Autarquia associada à Universidade de São Paulo

MEDIDAS DO PRIMEIRO COEFICIENTE DE TOWNSEND DE
IONIZAÇÃO EM MISTURAS GASOSAS UTILIZADAS EM
MICRODOSIMETRIA

ANNA RAQUEL PETRI

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações

Orientadora:
Profa. Dra. Carmen Cecília Bueno

São Paulo

2017

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

MEDIDAS DO PRIMEIRO COEFICIENTE DE TOWNSEND DE
IONIZAÇÃO EM MISTURAS GASOSAS UTILIZADAS EM
MICRODOSIMETRIA

ANNA RAQUEL PETRI

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações

Orientadora:
Profa. Dra. Carmen Cecília Bueno

Versão Corrigida
Versão original disponível no IPEN

São Paulo

2017

À minha família,

AGRADECIMENTOS

À orientadora **Profa. Dra. Carmen Cecília Bueno**, pela confiança em mim depositada, pela generosidade e humildade com a qual tem me transmitido tantos ensinamentos. Seus conselhos e seu apoio durante estes anos foram fundamentais para mim. Sua amizade e seu exemplo irão me acompanhar por toda minha vida.

À **Profa. Dra. Josemary A. C. Gonçalves**, por toda sua dedicação e auxílio nas modificações da câmara, na aquisição de dados e na análise dos resultados; por todo aprendizado resultante de nossas discussões, por sua inestimável amizade e colaboração desde o início da minha trajetória acadêmica.

Ao **Prof. Dr. Alessio Mangiarotti**, do Instituto de Física da Universidade de São Paulo, cuja cooperação neste projeto foi imprescindível, pelo cálculo dos parâmetros de transporte pelo método de Monte Carlo, pelas frutíferas discussões e pelas oportunas sugestões.

À **Profa. Dra. Maria Margarida F. R. Fraga** (in memoriam) do Laboratório de Instrumentação e Física Experimental de Partículas (LIP) da Universidade de Coimbra pelas valiosas sugestões acerca da operação do sistema detector em baixa pressão.

Ao **Prof. Dr. Jiro Takahashi**, do Laboratório do Acelerador Linear da Universidade de São Paulo, responsável pelo projeto e supervisão da construção da câmara.

Ao **Eng. Jair S. do Nascimento-Singer**, da Semikron Nuremberg/Alemanha, pela inestimável contribuição no projeto e montagem dos eletrodos e do circuito eletrônico de aquisição dos sinais elétricos.

Ao **Eng. José Carlos de Souza**, chefe da Oficina Mecânica do Departamento de Física Experimental do Instituto de Física da Universidade de São Paulo, pela cuidadosa construção da câmara e auxílio inestimável em sua manutenção.

À **Dra. Margarida Mizue Hamada**, diretora do Centro de Tecnologia Nuclear (CTR) do IPEN-CNEN/SP, por disponibilizar a infraestrutura e as instalações do CTR para a realização deste trabalho.

Ao **Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico** (CNPq), pela concessão da bolsa de estudos e do auxílio pesquisa sob os contratos 478859/2009-0 e 479079/2010-2.

À **Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo** (FAPESP) pelo apoio financeiro sob os contratos 02/04697-1, 07/50591-4 e 09/51809-9.

MEDIDAS DO PRIMEIRO COEFICIENTE DE TOWNSEND DE IONIZAÇÃO EM MISTURAS GASOSAS UTILIZADAS EM MICRODOSIMETRIA

Anna Raquel Petri

RESUMO

Microdosímetros gasosos geralmente empregam uma mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole (*Tissue-equivalent Gas – TEG*), composta de um hidrocarboneto, dióxido de carbono e nitrogênio, de forma que o poder de freamento na mistura e no tecido sejam semelhantes. Entretanto, independentemente do hidrocarboneto adotado, dados tanto teóricos como experimentais do primeiro coeficiente de Townsend de ionização (α) nestas misturas são raros, ainda que a primeira *TEG*, cujo metano é o gás majoritário, tenha sido proposta em 1956 por Rossi e Failla e continue sendo amplamente utilizada. Neste trabalho, dados do parâmetro α em *TEGs* baseadas no metano (CH_4 – 64,4%, CO_2 – 32,4% e N_2 – 3,2%) e nos isômeros do butano (C_4H_{10} – 51,4%, CO_2 – 42,3% e N_2 – 6,3%) são apresentados pela primeira vez em geometria planar para a faixa de campo elétrico normalizado pela densidade do gás (E/N) entre 100 – 290 Td ($1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ V.m}^2$). O método de medidas adotado baseia-se na técnica de Townsend pulsada, onde o primeiro coeficiente de Townsend pode ser determinando comparando a corrente elétrica no regime de avalanche e a corrente de ionização primária gerada pela incidência de um feixe de laser de nitrogênio em um eletrodo metálico (catodo) de uma câmara de geometria planar, sendo o anodo um eletrodo de alta resistividade ($\rho=2\times 10^{10} \Omega.\text{m}$). O aparato experimental, até então operado apenas em pressão atmosférica, foi modificado para também trabalhar em baixa pressão (120 hPa), de modo a aumentar a faixa de E/N investigada. A validação do método e das alterações do sistema de detecção foi realizada utilizando os três gases componentes das *TEGs* cujos parâmetros de transporte são amplamente estudados: o nitrogênio, o dióxido de carbono e o metano. Observou-se que o parâmetro α na *TEG* com metano assemelha-se com os valores determinados para o metano puro. Na *TEG* baseada no isobutano, ele é compatível com o primeiro coeficiente de Townsend do dióxido de

carbono para campos acima de 170 Td. Já o parâmetro α na mistura com n-butano é intermediário entre os valores obtidos para o dióxido de carbono e o nitrogênio. Os resultados experimentais, disponíveis em forma tabular, foram comparados com os simulados utilizando o programa Magboltz 2, evidenciando boa concordância dentro da incerteza experimental.

MEASUREMENTS OF THE FIRST TOWNSEND IONIZATION COEFFICIENT IN GASEOUS MIXTURES EMPLOYED IN MICRODOSIMETRY

Anna Raquel Petri

ABSTRACT

Gaseous microdosimeters usually employ a Tissue-equivalent Gas (TEG), made of a hydrocarbon, carbon dioxide and nitrogen, in order to make similar the stopping power in this mixture and in the human soft tissue. Notwithstanding, regardless the chosen hydrocarbon, both theoretical and experimental data on the first Townsend ionization coefficient (α) in this mixtures are rare, even though the first TEG, which methane is the most abundant gas, was proposed in 1956 by Rossi and Failla and it has been widely employed since then. In this work, data on the parameter α in TEGs based on methane ($\text{CH}_4 - 64.4\%$, $\text{CO}_2 - 32.4\%$, and $\text{N}_2 - 3.2\%$) and butane's isomers ($\text{C}_4\text{H}_{10} - 51.4\%$, $\text{CO}_2 - 42.3\%$ e $\text{N}_2 - 6.3\%$) are presented for the first time in planar geometry in the gas density-normalized electric field (E/N) range between 100 – 290 Td ($1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ V.m}^2$). The adopted method is based on the Pulsed Townsend Technