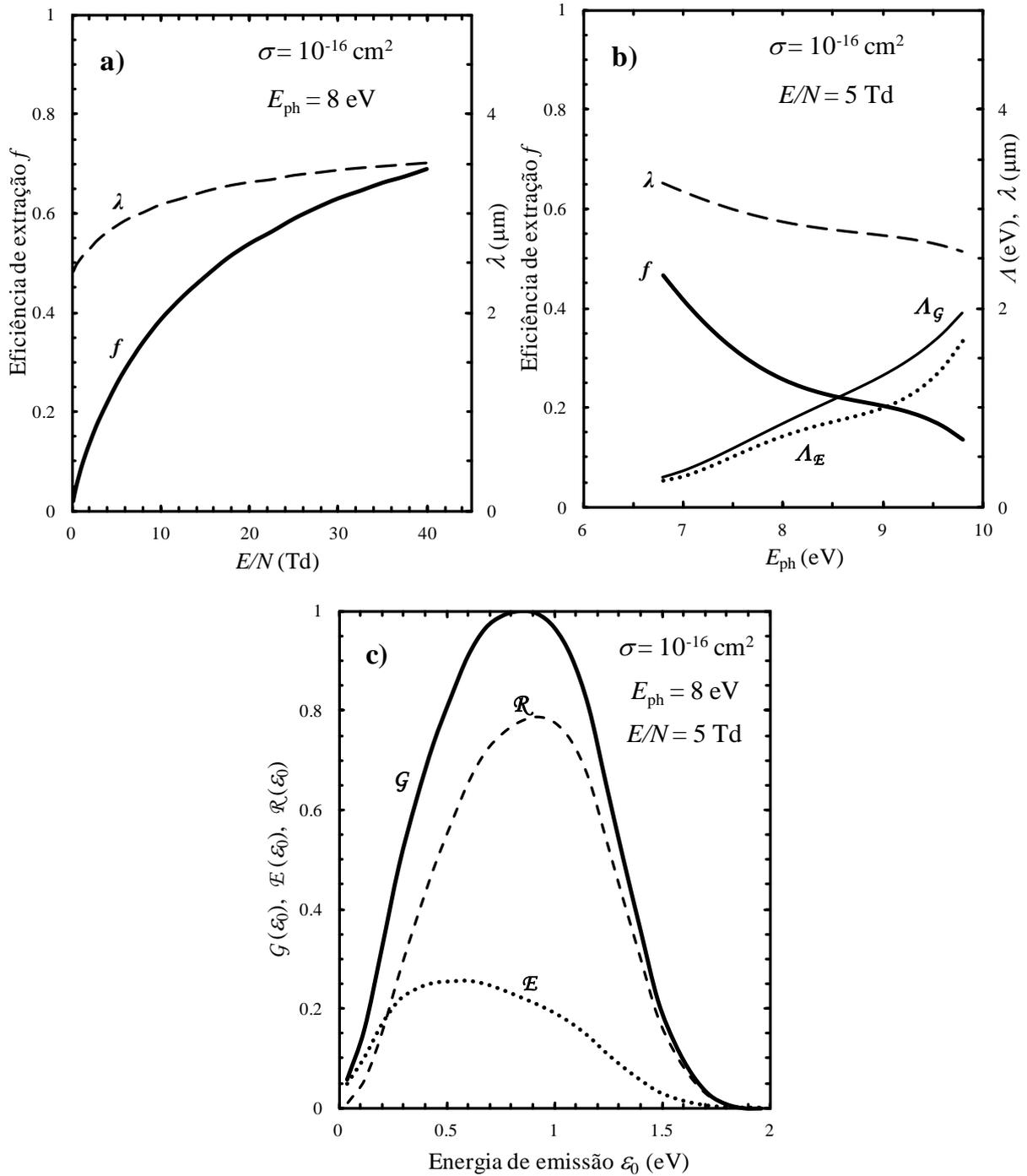


Figura 4.23 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f e penetração inicial λ dos fotoeltrões emitidos por um fotocátodo de CsI num meio gasoso fictício em que ocorrem apenas colisões elásticas com os átomos (de massa igual aos de Ne) com secção eficaz constante ($\sigma = 10^{-16} \text{ cm}^2$), **a**) em função do campo elétrico reduzido E/N , para a energia $E_{\text{ph}} = 8 \text{ eV}$ dos fótons absorvidos, **e b**) em função de E_{ph} , para $E/N = 5 \text{ Td}$, juntamente com os valores médios A_G e A_E das distribuições de energia de emissão $G(\epsilon_0)$ e $E(\epsilon_0)$ que representam, respetivamente, todos os fotoeltrões emitidos no meio gasoso e aqueles que são efetivamente extraídos. **c**) Distribuições de energia $G(\epsilon_0)$ [72] e $E(\epsilon_0)$, para $E_{\text{ph}} = 8 \text{ eV}$ e $E/N = 5 \text{ Td}$, juntamente com a correspondente distribuição $R(\epsilon_0)$ dos fotoeltrões recapturados pelo fotocátodo ($G = E + R$).

4.1.2.1 Correlação de f com colisões inelásticas e penetração inicial dos fotoelétrons

Passa-se agora a avaliar a dependência de f em relação à natureza dos vários meios gasosos investigados.

Gases nobres

Nos gases nobres, o limiar inelástico é elevado (8.3 eV em Xe, 11.5 eV em Ar e 16.6 eV em Ne) e, por isso, as colisões inelásticas só ocorrem para $E/N > 1$ Td em Ne e $E/N > 3$ Td em Ar e Xe. Assim, na região limitada de E/N e E_{ph} investigada, elas são pouco frequentes e ocorrem geralmente após muitas colisões elásticas. A sua contribuição para a extração dos fotoelétrons é significativa apenas para os maiores valores de E/N e E_{ph} , onde, no entanto, uma colisão inelástica é suficiente para decidir que o elétron não retorne ao fotocátodo, i.e., que seja extraído.

Para avaliar a influência que a perda de energia dos fotoelétrons em colisões inelásticas em gases nobres puros tem em f , fez-se uma simulação em que, sem alterar a secção eficaz total de difusão dos elétrons, se considerou que as colisões são sempre elásticas. Na **Fig. 4.24a** são apresentadas as eficiências f em Ne, Ar e Xe, para $E_{ph} = 6.8, 7.6$ e 9.8 eV, juntamente com as correspondentes curvas calculadas considerando este modelo fictício.

Como se pode observar na **Fig. 4.24**, apesar de a exclusão de colisões inelásticas aumentar consideravelmente o número de colisões sofridas pelos elétrons na sua história (**Fig. 4.24b**) o efeito em f é pequeno, mostrando que, nos gases nobres, grande parte dos fotoelétrons extraídos apenas sofre colisões elásticas, cujo número aumenta de Ne para Ar e deste para Xe. O efeito é mais significativo a maior E_{ph} (i.e. ε_0) porque os elétrons terão de perder mais energia para satisfazer o critério de extração.

Como anteriormente na **secção 4.1.1.1**, também na **Fig. 4.24a** se observa o comportamento genérico $f_{Ne} > f_{Ar} > f_{Xe}$. Como anteriormente discutido em [46], duas razões fundamentais explicam esta dependência de f com a natureza do gás nobre. Quando nos deslocamos de Ne para Ar e deste para Xe, por um lado, decresce a perda de energia por colisão elástica (em média inversamente proporcional à massa do átomo) e, por outro, aumenta a secção eficaz total de colisão, diminuindo o percurso livre médio e a penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás e ainda a probabilidade de ocorrência de colisões inelásticas.

Com o intuito de avaliar a importância destes dois aspetos, e tomando como ponto de partida a eficiência f em Ar, calcula-se por simulação f para $E_{ph} = 6.8, 7.6$ e 9.8 eV, considerando, num caso, que a massa do átomo aumenta para o valor da massa de Xe e diminui para o de Ne (**Fig. 4.25a**) e, noutro caso, que a secção eficaz total de colisão aumenta e diminui em uma ordem de grandeza (**Fig. 4.25b**). Observa-se na **Fig. 4.25a** que a influência da massa do átomo em f é apreciável para menor E_{ph} , onde as colisões são quase exclusivamente elásticas. Por outro lado, a **Fig. 4.25b** mostra que o efeito da alteração da secção eficaz total é muito mais relevante, sendo a principal razão da

variação de f com o gás nobre. A penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás está intimamente relacionada com a secção eficaz total de difusão dos eletrões, como se observa na **Fig. 4.25b**, onde as curvas de λ estão também representadas.

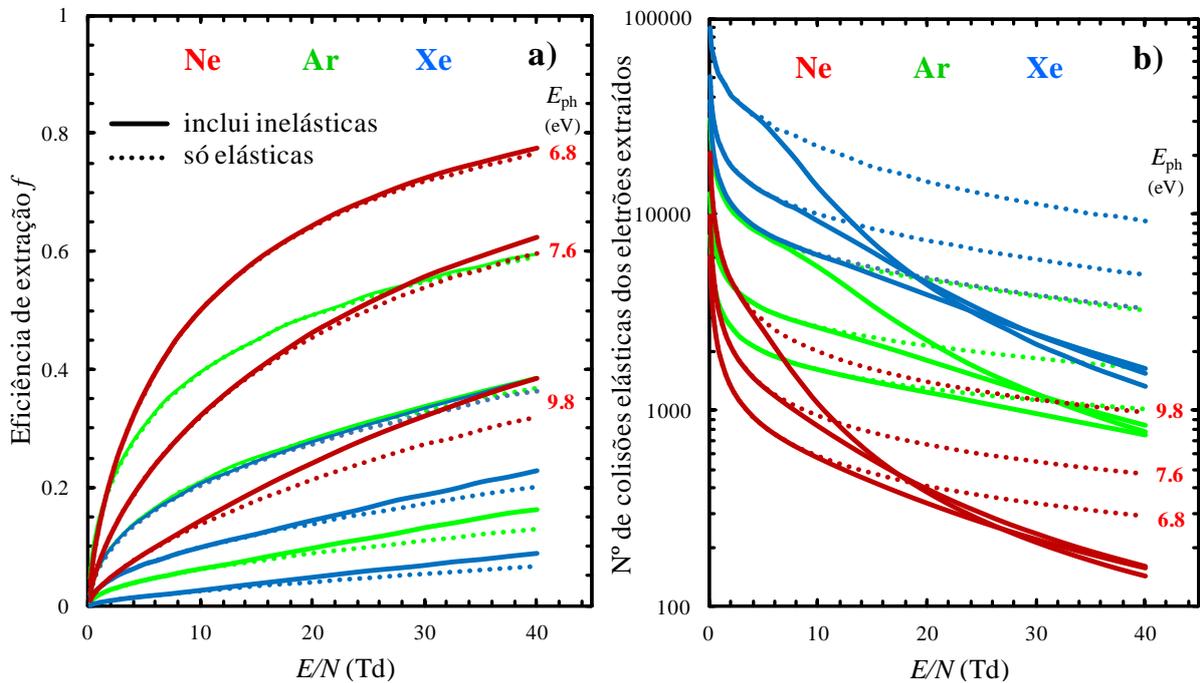


Figura 4.24 – Resultados de Monte Carlo para **a)** eficiência de extração f e **b)** número médio de colisões elásticas dos fotoelétrons efetivamente extraídos de um fotocátodo de CsI, em função do campo elétrico reduzido E/N , para a energia dos fótons absorvidos $E_{ph} = 6.8, 7.6$ e 9.8 eV em Xe, Ar e Ne, comparados com os obtidos considerando apenas colisões elásticas (sem alteração da secção eficaz total).

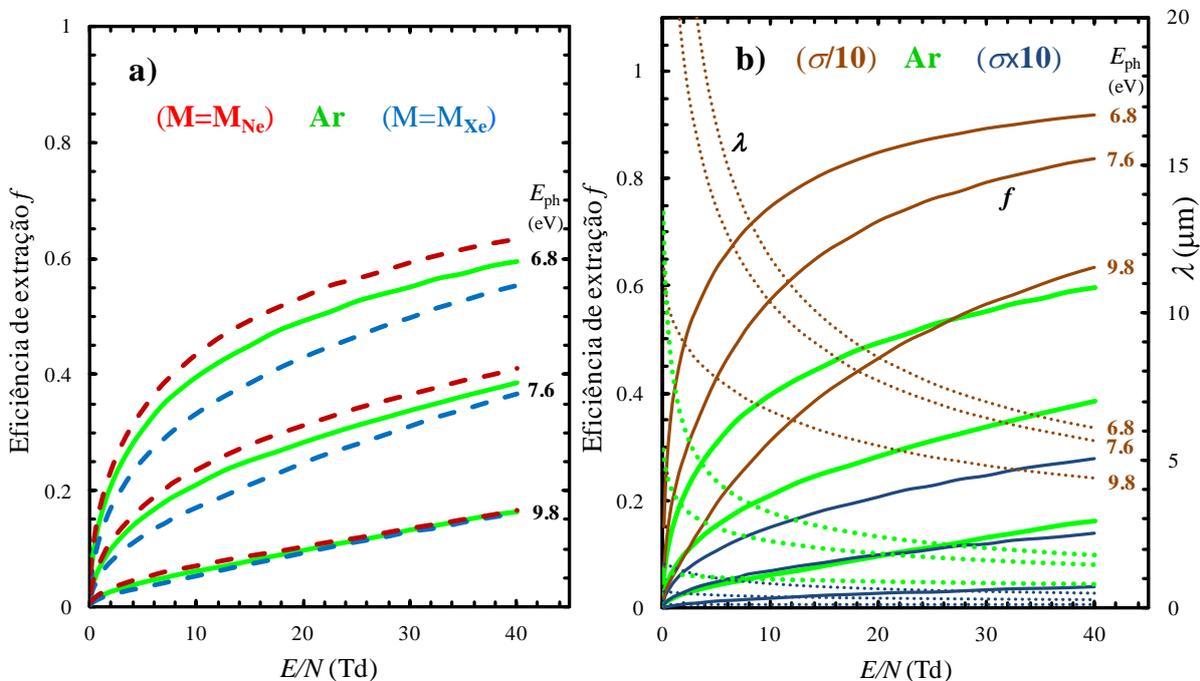


Figura 4.25 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em Ar, em função do campo elétrico reduzido E/N , para a energia dos fótons absorvidos $E_{ph} = 6.8, 7.6$ e 9.8 eV, comparados com resultados calculados considerando **a)** a massa M dos átomos igual à em Xe e Ne e **b)** a secção eficaz total σ aumentada e reduzida em uma ordem de grandeza. Em b) são também apresentados resultados para a penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás.

Gases moleculares e suas misturas com gases nobres

Como já foi mencionado, nos gases nobres as colisões inelásticas só assumem algum efeito assinalável em f para os maiores valores de E/N e E_{ph} considerados neste estudo. No entanto, em gases moleculares surgem também colisões inelásticas com excitação rotacional e vibracional das moléculas, que têm baixos limiares de ocorrência. Em CH_4 , CF_4 e CO_2 , como já apontado (**secção 3.1.2**), o efeito das colisões com excitação rotacional é diminuto e na simulação encontra-se incluído nas secções eficazes de difusão elástica, mas a excitação vibracional proporciona uma eficaz moderação de energia dos elétrons que tem um efeito decisivo em f .

Como se mostrou na **Fig. 3.21 (secção 3.3.3)**, as colisões com excitação vibracional têm um papel preponderante na perda de energia dos elétrons. Em poucas colisões com excitação vibracional, a energia do elétron é eficientemente reduzida a valores que tornam o seu retorno ao fotocátodo praticamente proibido. Em CH_4 , CF_4 ou CO_2 ou suas misturas com gases nobres, a excitação vibracional compete eficientemente com a difusão elástica, particularmente na região do mínimo de Ramsauer-Townsend (**Figs. 3.2 a 3.5**), assumindo uma importância decisiva no aumento de f , mesmo quando ao gás nobre se adiciona uma pequena fração de gás molecular.

Por outro lado, as colisões superelásticas, em que os elétrons recebem energia das moléculas, têm efeito oposto ao das colisões inelásticas, prejudicando a extração dos fotoelétrons. As colisões superelásticas com desexcitação vibracional em meios gasosos contendo CF_4 ou CO_2 são importantes a baixas energias de impacto, como se pode verificar pelas suas secções eficazes nas **Figs. 3.4 e 3.5** e pelo seu efeito no balanço energético dos elétrons na **Fig. 3.21**. De modo a avaliar a influência das colisões superelásticas com desexcitação vibracional na extração dos fotoelétrons, a **Fig. 4.26** mostra, em função de E_{ph} e para baixos valores de E/N , a eficiência f calculada por simulação em CF_4 e em CO_2 puros, incluindo e excluindo aquelas colisões superelásticas. Na **Fig. 4.26**, observa-se uma visível influência das colisões superelásticas, que todavia tende a desvanecer-se com o aumento de E/N , embora mais lentamente em CO_2 .

Para representar a influência das colisões com alteração do estado vibracional da molécula recorre-se à fração efetiva $\gamma_v = (n_v - n_s)/n_t$ de colisões com excitação vibracional das moléculas (já definida na **secção 3.3.3**), onde n_v , n_s e n_t são o número, respetivamente, de colisões com excitação vibracional, de colisões superelásticas e total de colisões.

Para mostrar a correlação da eficiência f com a fração γ_v e com a penetração inicial λ dos fotoelétrons no meio gasoso, as curvas de f são representadas juntamente com as curvas de γ_v e de λ em função de E/N nas **Figs. 4.27-4.30**, em função de E_{ph} nas **Figs. 4.31-4.34** e em função de η do gás molecular (CH_4 , CF_4 ou CO_2) nas **Figs. 4.35-4.37**, escolhendo em cada grupo de figuras valores selecionados para as outras variáveis.

Ao longo destas figuras pode observar-se que o comportamento de f reflete os comportamentos da penetração inicial λ e da fração γ_v . A influência do aumento de E/N (**Figs. 4.27 a 4.30**) e da diminuição de E_{ph} (i.e. ε_0) (**Figs. 4.31-4.34**) no crescimento de f é clara, mas chega a ser suplantada, em algumas circunstâncias, pela diminuição de λ ou de γ_v , o que se traduz ocasionalmente

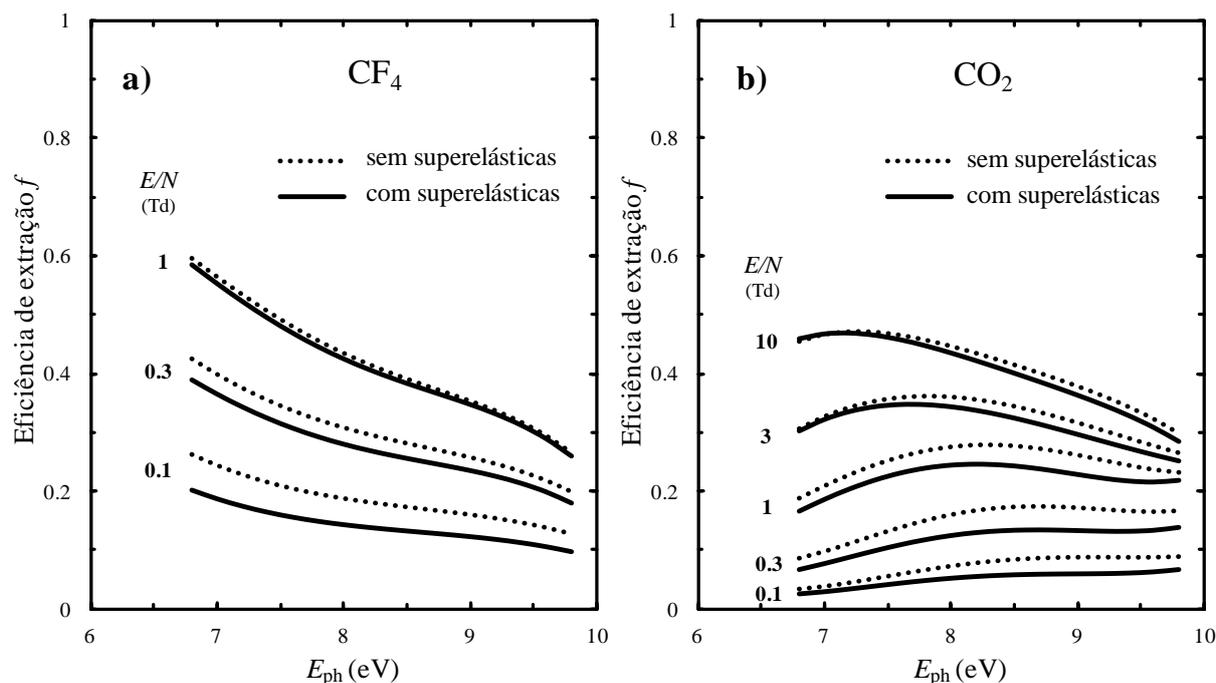


Figura 4.26 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em a) CF_4 e b) CO_2 , em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos, para os valores do campo elétrico reduzido E/N indicados, incluindo e excluindo colisões superelásticas na simulação.

na diminuição de f com E/N (Xe- CH_4 na **Fig. 4.29b**) ou no crescimento de f com E_{ph} (CO_2 na **Fig. 4.31** e misturas com Xe nas **Figs. 4.32-4.34** para baixos valores de E_{ph}). Nas **Figs. 4.27-4.29**, observa-se que os elevados valores atingidos por f após o rápido crescimento a baixo E/N estão associados à conjugação de maiores valores de λ e γ_v . Nas **Figs. 4.35-4.37**, onde para $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV a eficiência f é representada em função de η , é ainda mais evidente a relação entre o comportamento de f e a conjugação dos comportamentos de λ e γ_v , uma vez ausentes os efeitos da variação de E/N e de E_{ph} .

O comportamento dos parâmetros γ_v e λ está relacionado com as secções eficazes de difusão dos elétrons e com a relação entre elas, particularmente com as que descrevem as colisões elásticas e as colisões com excitação vibracional. Quando se adiciona um gás molecular a um gás nobre, ao contrário das colisões com excitação vibracional que têm um efeito significativo mesmo a baixo valor de η , as colisões elásticas com as moléculas só se tornam significativas a maiores η . Em particular, observa-se que em várias misturas as curvas de f passam por um máximo a baixo valor de η em que f atinge um valor superior ao do gás molecular puro ($\eta = 100\%$), comportamento típico a baixos valores de E_{ph} (baixo valor de ε_0) e particularmente notório para as misturas com CO_2 (**Fig. 4.37**). Com efeito, nas misturas com CO_2 a secção eficaz da difusão elástica aumenta consideravelmente com η , ao que corresponde um aumento de λ e uma diminuição da energia média dos elétrons. Com o aumento de η , apesar do aumento da secção eficaz de excitação vibracional, a fração γ_v diminui, devido ao aumento das secções eficazes de colisões elásticas e superelásticas e à diminuição da fração de elétrons com energia acima do limiar de excitação vibracional.

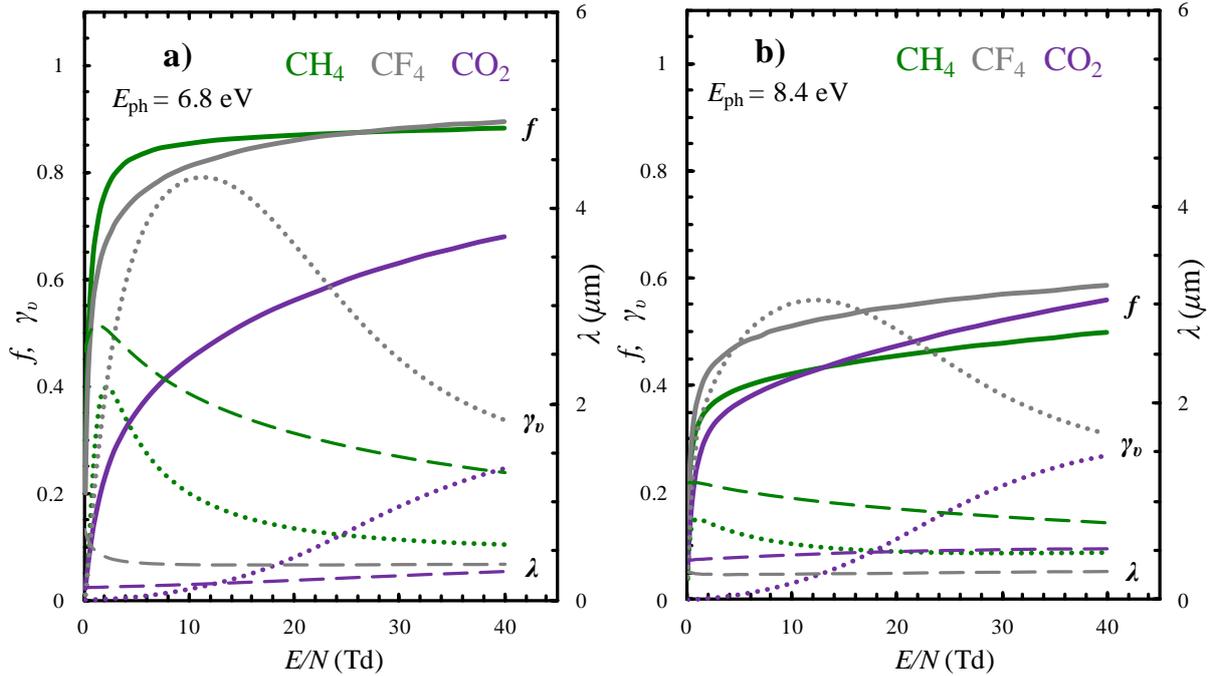


Figura 4.27 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em CH_4 , em CF_4 e em CO_2 puros, em função do campo elétrico reduzido E/N , para as energias dos fótons absorvidos **a)** $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV e **b)** $E_{\text{ph}} = 8.4$ eV, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (···).

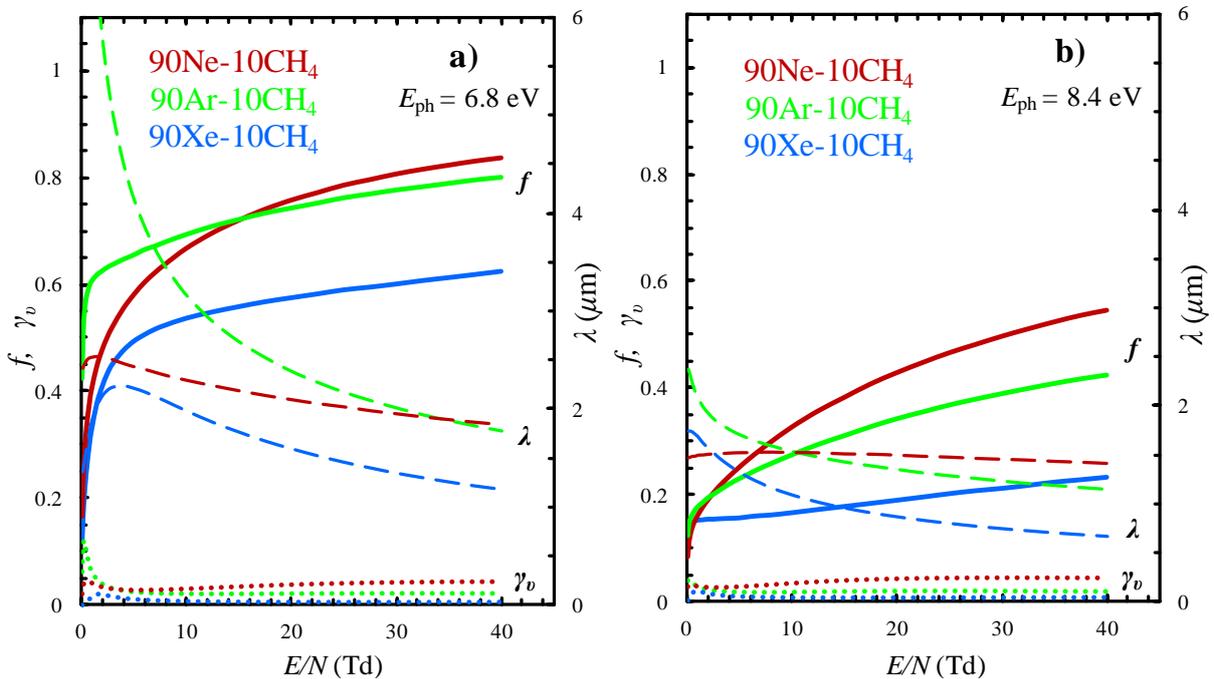


Figura 4.28 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com 10% de CH_4 , em função do campo elétrico reduzido E/N , para as energias dos fótons absorvidos **a)** $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV e **b)** $E_{\text{ph}} = 8.4$ eV, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (···).

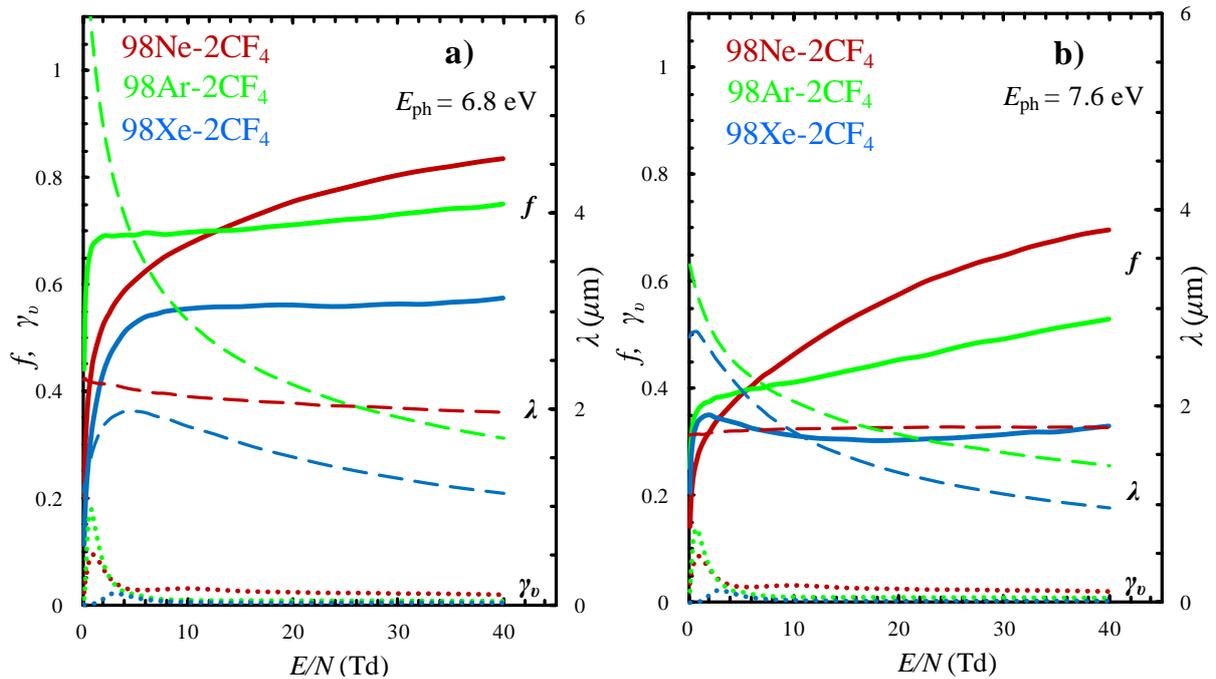


Figura 4.29 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com 2% de CF_4 , em função do campo elétrico reduzido E/N , para as energias dos fótons absorvidos **a)** $E_{\text{ph}} = 6.8 \text{ eV}$ e **b)** $E_{\text{ph}} = 7.6 \text{ eV}$, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (····).

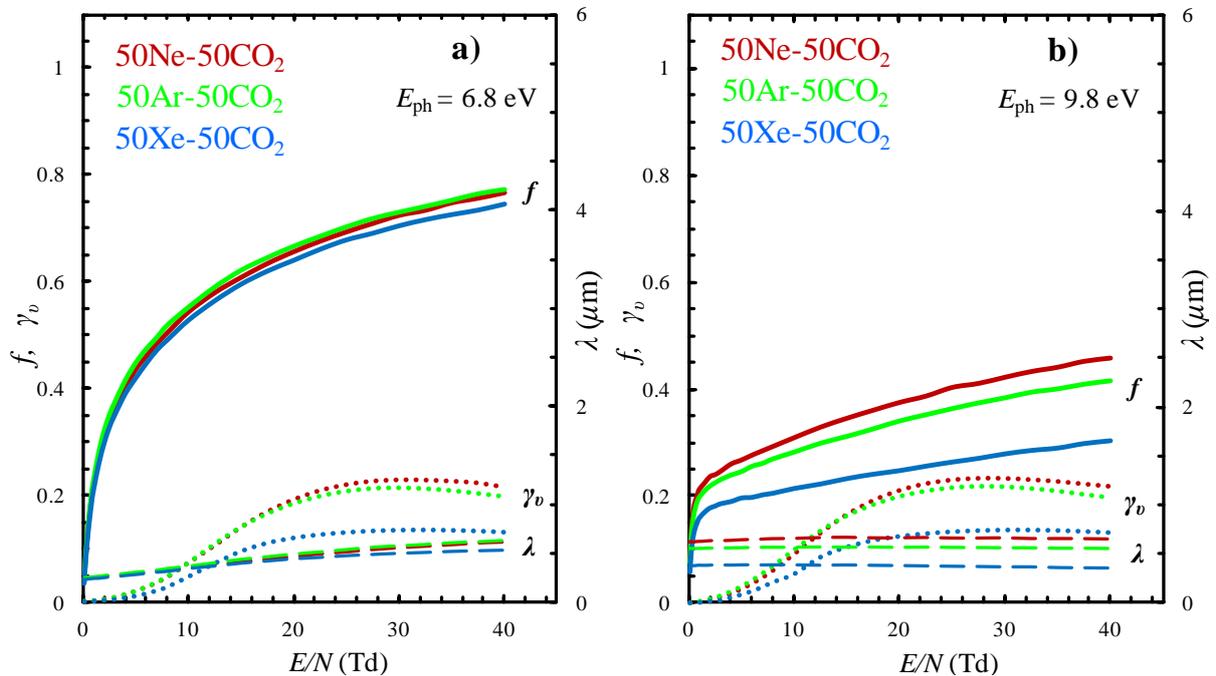


Figura 4.30 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com 50% de CO_2 , em função do campo elétrico reduzido E/N , para as energias dos fótons absorvidos **a)** $E_{\text{ph}} = 6.8 \text{ eV}$ e **b)** $E_{\text{ph}} = 9.8 \text{ eV}$, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (····).

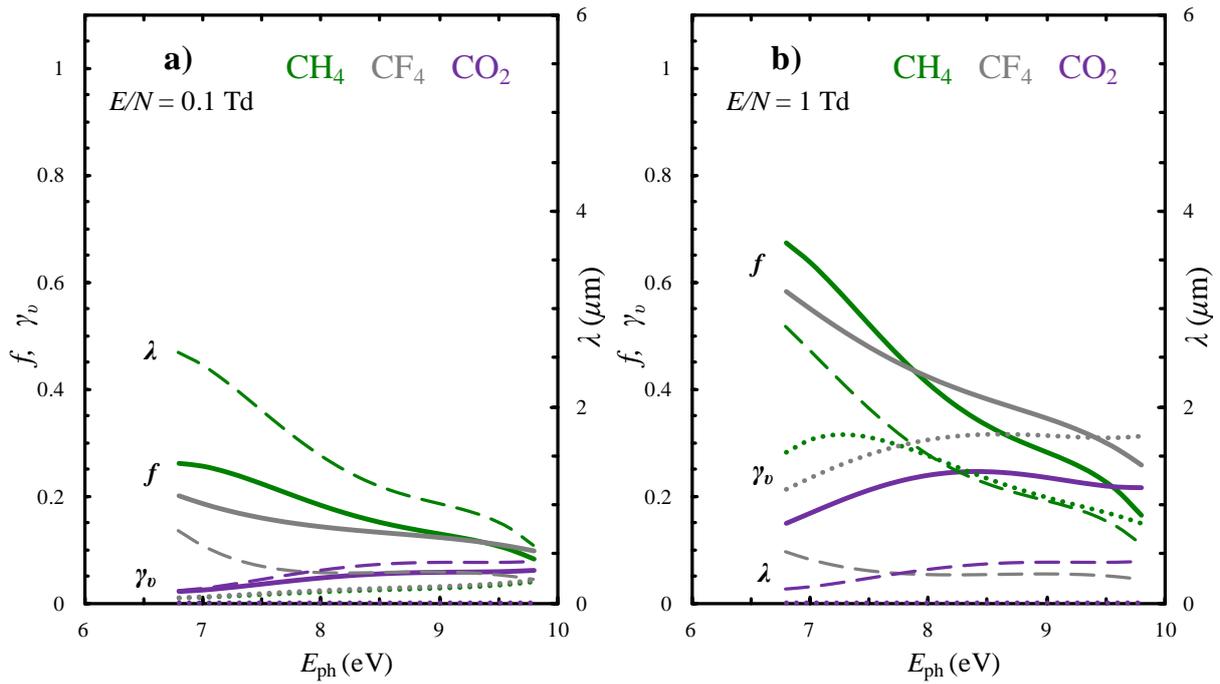


Figura 4.31 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em CH_4 , em CF_4 e em CO_2 puros, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos, para os valores de campo elétrico reduzido **a)** $E/N = 0.1$ Td e **b)** $E/N = 1$ Td, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (···).

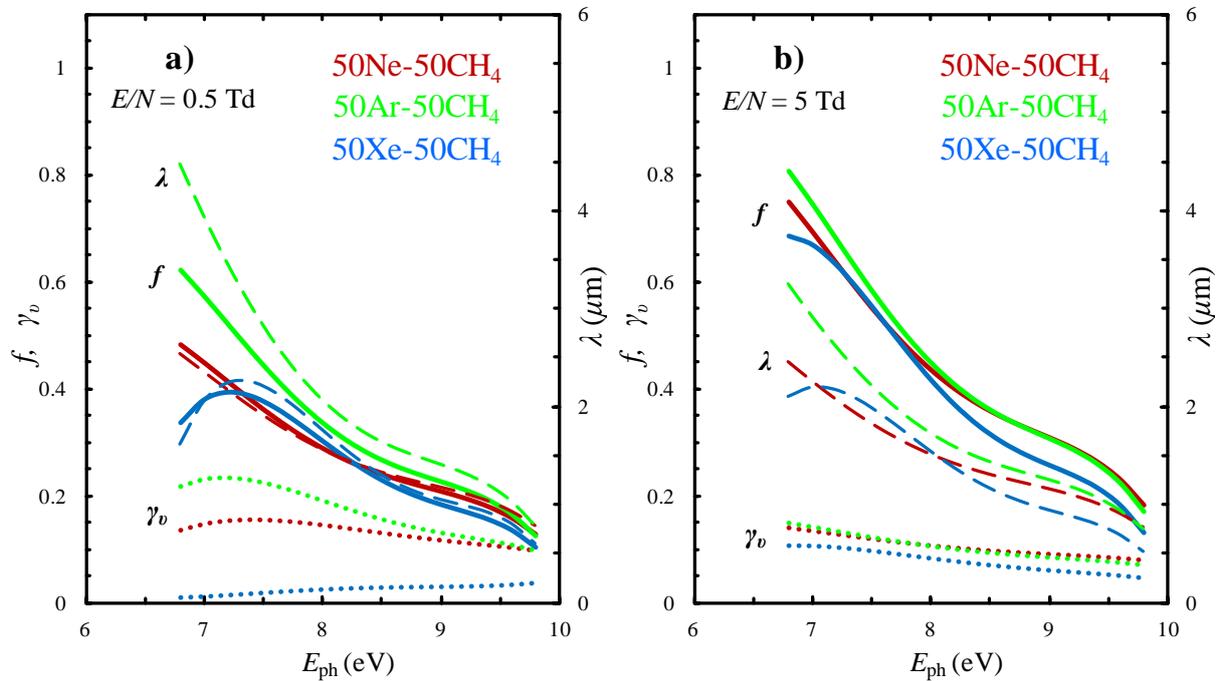


Figura 4.32 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com 50% de CH_4 , em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos, para os campos elétricos reduzidos **a)** $E/N = 0.5$ Td e **b)** $E/N = 5$ Td, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (···).

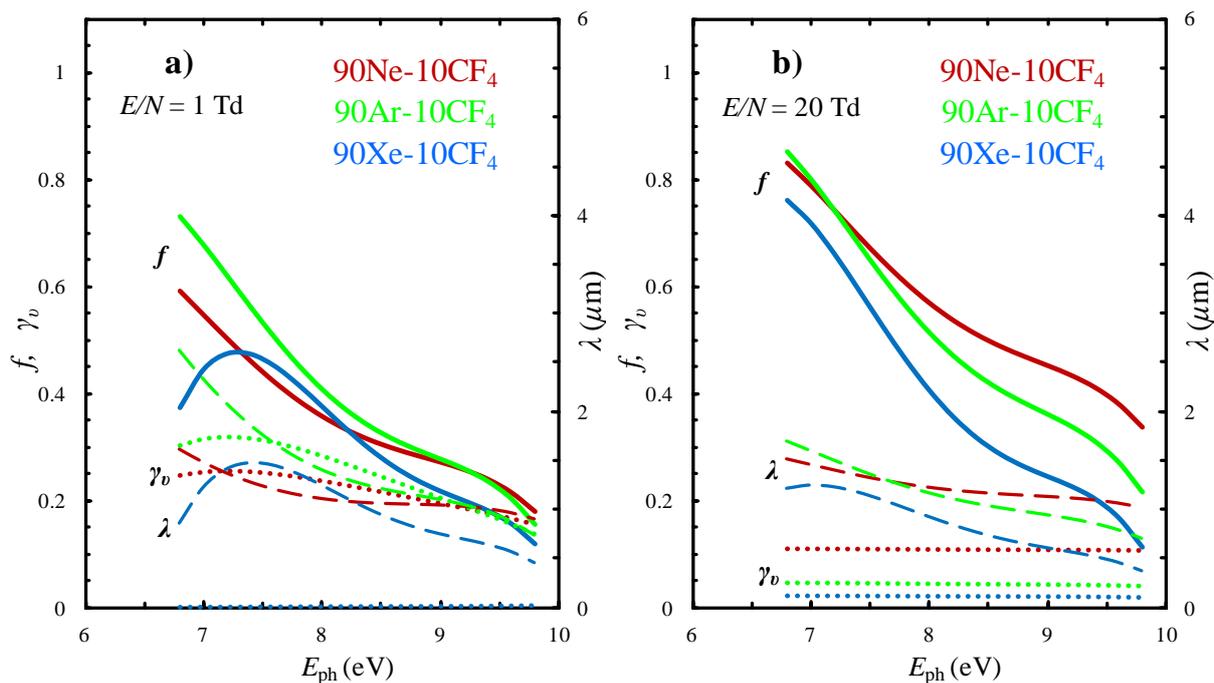


Figura 4.33 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com 10% de CF₄, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos, para os campos elétricos reduzidos **a)** $E/N = 1$ Td e **b)** $E/N = 20$ Td, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (····).

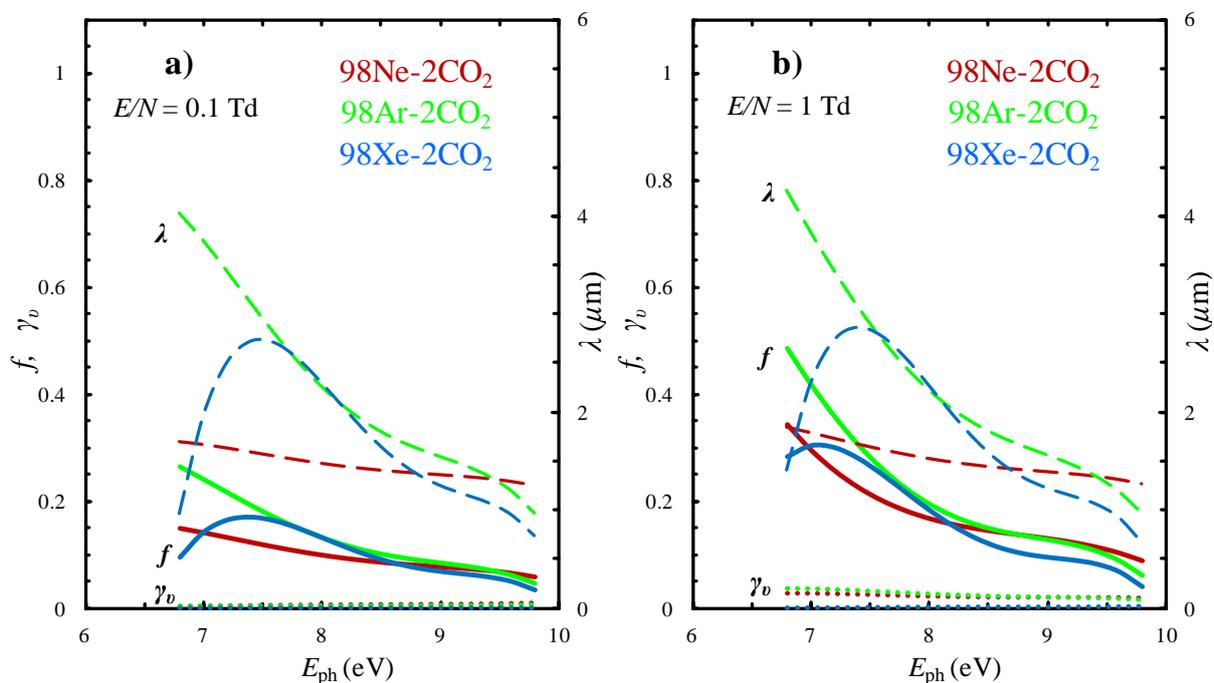


Figura 4.34 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com 2% de CO₂, em função da energia E_{ph} dos fótons absorvidos, para os campos elétricos reduzidos **a)** $E/N = 0.1$ Td e **b)** $E/N = 1$ Td, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (····).

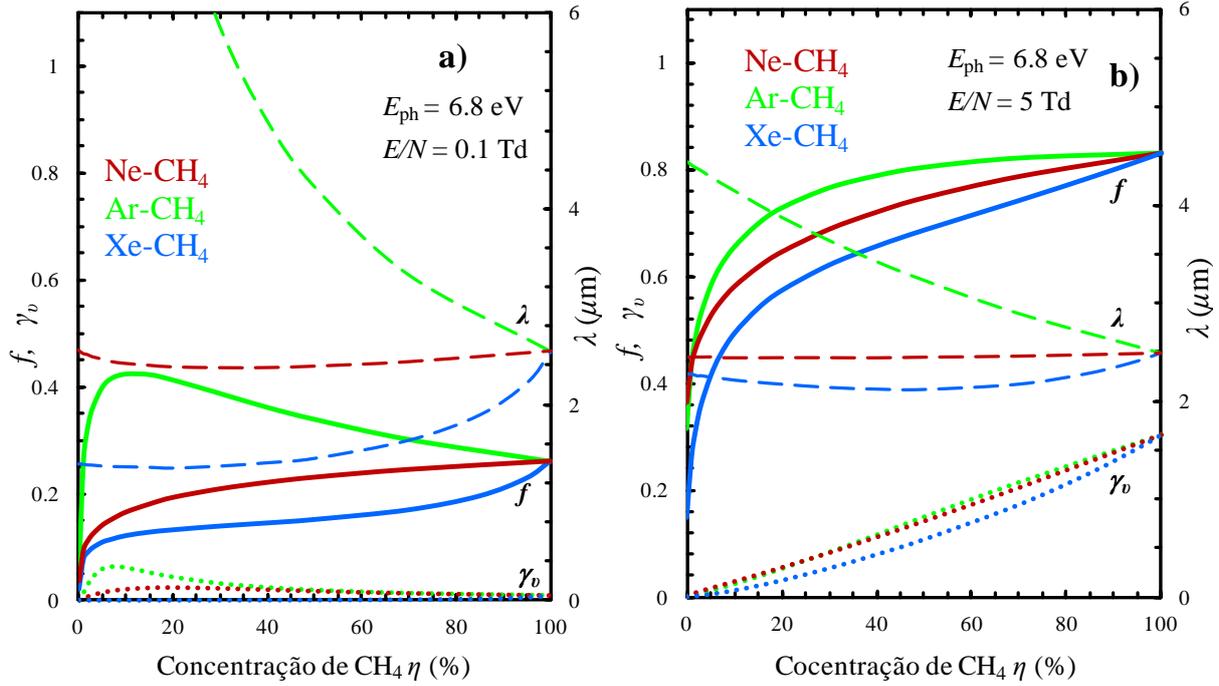


Figura 4.35 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com CH_4 , em função da concentração η de gás molecular, para a energia dos fótons absorvidos de $E_{\text{ph}} = 6.8 \text{ eV}$ e para os campos elétricos reduzidos **a)** $E/N = 0.1 \text{ Td}$ e **b)** $E/N = 5 \text{ Td}$, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (···).

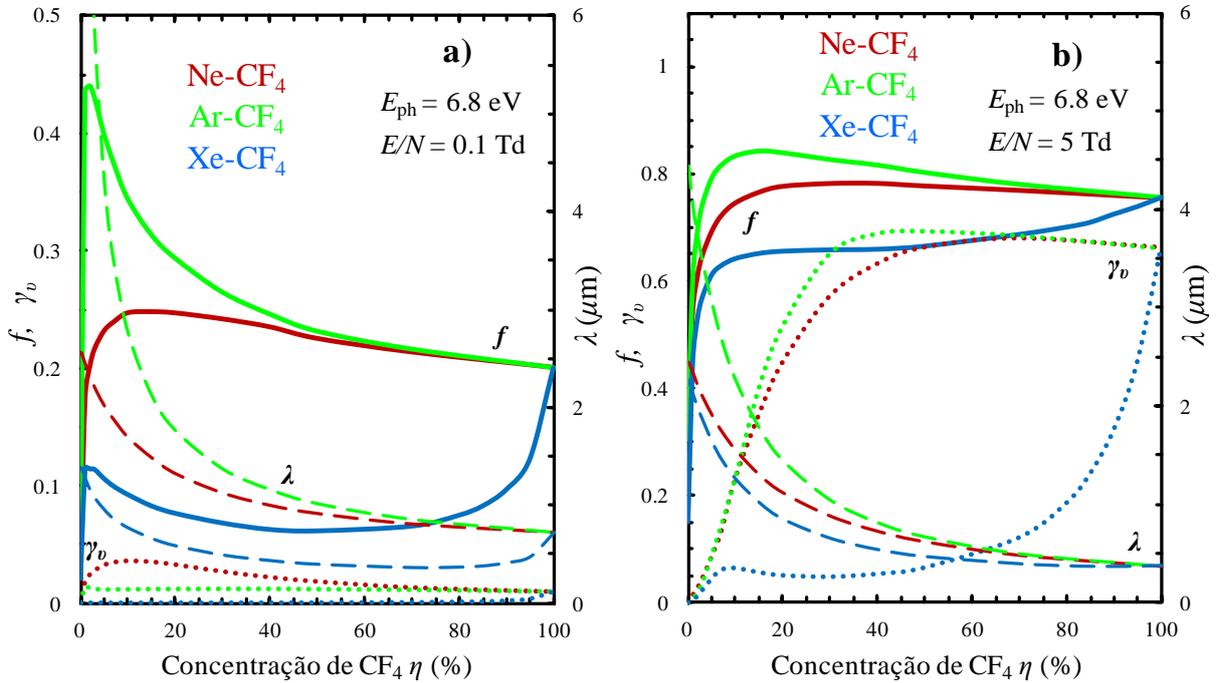


Figura 4.36 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com CF_4 , em função da concentração η de gás molecular, para a energia dos fótons absorvidos de $E_{\text{ph}} = 6.8 \text{ eV}$ e para os campos elétricos reduzidos **a)** $E/N = 0.1 \text{ Td}$ e **b)** $E/N = 5 \text{ Td}$, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (···). Notar que em a) o máximo (0.5) da escala do eixo vertical principal é menor que nas figuras similares.

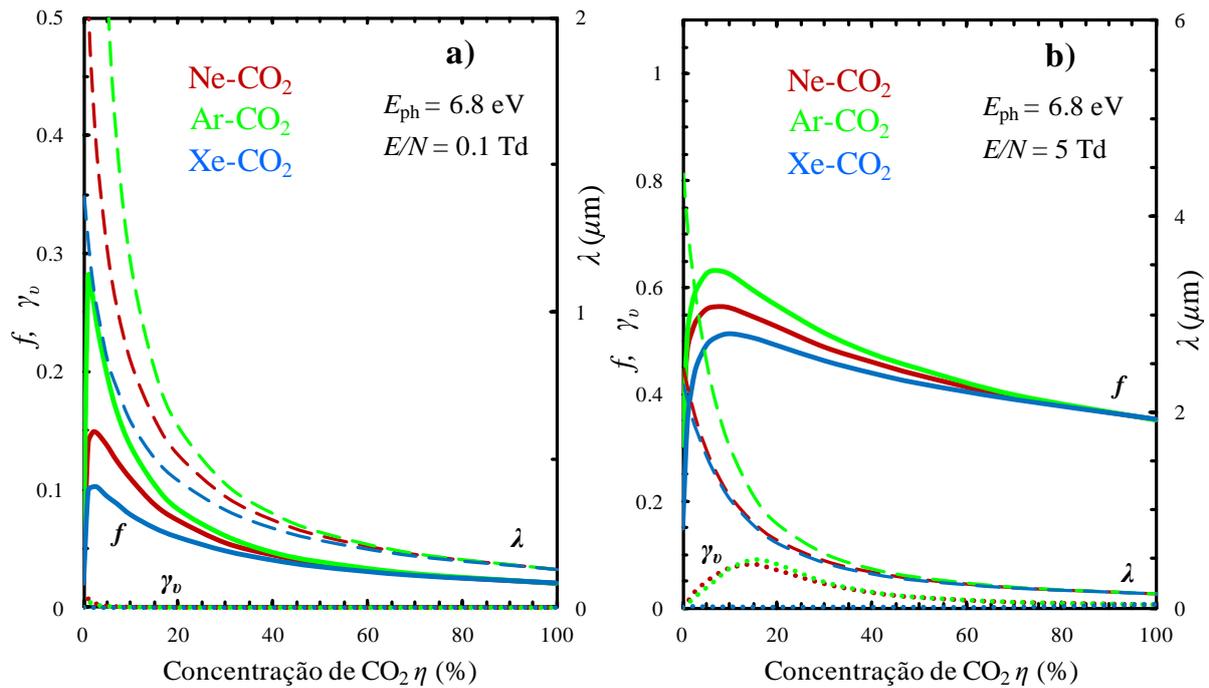


Figura 4.37 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f (—) de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em misturas de gás nobre com CO_2 , em função da concentração η de gás molecular, para a energia dos fótons absorvidos de $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV e para os campos elétricos reduzidos **a)** $E/N = 0.1$ Td e **b)** $E/N = 5$ Td, juntamente com as correspondentes curvas da penetração inicial λ dos fotoelétrons no gás (- -) e da fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional (····). Notar que em a) os máximos das escalas dos eixos verticais são menores que nas figuras similares.

4.1.2.2 Correlação de f com outros parâmetros

Passa-se a avaliar a sensibilidade da eficiência f relativamente a parâmetros relacionados com a emissão ou reflexão dos fotoelétrons pelo fotocátodo.

Energia de emissão ε_0 dos fotoelétrons

Para melhor compreender a correlação entre a energia de emissão ε_0 e a eficiência de extração f usou-se a simulação de Monte Carlo para calcular f em alguns meios gasosos diretamente em função de ε_0 , o que também permite clarificar o papel dos processos elásticos e inelásticos em f .

Tomando como exemplo o campo elétrico reduzido $E/N = 1$ Td, na **Fig. 4.38** são apresentados resultados para f , em função de ε_0 , para os gases puros Xe, Ar, Ne, CF_4 e CO_2 e para as misturas Xe- CH_4 , Ar- CF_4 e Ne- CO_2 com $\eta = 20\%$ e para a mistura Ar-1% CF_4 . A **Fig. 4.38** mostra que, de um modo geral, f decresce com ε_0 . No entanto, o decréscimo de f é contrariado em algumas circunstâncias: ligeiramente no caso de gases nobres puros, para energias onde a secção eficaz de difusão elástica

passa por um mínimo profundo, ou de um modo mais efetivo na presença de gás molecular, para energias onde a secção eficaz de excitação vibracional das moléculas cresce rapidamente com a energia (como acontece junto aos limiares e na ressonância deste processo). Nos meios gasosos em que são elevadas as secções eficazes de difusão elástica dos eletrões, como é o caso de CO_2 , f atinge valores muito baixos logo para pequenos valores de ε_0 . A secção eficaz de difusão elástica dos eletrões em misturas com CF_4 ou CH_4 com $\eta \leq 20\%$ não difere de um modo relevante da no gás nobre puro, permitindo evidenciar a preponderância da excitação vibracional das moléculas no aumento de f (como se pode observar na **Fig. 4.38**, mesmo para $\eta = 1\%$), ao contrário do que acontece quando o aditivo é CO_2 .

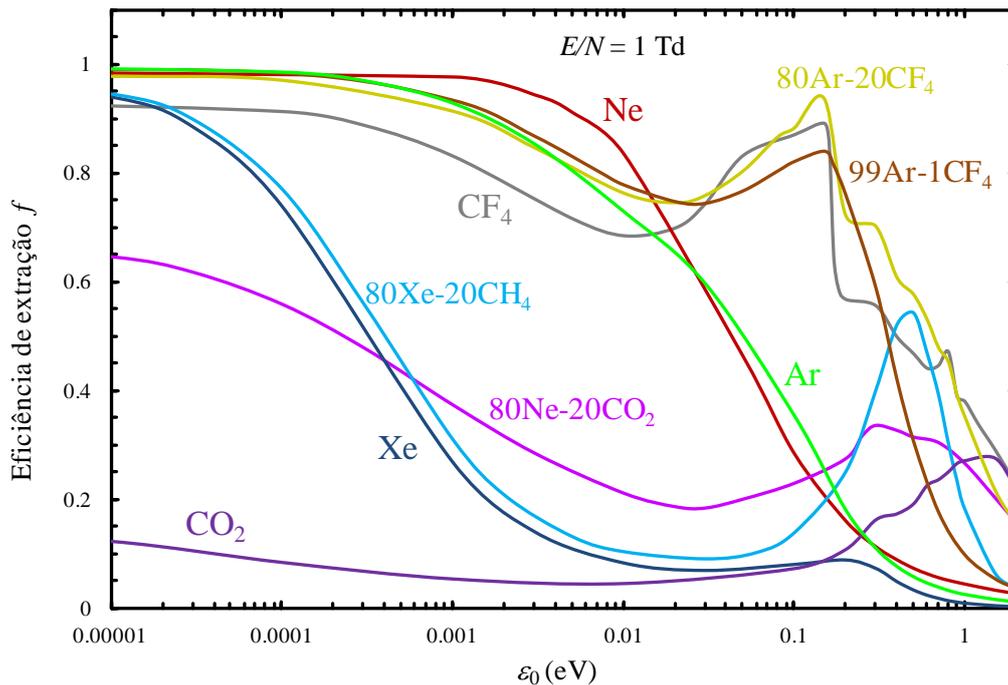


Figura 4.38 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo nos gases puros Xe, Ar, Ne, CF_4 , CO_2 e nas misturas Xe-20% CH_4 , Ne-20% CO_2 , Ar-20% CF_4 e Ar-1% CF_4 , em função da energia de emissão ε_0 dos fotoelétrons, para o campo elétrico reduzido $E/N = 1$ Td.

Distribuição angular de emissão dos fotoelétrons

A importância da escolha da distribuição angular de emissão de eletrões por uma superfície catódica para um meio gasoso foi já analisada em Ne [20] e Ar [63], tendo sido reconhecida a pouca influência nos valores da eficiência de extração naqueles gases.

No presente estudo, investigamos também a influência da distribuição angular de emissão de fotoelétrons emitidos por CsI na eficiência f em Xe, Ne, CF_4 e CO_2 , comparando f com as eficiências de extração f_0 e f_{\perp} calculadas substituindo a distribuição angular de emissão da **Eq. 3.8 (secção 3.2.1)** por uma distribuição isotrópica ou por uma emissão perpendicular à superfície do fotocátodo. Tomando como exemplo os valores de energia E_{ph} de 6.8 e 9.8 eV, as curvas f , f_0 e f_{\perp} são apresentadas

na **Fig. 4.39**, em função de E/N , onde se confirma que a eficiência f em gases nobres é pouco afetada pela alteração da distribuição angular de emissão. Nos gases moleculares, o efeito é mais relevante, o que se pode justificar por a distribuição angular de emissão afetar essencialmente a localização (afastamento ao fotocátodo) das primeiras colisões, que são de maior importância na recaptura dos fotoelétrons nos gases moleculares do que nos gases nobres, como se verá na **secção 4.1.2.3**.

Experimentou-se ainda aumentar o valor da afinidade eletrónica E_a de 0.1 para 0.2 eV [24], efeito que se revelou desprezável porque a distribuição angular (Eq. 3.8) é pouco afetada. Também a variação da distribuição angular de emissão dos fotoelétrons causada pela variação da afinidade eletrónica do CsI com o campo elétrico aplicado referida em [73,74] se prevê que tenha um efeito exíguo na extração dos fotoelétrons.

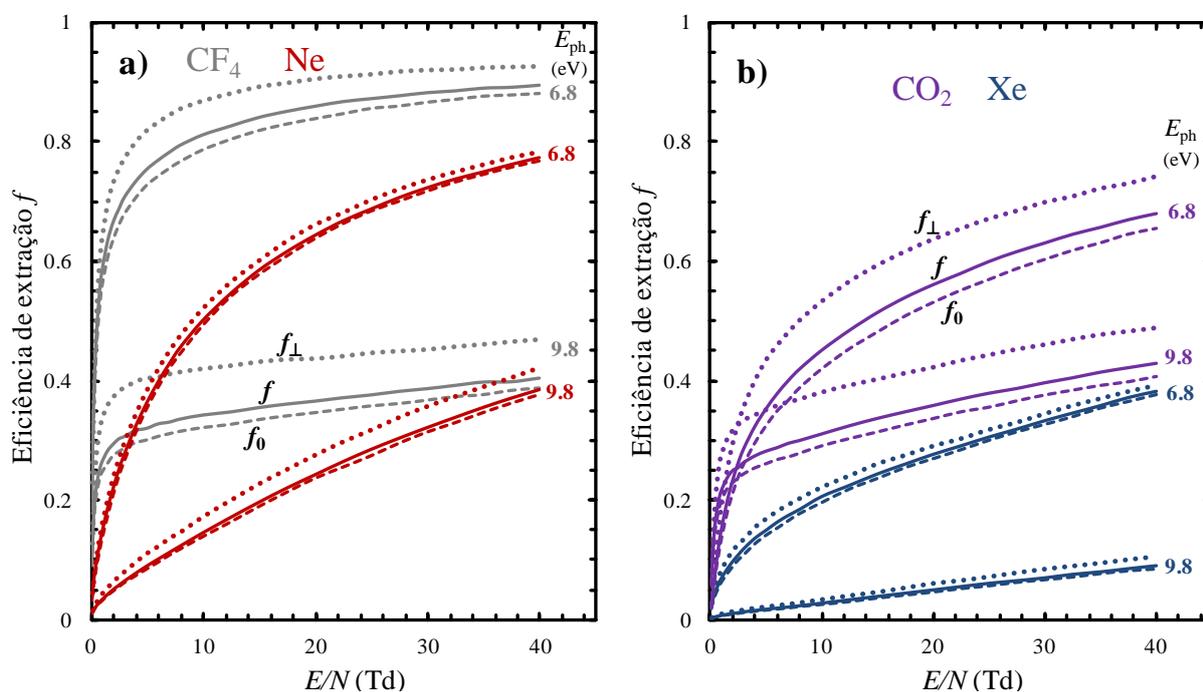


Figura 4.39 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função do campo elétrico reduzido E/N , para a energia dos fótons absorvidos $E_{ph} = 6.8$ e 9.8 eV, comparando com as eficiências f_{\perp} e f_0 obtidas, respetivamente, considerando que os fotoelétrons são emitidos perpendicularmente ao fotocátodo e com distribuição angular isotrópica nos meios gasosos: **a)** Ne e CF₄ e **b)** Xe e CO₂.

Reflexão de fotoelétrons no fotocátodo

Ao embaterem numa superfície, os eletrões nem sempre são absorvidos, podendo ser refletidos com a probabilidade R – *coeficiente de reflexão* –, cujo valor é fortemente dependente da energia dos eletrões e do material e condições da superfície [75-77].

De modo a explicar a divergência existente entre valores experimentais e os obtidos através da equação de Thomson [5], Békarian [12] propôs a introdução do coeficiente de reflexão nessa equação, tendo também concluído que a reflexão poderia apenas ser especular. Outros trabalhos se seguiram

onde a reflexão passou a ser tida em conta em estudos teóricos referentes à retrodifusão de elétrons para cátodos metálicos que os emitem em meio gasoso [14,15], escolhendo R de valor considerável de modo a reproduzir os valores experimentais. O efeito da reflexão, para elevados E/N (geralmente superiores aos aqui examinados), foi também analisado em [16,22,63,64,69,70].

O efeito da reflexão dos elétrons em fotocátodos de CsI pode ser avaliado calculando por simulação de Monte Carlo a eficiência de extração f_R dos fotoelétrons, admitindo diferentes coeficientes de reflexão R .

Por outro lado, assumindo que a probabilidade de um elétron ser extraído após ser refletido é igual à probabilidade f de quando foi ejetado pelo cátodo e sendo $1-f$ a probabilidade de a ele regressar e R de ser refletido, a eficiência de extração f_R pode também ser dada pela série:

$$\begin{aligned} f_R &= f + (1-f)Rf + R(1-f)^2Rf + \dots = \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} R^n (1-f)^n f \equiv \frac{f}{1-R(1-f)}, \end{aligned} \quad (4.1)$$

que traduz a soma das contribuições dos elétrons que são extraídos após zero, uma, duas, etc, reflexões no fotocátodo.

Tomando como exemplo $E_{ph} = 6.8$ e 9.8 eV, as eficiências de extração f_R em Ne, Xe, CF_4 e CO_2 calculadas por simulação para $R = 0, 0.2$ e 0.4 são apresentadas na **Fig. 4.40** em função de E/N , juntamente com as curvas correspondentes calculadas através da **Eq. 4.1**. A **Fig. 4.40** mostra que, para $R = 0.2$ e 0.4 , o efeito da reflexão é relevante, tornando-se menos significativo para f próximo de 0 ou 1.

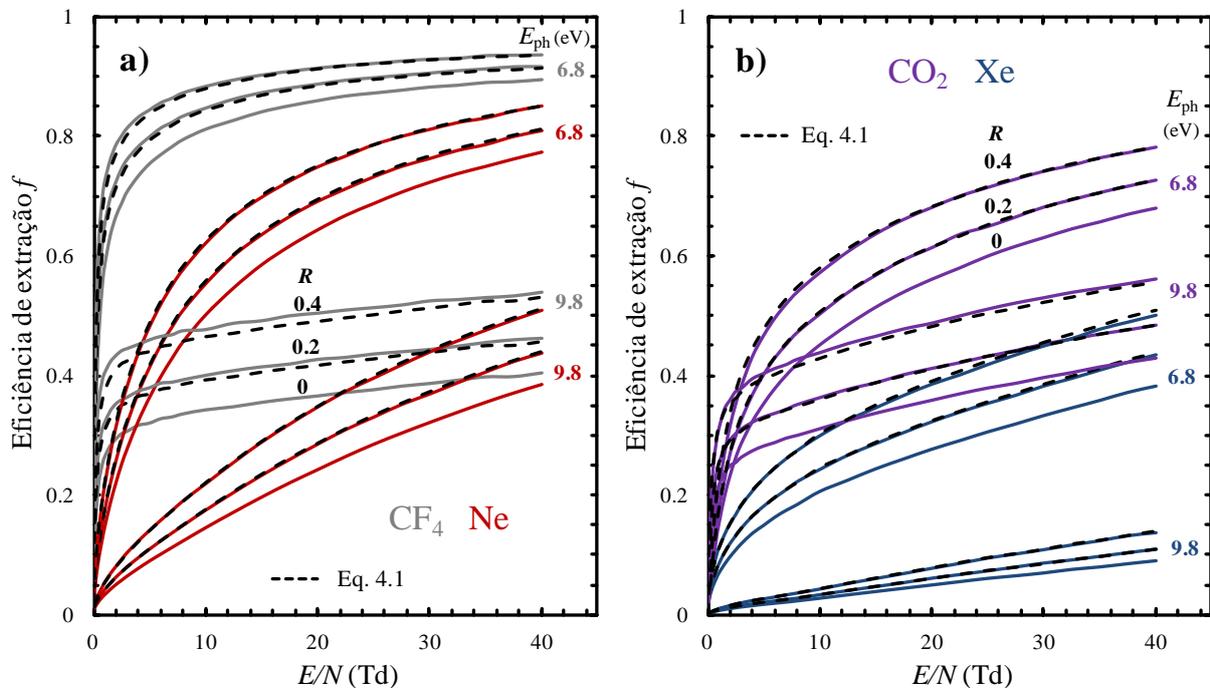


Figura 4.40 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função do campo elétrico reduzido E/N , para a energia dos fótons absorvidos $E_{ph} = 6.8$ e 9.8 eV e para os coeficientes de reflexão dos fotoelétrons no fotocátodo $R = 0, 0.2$ e 0.4 , nos meios gasosos: **a)** Ne e CF_4 e **b)** Xe e CO_2 . Para comparação são também apresentados resultados obtidos através da **Eq. 4.1**.

Na **Fig. 4.40**, observa-se ainda que os resultados calculados através da **Eq. 4.1** são praticamente coincidentes com os de simulação, notando-se apenas um pequeno desvio em CO_2 e em CF_4 para $E_{\text{ph}} = 9.8$ eV.

Apesar de a **Eq. 4.1** assumir que os elétrons ejetados e refletidos abandonam a superfície nas mesmas condições (mesmas distribuições angular e de energia de emissão ε_0), os vários efeitos que não foram tidos em conta tendem a anular-se. Na simulação, se por um lado, os fotoelétrons refletidos pelo fotocátodo têm energia inferior à que tinham quando foram inicialmente ejetados, o que geralmente favorece a extração, por outro lado, os fotoelétrons que regressam ao fotocátodo são maioritariamente os de maior energia (ver **Fig. 4.23c**) e a sua distribuição angular de emissão está desviada para menores ângulos relativamente à dos ejetados (**Eq. 3.7**), o que prejudica a extração. Todavia, na presença de gás molecular, as colisões com excitação vibracional levam a uma moderação mais eficaz da energia dos fotoelétrons, o que pode alterar o equilíbrio daqueles efeitos opostos, justificando que os resultados de simulação tendem a ser ligeiramente superiores aos obtidos através da **Eq. 4.1**.

De qualquer modo, a proximidade entre resultados experimentais e calculados por simulação de Monte Carlo para a eficiência de extração em vários meios gasosos (**secção 4.2.2**) sugere que a reflexão dos fotoelétrons em fotocátodos de CsI não é significativa.

4.1.2.3 Número de colisões e alcance dos fotoelétrons recapturados

O estudo da retrodifusão pelo método de Monte Carlo mostra que os fotoelétrons que são recapturados pelo fotocátodo experimentam geralmente apenas um pequeno número de colisões e que estas ocorrem a pequena distância do fotocátodo. Para melhor caracterizar estes aspetos, e tomando como exemplo os campos reduzidos E/N de 0.1 e 10 Td e as energias E_{ph} de 6.8 e 9.8 eV, são apresentadas, para gases puros, as distribuições cumulativas $F_r(n_t)$, do número n_t de colisões dos elétrons recapturados pelo fotocátodo (**Fig. 4.41**), e $T_r(z_{\text{max}})$, do alcance z_{max} (máximo afastamento ao fotocátodo) desses fotoelétrons (**Fig. 4.42**).

Observando as curvas na **Fig. 4.41**, verifica-se que uma grande fração dos elétrons recapturados experimenta muito poucas colisões no gás, situando-se entre 10% e 67% os que sofrem apenas uma colisão. Para $E/N = 10$ Td (**c**), **d**), as curvas crescem mais rapidamente nos gases moleculares, mostrando que os elétrons que são recapturados sofrem menor número de colisões do que nos gases nobres. Esta distinção está relacionada com a ocorrência de colisões com excitação vibracional das moléculas que, mesmo em pequeno número, reduzem eficientemente a energia dos elétrons para níveis que proíbem a recaptura. A distinção entre gases nobres e moleculares atenua-se para $E/N = 0.1$ Td (**a**), **b**)), porque este tipo de colisões se torna muito menos frequente e porque podem ocorrer colisões superelásticas, verificando-se que é mesmo no gás molecular CO_2 que os elétrons recapturados experimentam maior número de colisões, devido à grande secção eficaz total de colisão.

Para $E/N = 10$ Td, comparando **c)** com **d)** observa-se que, para $E_{ph} = 6.8$ eV, os elétrons recapturados nos gases moleculares colidem menos do que para $E_{ph} = 9.8$ eV, ao contrário do que acontece nos gases nobres. Para $E_{ph} = 9.8$ eV, os fotoelétrons terão de perder mais energia até serem contados como extraídos, exigindo maior número de colisões vibracionais nos gases moleculares, daí

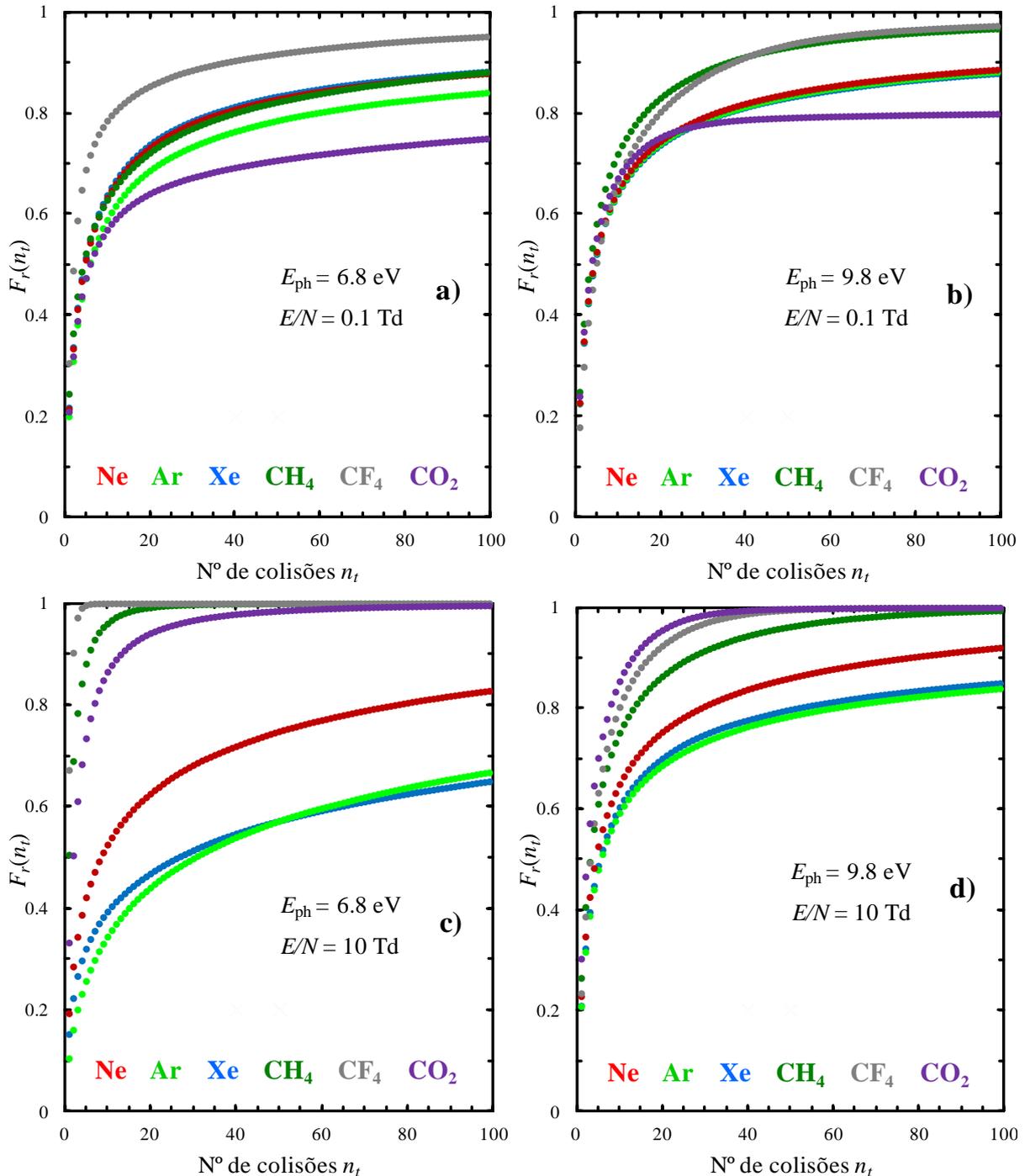


Figura 4.41 – Resultados de Monte Carlo para a distribuição cumulativa $F_r(n_t)$, que representa a fração do número de fotoelétrons recapturados por um fotocátodo de CsI que sofreram um número de colisões até n_t , nos gases puros e nas condições de energia E_{ph} dos fótons absorvidos e campo elétrico reduzido E/N indicadas (a largura de canal das distribuições é 1 colisão).

o maior número de colisões para $E_{\text{ph}} = 9.8$ eV. Nos gases nobres, as colisões são maioritariamente elásticas e a maior secção eficaz de difusão elástica para $E_{\text{ph}} = 9.8$ eV (maior ε_0) mantém os fotoeltrões mais perto do fotocátodo, que acabam sendo recapturados em menos colisões.

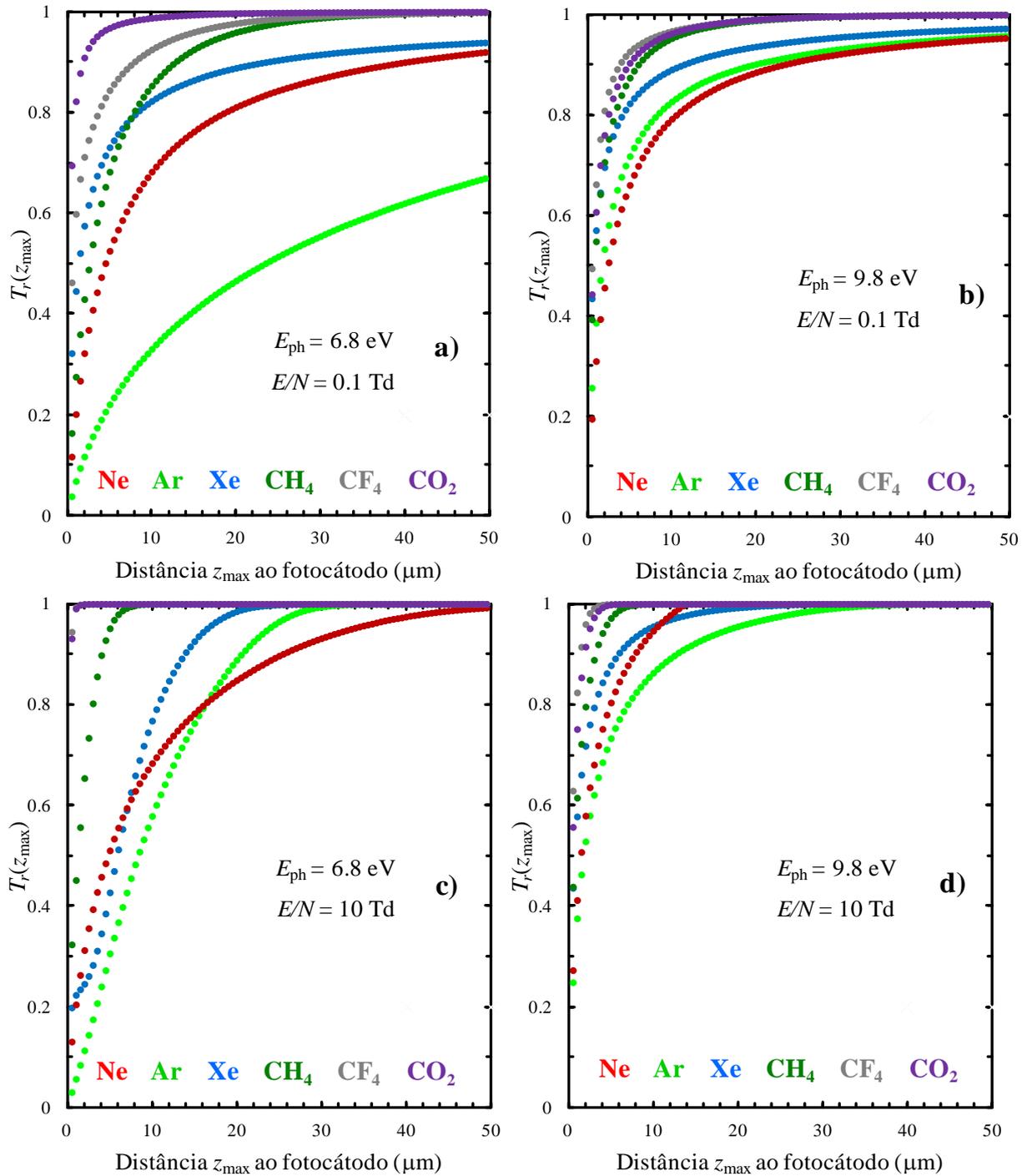


Figura 4.42 – Resultados de Monte Carlo para a distribuição cumulativa $T_r(z_{\text{max}})$, que representa a fração do número de fotoeltrões recapturados por um fotocátodo de CsI com afastamento máximo ao fotocátodo até z_{max} , nos gases puros e nas condições de energia E_{ph} dos fótons absorvidos e campo elétrico reduzido E/N indicadas, iguais às da **Fig. 4.41** (a largura de canal das distribuições é $0.5 \mu\text{m}$).

Por outro lado, tendo-se verificado que os fotoeletrões são geralmente recapturados após poucas colisões, eles não se terão afastado muito do fotocátodo. De facto, observa-se na **Fig. 4.42** que a retrodifusão para o fotocátodo ocorre predominantemente para eletrões que não ultrapassaram a região situada até 50 μm do fotocátodo. No entanto, pela comparação de **a)** e **b)** com **c)** e **d)** verifica-se que para $E/N = 0.1$ Td o alcance z_{max} atingido por eletrões recapturados é maior do que para $E/N = 10$ Td, pois quando E/N é baixo, mesmo que os eletrões se afastem mais do fotocátodo, podem ainda ser facilmente recapturados. Observa-se que, à exceção de CO_2 , é para $E/N = 0.1$ Td e $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV (**a)**) que os eletrões recapturados se afastam mais do fotocátodo; este efeito é maior em Ar, onde os percursos livres médios dos eletrões são longos, de acordo com o baixo valor da secção eficaz de difusão na região do mínimo de Ramsauer-Townsend.

Quando os percursos livres dos eletrões são muito curtos, como acontece em CO_2 , os eletrões recapturados permanecem mais próximos do fotocátodo, mesmo que experimentem um maior número de colisões do que em outros gases.

De modo a ilustrar diretamente algumas trajetórias de fotoeletrões capturados pelo fotocátodo, na **Fig. 4.43** são apresentadas a distância z ao fotocátodo em função do número de colisões e a projecção no plano xz da trajetória de 5 fotoeletrões, em casos em que é mais provável que o número de colisões e o afastamento desses eletrões ao fotocátodo sejam relativamente elevadas (baixos valores de E/N e E_{ph} em Ar). O fotoeletrão que esteve sujeito à influência de um maior E/N (10 Td) mantém um menor afastamento ao fotocátodo que os restantes.

Por fim, consideramos que cabe aqui uma palavra sobre a captura de fotoeletrões por moléculas do gás, processo após o qual o fotoeletrão é contabilizado nas simulações como sendo extraído. A captura de fotoeletrões por moléculas apenas ocorre para energias de impacto mais elevadas que as de emissão ε_0 , que, para serem atingidas, exigem um campo suficientemente elevado e deriva suficientemente longa. Por esta razão, verificou-se de facto que, mesmo para os maiores valores da gama de E/N investigada (0.1-40 Td), o processo não ocorre junto ao fotocátodo, tornando muito pequena a hipótese de o ião originado ser por ele reabsorvido e aceitável a aproximação de contar como extraídos os fotoeletrões capturados por moléculas.

Em CH_4 e misturas com CH_4 , a secção eficaz de captura de eletrões é muito pequena (**Fig. 3.3**) e o processo é desprezável. Em CF_4 e CO_2 , a secção eficaz é maior (**Figs. 3.4 e 3.5**) e o efeito faz-se sentir, tendo-se constatado que é mais importante para os maiores valores da gama de E/N investigada nas misturas com menor concentração η destes gases, principalmente com Ne. Para alguns casos em que o processo é mais significativo, é mostrada na **Fig. 4.44** a fração $\xi(z)$ de fotoeletrões que é capturada por moléculas até à distância z ao fotocátodo, comparada com a distribuição cumulativa $T_r(z_{\text{max}})$ do alcance z_{max} dos fotoeletrões recapturados pelo fotocátodo. Aí se observa claramente que a captura por moléculas só é significativa a partir de distâncias z ao fotocátodo relativamente grandes, distâncias que apenas uma fração mínima dos recapturados pelo fotocátodo alcança.

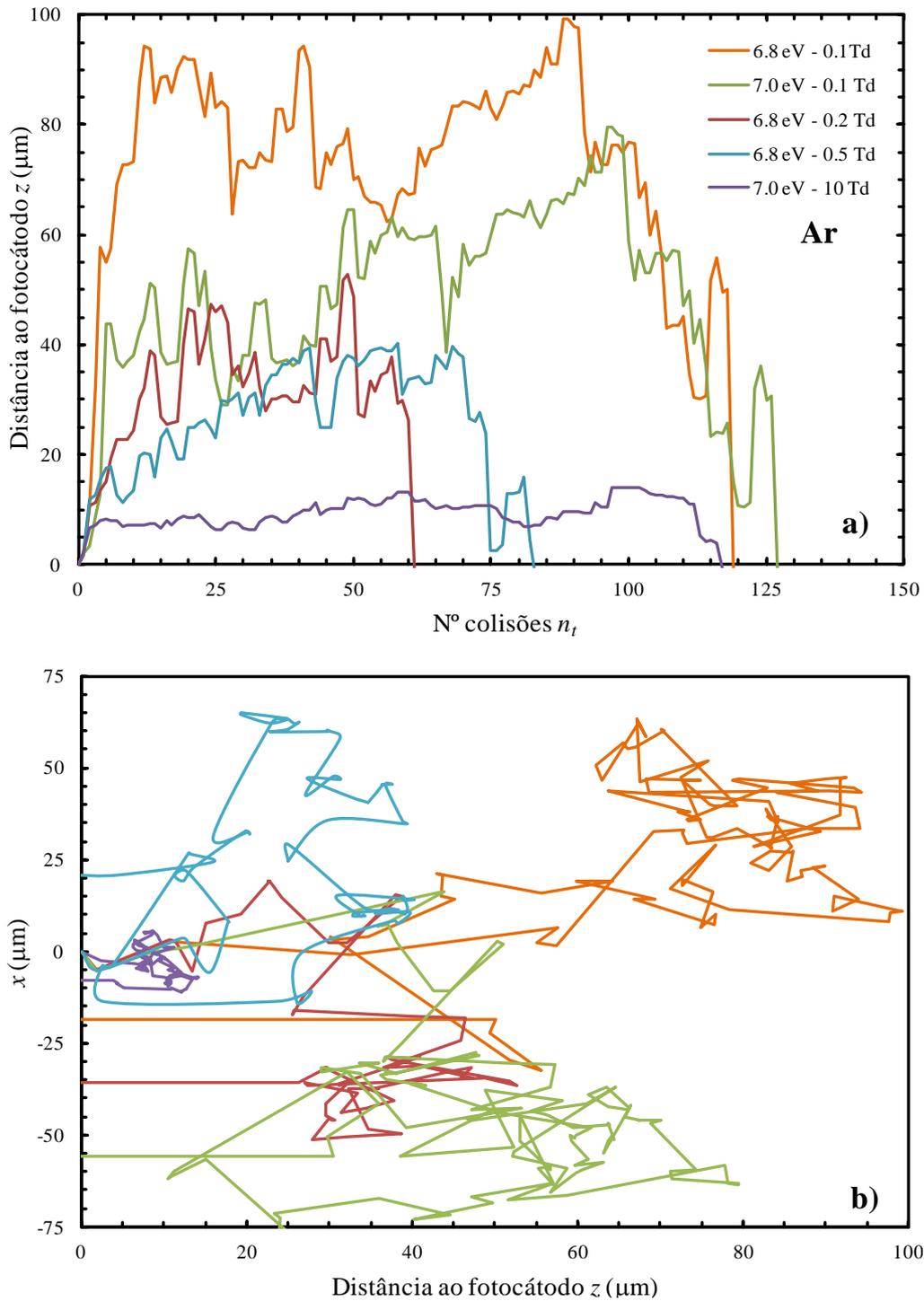


Figura 4.43 – Resultados de Monte Carlo para o movimento de cinco fotoelétrons emitidos em $x = y = z = 0$ em Ar e que foram recapturados por um fotocátodo de CsI (em $z = 0$), nas condições indicadas de energia E_{ph} dos fótons absorvidos e campo elétrico reduzido E/N . A evolução do movimento é representada **a)** através da distância z ao fotocátodo em função do número de colisões n_t dos fotoelétrons e **b)** através da projeção da trajetória no plano xz .

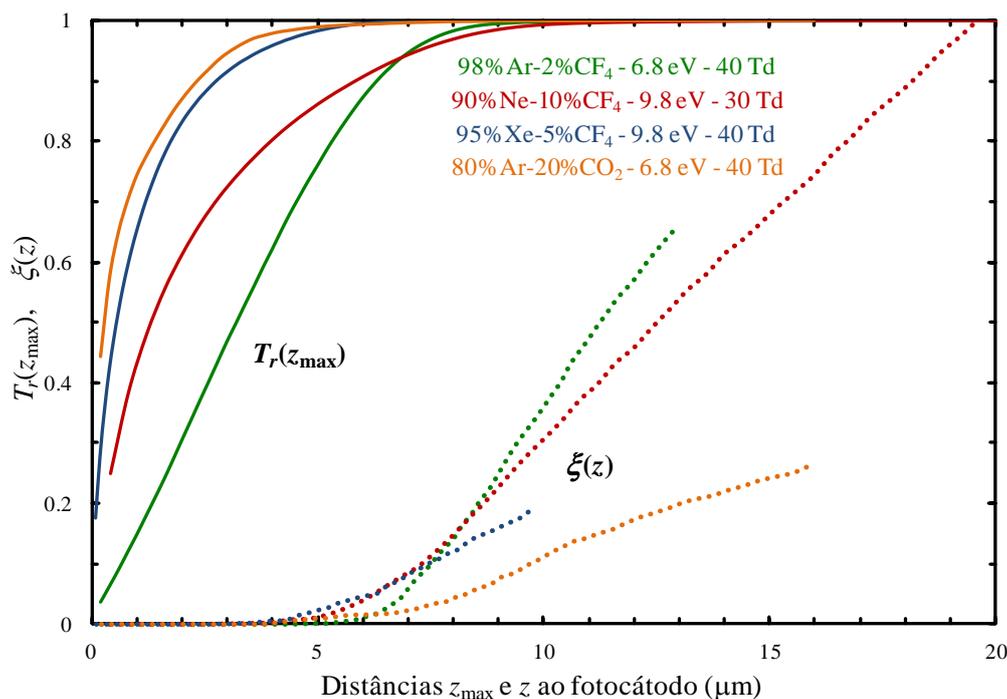


Figura 4.44 – Resultados de Monte Carlo para a fração $\xi(z)$ de fotoelétrons que é capturada por moléculas até à distância z ao fotocátodo de CsI, comparada com a distribuição cumulativa $T_r(z_{\max})$ do alcance z_{\max} dos fotoelétrons recapturados pelo fotocátodo, nos meios gasosos e nas condições de energia E_{ph} dos fótons absorvidos e campo elétrico reduzido E/N indicados.

4.2 Estudo experimental

Esta secção é destinada à apresentação do estudo experimental da extração de fotoelétrons de fotocátodos refletivos de CsI em meio gasoso à temperatura $T = 22 \pm 2$ °C e à pressão $p = 800$ Torr. O sistema experimental utilizado e os procedimentos efetuados são a seguir descritos de uma forma sumária e os resultados experimentais para a eficiência de extração f são apresentados em função do campo elétrico reduzido E/p (e E/N) e da concentração η de gás molecular.

A eficiência de extração é determinada a partir da intensidade da corrente contínua que é medida no fotocátodo em ambiente gasoso, normalizada à correspondente intensidade da corrente em vazio para cada valor de campo elétrico.

O presente estudo experimental foi realizado em CH₄, CF₄, CO₂ e N₂ e suas misturas com Ne, bem como em Ar-CF₄ e Xe-CF₄. Anteriormente a esta dissertação, no mesmo detetor foram efetuadas medidas em Ar, Xe e CH₄ [48], que foram repetidas no presente sistema experimental na sequência das medidas nas misturas de que são componentes, e medidas em misturas Xe-CH₄ [49] que serão aqui apresentadas apenas para comparação com resultados de Monte Carlo. Com base no baixo valor observado para f em misturas binárias de CO₂ e N₂ com Ne foi decidido não incluir no presente estudo experimental as misturas de CO₂ e N₂ com Ar e Xe, previsivelmente de menor interesse.

Nesta investigação, a emissão de fotoelétrons foi induzida pela radiação VUV emitida por uma lâmpada de Hg(Ar) de emissão espectral gaussiana centrada a 185 nm (6.7 eV) e com 5 nm de largura a meia altura. A eficiência f foi medida para 20 diferentes intensidades de campo elétrico reduzido E/p entre 0.1 e 3 V cm⁻¹ Torr⁻¹, em gases puros e em misturas com concentração η de gás molecular de 1%, 3%, 5%, 10%, 20%, 50% e 80%; em Xe-CF₄, optou-se por 70% e 90% em alternativa a 80%.

Excetuando os dados em N₂ e Ne-N₂, os presentes resultados experimentais são comparados com resultados calculados por simulação de Monte Carlo, recorrendo a duas distribuições ([72,78]) de energia de emissão ε_0 dos fotoelétrons emitidos por fotocátodos de CsI quando irradiados por fótons monocromáticos de energia E_{ph} próxima do pico do espectro da lâmpada de Hg(Ar). Na simulação, em cada caso, é considerada uma amostra de pelo menos 2×10^5 fotoelétrons, mantendo uma incerteza estatística (desvio padrão) inferior a 1%.

4.2.1 Sistema experimental e procedimentos

Descreve-se em seguida o sistema experimental usado e os procedimentos realizados para obter os resultados experimentais.

4.2.1.1 Detetor com fotocátodo refletivo de CsI

O detetor usado integra um fotocátodo refletivo de CsI irradiado por radiação VUV, como esquematizado na **Fig. 4.45**. Esta montagem experimental foi utilizada anteriormente em [48,49,79] para medir a eficiência de extração de fotoelétrons de fotocátodos de CsI em meio gasoso.

O corpo do detetor é de aço inoxidável e é constituído por duas partes, o corpo principal e a base. A base é aparafusada e selada por um anel de *viton* ao corpo principal, permitindo a fácil substituição do fotocátodo.

O fotocátodo, de 400 nm de espessura e 20 mm de diâmetro, é depositado no substrato de aço inoxidável polido, em forma de disco, colado numa base de cerâmica Macor (**Fig. 4.46a**) que permite o conveniente isolamento elétrico em relação à base do detetor, à qual está também colada com uma resina isoladora de baixa pressão de vapor (epóxi TRA-BOND 2116). A grelha G, constituída por fios de aço inoxidável com 80 μ m de diâmetro e espaçados de 900 μ m, encontra-se a 4 mm do fotocátodo, fixada por um suporte isolante de Teflon, como se pode observar na **Fig. 4.46b**.

De modo a estabelecer um campo elétrico uniforme de extração junto ao fotocátodo, a grelha G é polarizada com uma tensão positiva, enquanto o substrato do fotocátodo é mantido ao potencial zero. Durante a operação em vácuo, a grelha F, semelhante à grelha G, é polarizada a uma tensão um pouco superior à de G, de modo a evitar que algum fotoelétrão inverta o movimento e regresse ao

fotocátodo. As tensões de polarização das grelhas, fornecidas por duas fontes de alta tensão de alta estabilidade (Hewlett Packard 6110A), são ligadas através de *feedthroughs* (passadores de tensão) com isolamento em cerâmica Macor.

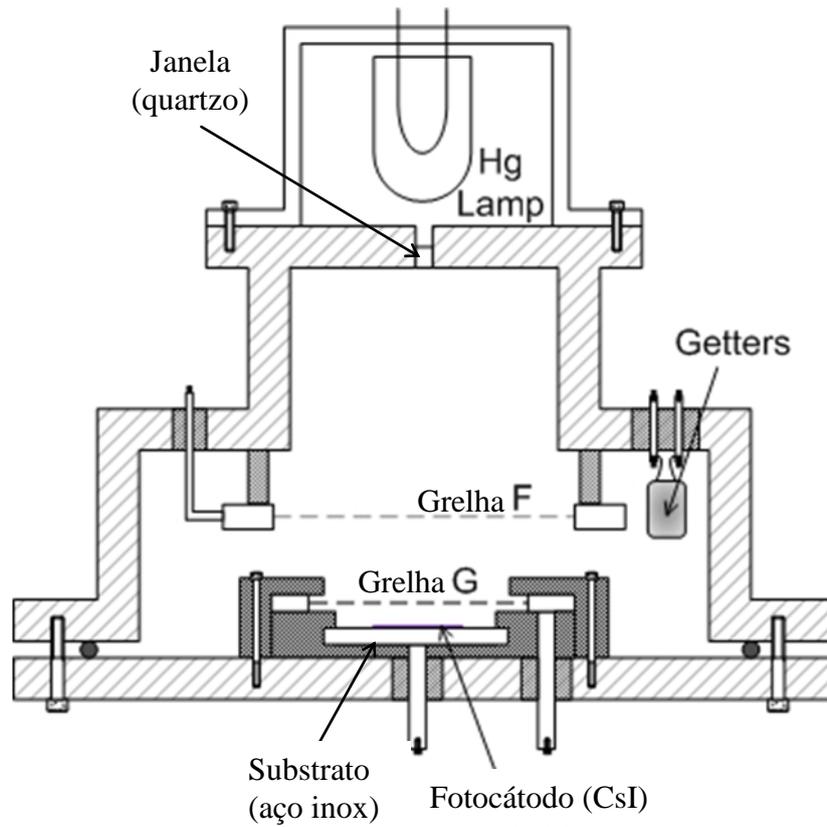


Figura 4.45 – Representação esquemática do detector com fotocátodo de CsI integrado [48].

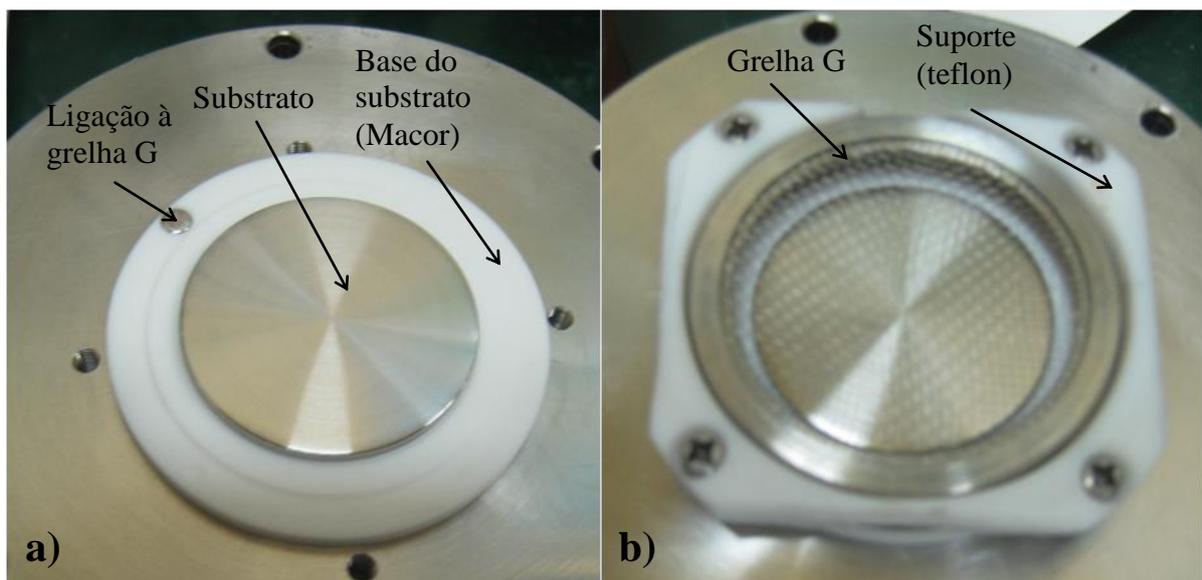


Figura 4.46 – Base do detector a) com o substrato do fotocátodo e base de Macor e b) com a grelha G fixada num suporte de Teflon.

A radiação VUV usada para induzir a emissão dos fotoelétrons penetra no detetor através de uma janela de quartzo e é proveniente da lâmpada de Hg(Ar) (Newport 6035) colocada sobre o detetor, coberta por um invólucro de alumínio, acoplado ao detetor, que a isola da luz do ambiente exterior.

A corrente entre o fotocátodo e a grelha anódica G é medida no fotocátodo, com recurso a um eletrómetro digital (Keithley 6512) ligado ao substrato do fotocátodo através de um *feedthrough*.

Os *feedthroughs* e a janela de entrada da luz são acoplados ao corpo do detetor através de uma cola isoladora de baixa pressão de vapor (epóxi TRA-BOND 2116), de modo a manter estanque a câmara do detetor.

4.2.1.2 Produção dos filmes de CsI

Os filmes de iodeto de cézio utilizados no presente estudo foram produzidos por evaporação térmica em alto vácuo numa planta de evaporação existente no GIAN, encontrando-se a planta e o processo de evaporação detalhadamente descritos em [79,80]. Uma vez que CsI é um material higroscópico, são realizados alguns procedimentos no sentido de minimizar a adsorção de humidade durante a preparação dos filmes, tornando a degradação da eficiência quântica do CsI desprezável.

Assim, o substrato de aço inoxidável, em cuja superfície polida será depositado o fotocátodo, é previamente limpo com água desionizada, álcool e acetona, por esta ordem, e é colocado a secar, durante duas horas, numa estufa a 50 °C.

De modo a reduzir ao mínimo a presença de impurezas durante o processo de evaporação, procede-se em seguida a uma desgaseificação prévia, colocando a base do detetor, com o substrato de aço inoxidável acoplado, no interior da câmara de evaporação em vácuo primário (10^{-2} mbar) durante cerca de um dia e, seguidamente, em alto vácuo (10^{-6} mbar) durante cerca de cinco horas. Após esta preparação prévia da câmara, e mantendo o alto vácuo, procede-se à evaporação dos cristais de CsI à taxa de cerca de 2 nm s^{-1} , obtendo-se um filme homogéneo com 20 mm de diâmetro e espessura uniforme. Nas condições experimentais existentes, coloca-se a evaporar uma quantidade de CsI suficiente ($\sim 0.21 \text{ g}$) para obter um filme com a espessura pretendida (400 nm), sendo a evaporação interrompida se a espessura do filme, medida através de um sensor, ultrapassar aquele valor.

O fotocátodo fica em contacto com o ar desde que é retirado da câmara de evaporação até ser colocado em vazio no interior do detetor (enquanto se procede à montagem da grelha G e respetivo suporte, à verificação dos contactos elétricos e à junção da base ao restante corpo do detetor). Este processo pretende-se célere (5 a 10 min), de modo a evitar a danificação do fotocátodo pela humidade ambiente. De forma a libertar alguma humidade adsorvida, o fotocátodo é seguidamente mantido cerca de um dia em alto vácuo e a uma temperatura de cerca de 50-60 °C.

4.2.1.3 Sistema de vazio/enchimento

O sistema experimental montado para o presente estudo é apresentado na **Fig. 4.47** e permite estabelecer na câmara do detetor o ambiente gasoso desejado ou alto vácuo. Com recurso à bomba turbomolecular (Adixen ATP 80) apoiada por uma bomba mecânica, e com as válvulas V_3 e V_4 abertas, alcança-se alto vácuo no detetor, cuja qualidade é medida usando um sensor Penning (Edwards CP25-EK). Atingido o vácuo adequado, V_4 é fechada e procede-se ao enchimento do detetor com gás, abrindo V_1 ou V_2 consoante o gás de enchimento pretendido, sendo a pressão no detetor medida por um sensor (MKS Baratron 122 BA 1000).

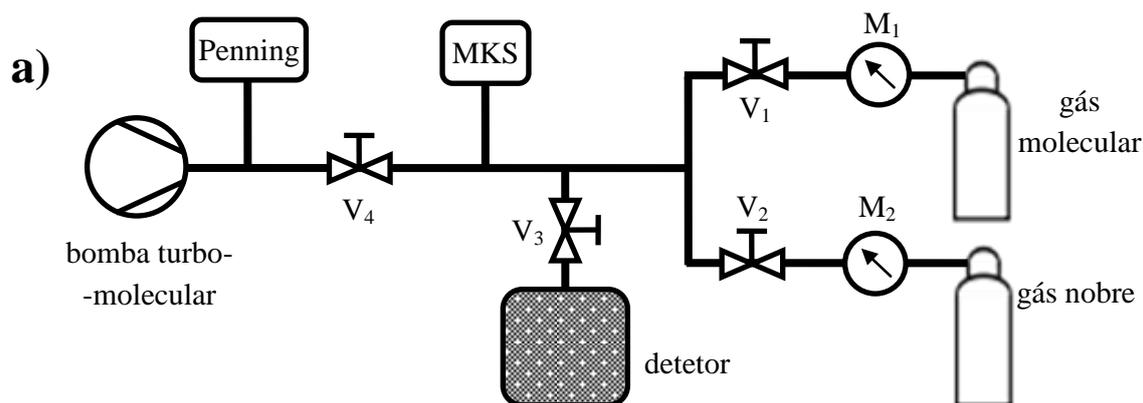


Figura 4.47 – Representação esquemática e fotografia do sistema de vazio/enchimento do detetor. O sistema engloba as válvulas V , os mano-redutores M , um medidor Penning de alto vácuo, um medidor de pressão (MKS), o detetor e a bomba de vácuo.

No presente estudo com misturas de um gás molecular com um gás nobre, tendo em mente que as moléculas têm maior dimensão que os átomos e que a concentração de gás molecular é geralmente superior à do gás nobre, introduz-se primeiro o gás molecular até atingir a pressão parcial pretendida e só depois se introduz lentamente o gás nobre até ser atingida a pressão total (800 Torr). Durante o enchimento com o segundo gás (gás nobre), é mantido em V_2 um diferencial de pressão de cerca de 8 atm, de modo a evitar passagem de gás molecular através de V_2 . As misturas são preparadas e analisadas por ordem crescente da concentração η de gás molecular.

Os gases utilizados (Air Liquide: Xe N45; Linde Group: Ar 5.3, Ne 4.5, CH₄ 4.5, CF₄ 2.8, CO₂ 4.5, N₂ 5.3) não são sujeitos a qualquer purificação durante a operação, no entanto não permanecem no detetor por períodos superiores a uma hora e não são reutilizados.

Quando se altera um dos constituintes da mistura ou, por alguma razão, o detetor esteve exposto ao ar, o detetor e o sistema de enchimento, incluindo a tubagem junto à garrafa do novo gás, são mantidos a alto vácuo por um período de cerca de três dias antes da realização de novas medidas, garantindo-se assim a limpeza de voláteis adsorvidos nas superfícies.

4.2.1.4 Metodologia

O presente estudo experimental baseia-se na medida das fotocorrentes efetivamente geradas pelo fotocátodo de CsI em vazio (I_{vac}) e em ambiente gasoso (I_{gas}) à pressão de 800 Torr, quando, como já foi dito, nele incide radiação VUV proveniente de uma lâmpada de Hg(Ar) de emissão contínua com distribuição espectral centrada em 185 nm (6.7 eV) e 5 nm de largura a meia altura (FWHM). A eficiência de extração f , que exprime a fração dos fotoelétrons que supera a retrodifusão em meio gasoso, é determinada, para cada campo elétrico, pela razão $f = I_{gas}/I_{vac}$.

De modo a conseguir uma boa desgaseificação da câmara do detetor e do sistema de vazio/enchimento, o conjunto permanece em alto vácuo durante aproximadamente vinte horas. É nestas condições que, a uma pressão no medidor Penning de cerca de 2×10^{-7} mbar, se efetuam as medidas da fotocorrente I_{vac} . Faz-se então o enchimento do detetor com o meio gasoso pretendido à pressão de 800 Torr e efetuam-se as medidas da fotocorrente I_{gas} , após o que se liberta o gás para o exterior, através das bombas de vácuo.

Com o fotocátodo em vazio ou em meio gasoso, a fotocorrente é medida para todos os valores de campo elétrico reduzido E/p em análise, sequência que é executada 3 vezes. Para cada E/p , a eficiência f é baseada na média das 3 medidas para I_{gas} e na média das 6 medidas para I_{vac} (3 antes do enchimento e 3 após a evacuação do detetor, de modo a ter em conta a eventual degradação da eficiência quântica do fotocátodo).

Para cada meio gasoso, os resultados apresentados para f resultaram da média dos valores obtidos com pelo menos 2 enchimentos do detetor.

4.2.2 Resultados para a eficiência de extração f

Os resultados das medidas experimentais da eficiência de extração f dos fotoelétrons, emitidos por um fotocátodo de CsI (irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar)) nos diferentes meios gasosos investigados, são apresentados nas **Figs. 4.48 e 4.49**, em função do campo elétrico reduzido E/p (e E/N equivalente). De modo a facilitar a comparação entre estes resultados, reúnem-se na **Fig. 4.50a** as curvas de f para os gases puros e na **Fig. 4.50b** as curvas para as misturas com concentração típica de $\eta = 10\%$ de gás molecular.

Nas **Figs. 4.51 a 4.54**, comparam-se os presentes resultados experimentais com resultados calculados por simulação de Monte Carlo, representados em função de E/p (e E/N) nas **Figs. 4.51 e 4.52** e em função de η nas **Figs. 4.53 e 4.54** (excetuando em Ne-N₂, meios em que não foram feitas simulações, **Fig. 4.53d**).

Na **Fig. 4.55** comparam-se as medidas de f em Xe-CH₄ anteriormente obtidos no GIAN [49] com cálculos de Monte Carlo.

Os resultados de f de Monte Carlo representados por curvas contínuas ao longo das **Figs. 4.51 a 4.55** foram obtidos recorrendo à distribuição de energia de emissão ε_0 de fotoelétrons medida por Shefer *et al.* [78] (**Fig. 3.8**) quando um fotocátodo refletivo de CsI é irradiado por um feixe monocromático de fótons de energia $E_{ph} = 6.7$ eV. A escolha recaiu sobre esta distribuição por ser a mais óbvia aproximação disponível para reproduzir a emissão induzida pela lâmpada de Hg(Ar), cujo espetro está centrado em 6.7 eV.

Algumas figuras incluem também curvas de f de Monte Carlo calculadas a partir de outra aproximação (a traço interrompido), usando a distribuição de ε_0 medida por DiStefano e Spicer [72] (**Fig. 3.8**) quando um fotocátodo transmissivo de CsI é irradiado por fótons monocromáticos com $E_{ph} = 6.8$ eV.

O efeito da realimentação positiva produzida pela absorção da cintilação dos gases nobres no fotocátodo (**secção 2.2.3.2**) é responsável pelo brusco crescimento observado nas curvas de f com E/N que surge a partir do limiar de cintilação nos resultados experimentais para qualquer dos gases nobres e misturas de Ne com baixa concentração η de aditivo. Os resultados experimentais indicam aproximadamente para limiares de cintilação em Ne, Ar e Xe os valores 0.4, 0.9 e 1 V cm⁻¹ Torr⁻¹, respetivamente.

Excluindo este efeito da realimentação positiva, não incluído na simulação, os resultados experimentais evidenciam, de um modo geral, um comportamento semelhante ao dos resultados de Monte Carlo apresentados na **secção 4.1.1**, calculados para os mesmos meios gasosos, para a energia $E_{ph} = 6.8$ eV e para a gama de E/N das experiências. Assim, passa-se a analisar o comportamento das medidas, excluindo o efeito da realimentação positiva.

Nos resultados experimentais, observa-se que f cresce com o campo elétrico reduzido, de um modo mais rápido para os menores valores de E/p , principalmente em CH₄ e CF₄ e suas misturas com gases nobres, onde o crescimento é quase abrupto. As curvas de f crescem rapidamente com η para

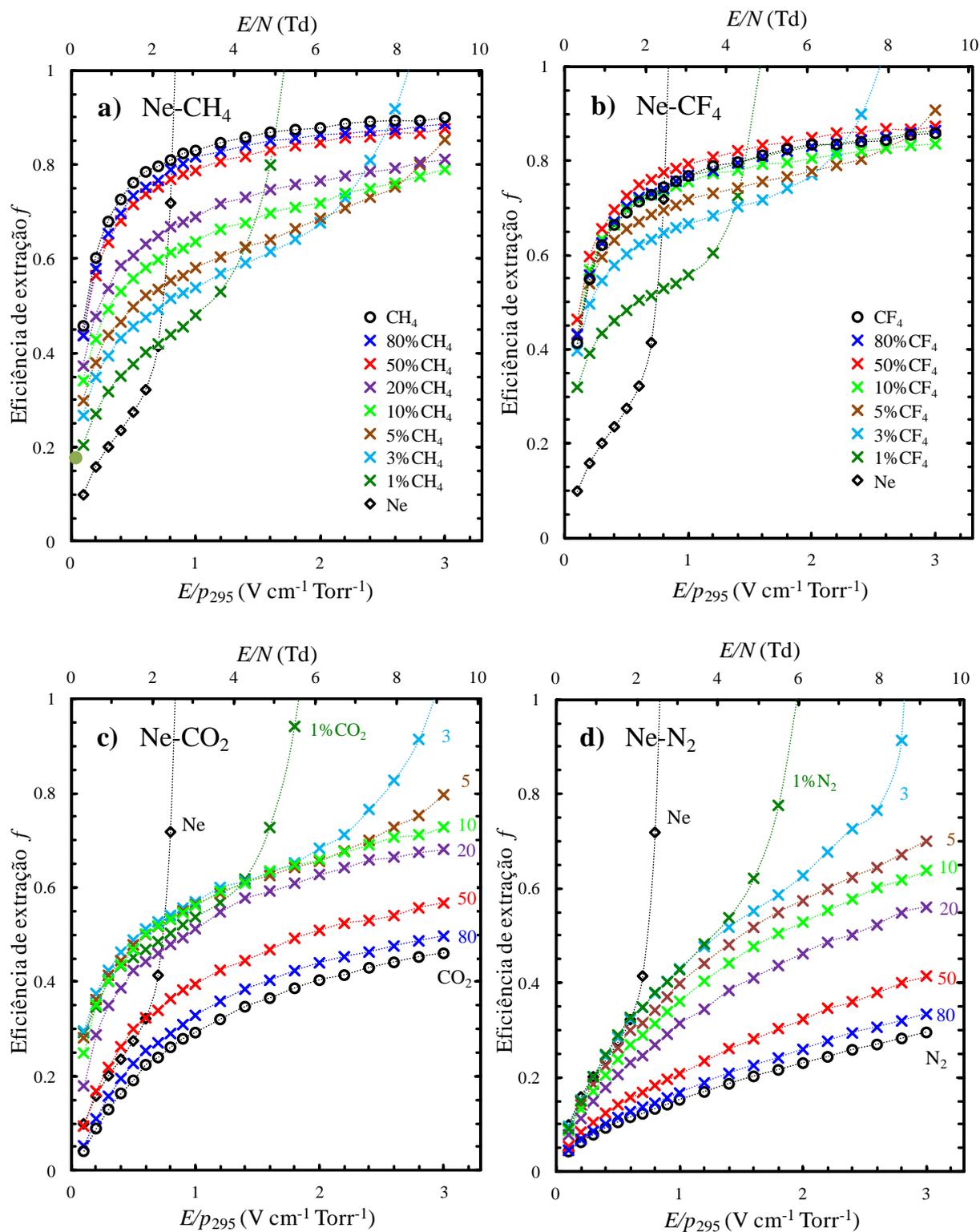


Figura 4.48 – Resultados experimentais para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI (irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar)), em função do campo elétrico reduzido E/p (E/N no eixo secundário), em a) Ne-CH₄, b) Ne-CF₄, c) Ne-CO₂ e d) Ne-N₂.

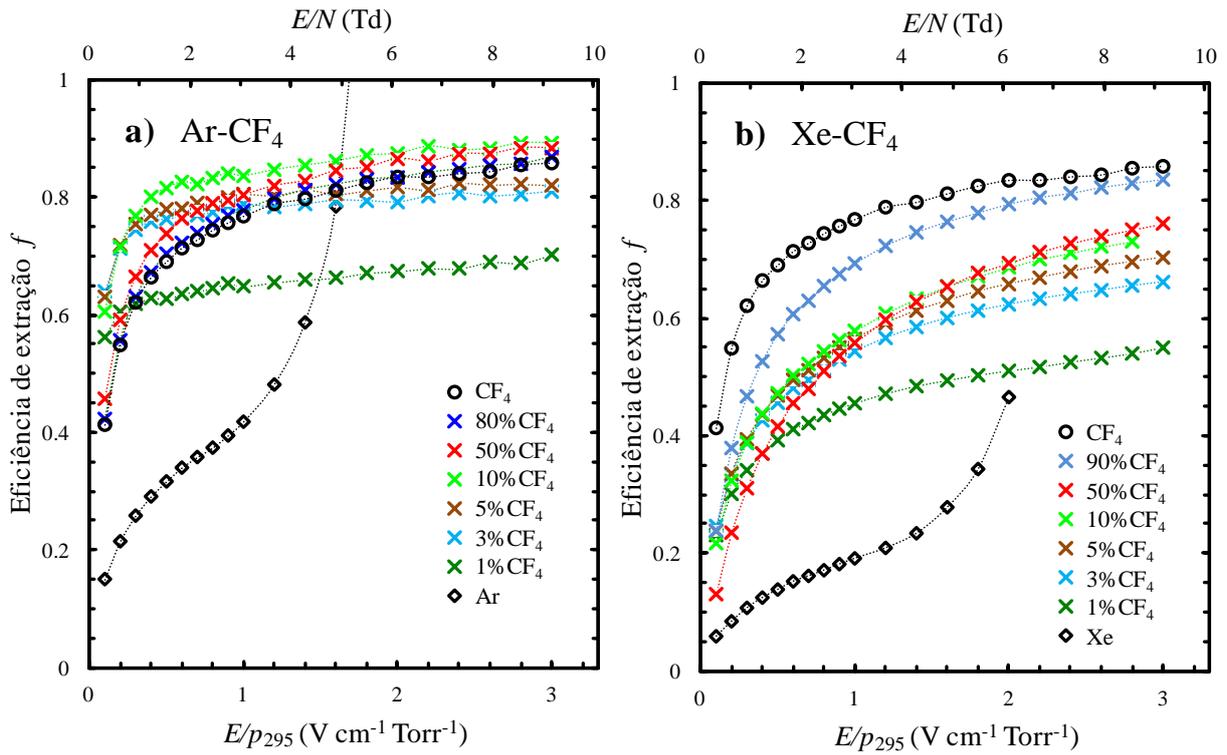


Figura 4.49 – Resultados experimentais para a eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI (irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar)), em função do campo elétrico reduzido E/p (E/N no eixo secundário), em a) Ar-CF₄ e b) Xe-CF₄.

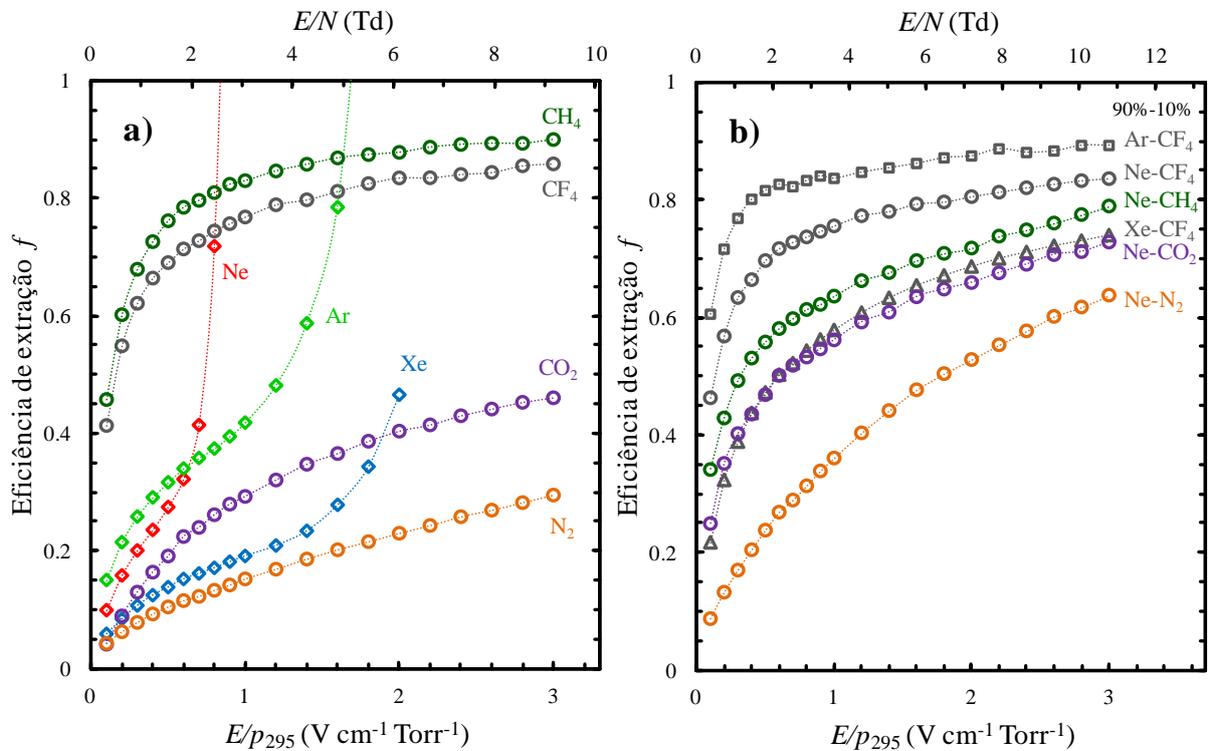


Figura 4.50 – Síntese de resultados experimentais para a eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI (irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar)), em função do campo elétrico reduzido E/p (E/N no eixo secundário), comparando f em a) gases puros e b) misturas com concentração $\eta = 10\%$ de gás molecular.

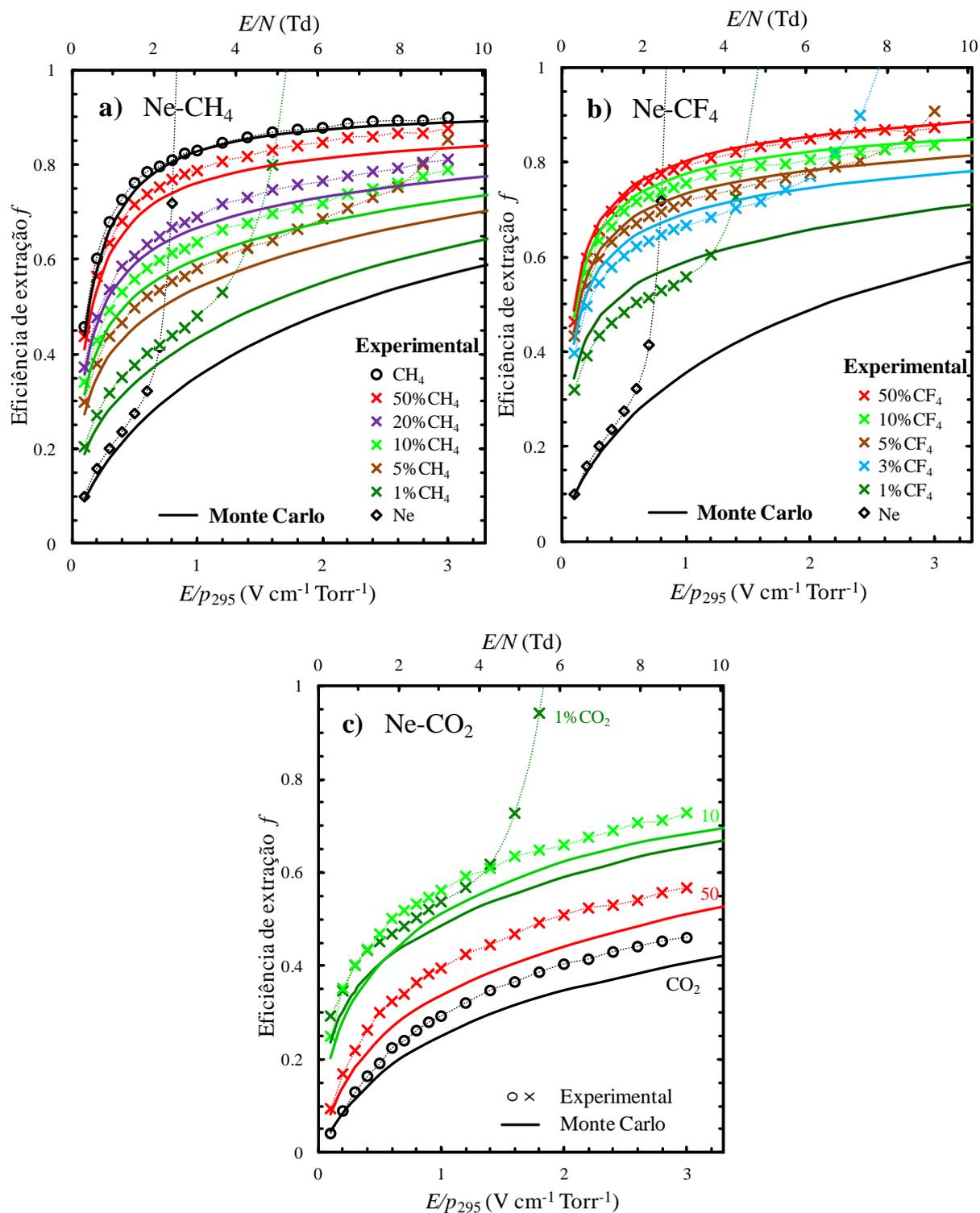


Figura 4.51 – Comparação de resultados experimentais da Fig. 4.48 (símbolos) com resultados de Monte Carlo (curvas contínuas) para a eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função do campo elétrico reduzido E/p (E/N no eixo secundário), em **a)** Ne-CH₄, **b)** Ne-CF₄ e **c)** Ne-CO₂. O fotocátodo é irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar) (espectro centrado em $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV) e na simulação considera-se um feixe monocromático de fótons de energia $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV. As curvas a pontilhado são guias entre símbolos.

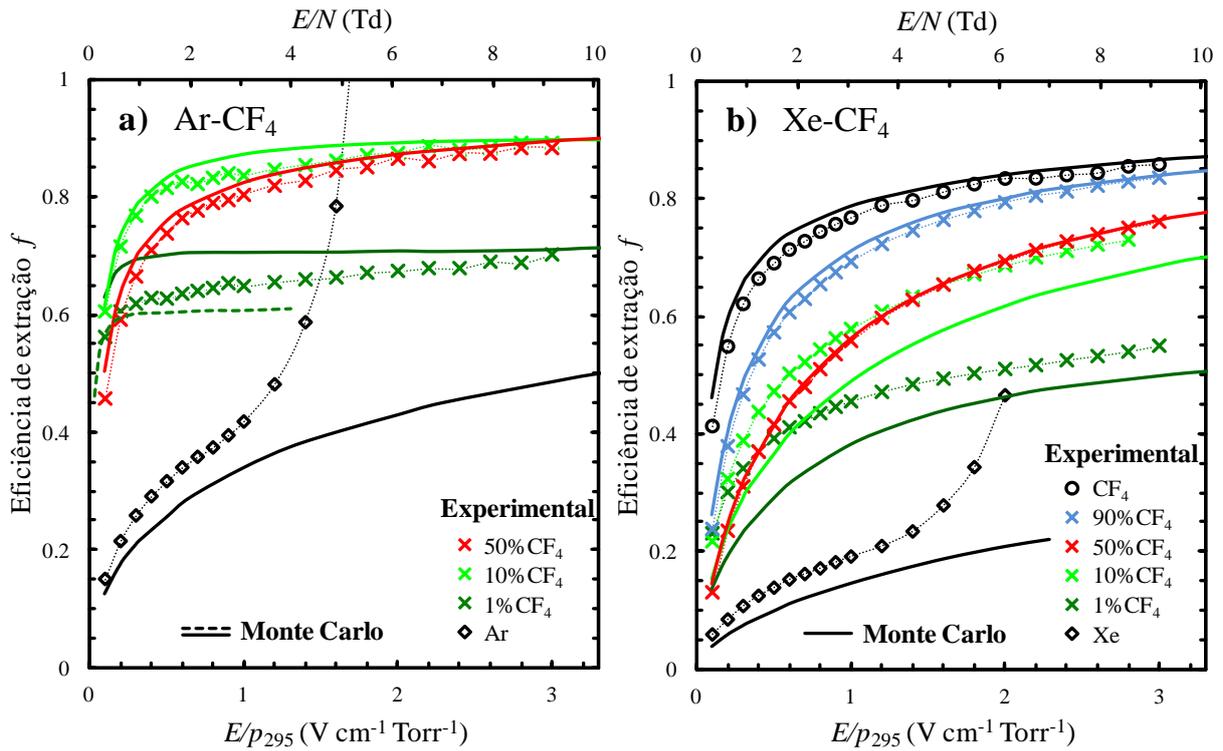


Figura 4.52 – Comparação de resultados experimentais da Fig. 4.49 (símbolos) e de Monte Carlo (curvas — e - - -) para a eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função do campo elétrico reduzido E/p (E/N no eixo secundário), em a) Ar- CF_4 e b) Xe- CF_4 . O fotocátodo é irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar) (espectro centrado em $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV) e na simulação considera-se um feixe monocromático de fótons de energia $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV (—) e $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV (- - - em a)). As curvas a ponteadas são guias entre símbolos.

baixos valores de η , à exceção de Ne- N_2 , onde f praticamente decresce sempre. Para maiores valores de η , as curvas crescem mais lentamente (Ne- CH_4 , Fig. 4.53a) ou até decrescem com η após passarem por um máximo, consideravelmente pronunciado em Ne- CO_2 (Fig. 4.53c) e mais suave, em Ar- CF_4 e Xe- CF_4 (Fig. 4.54). Nas misturas Xe- CF_4 , as curvas de f exibem um comportamento particular, pois após passarem por um mínimo voltam a crescer a maior η .

No que se refere à natureza do meio gasoso, nos dados experimentais também se verifica que f é consideravelmente maior em CH_4 e CF_4 do que nos restantes gases puros considerados (Fig. 4.50a), sendo maior em CH_4 do que em CF_4 . Confirma-se também que para baixos E/N e E_{ph} , f_{Ar} é maior do que f_{Ne} e significativamente maior do que f_{Xe} (Fig. 4.50a), ordem que se mantém quando a estes gases nobres se adiciona CF_4 ou CH_4 (considerando f em Xe- CH_4 (Fig. 4.55) e Ar- CH_4 em [49]). Verifica-se ainda na Fig. 4.50a que f_{Xe} é inferior a f_{CO_2} mas é superior a f_{N_2} . Verifica-se também que nas misturas contendo Ne, para a gama de $\eta = 5\%$ -20%, f decresce quando se varia o gás aditivo de CF_4 para CH_4 para CO_2 e para N_2 , alterando-se essa ordem quando, para maiores valores de η , f em Ne- CH_4 supera f em Ne- CF_4 .

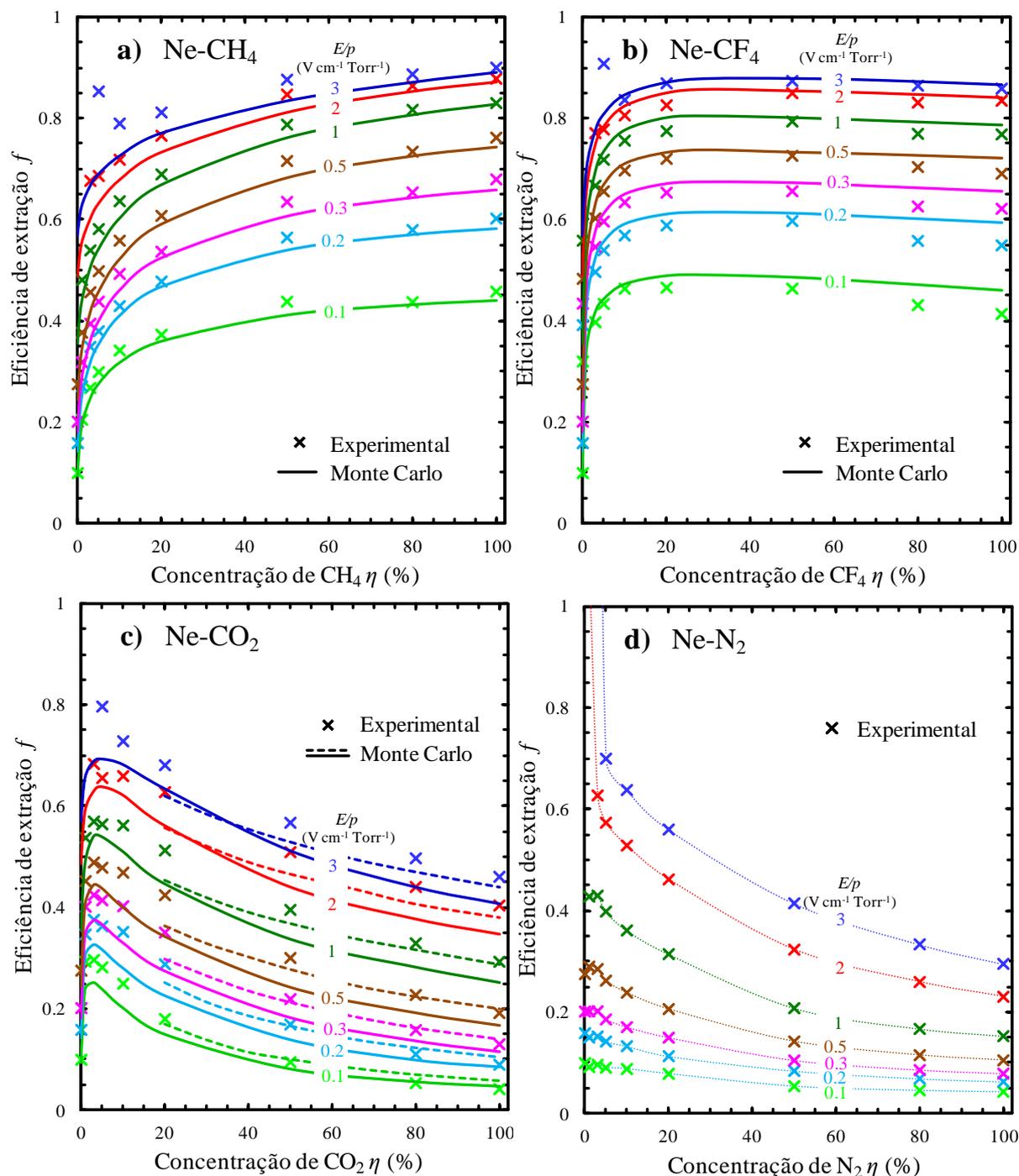


Figura 4.53 – Resultados experimentais (símbolos) e de Monte Carlo (curvas — e - - -) para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da concentração η de gás molecular, para os valores de campo elétrico reduzido E/p indicados, em **a)** Ne-CH₄, **b)** Ne-CF₄, **c)** Ne-CO₂ e **d)** Ne-N₂. Os desvios observados nas medidas para os menores valores de η e maiores de E/p são devidos à cintilação de Ne, não incluída na simulação. O fotocátodo é irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar) (espectro *centrado* em $E_{ph} = 6.7$ eV) e na simulação considera-se um feixe *monocromático* de fótons de energia $E_{ph} = 6.7$ eV (—) e $E_{ph} = 6.8$ eV (- - - em c)). Notar que para Ne-N₂ (d)) não são apresentados resultados de Monte Carlo, sendo as curvas a ponteados guias entre símbolos.

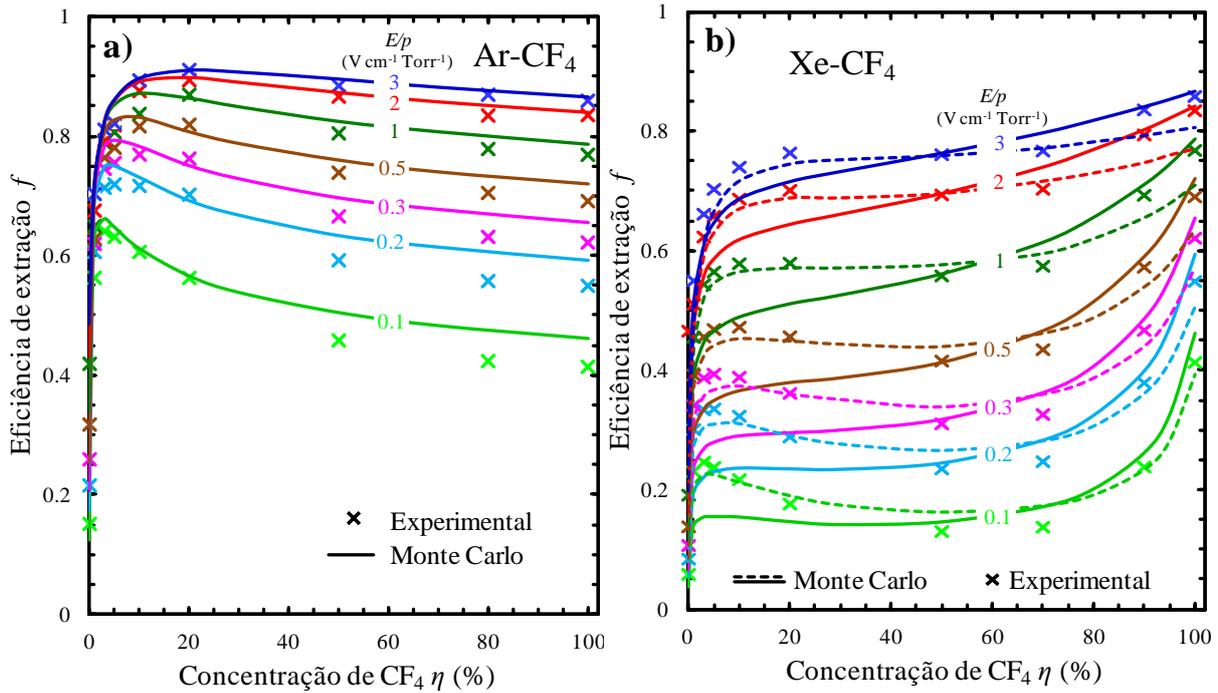


Figura 4.54 – Resultados experimentais (símbolos) e de Monte Carlo (curvas — e - - -) para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI, em função da concentração η de gás molecular, para os valores de campo elétrico reduzido E/p indicados, em **a)** Ar- CF_4 e **b)** Xe- CF_4 . O fotocátodo é irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar) (espectro centrado em $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV) e na simulação considera-se um feixe monocromático de fótons de energia $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV (—) e $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV (- - - em b)). As curvas a pontilhado são guias entre símbolos.

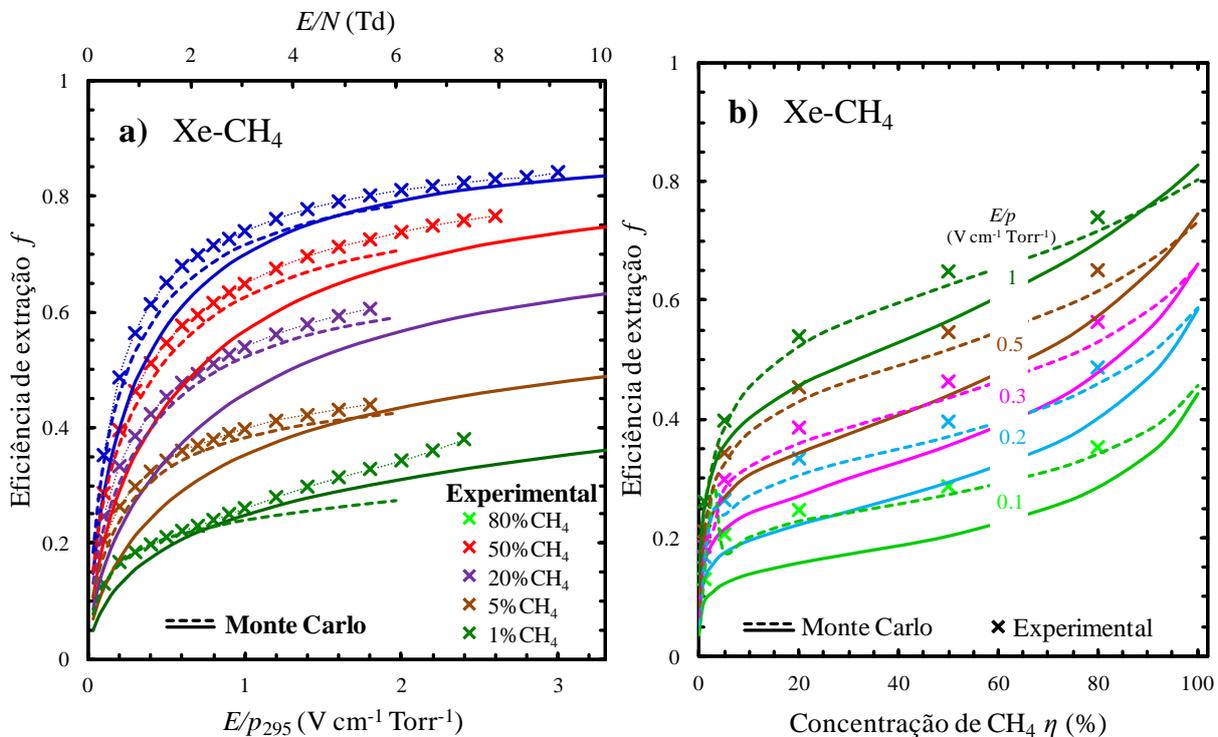


Figura 4.55 – Resultados experimentais de Coelho *et al.* [49] (símbolos) e de Monte Carlo (curvas — e - - -) para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo de CsI em Xe- CH_4 , em função **a)** do campo elétrico reduzido E/p (E/N no eixo secundário) e **b)** da concentração η de CH_4 para os valores de campo elétrico reduzido E/p indicados. O fotocátodo é irradiado por uma lâmpada de Hg(Ar) (espectro centrado em $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV) e na simulação considera-se um feixe monocromático de fótons de energia $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV (—) e $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV (- - -).

4.2.3 Discussão

Os resultados aqui apresentados para f evidenciam comportamentos já analisados e justificados ao longo do estudo por simulação na **secção 4.1**. Essa análise, no entanto, não abrangeu meios gasosos contendo N_2 , que passamos a examinar com base na observação das secções eficazes de difusão de eletrões em N_2 recomendadas por Tabata *et al.* [81], apresentadas na **Fig. 4.56**. Os baixos valores de f em N_2 e nas misturas Ne- N_2 são consistentes com os baixos valores da penetração inicial λ e do percurso livre médio dos fotoeletrões decorrentes da elevada secção eficaz de difusão elástica e com o facto de o máximo da secção eficaz de excitação vibracional das moléculas de N_2 estar fora da gama essencial de energia que os fotoeletrões, emitidos nas condições das medidas, possuem nas primeiras colisões.

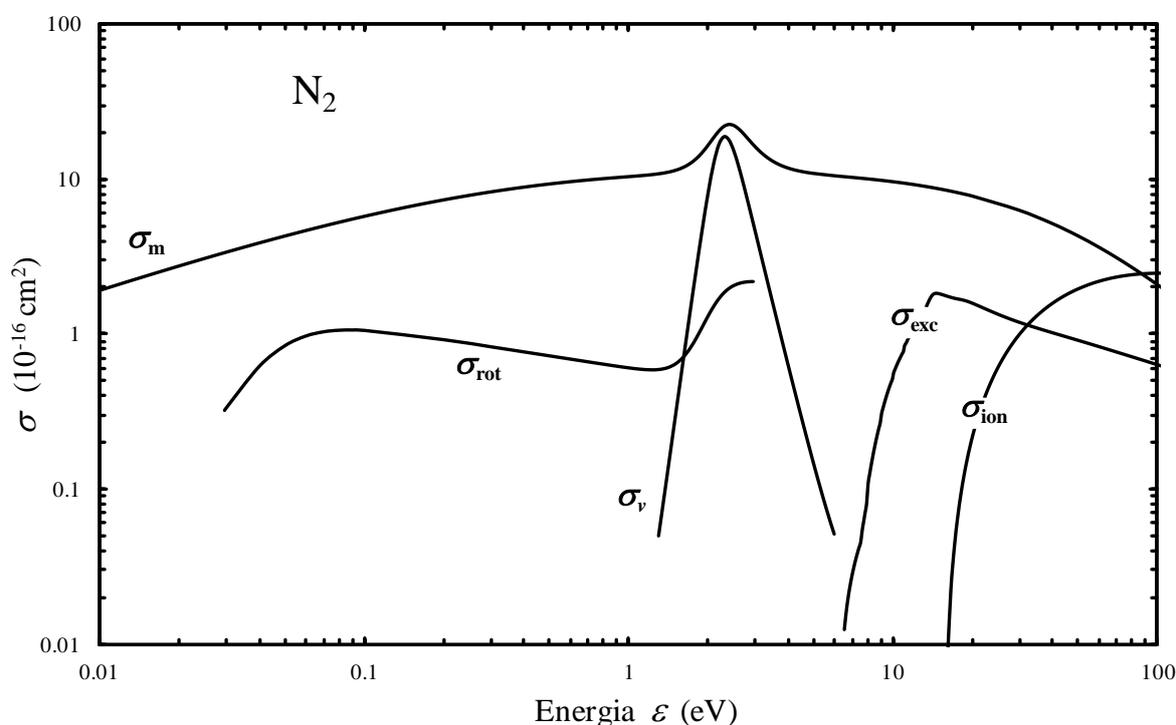


Figura 4.56 – Secções eficazes de difusão de eletrões em N_2 : transferência de quantidade de movimento na difusão elástica (σ_m), excitação rotacional (σ_{rot}), excitação vibracional (σ_v), excitação eletrónica (σ_{exc}) e ionização total (σ_{ion}).

À parte do efeito já referido da realimentação positiva devida à absorção da cintilação dos gases nobres, não incluído na simulação, constata-se nas **Figs. 4.51-4.55** que em geral existe um bom acordo entre os dados experimentais e de simulação de Monte Carlo para f , apenas quebrado em Ne- CO_2 , Xe- CH_4 e, para baixos valores de η , também em Ar- CF_4 e Xe- CF_4 .

Os resultados, experimentais ou calculados, são afetados por diversas incertezas, destacando-se a seguir as que podem ser mais relevantes. No que concerne aos cálculos de Monte Carlo, os resultados estão afetados pelas incertezas nas secções eficazes e nas distribuições de energia de emissão ε_0 dos fotoeletrões. Os valores experimentais são afetados por incertezas de várias origens: composição da mistura gasosa, principalmente para pequena concentração η de gás molecular, região em que f é muito sensível a η ; alteração do campo elétrico devido a carga espacial resultante de

captura de elétrons por moléculas (em misturas com CF_4 ou CO_2 , para pequenos valores de η e para os maiores E/N considerados); alteração não gradual da eficiência quântica do fotocátodo, causada, por exemplo, por impacto de iões; alteração da distribuição da energia de emissão ε_0 dos fotoelétrons com o tempo e com o filme. A reflexão dos fotoelétrons quando atingem o fotocátodo de CsI no seu retorno, referida na **secção 4.1.2.2**, é um efeito que poderia explicar algumas discrepâncias entre resultados experimentais e calculados, mas os desvios não são sistemáticos e não permitem por isso retirar conclusões.

Contudo, as divergências entre resultados experimentais e de simulação parecem resultar principalmente da grande sensibilidade que f pode apresentar em relação à distribuição de energia de emissão ε_0 de fotoelétrons, como é evidente nas várias figuras (**Figs. 4.52a, 4.53c, 4.54b e 4.55**) onde se incluem dois tipos de curvas de simulação calculadas a partir de 2 distribuições de ε_0 próximas – as medidas por [78] e por [72] para feixes monocromáticos de fótons com $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV e $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV, respetivamente. As distribuições estão representadas nas **Figs. 4.57 e 3.8**. Embora a primeira distribuição seja suficiente na maioria dos casos para reproduzir satisfatoriamente os resultados experimentais, ela não representa de forma exata a distribuição de ε_0 gerada com a irradiação pela lâmpada de Hg(Ar) que é mais alargada e, em consequência, algumas curvas contínuas desviam-se significativamente dos valores experimentais. No entanto, verifica-se que nestes casos as curvas descontínuas (calculadas com a segunda distribuição, que se estende até maior ε_0), exibem um muito melhor acordo com os valores experimentais.

Para melhor justificar o efeito, as 2 distribuições de ε_0 referidas, para $E_{\text{ph}} = 6.7$ e 6.8 eV, são mostradas na **Fig. 4.57** juntamente com curvas de f calculadas diretamente em função de ε_0 em alguns

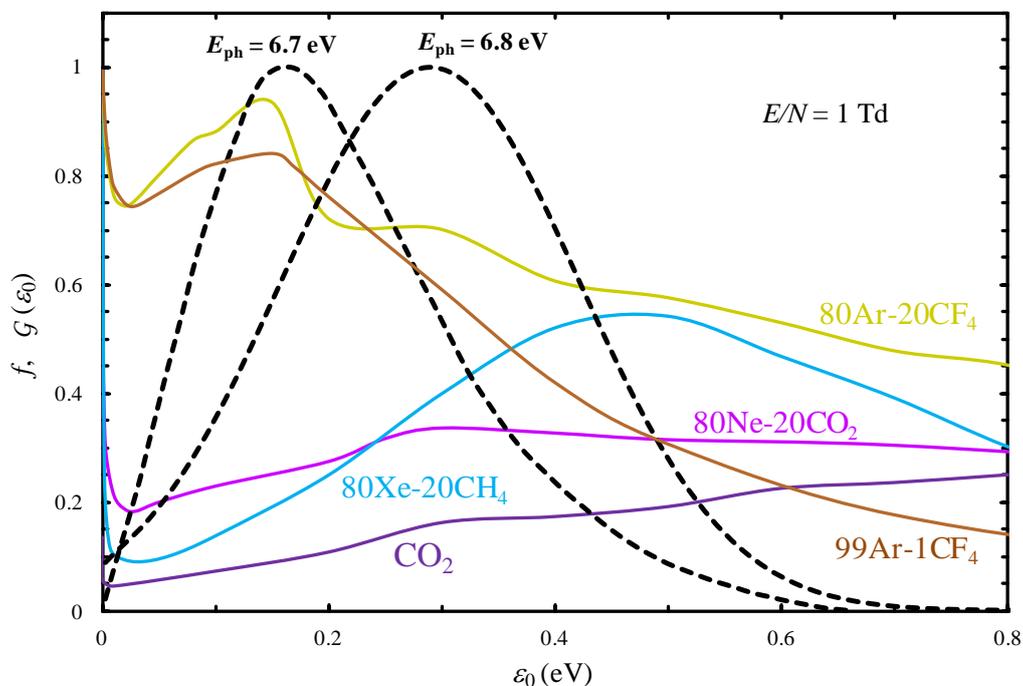


Figura 4.57 – Resultados de Monte Carlo para eficiência de extração f de fotoelétrons emitidos por um fotocátodo nos gases indicados, em função da energia de emissão ε_0 dos fotoelétrons, para o campo elétrico reduzido $E/N = 1$ Td, juntamente com as distribuições $G(\varepsilon_0)$ de energia de emissão ε_0 (curvas - - -) de fotoelétrons induzidos em CsI por feixes monocromáticos de fótons com $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV [78] e $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV [72] (ver **Fig. 3.8**).

meios gasosos, para $\varepsilon_0 < 0.8$ eV e $E/N = 1$ Td (curvas retiradas da **Fig. 4.38**). A **Fig. 4.57** revela que o melhor acordo conseguido através da segunda distribuição é consistente com a sua abrangência alargada a maiores energias ε_0 , numa região em que f aumenta com ε_0 em Xe-CH₄, Ne-CO₂ e CO₂ e em que f diminui em Ar-CF₄, comportamentos relacionados com a região de ε_0 em que as colisões com excitação vibracional são da maior importância para a extração dos fotoelétrões, como discutido na **secção 4.1.2.1**.

4.3 Conclusões

Os resultados obtidos para a eficiência de extração f de fotoelétrões emitidos por fotocátodos de CsI em meio gasoso foram apresentados neste capítulo em função do campo elétrico reduzido E/N (0.1-40 Td), da concentração η de gás molecular (CH₄, CF₄, CO₂ e N₂) em misturas binárias com gases nobres (Xe, Ar e Ne) e, no caso de simulação, também em função da energia E_{ph} (6.8 a 9.8 eV) dos fótons absorvidos no fotocátodo. Dos resultados experimentais e calculados podem inferir-se algumas tendências gerais para o comportamento de f .

A eficiência f em meios com N₂ foi apenas investigada experimentalmente ($E_{ph} \sim 6.7$ eV e $E/N = 0.3-9.2$ Td), verificando-se que f em N₂ é inferior a f nos restantes gases estudados e que a adição de N₂ a Ne não produz melhoria em f , que decresce praticamente sempre com η .

De um modo geral, observa-se que f cresce com E/N , gradualmente num gás nobre e com crescimento mais rápido a baixo E/N em gases moleculares e misturas destes com gás nobre. O estudo de simulação mostrou que f diminui geralmente com E_{ph} , com exceções pontuais em CO₂, misturas com Xe e algumas misturas com CO₂ em curtas regiões a baixo E/N .

Na maior parte da região de E/N e E_{ph} considerada, f nos gases moleculares é maior do que f nos gases nobres, especialmente a baixo E/N , com $f_{CO_2} < f_{CF_4} < f_{CH_4}$ ordem que sofre alterações a maiores E/N e E_{ph} . Quanto aos gases nobres, tem-se $f_{Xe} < f_{Ar} < f_{Ne}$, à exceção de uma pequena região a baixos E/N e E_{ph} , onde f_{Ne} toma valores inferiores a f_{Ar} e até a f_{Xe} . Para um mesmo gás molecular, f nas misturas com Xe é menor do que f em misturas com Ne ou Ar, à exceção de regiões limitadas de E/N e E_{ph} . Por outro lado, para o mesmo gás nobre, f nas misturas aumenta em geral ao passar de CH₄ para CO₂ e deste para CF₄, mas com o aumento de η esta ordem sofre alterações, com f nas misturas com CH₄ ou CO₂ dominando em algumas regiões.

Por outro lado, f nas misturas tende a crescer com a concentração η do gás molecular, crescimento inicialmente rápido e que se torna mais lento para maiores valores de η , por vezes decrescendo após um máximo que chega a ultrapassar o valor de f atingido no gás molecular puro, efeito especialmente pronunciado em misturas com CO₂.

À parte do efeito da realimentação positiva da cintilação dos gases nobres, não incluída na simulação, verifica-se um bom acordo entre dados experimentais e de simulação para a eficiência f . Para reproduzir a emissão induzida pela lâmpada de Hg(Ar) de espectro *centrado* em $E_{ph} = 6.7$ eV

(185 nm, FWHM = 5 nm), a simulação usou as distribuições de energias de emissão ε_0 de fotoeletrões induzidos por feixes *monocromáticos* de fótons com $E_{\text{ph}} = 6.7$ eV ou $E_{\text{ph}} = 6.8$ eV, medidas em [78] e [72], respectivamente. Verificou-se que nos casos em que o acordo conseguido com a primeira distribuição se manifestou deficiente (algumas regiões de f em Ne-CO₂, Xe-CH₄, Ar-CF₄ e Xe-CF₄), foi conseguido um bom acordo quando se fez uso da segunda distribuição, mais alargada em ε_0 que a primeira, indicando a grande sensibilidade de f à distribuição de ε_0 (e E_{ph}). A reflexão de fotoeletrões pelo fotocátodo, que a simulação discutiu considerando coeficientes de reflexão $R = 0.2$ e 0.4 , não explica o tipo de desvios observados e indica que R para CsI será desprezável.

O estudo por simulação permitiu concluir que a recaptura dos elétrons pelo fotocátodo ocorre geralmente após um pequeno número de colisões dos elétrons e um curto afastamento ao fotocátodo, até ~ 50 μm , números que nos gases moleculares aumentam com E_{ph} ao contrário do que acontece nos gases nobres. Verificou-se ainda que nos gases nobres os elétrons que são recapturados geralmente alcançaram maiores distâncias ao fotocátodo e experimentam maior número de colisões do que nos gases moleculares, com o alcance a diminuir com E/N .

A extração de fotoeletrões é influenciada por vários fatores, nem sempre independentes entre si. Alguns não dependem da natureza do meio, como o campo elétrico E/N , que ajuda ao afastamento dos elétrons do fotocátodo, e a energia de emissão ε_0 dos fotoeletrões (relacionada com E_{ph}). Dois fatores que dependem da natureza do meio gasoso e estão associados à amplitude e relação entre as secções eficazes de difusão elástica e inelástica dos elétrons no meio são a penetração inicial λ dos fotoeletrões (afastamento atingido no primeiro percurso livre no gás) e a eficácia com que os fotoeletrões perdem a sua energia nas colisões.

Quanto menor for ε_0 (e E_{ph}) ou quanto mais eficaz for a perda de energia dos fotoeletrões, mais facilmente os fotoeletrões são guiados pelo campo elétrico e mais facilmente a energia é reduzida para valores que impossibilitam o seu regresso ao fotocátodo, o que favorece a extração dos fotoeletrões. Nesse sentido, constatou-se por simulação ser decisiva a ocorrência de colisões inelásticas a baixa energia nas primeiras colisões, como acontece nos gases moleculares puros (CH₄, CF₄, CO₂) e nas misturas estudadas com as excitações vibracionais, que competem eficientemente com a difusão elástica. Em contraste, nos gases nobres as colisões inelásticas são pouco frequentes porque os seus limiares, muito superiores a ε_0 , só são atingidos para campos E/N elevados e após numerosas colisões elásticas. Todavia, a eficácia com que os elétrons perdem energia nas colisões elásticas nos gases nobres puros, que depende da massa atômica do gás nobre, tem influência considerável na eficiência de extração f .

A penetração inicial λ , que quanto mais longa mais favorece a extração, reflete o comprimento do primeiro percurso livre (que geralmente inclui o efeito da anisotropia da difusão dos fotoeletrões) e o efeito de encaminhamento dos fotoeletrões pelo campo elétrico, facilitado pelos restantes fatores mencionados.

Por simulação, mostrou-se a clara correlação de f com a fração efetiva γ_v de colisões com excitação vibracional e com a penetração inicial λ dos fotoeletrões no meio gasoso.

Referências

- [1] M.A. Stoletow, *Sur les courants actino-électriques dans l'air raréfié*, *J. Physique* **9** (1890) 468-73; *Comptes Rendus* **108** (1889) 1241.
- [2] E.R. von Schweidler, *Comptes Rendus* **127** (1898) 224-6.
- [3] P. Lenard, *Erzeugung von kathodenstrahlen durch ultraviolette lichte*, *Ann. Physik* **2** (1900) 359-75.
- [4] W.M. Varley, *On the photo-electric discharge from metallic surfaces in different gases*, *Phil. Trans. A* **202** (1904) 439-57.
- [5] J.J. Thomson, *Conduction of electricity through gases* (Cambridge University Press, Cambridge) (1928) 466.
- [6] N.E. Bradbury, *Photoelectric currents in gases between parallel plates as a function of the potential difference*, *Phys. Rev.* **40** (1932) 980-7.
- [7] J.P. Molnar, *Studies of γ -processes of electron emission employing pulsed Townsend discharges on a millisecond time scale*, *Phys. Rev.* **83** (1951) 940-52.
- [8] J.K. Theobald, *Investigation of back diffusion of photoelectrons in various standard gases as it affects secondary electron emission coefficients*, *J. Appl. Phys.* **24** (1953) 123-7.
- [9] O.J. Orient, *Determination of the mean free path of slow electrons by the measurement of back-diffusion in helium and argon*, *Can. J. Phys.* **43** (1965) 422-31.
- [10] J.A. Dahlquist, *Back diffusion of electrons in nitrogen, hydrogen, and argon*, *Phys. Rev.* **128** (1962) 1988-92.
- [11] A. Békiarian, J.L. Delcroix e P. Ricateau, *Backscattering of electrons emitted by a cathode in a gaseous medium*, *Comptes Rendus Acad. Sc. B* **265** (1967) 238-41.
- [12] A. Békiarian, *Transport de charges dans un gaz, au voisinage d'une paroi et en présence d'un champ magnétique*, *J. Physique* **29** (1968) 434-42.
- [13] D. Felsch e P. Pech, *Rückstrahlungsmessungen photoelektrisch ausgeloster elektronen in edelgasen im homogenen feld*, *Beitr. Plasmaphysik* **13** (1973) 197-211.
- [14] P. Smejtek, M. Silver, K.S. Dy e D.G. Onn, *Hot electron injection into dense argon, nitrogen, and hydrogen*, *J. Chem. Phys.* **59** (1973) 1374-84.
- [15] P.H. Vidaud e A. von Engel, *Back-diffusion of electrons in argon in the presence of an electric field*, *J. Phys. D* **11** (1978) 1397-404.
- [16] S. Pareathumby e P. Segur, *Determination of the transmission factor of electrons in helium and argon for high values of the ratio electric field upon pressure*, *Lett. Nuovo Cimento* **26** (1979) 243-8.
- [17] I. Langmuir, *Diffusion of electrons back to an emitting electrode in a gas*, *Phys. Rev.* **38** (1931) 1656-63.
- [18] L.A. Young e N.E. Bradbury, *Photoelectric currents in gases between parallel plate electrodes*, *Phys. Rev.* **43** (1933) 34-7.
- [19] T. Itoh e T. Musha, *Monte Carlo calculations of motion of electrons in helium*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **15** (1960) 1675-80.
- [20] R.W.L. Thomas e W.R.L. Thomas, *Monte Carlo simulation of electrical discharges in gases*, *J. Phys. B* **2** (1969) 562-70.
- [21] J. Lucas, *A theoretical calculation of electron swarm properties in helium*, *Int. J. Electron.* **32** (1972) 393-410.

- [22] D.S. Burch e J.H. Whealton, *Monte Carlo calculation of electron back diffusion in a Townsend discharge*, *J. Appl. Phys.* **48** (1977) 2213-6.
- [23] P.J. Kuntz e W.F. Schmidt, *A classical trajectory Monte Carlo model for the injection of electrons into gaseous argon*, *J. Chem. Phys.* **76** (1982) 1136-45.
- [24] A. Breskin, *CsI UV photocathodes: History and mystery*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **371** (1996) 116-36.
- [25] V. Dangendorf, A. Breskin, R. Chechik e H. Schmidt-Böcking, *A gas-filled UV-photon detector with CsI photocathode for the detection of Xe light*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **289** (1990) 322-4.
- [26] A. Braem, A. Di Mauro, E. Nappi, A. Ljubicic Jr., G. Paic, F. Piuz, R.S. Ribeiro, T. Scognetti e T.D. Williams, *Fast RICH detector with a cesium iodide photocathode at atmospheric pressure*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **343** (1994) 163-72.
- [27] A. Breskin, *Photon detectors for the 21st century*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **387** (1997) 1-18.
- [28] G. Charpak, W. Dominik, F. Sauli e S. Majewski, *The gas photodiode as a possible large-area photon detector*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **30** (1983) 134-7.
- [29] D.F. Anderson, R. Bouclier, G. Charpak, S. Majewski e G. Kneller, *Coupling of a BaF₂ scintillator to a TMAE photocathode and a low-pressure wire chamber*, *Nucl. Instrum. Meth.* **217** (1983) 217-23.
- [30] J. Séguinot, G. Charpak, Y. Giomataris, V. Peskov, J. Tischhauser e T. Ypsilantis, *Reflective UV photocathodes with gas-phase electron extraction: Solid, liquid, and adsorbed thin films*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **297** (1990) 133-47.
- [31] C. Lu, K.T. McDonald e Y. Zhu, *Helium gas mixtures for ring imaging Cherenkov detectors with CsI photocathodes*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **334** (1993) 328-38.
- [32] E.M. Gushchin, A.N. Lebedev, S.V. Somov, V.P. Protasov, M.K. Timofeev e G.I. Tipografshchik, *A detector of Cherenkov-radiation rings based on gas photodiodes*, *Instrum. Exp. Tech.* **36** (1993) 754-8.
- [33] A. Breskin, A. Buzulutskov, R. Chechik, D. Vartsky, G. Malamud e P. Miné, *Electric field effects on the quantum efficiency of CsI photocathodes in gas media*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **344** (1994) 537-46.
- [34] A. Breskin, A. Buzulutskov, R. Chechik, A. Di Mauro, E. Nappi, G. Paic e F. Piuz, *Field-dependent photoelectron extraction from CsI in different gases*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **367** (1995) 342-46.
- [35] A. Di Mauro, E. Nappi, F. Posa, A. Breskin, A. Buzulutskov, R. Chechik, S.F. Biagi, G. Paic e F. Piuz, *Photoelectron backscattering effects in photoemission from CsI into gas media*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **371** (1996) 137-42.
- [36] A. Buzulutskov, L. Shekhtman, A. Bressan, A. Di Mauro, L. Ropelewski, F. Sauli e S. Biagi, *GEM operation in pure noble gases and the avalanche confinement*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **433** (1999) 471-5.
- [37] F. Sauli, *GEM: A new concept for electron amplification in gas detectors*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **386** (1997) 531-4.
- [38] A. Breskin, M. Balcerzyk, R. Chechik, G.P. Guedes, J. Maia e D. Mörmann, *Recent advances in gaseous imaging photomultipliers*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **513** (2003) 250-5.
- [39] A.F. Buzulutskov, *Radiation detectors based on gas electron multipliers (Review)*, *Instrum. Exp. Tech.* **50** (2007) 287-310.
- [40] A.F. Buzulutskov, *Gaseous photodetectors with solid photocathodes*, *Phys. Particles Nuclei* **39** (2008) 424-53.
- [41] R. Chechik e A. Breskin, *Advances in gaseous photomultipliers*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **595** (2008) 116-27.

- [42] A. Breskin, R. Alon, M. Cortesi, R. Chechik, J. Miyamoto, V. Dangendorf, J.M. Maia e J.M.F. dos Santos, *A concise review on THGEM detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **598** (2009) 107-11.
- [43] S. Dalla Torre, *Status and perspectives of gaseous photon detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **639** (2011) 111-6.
- [44] A. Breskin, V. Peskov, M. Cortesi, R. Budnik, R. Chechik, S. Duval, D. Thers, A.E.C. Coimbra, J.M.F. dos Santos, J.A.M. Lopes, C.D.R. Azevedo e J.F.C.A. Veloso, *CsI-THGEM gaseous photomultipliers for RICH and noble-liquid detectors*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **639** (2011) 117-20.
- [45] P.J.B.M. Rachinhas, J.A.M. Lopes, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Photoelectron collection efficiency in a xenon atmosphere: A Monte Carlo study*, **1999 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Seattle, USA) **2** (2000) 642-5.
- [46] T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, J.A.M. Lopes, F.P. Santos, L.M.N. Távora, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *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** **37** (2004) 540-9.
- [47] J. Escada, T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, J.A.M. Lopes, F.P. Santos, L.M.N. Távora, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *A Monte Carlo study of backscattering effects in the photoelectron emission from CsI into CH₄ and Ar-CH₄ mixtures*, **JINST** **2** (2007) P08001.
- [48] L.C.C. Coelho, H.M.N.B.L. Ferreira, J.A.M. Lopes, T.H.V.T. Dias, L.F.R. Ferreira, J.M.F. dos Santos, A. Breskin e R. Chechik, *Measurement of the photoelectron-collection efficiency in noble gases and methane*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **581** (2007) 190-3.
- [49] L.C.C. Coelho, J.A.M. Lopes, J. Escada, T.H.V.T. Dias e J.M.F. dos Santos, *Photoelectron transmission efficiency in Ar-CH₄ and Xe-CH₄ mixtures: Experimental results*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **607** (2009) 587-90.
- [50] J. Escada, T.H.V.T. Dias, P.J.B.M. Rachinhas, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, L.C.C. Coelho, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *A Monte Carlo study of photoelectron extraction efficiency from CsI photocathodes into Xe-CH₄ and Ne-CH₄ mixtures*, **J. Phys. D** **43** (2010) 065502.
- [51] J. Escada, L.C.C. Coelho, T.H.V.T. Dias, J.A.M. Lopes, J.M.F. dos Santos e A. Breskin, *Measurements of photoelectron extraction efficiency from CsI into mixtures of Ne with CH₄, CF₄, CO₂ and N₂*, **JINST** **4** (2009) P11025.
- [52] J. Escada, P.J.B.M. Rachinhas, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Photoelectron collection efficiency in mixtures of noble gases with CF₄*, **2006 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (San Diego, USA) **2** (2007) 1035-8.
- [53] J. Escada, P.J.B.M. Rachinhas, T.H.V.T. Dias, J.A.M. Lopes, F.P. Santos, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Photoelectron collection efficiency in Xe-CF₄ mixtures*, **2007 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Honolulu, USA) **1** (2008) 585-9.
- [54] J. Escada, P.J.B.M. Rachinhas, T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, J.A.M. Lopes, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Monte Carlo photoelectron transmission efficiency in CO₂ and Ar-CO₂ mixtures*, **2008 IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Record** (Dresden, Germany) **1** (2009) 951-4.
- [55] A. Buzulutskov, A. Breskin, R. Chechik, G. Garty, F. Sauli e L. Shekhtman, *The GEM photomultiplier operated with noble gas mixtures*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **443** (2000) 164-80.
- [56] A. Breskin, A. Buzulutskov e R. Chechik, *GEM photomultiplier operation in CF₄*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **483** (2002) 670-5.

- [57] B. Azmoun, A. Caccavano, Z. Citron, M. Durham, T. Hemmick, J. Kamin, M. Rumore e C. Woody, *Collection of photoelectrons and operating parameters of CsI photocathode GEM detectors*, **IEEE Trans. Nucl. Sci.** **56** (2009) 1544-9.
- [58] C.D.R. Azevedo, M. Cortesi, A.V. Lyashenko, A. Breskin, R. Chechik, J. Miyamoto, V. Peskov, J. Escada, J.F.C.A. Veloso e J.M.F. dos Santos, *Towards THGEM UV-photon detectors for RICH: On single-photon detection efficiency in Ne/CH₄ and Ne/CF₄*, **JINST** **5** (2010) P01002.
- [59] D.S. Covita, C.D.R. Azevedo, C.C. Caldas e J.F.C.A. Veloso, *Photoelectron extraction efficiency from cesium iodide photocathodes in a pressurized atmosphere of argon and xenon up to 10 bar*, **Phys. Lett. B** **701** (2011) 151-4.
- [60] D. Mörmann, *Study of novel gaseous photomultipliers for UV and visible light*, **Ph.D Thesis**, Weizmann Institute of Science (Rehovot, Israel) **2005**.
- [61] A. Lyashenko, *Development of gas-avalanche photomultipliers sensitive in the visible spectral range*, **Ph.D Thesis**, Weizmann Institute of Science (Rehovot, Israel) **2009**.
- [62] A.V. Phelps e Z.Lj. Petrović, *Cold-cathode discharges and breakdown in argon: Surface and gas phase production of secondary electrons (Review article)*, **Plasma Sources Sci. Technol.** **8** (1999) R21-R44.
- [63] M. Radmilović e Z.Lj. Petrović, *Modeling of back diffusion of electrons in argon*, **Eur. Phys. J. Appl. Phys.** **11** (2000) 35-42.
- [64] M. Radmilović-Radjenović, A. Nina e Ž. Nikitović, *Monte Carlo simulation of the back-diffusion of electrons in nitrogen*, **Nucl. Instrum. Meth. B** **267** (2009) 302-4.
- [65] V.A. Shveigert, *Coefficient of transmission of electrons in inert gases*, **High Temp.** **27** (1989) 195-8.
- [66] M.S. Benilov e A.V. Lyashko, *Energy relaxation of the emitted electrons in the cathode region of a high-pressure weakly ionized plasma*, **Sov. Phys. – Tech. Phys.** **36** (1991) 601-6.
- [67] V.P. Nagorny e P.J. Drallos, *Effective secondary emission coefficient in a high-pressure noble gas*, **Plasma Sources Sci. Technol.** **6** (1997) 212-9.
- [68] A.A. Kudryavtsev e L.D. Tsendin, *Cathode boundary conditions for fluid model discharges on the right-hand branch of the Paschen curve*, **Tech. Phys. Lett.** **28** (2002) 621-4.
- [69] M.S. Benilov e G.V. Naidis, *Asymptotic calculation of escape factor in atomic plasmas*, **J. Phys. D** **38** (2005) 3599-608.
- [70] M.S. Benilov, G.V. Naidis, Z.Lj. Petrovic, M. Radmilovic-Radjenovic e A. Stojkovic, *Escape factors for thermionic cathodes in atomic gases in a wide electric field range*, **J. Phys. D** **39** (2006) 2959-63.
- [71] M.S. Dincer, O.C. Ozerdem e S. Bektas, *Back diffusion of electrons in Ar, SF₆ and Ar+SF₆ binary mixtures*, **IEEE Trans. Plasma Sci.** **38** (2010) 469-73.
- [72] T.H. DiStefano e W.E. Spicer, *Photoemission from CsI: Experiment*, **Phys. Rev. B** **7** (1973) 1554-64.
- [73] T. Boutboul, A. Akkerman, A. Gibrekhterman, A. Breskin e R. Chechik, *A improved model for ultraviolet- and X-ray-induced electron emission from CsI*, **J. Appl. Phys.** **86** (1999) 5841-9.
- [74] A. Buzulutskov, A. Breskin e R. Chechik, *Field enhancement of the photoelectric and secondary electron emission from CsI*, **J. Appl. Phys.** **77** (1995) 2138-45.
- [75] J.R. Losee e D.S. Burch, *The use of platinum black for improved electron collection*, **Rev. Sci. Instrum.** **43** (1972) 146-7.
- [76] N.L.S. Martin e A. von Engel, *The reflection of slow electrons from a soot-covered surface*, **J. Phys. D** **10** (1977) 863-8.

- [77] T.P. Ershova, V.V. Korablev, Y.A. Morozov e S.G. Ershov, *Some characteristics of the elastic reflection of slow electrons from a solid*, **Sov. Phys. Solid State** **21** (1979) 1071-2.
- [78] E. Shefer, A. Breskin, T. Boutboul, R. Chechik e B.K. Singh, *Photoelectron transport in CsI and CsBr coating films of alkali antimonide and CsI photocathodes*, **J. Appl. Phys.** **92** (2002) 4758-71.
- [79] L.C.C. Coelho, *Estudo da retrodifusão de fotoelétrões em atmosfera gasosa*, **Tese de Mestrado**, Universidade de Coimbra, 2007.
- [80] F.D. Amaro, *Ion back-flow reduction in gaseous detectors with the micro hole and strip plate*, **Tese de Doutorado**, Universidade de Coimbra, 2010.
- [81] T. Tabata, T. Shirai, M. Sataka e H. Kubo, *Analytic cross sections for electron impact collisions with nitrogen molecules*, **Atomic Data Nucl. Data Tables** **92** (2006) 375-406; Errata: **98** (2012) 74.

Capítulo 5

Eletroluminescência em Xe dopado com CH₄ ou CF₄: Estudo de Monte Carlo

Este capítulo é destinado ao estudo por simulação de Monte Carlo da eletroluminescência (EL) produzida por átomos de Xe em meio gasoso de Xe dopado com CH₄ ou CF₄, com o objetivo de avaliar a possibilidade da sua utilização em aplicações onde seja conveniente reduzir a difusão e aumentar velocidade de deriva dos elétrons primários relativamente a Xe puro. O modelo de simulação de Monte Carlo e as secções eficazes utilizadas, bem como os parâmetros de deriva de elétrons neste tipo de misturas, foram já apresentados no **capítulo 3**.

A partir do trabalho pioneiro de Conde e Policarpo [1-4], foi desenvolvido o Contador Gasoso de Cintilação Proporcional (GPSC), cujo princípio de funcionamento, baseado na produção de eletroluminescência (EL), e principais características estão descritos na **secção 2.1**. Na região de cintilação de um GPSC, os elétrons primários derivam sob a influência de um campo elétrico reduzido E/N suficiente para excitar mas não ionizar os átomos do gás raro de enchimento, usualmente xénon ou argón, produzindo fotões VUV de cintilação secundária (172 nm (7.2 eV) em Xe), com um elevado rendimento e flutuações desprezáveis. Em Xe puro, a região de operação abrange campos elétricos reduzidos E/N de ~3 a ~17 Td (região de maior relevância é abordada neste estudo), onde sob a ação de um campo elétrico uniforme o rendimento de EL apresenta um comportamento aproximadamente linear com E/N , como estabelecido em [4].

O gás nobre xénon, pelas suas características (elevado número atómico, grande eficiência de ionização, alto rendimento de EL, estabilidade dentro de uma vasta gama de temperaturas e emissão defotões de EL em região de boa transmissão das janelas de cintilação e de boa eficiência de extração em fotocátodos de CsI), é o gás habitualmente usado no enchimento de detetores gasosos, que são alvo de inúmeras aplicações numa vasta gama de energias, desde instrumentação médica a astrofísica e a

física das altas energias. Em particular, experiências que requerem boa resolução em energia e posição socorrem-se frequentemente da EL em Xe como técnica de amplificação. Destas experiências fazem parte detectores a alta pressão pesquisando o decaimento beta duplo sem produção de neutrino ($0\nu\beta\beta$) [5-8] ou matéria negra [9,10]. O projeto NEXT (*Neutrino Experiment with a Xenon TPC*), em particular, vai recorrer à produção de EL em Xe a 10 atm numa TPC (*Time Projection Chamber*) de grandes dimensões (~1 m de comprimento) para investigar o decaimento $0\nu\beta\beta$ do isótopo ¹³⁶Xe.

Todavia, em grandes detectores como no caso da experiência NEXT, o baixo valor da velocidade de deriva e a elevada difusão dos elétrons em Xe puro são um inconveniente, uma vez que os elétrons primários derivam grandes distâncias até atingirem a região de cintilação. De modo a ultrapassar, ou pelo menos minorar, este problema, foi considerada a adição de uma pequena percentagem de um gás molecular a Xe, com os efeitos já analisados na **secção 3.3**.

Este assunto motivou o estudo por simulação de Monte Carlo apresentado neste capítulo. No entanto, enquanto a adição de CH₄ ou CF₄ a Xe pode, por um lado, reduzir a difusão e aumentar a velocidade de deriva dos elétrons (efeito relacionado com a ocorrência de excitação vibracional das moléculas), por outro lado, provoca a diminuição do rendimento de EL e o aumento considerável das flutuações associadas (efeitos acarretados essencialmente pela presença do processo de captura de elétrons pelas moléculas e de mecanismos inibidores da cintilação). Este estudo ambiciona avaliar a viabilidade da utilização de Xe dopado com CH₄ ou CF₄ em detectores usando EL de Xe, requerendo a escolha da composição da mistura a utilizar um compromisso entre a desejável melhoria dos parâmetros de deriva de elétrons na região de absorção/deriva e a inevitável degradação das características da EL de Xe relativamente a Xe puro.

É de assinalar que, com a adição de gás molecular, especialmente CF₄, a história de um eletrão pode terminar prematuramente, o que acontece quando o eletrão é capturado por uma molécula antes de atravessar toda a região de cintilação. Nesse caso, cessa aí a sua contribuição para a EL, sendo óbvio o aumento das flutuações na produção de EL que o processo implica.

Como resultado de uma análise prévia, escolheu-se examinar os meios gasosos em que Xe é dopado com três diferentes concentrações de cada gás molecular: 0.1%, 0.5% e 1% de CH₄ e 0.01%, 0.05% e 0.1% de CF₄ (note-se que a gama das concentrações dos dois aditivos se relaciona por uma ordem de grandeza).

Para as misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄, são apresentadas na **secção 5.1** a velocidade de deriva w e as energias características ε_{kL} e ε_{kT} dos elétrons, refletindo estas a difusão longitudinal e transversal da nuvem, respetivamente. Para as mesmas misturas, são examinados na **secção 5.2** os resultados de EL, comparando o rendimento de EL e respetivas flutuações com os correspondentes resultados calculados para Xe puro, o que é acompanhado de uma análise justificativa.

5.1 Efeito da dopagem nos parâmetros de deriva

Nesta secção, são analisados os parâmetros de deriva de elétrons calculados em Xe e nas misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄ com as baixas concentrações relevantes para o presente estudo ($\leq 1\%$). A definição e o processo de cálculo dos parâmetros de deriva foram descritos na **secção 3.3**. Uma amostra de pelo menos 2×10^4 elétrons com energia inicial nula é seguida no meio gasoso, à pressão $p = 1$ atm e temperatura $T = 273$ K, durante um tempo de deriva suficientemente grande para garantir o cálculo correto dos valores de equilíbrio para cada campo elétrico uniforme aplicado. De notar que os parâmetros de deriva são independentes da pressão, até valores ligeiramente superiores a cerca de 10 atm em Xe [11,12].

Os resultados para a velocidade de deriva w e energias características ε_{kL} e ε_{kT} em Xe e nas misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄ estão representados nas **Figs. 5.1** e **5.2** em função do campo elétrico reduzido E/N .

Tal como já verificado na **secção 3.3** para a velocidade de deriva w , as **Figs. 5.1** e **5.2** mostram que a adição de CH₄ ou CF₄ a Xe, ainda que em muito pequenas concentrações, modifica significativamente as características da difusão dos elétrons no meio gasoso, permitindo a diminuição da difusão longitudinal e transversal, representadas pelas energias características ε_{kL} e ε_{kT} , bem como o aumento da velocidade de deriva w , numa gama de E/N que varia com a concentração do gás molecular e com o parâmetro de deriva considerado. Como evidenciado para Xe-CF₄ na **secção 3.3.3**, este efeito está relacionado com uma eficaz perda de energia dos elétrons, proporcionada, para baixas energias de impacto, pela ocorrência de colisões com excitação vibracional das moléculas (grandes secções eficazes para a excitação vibracional emergem na região do mínimo de Ramsauer-Townsend das secções eficazes para a colisão elástica, ver **Figs. 3.2** a **3.4**).

Num detetor gasoso onde a amplificação se baseia na produção de EL numa região de cintilação, os elétrons primários produzidos na região de absorção/deriva derivam sob a ação dum campo elétrico uniforme aplicado suficiente para os guiar até à região de cintilação, mas suficientemente baixo para não permitir a excitação eletrónica. Num detetor com enchimento de Xe, isto implica que sejam escolhidos campos de deriva inferiores a $E/N \sim 2.5$ Td (o limiar de excitação é ~ 3 Td), numa região de E/N onde, como se observa nas **Figs. 5.1** e **5.2**, a dopagem com CH₄ ou CF₄ permite a otimização dos parâmetros de deriva nas misturas através de uma escolha criteriosa da composição da mistura e do valor de E/N .

Todavia, a melhoria nos parâmetros de deriva dos elétrons primários é sempre alcançada à custa de uma diminuição do rendimento de EL e de um aumento das correspondentes flutuações como se verá na **secção 5.2.2**, o que obriga à procura de um compromisso entre os dois efeitos.

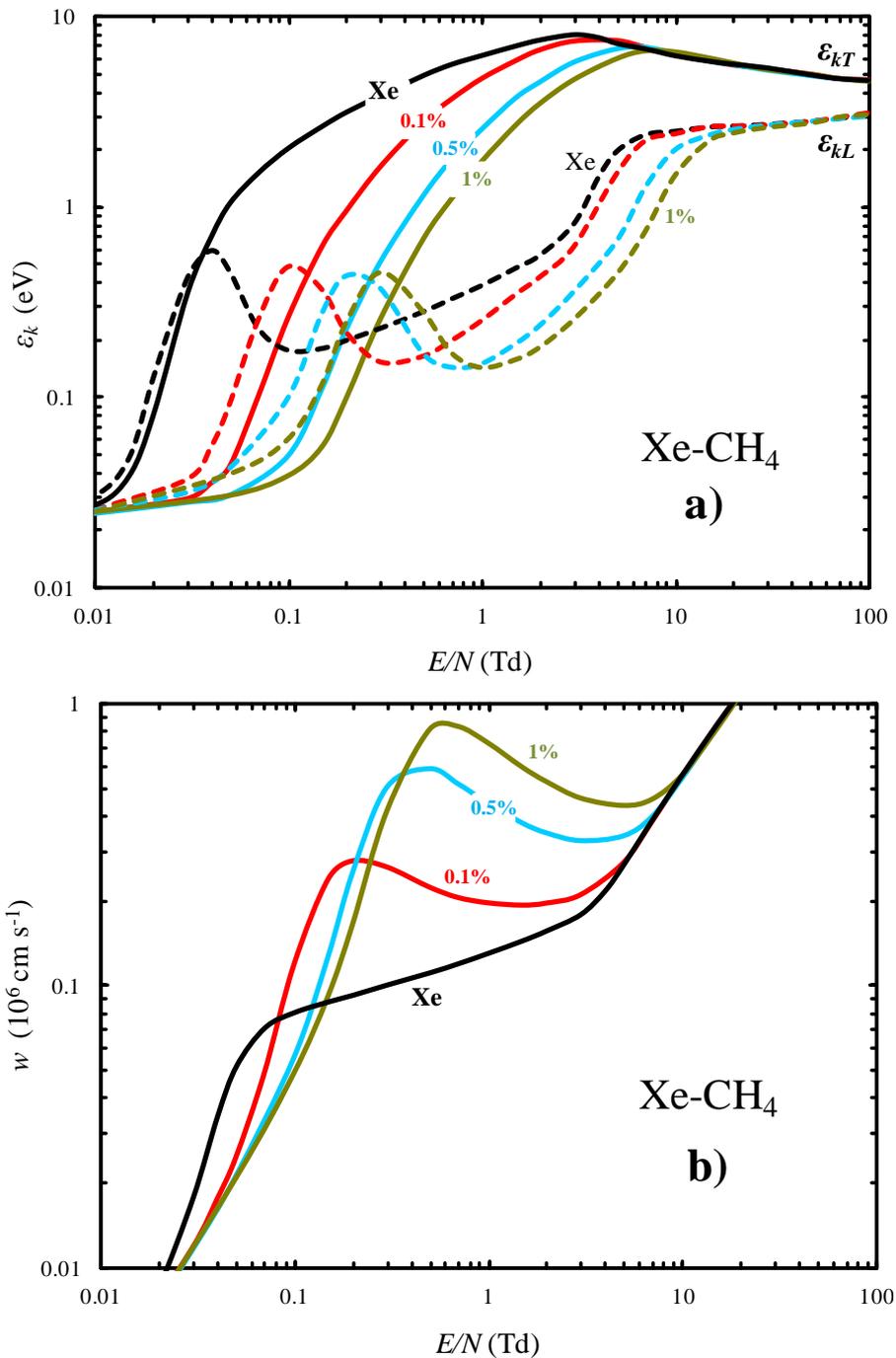


Figura 5.1 – Resultados de Monte Carlo para **a)** energias características ϵ_{kT} e ϵ_{kL} e **b)** velocidade de deriva w dos elétrons, em função do campo elétrico reduzido E/N , em Xe puro e nas misturas Xe-CH₄ com concentração de CH₄ $\eta_{\text{CH}_4} = 0.1\%$, 0.5% e 1% .

5.2 Efeito da dopagem na eletroluminescência

Nesta secção, é examinada a produção de EL nos meios gasosos em análise neste capítulo, seguindo a deriva de uma amostra de 5×10^3 elétrons, inicialmente com energia térmica, ao longo de uma distância de cintilação $D = 0.5 \text{ cm}$ no meio gasoso, à pressão $p = 10 \text{ atm}$ e temperatura $T = 273 \text{ K}$,

sob a influência de um campo elétrico uniforme de cintilação. É de lembrar que, na experiência proposta pelo NEXT, a TPC operará a pressão desta ordem. A emissão dos fótons de cintilação que ocorre na sequência da excitação dos átomos de Xe é realizada de acordo com os vários mecanismos de desexcitação, como a seguir se descreve.

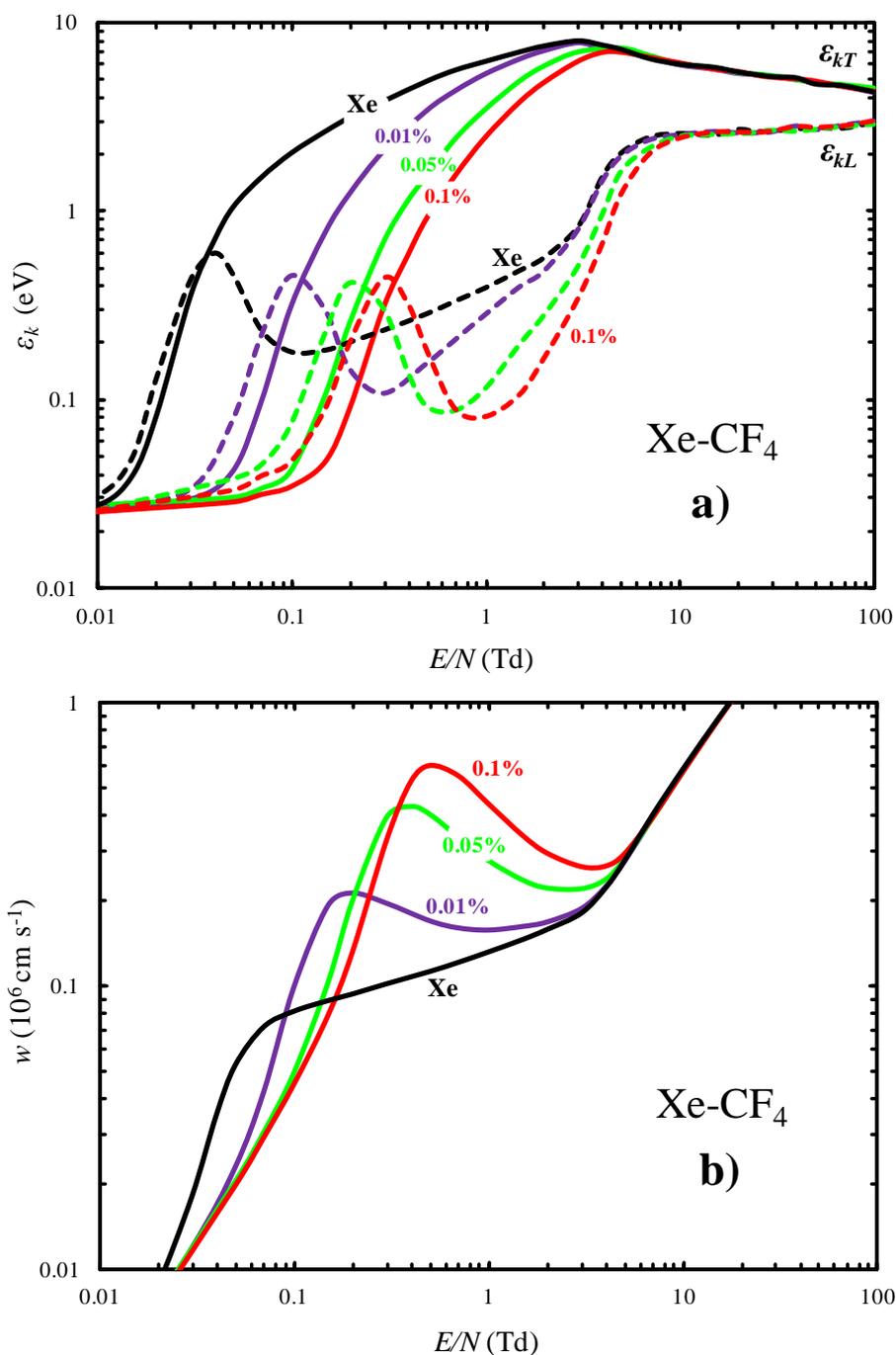


Figura 5.2 – Resultados de Monte Carlo para **a)** energias características ϵ_{kT} e ϵ_{kL} e **b)** velocidade de deriva w dos elétrons, em função do campo elétrico reduzido E/N , em Xe puro e nas misturas Xe-CF₄ com concentração de CF₄ $\eta_{\text{CF}_4} = 0.01\%$, 0.05% e 0.1% .

5.2.1 Emissão de cintilação

Em Xe puro, admite-se na simulação que por cada átomo de Xe que é excitado é emitido um fóton VUV de cintilação; já em Xe-CH₄ ou Xe-CF₄ tal não acontece, devido à presença de mecanismos de desexcitação colisional que competem com a formação dos excímeros Xe₂^{*}, que são os emissores de cintilação.

Os estados excitados Xe^{*}(1s₅) e Xe^{*}(1s₄) são os precursores diretos dos excímeros Xe₂^{*} em colisões a 3 corpos com átomos de Xe (**Eq. 2.3**). Na gama de E/N examinada, praticamente só os níveis atômicos mais baixos de Xe são excitados, mas quando eventualmente algum dos restantes (onze) estados de Xe considerados são excitados, assume-se que decaem para 1s₅ e 1s₄ com igual probabilidade.

Nas misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄, os estados Xe^{*}(1s₅) e Xe^{*}(1s₄) podem ser desativados através dos três mecanismos alternativos descritos na **secção 2.1**: formação do excímero Xe₂^{*} (**Eq. 2.3**), colisão com uma molécula (**Eq. 2.4**) e colisão a 3 corpos, com um átomo e uma molécula (**Eq. 2.5**), cujas constantes de reação são apresentadas na **Tab. 5.1**. Por cada excímero formado é assumida a emissão de um fóton de cintilação.

As constantes da reação adotadas são baseadas nas várias fontes indicadas na **Tab. 5.1**. Relativamente aos mecanismos de inibição da formação de excímeros (**Eqs. 2.4 e 2.5**), é assumido que as constantes de reação para Xe^{*}(1s₅) se aplicam também a Xe^{*}(1s₄), para colisões quer a 2 [13-15] quer a 3 corpos [15,16]. A constante k_7 foi deduzida com base em recentes medidas de cintilação descritas em [17,18] para seis diferentes misturas Xe-CH₄. Devido à ausência de dados relativamente à constante de reação k_9 para o mecanismo inibidor a 3 corpos em Xe-CF₄, k_9 foi obtida a partir de k_7 assumindo que a relação k_5/k_3 para os mecanismos inibidores a 2 corpos se mantém para os mecanismos inibidores a 3 corpos ($k_5/k_3 = k_9/k_3$).

Tabela 5.1 – Constantes de reação utilizadas na simulação para os mecanismos de desativação dos estados excitados Xe^{*}(1s₅) e Xe^{*}(1s₄) nas misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄.

Mecanismo		Xe [*] (1s ₅)	Xe [*] (1s ₄)
	Xe		
(Eq. 2.3) – k (cm⁻⁶ s⁻¹)	Xe-CH₄	$k_1 = 8.10 \times 10^{-32}$ [19]	$k_2 = 1.47 \times 10^{-31}$ [19]
	Xe-CF₄		
(Eq. 2.4) – k (cm⁻³ s⁻¹)	Xe-CH₄	$k_3 = 3.15 \times 10^{-10}$ [20]	$k_4 = k_3$
	Xe-CF₄	$k_5 = 2.40 \times 10^{-13}$ [20]	$k_6 = k_5$
(Eq. 2.5) – k (cm⁻⁶ s⁻¹)	Xe-CH₄	$k_7 = 2.5 \times 10^{-29}$ [17,18]	$k_8 = k_7$
	Xe-CF₄	$k_9 = k_7 (k_5/k_3) = 1.9 \times 10^{-32}$	$k_{10} = k_9$

É de notar que embora CF₄ possa decair radiativamente após excitação dissociativa da molécula [21,22], esta emissão é quase insignificante para as concentrações de CF₄ e campos elétricos reduzidos considerados, não sendo, por isso, tida em conta.

5.2.2 Resultados e análise

Como exposto na **secção 2.1**, um eletrão que atravessa a região de cintilação produz um número \mathcal{H} de fótons de cintilação, com uma distribuição caracterizada pela média $\overline{\mathcal{H}}$ e variância relativa $J = \sigma_{\mathcal{H}}^2 / \overline{\mathcal{H}}$. Como descrito na **secção 2.1.1**, na resolução intrínseca R_{int} do GPSC o termo $Q = J / \overline{\mathcal{H}}$ vem adicionado ao fator de Fano $F = \sigma_n^2 / \bar{n}$, que mede as flutuações no número n de eletrões primários ($R_{\text{int}}^2 = 2.35^2 (1/\bar{n})(F + Q)$).

O rendimento de EL $\overline{\mathcal{H}}$ numa distância D (**Fig. 5.3**) e o rendimento reduzido por unidade de comprimento Y/N apresentam um crescimento aproximadamente linear com E/N , como foi primeiro assinalado em [4] e confirmado através de resultados absolutos de simulação de Monte Carlo [23] (com modelo semelhante ao presente) e de medidas absolutas recentes [24]. Os resultados em [23] e [24] Xe puro foram traduzidos, respetivamente, pelas **Eqs. 5.1** e **5.2** (E/N em Td)

$$Y/N (10^{-17} \text{ cm}^2) = -0.402 + 0.1389 E/N \quad (5.1)$$

$$Y/N (10^{-17} \text{ cm}^2) = -0.474 + 0.14 E/N \quad (5.2)$$

Na **Fig. 5.3** são apresentados os resultados de Monte Carlo para o rendimento de EL $\overline{\mathcal{H}}$ em Xe e nas misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄ investigadas neste capítulo, para valores de E/N inferiores ao limiar de ionização, e na **Fig. 5.4** são mostrados os resultados correspondentes para o termo $Q = J / \overline{\mathcal{H}}$. Na **Fig. 5.3** são também incluídos os resultados para $\overline{\mathcal{H}}$ em Xe correspondentes às **Eqs. 5.1** e **5.2**, para as presentes condições ($D = 0.5$ cm e $p = 10$ atm), verificando-se a existência de um acordo satisfatório com os presentes resultados de Monte Carlo para Xe puro.

Na **Fig. 5.3** observa-se que $\overline{\mathcal{H}}$ é muito sensível aos aditivos moleculares que, apesar da sua presença em pequenas concentrações η , originam uma diminuição expressiva de \mathcal{H} , sendo muito mais pronunciado o efeito de CF₄ do que de CH₄ (note-se que a gama de η_{CF_4} é uma ordem de grandeza inferior à de η_{CH_4}). Este efeito obriga ao aumento de E/N , quando possível, para atingir idênticos valores de \mathcal{H} .

A diminuição de \mathcal{H} causada pela adição de CH₄ ou CF₄, é explicada por quatro fatores.

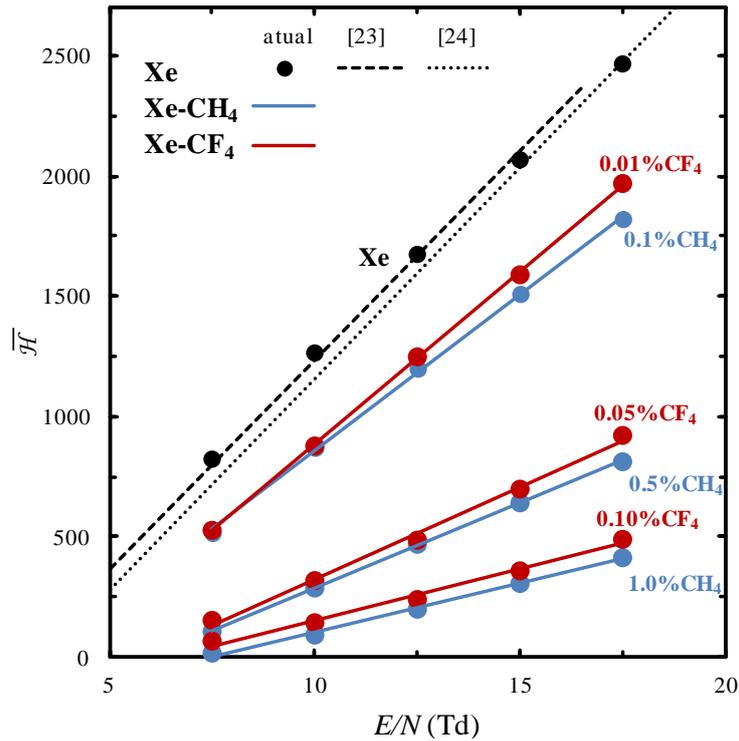


Figura 5.3 – Resultados de Monte Carlo para o rendimento de eletroluminescência $\bar{\mathcal{H}}$ produzido por elétrons que derivam uma distância $D = 0.5$ cm numa região de cintilação sob a influência de um campo elétrico reduzido E/N uniforme em Xe puro ou em misturas Xe-CH₄ ou Xe-CF₄, com as concentrações de CH₄ e CF₄ indicadas, à pressão $p = 10$ atm e temperatura $T = 293$ K. As retas descontínuas representam o ajuste determinado em [23] a dados de Monte Carlo e em [24] a dados experimentais (Eqs. 5.1 e 5.2, respetivamente).

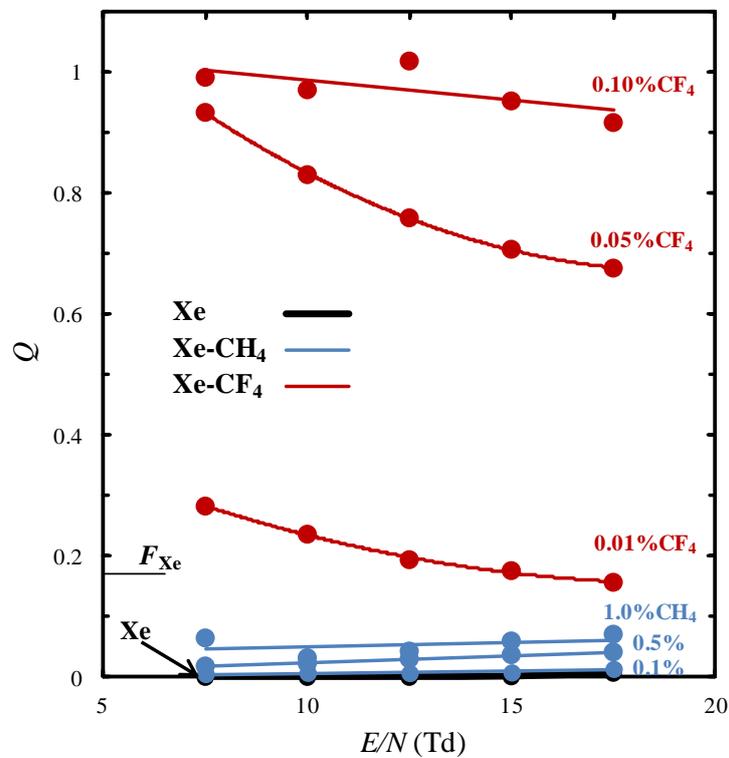


Figura 5.4 – Resultados de Monte Carlo para o parâmetro das flutuações $Q = J / \bar{\mathcal{H}}$, onde $J = \sigma_{\mathcal{H}}^2 / \bar{\mathcal{H}}$ é a variância relativa do número \mathcal{H} de fótons emitidos durante a deriva de cada elétron, correspondendo aos valores do rendimento de eletroluminescência $\bar{\mathcal{H}}$ na Fig. 5.3. F_{Xe} é o fator de Fano em Xe.

Em primeiro lugar, (i) a energia média dos elétrons é, para o mesmo valor de E/N , menor nas misturas do que em Xe puro, em consequência da eficaz moderação da energia dos elétrons pelas interações com excitação vibracional das moléculas (**secção 3.3.3**), para energias onde é menos provável a excitação dos átomos de Xe.

Além disso (ii) é menor a frequência de colisão dos elétrons com átomos de Xe nas misturas, em resultado direto da menor percentagem de átomos de Xe nas misturas.

Um fator que pode assumir grande importância é (iii) a captura de elétrons pelas moléculas do aditivo durante o seu movimento de deriva para o ânodo, resultando na supressão prematura da emissão de EL associada a esses elétrons.

Por último, contribui também para a diminuição de \mathcal{H} o efeito (iv) de inibição da emissão de EL causado por mecanismos associados à presença do gás molecular que, como descrito na **secção 2.1.3**, competem com a formação dos excímeros Xe₂^{*}, as espécies emissoras da cintilação.

De modo a ilustrar o papel de cada um destes fatores na diminuição de $\bar{\mathcal{H}}$ nas misturas Xe-CH₄ e Xe-CF₄ em relação a Xe puro, são apresentados na **Tab. 5.2** as suas contribuições, tomando como exemplo $E/N = 15$ Td e uma concentração de aditivo $\eta = 0.1\%$. Os resultados mostram que o efeito que mais contribui em Xe-CH₄ é a inibição da formação de excímeros (iv) e em Xe-CF₄ é a captura de elétrons (iii), sendo este responsável por muito maior perda de $\bar{\mathcal{H}}$ (75.6%) do que aquele (22%).

Tabela 5.2 – Contribuições dos fatores (i), (ii), (iii) e (iv) descritos no texto para a perda de rendimento de eletroluminescência $\bar{\mathcal{H}}$ quando a Xe se adiciona 0.1% de CH₄ ou de CF₄, para $E/N = 15$ Td.

Meio gasoso	(i)	(ii)	(iii)	(iv)	Total
Xe-0.1%CH₄	3.6%	0.1%	1.2%	22.0%	26.9%
Xe-0.1%CF₄	7.0%	0.1%	75.6%	0.0%	82.7%

Na **Fig. 5.4** verifica-se que não é de esperar que a resolução intrínseca em energia se deteriore apreciavelmente para as misturas Xe-CH₄ investigadas ($0.1\% \leq \eta_{\text{CH}_4} \leq 1\%$), uma vez que os respetivos valores de Q permanecem muito inferiores ao fator de Fano em Xe ($F_{\text{Xe}} \sim 0.17$ [25-27]). Pelo contrário, para as misturas Xe-CF₄ observa-se que o parâmetro Q é muito sensível a η_{CF_4} , tomando valores que se aproximam da unidade para concentrações tão diminutas quanto $\eta_{\text{CF}_4} = 0.1\%$. Em consequência, é de excluir CF₄ como aditivo a Xe, uma vez que a resolução intrínseca em Xe-CF₄ se torna demasiado elevada, mesmo para η_{CF_4} de valor muito reduzido, e muito sensível a η_{CF_4} .

Por outro lado, é de presumir que o fator de Fano nas misturas investigadas seja superior ao valor em Xe puro (em CH₄ puro, foi medido $F \sim 0.28$ em [28]), mas, para os baixos valores de η examinados, não se espera que se afaste apreciavelmente de F_{Xe} , não afetando portanto a presente análise.

A **Fig. 5.5** mostra os resultados da fração ξ dos elétrons que, durante o seu trajeto na região de cintilação, são capturados pelas moléculas das misturas gasosas, antes de percorrerem toda a distância de deriva D até o ânodo. A comparação entre as **Figs. 5.4** e **5.5** mostra uma correlação clara entre as

curvas para o parâmetro Q relativo às flutuações e as curvas ξ relativas à captura dos elétrons. Os elevados valores de Q observados em Xe-CF₄ refletem a captura dos elétrons, que obviamente conduz à diminuição de \bar{H} e origina um elevado valor das flutuações J em \mathcal{H} . O efeito da captura de elétrons por moléculas de CF₄ é muito mais intenso do que pelas de CH₄, porque a secção eficaz que descreve este processo em CF₄ é cerca de uma ordem de grandeza superior do que em CH₄ (comparar **Figs. 3.3** e **3.4**, na **secção 3.1.2**).

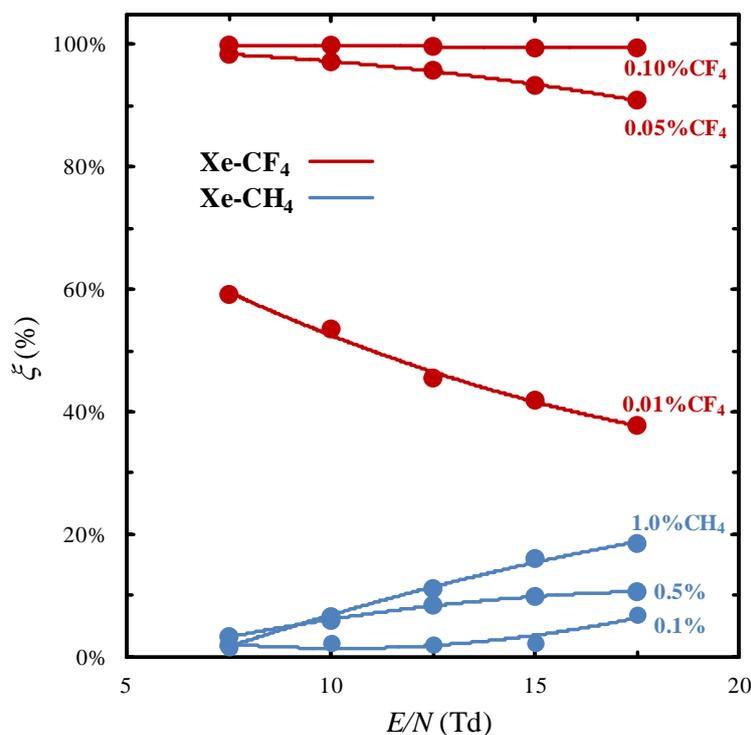


Figura 5.5 – Resultados de Monte Carlo para a fração ξ dos elétrons que são capturados por moléculas de CH₄ ou CF₄, correspondendo aos valores do rendimento de eletroluminescência \bar{H} na **Fig. 5.3**.

Os resultados apresentados nesta secção foram calculados considerando o meio gasoso à pressão $p = 10$ atm, a pressão de interesse neste estudo. Em Xe, os resultados de \mathcal{H} apresentados para $p = 10$ atm são escaláveis para menores pressões, uma vez que os efeitos de pressão em Xe só se fazem sentir a partir de ~ 10 atm, e \mathcal{H} depende apenas da distância reduzida pD . O mesmo não se pode afirmar para \mathcal{H} nas misturas, onde \mathcal{H} passa a depender também da pressão p , uma vez que os mecanismos de inibição ocorrem de acordo com probabilidades que variam com a pressão. De modo a mostrar esta dependência de \bar{H} com a pressão nas misturas, são apresentados na **Fig. 5.6** valores normalizados de \bar{H} em Xe-0.1%CH₄ e Xe-0.1%CF₄ calculados a distância reduzida pD constante na gama de pressão de 1 a 10 atm, para $E/N = 15$ Td, um campo elétrico reduzido típico. A **Fig. 5.6** mostra que na mistura com CF₄ a curva é praticamente invariável com a pressão, porque as probabilidades de ocorrência dos mecanismos de inibição, apesar de serem dependentes da pressão, são praticamente irrelevantes na diminuição de \mathcal{H} , como evidenciado na coluna (iv) da **Tab. 5.2**. Por outro lado, na mistura com CH₄, os mecanismos de inibição são marcantes na perda de EL (coluna (iv) da **Tab. 5.2**) e na **Fig. 5.6** já se observa uma clara dependência com a pressão, contudo, constatou-se

ainda que o parâmetro $Q = J / \bar{H}$ permanece desprezável na gama de 1 a 10 atm e que a dependência de Q com a pressão não é significativa. Note-se que a diferentes valores de pD correspondem distintas curvas de \bar{H} , mas o procedimento de normalização dos dados na **Fig. 5.6** permite que a dependência de \bar{H} com a pressão seja caracterizada por uma única curva para cada mistura. Apesar de os dados da **Fig. 5.6** corresponderem a $E/N = 15$ Td, foi comprovado que estas curvas são praticamente invariáveis à alteração de E/N dentro da gama de interesse para a produção de EL.

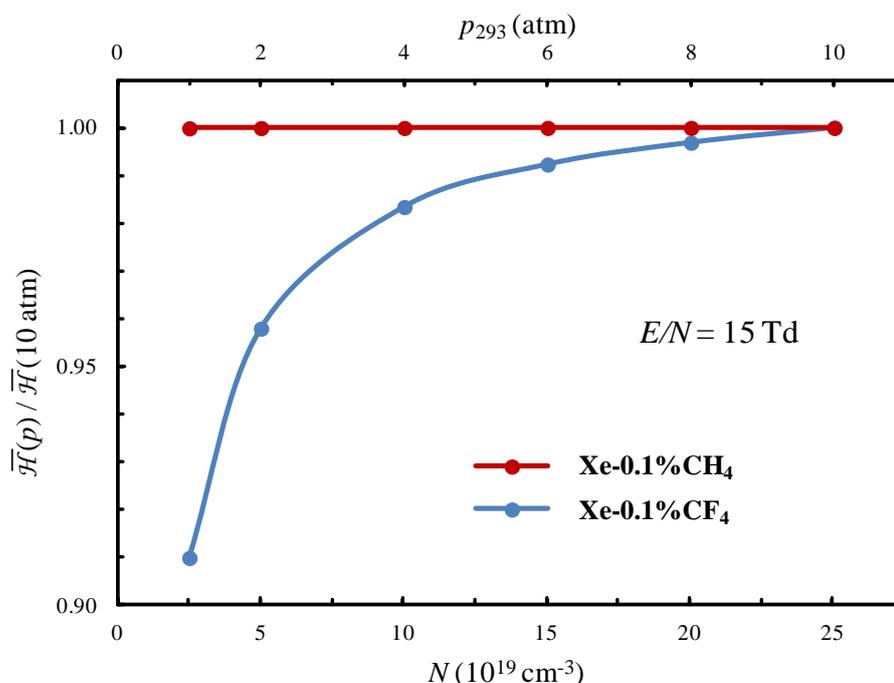


Figura 5.6 – Resultados de Monte Carlo para o rendimento de eletroluminescência relativo $\bar{H}(p) / \bar{H}(10 \text{ atm})$ nas misturas Xe-0.1%CH₄ e Xe-0.1%CF₄ em função da pressão, na gama de 1 a 10 atm ($T = 293$ K), para uma distância reduzida pD constante e para o campo elétrico reduzido uniforme de $E/N = 15$ Td.

5.3 Conclusões

A adição a Xe de um dos gases moleculares CH₄ ou CF₄ origina um aumento da velocidade de deriva e uma redução da difusão da nuvem de elétrons primários, efeitos associados à introdução de colisões com excitação vibracional das moléculas, que moderam eficientemente a energia dos elétrons (**secção 3.3.3**). Em detetores de grandes dimensões com enchimento a Xe, a dopagem com estes aditivos pode ser vantajosa porque os elétrons têm de derivar grandes distâncias para atravessar a região de absorção/deriva antes de atingirem a região onde ocorre o estágio de amplificação. Em algumas aplicações com grandes detetores, como na projetada experiência NEXT para estudo do decaimento beta duplo de ¹³⁶Xe, a amplificação será baseada na produção de eletroluminescência (EL) de Xe em regime abaixo do limiar de multiplicação em carga, de modo a garantir que as flutuações da EL sejam reduzidas. Todavia, a presença de aditivos moleculares reduz o rendimento de EL e aumenta

as flutuações associadas, devido à introdução de processos alternativos quer para os elétrons – excitação vibracional das moléculas e captura de elétrons pelas moléculas – quer para a desativação dos estados excitados de Xe – processos de colisão a 2 ou 3 corpos envolvendo moléculas, com consequente inibição da emissão de cintilação de Xe. Dentro da gama de E/N investigada, verifica-se que os processos de inibição desempenham um papel importante em Xe-CH₄, enquanto em Xe-CF₄ a captura de elétrons pelas moléculas é o efeito dominante.

Os resultados do presente estudo, por simulação de Monte Carlo, indicam que a dopagem de Xe com CH₄ em concentrações $\leq 1\%$ possibilita o alcance de benefícios relativamente aos parâmetros de deriva, se o campo elétrico E/N que guia os elétrons na região de absorção/deriva for escolhido com um valor próximo de ~ 1 Td (**Fig. 5.1**), otimizado de acordo com a composição da mistura. Além disso, para a gama de campos uniformes E/N típica na região de cintilação de um detetor gasoso de Xe com amplificação baseada na produção de EL ($E/N \sim 3$ a 16 Td), comprovou-se que o parâmetro Q das flutuações na EL nas referidas misturas Xe-CH₄ se mantém relativamente inferior ao fator de Fano em Xe puro (**Fig. 5.4**), evitando uma degradação significativa da resolução intrínseca R_{int} do detetor (**Eq. 2.2**). Deste modo, as misturas Xe-CH₄ com concentrações de CH₄ inferiores a 1% podem, em princípio, ser encaradas como trazendo vantagens, em relação a Xe puro, como gás de enchimento em detetores gasosos de grandes dimensões.

Em contraste, os resultados mostraram que a dopagem de Xe com CF₄ não será uma opção aceitável como gás de enchimento. Embora possa trazer benefícios no que concerne à difusão e velocidade de deriva da nuvem de elétrons primários para baixo E/N (**Fig. 5.2**), verificou-se que, mesmo para concentrações diminutas de CF₄, o rendimento de EL na gama de E/N da cintilação é consideravelmente atenuado (**Fig. 5.3**) e, o que é ainda de maior relevância, o termo Q sobe para valores muito superiores ao fator de Fano (**Fig. 5.4**). Isto acontece fundamentalmente porque, na gama de E/N da EL, a captura de elétrons por moléculas de CF₄ é muito mais importante do que pelas de CH₄ (**Fig. 5.5**), resultando num decréscimo do rendimento de EL muito mais acentuado e em flutuações muito mais elevadas em Xe-CF₄ do que em Xe-CH₄.

Referências

- [1] C.A.N. Conde e A.J.P.L. Policarpo, *A Gas Proportional Scintillation Counter*, **Nucl. Instrum. Meth.** **53** (1967) 7-12.
- [2] A.J.P.L. Policarpo, M.A.F. Alves e C.A.N. Conde, *The argon-nitrogen Proportional Scintillation Counter*, **Nucl. Instrum. Meth.** **55** (1967) 105-19.
- [3] A.J.P.L. Policarpo, C.A.N. Conde e M.A.F. Alves, *Large light output Gas Proportional Scintillation Counters*, **Nucl. Instrum. Meth.** **58** (1968) 151-6.
- [4] C.A.N. Conde, L.R. Ferreira e M.F.A. Ferreira, *The secondary scintillation output of xenon in a uniform field Gas Proportional Scintillation Counter*, **IEEE Trans. Nucl. Sci.** **24** (1977) 221-4.
- [5] D. Nygren, *Optimal detectors for WIMP and 0- ν $\beta\beta$ searches: Identical high-pressure xenon gas TPCs?*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **581** (2007) 632-42.
- [6] D. Nygren, *High-pressure xenon gas electroluminescent TPC for 0- ν $\beta\beta$ -decay search*, **Nucl. Instrum. Meth. A** **603** (2009) 337-48.
- [7] THE NEXT Collaboration: F. Grañena *et al.*, *NEXT, a HPGXe TPC for neutrinoless double beta decay searches*, **arXiv:0907.4054** (2009).
- [8] NEXT Collaboration: J. Díaz *et al.*, *The NEXT experiment*, **J. Phys.: Conf. Ser.** **179** (2009) 012005.
- [9] XENON100 Collaboration: E. Aprile *et al.*, *First dark matter results from the XENON100 experiment*, **Phys. Rev. Lett.** **105** (2010) 131302.
- [10] ZEPLIN Collaboration: D.Y. Akimov *et al.*, *The ZEPLIN-III dark matter detector: Instrument design, manufacture and commissioning*, **Astropart. Phys.** **27** (2007) 46-60.
- [11] V.V. Dmitrenko, A.S. Romanuk, S.I. Suchkov e Z.M. Uteshev, *Electron mobility in dense xenon gas*, **Sov. Phys. Tech. Phys. (USA)** **28** (1983) 1440-4.
- [12] A.F. Borghesani e M. Santini, *Density and field dependence of excess electron mobility in high-density noble gases em Linking the gaseous and condensed phases of matter: The behavior of slow electrons*, editado por L.G. Christophorou, E. Illenberger & W.F. Schmidt (Plenum Press, New York) (1994) 259.
- [13] J.H. Kolts, J.E. Velazco e D.W. Setser, *Reactive quenching studies of Xe(6s,³P₂) metastable atoms by chlorine containing molecules*, **J. Chem. Phys.** **71** (1979) 1247-63.
- [14] V.A. Alekseev e D.W. Setser, *A pulsed source for Xe(6s[3/2]₁) and Xe(6s'[1/2]₁) resonance state atoms using two-photon driven amplified spontaneous emission from the Xe(6p) and Xe(6p') states*, **J. Chem. Phys.** **105** (1996) 4613-25.
- [15] K. Wojciechowski e M. Forys, *The mechanism of three-body process of energy transfer from excited xenon atoms to molecules*, **Rad. Phys. Chem.** **54** (1999) 1-10.
- [16] K. Wojciechowski, D. Sugier, K. Wnorowski, J. Kowalczyk e A. Jówko, *The mechanism and kinetics of ozone formation in a pulse radiolysis study of the Ar-O₂ system*, **Nukleonika** **50** (Suppl. 2) (2005) S29-S33 (http://www.ichtj.waw.pl/ichtj/nukleon/back/full/vol50_2005/vol50s2p29f.pdf) .
- [17] K.N. Pushkin, N. Hasebe, C. Tezuka, S. Kobayashi, M. Mimura, T. Hosojima, T. Doke, M. Miyajima, *et al.*, *A scintillation response and an ionization yield in pure xenon and mixtures of it with methane*, **Instrum. Exp. Tech.** **49** (2006) 489-93.
- [18] K.N. Pushkin, D.Y. Akimov, A.A. Burenkov, V.V. Dmitrenko, A.G. Kovalenko, V.N. Lebedenko, I.S. Kuznetsov, V.N. Stekhanov, C. Tezuka, S.E. Ulin, Z.M. Uteshev e K.F. Vlasik, *Scintillation light*,

- ionization yield and scintillation decay times in high pressure xenon and xenon methane, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **54** (2007) 744-50.
- [19] J. Galy, K. Aouame, A. Birot, H. Brunet e P. Millet, *Energy transfers in Ar-Xe and Ne-Xe mixtures excited by alpha particles. II. Kinetic study*, *J. Phys. B* **26** (1993) 477-88.
- [20] X. Chen e D.W. Setser, *Electronic quenching rate constants for Xe(3P_2), Ar(3P_0), and Ar(3P_2) atoms by fluorine-containing molecules, SiH₄, SiH₂Cl₂, SiHCl₃, and SiCl₄*, *J. Phys. Chem.* **95** (1991) 8473-82.
- [21] A. Pansky, A. Breskin, A. Buzulutskov, R. Chechik, V. Elkind e J. Va'vra, *The scintillation of CF₄ and its relevance to detection science*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **354** (1995) 262-9.
- [22] B. Azmoun, A. Caccavano, M. Rumore, J. Sinsheimer, N. Smirnov, S. Stoll e C. Woody, *A measurement of the scintillation light yield in CF₄ using a photosensitive GEM detector*, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **57** (2010) 2376-81.
- [23] T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *Monte Carlo simulation of X-ray absorption and electron drift in gaseous xenon*, *Phys. Rev. A* **48** (1993) 2887-902.
- [24] C.M.B. Monteiro L.M.P. Fernandes, J.A.M. Lopes, L.C.C. Coelho, J.F.C.A. Veloso, J.M.F. dos Santos, K. Giboni e E. Aprile, *Secondary scintillation yield in pure xenon*, *JINST* **2** (2007) P05001.
- [25] E.P. de Lima, M.S.S.C.P. Leite, M.A.F. Alves e A.J.P.L. Policarpo, *Fano factors of rare gases and their mixtures*, *Nucl. Instrum. Meth.* **192** (1982) 575-81.
- [26] T.H.V.T. Dias, F.P. Santos, A.D. Stauffer e C.A.N. Conde, *The Fano factor in gaseous xenon: A Monte Carlo calculation for X-rays in the 0.1 to 25 keV energy range*, *Nucl. Instrum. Meth. A* **307** (1991) 341-6.
- [27] T.H.V.T. Dias, J.M.F. dos Santos, P.J.B.M. Rachinhas, F.P. Santos, C.A.N. Conde e A.D. Stauffer, *Full-energy absorption of X-ray energies near the Xe L- and K-photoionization thresholds in xenon gas detectors: Simulation and experimental results*, *J. Appl. Phys.* **82** (1997) 2742-53.
- [28] A. Pansky, A. Breskin e R. Chechik, *Fano factor and the mean energy per ion pair in counting gases, at low X-ray energies*, *J. Appl. Phys.* **82** (1997) 871-7.

Capítulo 6

Conclusões finais e trabalho futuro

Nesta dissertação foram investigados dois assuntos que são relevantes para a área dos detectores de radiação em meio gasoso. Assim, estudou-se a extração de fotoelétrons emitidos em meio gasoso e o efeito da dopagem de Xe com CH₄ ou CF₄ na eletroluminescência. Estes dois tópicos estão essencialmente relacionados com o processo de deriva de elétrons no meio gasoso, tendo sido estudados por simulação de Monte Carlo, o que possibilitou estimar resultados e clarificar alguns aspectos importantes para a sua melhor compreensão. Além disso, a extração de fotoelétrons foi também investigada experimentalmente.

Na gama de $E/N = 0.01-100$ Td, foram também calculados por simulação de Monte Carlo alguns parâmetros de deriva de elétrons nos meios gasosos estudados por simulação. O bom acordo evidenciado na comparação entre os parâmetros de deriva calculados e os experimentais existentes na literatura permite concluir que o modelo de Monte Carlo e as secções eficazes utilizadas para descrever a difusão de elétrons nos meios gasosos podem reproduzi-la convenientemente nos restantes estudos realizados, sobre extração de fotoelétrons e eletroluminescência.

O modo como ocorre a competição entre os vários tipos de interações elásticas, inelásticas ou superelásticas dos elétrons com os átomos/moléculas do meio gasoso tem importância decisiva na eficácia com que os elétrons perdem energia, o que é de grande relevância nos parâmetros de deriva dos elétrons, na retrodifusão de elétrons para o fotocátodo e no processo de eletroluminescência. Neste sentido, foi identificada uma relação clara entre o comportamento com E/N dos parâmetros de deriva dos elétrons (velocidade de deriva e energia média) e a fração efetiva de colisões inelásticas relevantes na gama de energia investigada para um gás atômico, um gás molecular e várias misturas entre os dois. A manifesta alteração de comportamento dos parâmetros de transporte com E/N (principalmente para baixos E/N), quando a um gás atômico é adicionado um gás molecular, é justificada pela ocorrência de interações inelásticas conducentes a excitação vibracional, que competem eficientemente com as interações elásticas a baixa energia de impacto, o que não acontece num gás

atómico puro, onde as interações inelásticas (excitação eletrônica) apenas surgem a partir de limiares consideravelmente mais elevados.

Foi mostrada a forma eficaz como na mistura Xe-5%CF₄ os elétrons perdem energia através de colisões inelásticas, em oposição ao que sucede nas colisões elásticas. Comprovou-se que, até cerca de 20 Td, a excitação vibracional das moléculas de CF₄ é quase exclusivamente responsável pela perda de energia sofrida pelos elétrons, sendo este canal de perda de energia apenas superado, a partir de cerca de 40 Td, pela perda em colisões com excitação eletrônica dos átomos de Xe.

A extração dos fotoelétrons de fotocátodos de CsI foi investigada, experimentalmente ($E/N = 0.3-9.2$ Td) e por simulação de Monte Carlo ($E/N = 0.1-40$ Td), nos gases moleculares CH₄, CF₄, CO₂ e em misturas binárias destes com os gases nobres Xe, Ar e Ne. A eficiência de extração f em N₂ e misturas Ne-N₂ foi também obtida, mas apenas experimentalmente. No estudo experimental o fotocátodo refletivo é irradiado por radiação VUV com distribuição espectral (gaussiana) centrada a $E_{ph} = 185$ nm (6.7 eV) e com 5 nm de FWHM, enquanto no estudo por simulação f é calculada para fótons incidentes monocromáticos de energia E_{ph} entre 6.7 e 9.8 eV. O estudo experimental permitiu confirmar o comportamento de f com E/N e com a natureza do meio gasoso previsto por simulação.

Exceto em meios com N₂, os resultados experimentais para f foram comparados com resultados calculados por simulação, obtendo-se em geral uma boa concordância.

Foi mostrado que de um modo geral a eficiência de extração f aumenta com E/N e diminui com E_{ph} , de uma forma que depende do meio gasoso. Verificou-se que f em CH₄ ou CF₄ é consideravelmente mais elevada do que f nos gases nobres. Se para os menores valores de E_{ph} f em CO₂ é relativamente menor do que f em CH₄ ou CF₄, para os maiores valores de E_{ph} toma valores idênticos. A adição de um dos gases moleculares CH₄, CF₄ ou CO₂ aos gases nobres Xe, Ar ou Ne, ainda que em pequena concentração, permite aumentar f significativamente; é de notar que, para baixo valor de E_{ph} , f nas misturas com CO₂ é maior do que f em CO₂. Por outro lado, verificou-se experimentalmente para $E_{ph} \sim 6.7$ eV que f em N₂ é inferior a f nos restantes gases estudados e que a adição de N₂ a Ne não produz melhoria em f .

Os comportamentos observados para f com o meio gasoso foram correlacionados com a penetração inicial λ dos fotoelétrons no meio (relacionada com a secção eficaz total de difusão) e com a eficácia com que os fotoelétrons perdem a sua energia nas colisões (relacionada com a competição entre difusão elástica e inelástica). Constatou-se por simulação que a ocorrência de colisões inelásticas a baixa energia nas primeiras colisões é decisiva para o aumento de f , como acontece com as excitações vibracionais nos gases moleculares CH₄, CF₄ e CO₂ puros e nas suas misturas com gás nobre, onde competem eficazmente com a difusão elástica. Em contraste, nos gases nobres as colisões inelásticas são pouco frequentes, porque os seus limiares, muito superiores a ϵ_0 , só são atingidos para campos E/N elevados e após numerosas colisões elásticas. Os pequenos valores de λ em CO₂ para baixos E/N e E_{ph} (relacionados com a grande secção eficaz de difusão elástica em CO₂ para baixa energia) explicam o menor valor de f em CO₂ nestas condições. Também os baixos valores de f em N₂ e nas misturas Ne-N₂ são consistentes com os baixos valores de λ (elevada secção eficaz de difusão

elástica em N_2) e a pequena fração de colisões inelásticas (o máximo da secção eficaz de excitação vibracional das moléculas de N_2 está fora da gama essencial de energia que os fotoelétrons, emitidos nas condições das medidas, possuem nas primeiras colisões).

O estudo por simulação permitiu concluir que a recaptura dos elétrons pelo fotocátodo ocorre geralmente após um pequeno número de colisões e um curto afastamento dos elétrons ao fotocátodo (até $\sim 50 \mu\text{m}$), parâmetros que são mais elevados nos gases nobres do que nos gases moleculares.

O efeito da dopagem de Xe com CH_4 ou CF_4 foi investigado por simulação de Monte Carlo, no que concerne à eletroluminescência (EL) e à difusão da nuvem eletrônica, para avaliar a viabilidade da dopagem do Xe em detetores de grandes dimensões baseados na produção de eletroluminescência de Xe, como é o caso da experiência NEXT (*Neutrino Experiment with a Xenon TPC*).

Foi mostrado que a dopagem de Xe com CH_4 ou CF_4 pode melhorar os parâmetros de deriva, originando um aumento da velocidade de deriva e uma redução da difusão da nuvem de elétrons primários. Por outro lado, a presença do aditivo molecular reduz o rendimento de EL e aumenta as flutuações associadas, devido à introdução de processos alternativos quer para as colisões dos elétrons (excitação vibracional das moléculas e captura de elétrons pelas moléculas), quer para a desativação dos estados excitados de Xe (processos de colisão a 2 ou a 3 corpos envolvendo moléculas, com consequente inibição da emissão de cintilação de Xe). Dentro da gama de E/N investigada, verificou-se que os processos de inibição desempenham um papel importante em Xe- CH_4 , enquanto em Xe- CF_4 o efeito dominante é a captura de elétrons pelas moléculas.

Para a gama de E/N (7.5-17.5 Td) típica da região de cintilação, comprovou-se que, na dopagem com CH_4 em concentrações $\leq 1\%$, o parâmetro Q das flutuações na EL se mantém relativamente abaixo do fator de Fano em Xe, evitando uma degradação significativa da resolução intrínseca do detetor. Em contraste, os resultados mostram que a dopagem com CF_4 , ainda que em concentrações diminutas, não é uma boa opção como gás de enchimento, uma vez que o rendimento de EL é consideravelmente atenuado e, ainda de maior relevância, o termo Q atinge valores elevados, superiores ao fator de Fano.

Mostrou-se por outro lado que a dopagem de Xe com CH_4 em concentrações $\leq 1\%$ possibilita o alcance de benefícios relativamente aos parâmetros de deriva da nuvem de elétrons primários, se os campos elétricos E/N de encaminhamento dos elétrons na região de absorção/deriva forem escolhidos com um valor próximo de ~ 1 Td, otimizado de acordo com a composição da mistura de enchimento. Para $E/N = 1$ Td, quando se adiciona 1% de CH_4 a Xe, a velocidade de deriva aumenta 5.5 vezes e as energias características relacionadas com a difusão longitudinal e transversal diminuem 2.7 e 3.6 vezes, respetivamente.

Relativamente a Xe puro, conclui-se deste modo que as misturas Xe- CH_4 com concentrações $\eta_{CH_4} < 1\%$ podem ser encaradas como trazendo vantagens como gás de enchimento em detetores de grandes dimensões.

Trabalho futuro

No futuro, será útil investigar a extração de fotoelétrons emitidos por fotocátodos de CsI a outros meios gasosos de interesse para o enchimento de detectores baseados na produção de radiação VUV, com o intuito da utilização integrada dos fotomultiplicadores gasosos. Assim, sugere-se que o estudo apresentado nesta dissertação, por simulação e experimental, seja alargado a misturas de gases moleculares com He e a alguns meios gasosos (principalmente fluocarbonetos) usados habitualmente como radiador em detectores RICH. Experimentalmente, está previsto obter resultados para a eficiência de extração para fótons monocromáticos, varrendo diferentes energias proporcionadas por um monocromador, e compará-los com os que foram previstos no presente estudo de Monte Carlo.

A presente investigação, realizada para fotocátodos de CsI, poderá ser alargada a outros fotocátodos de haletos alcalinos usados em algumas aplicações, sendo de interesse medir e calcular as distribuições de energia de emissão dos fotoelétrons emitidos por fotocátodos de haletos alcalinos, quando irradiados por fótons VUV.

No que se refere à dopagem de Xe com CH₄ e CF₄, está já iniciado um estudo experimental do rendimento de eletroluminescência (EL) e resolução em energia.

Por outro lado, em detectores de grandes dimensões, a produção de EL em geometria cilíndrica tem interesse, porque a precisão do raio do ânodo é mais fácil de alcançar que o paralelismo entre as grelhas que limitam a região de cintilação em geometria plana. Já mostrámos em estudo recente, por simulação de Monte Carlo, que as flutuações de EL em Xe puro em geometria cilíndrica, apesar de serem uma ordem de grandeza superior às obtidas em geometria plana, continuam desprezáveis no que se refere à resolução intrínseca do detector dominada pelo fator de Fano.

De futuro, pretende-se ainda avaliar o efeito da dopagem de Xe com CH₄ em geometria cilíndrica, primeiro por simulação, como realizado para geometria plana nesta dissertação, e depois experimentalmente, se as estimativas obtidas forem promissoras.

Ainda neste âmbito, estudos do efeito na EL da dopagem de Xe e Ar com outros gases moleculares serão também hipóteses a concretizar futuramente.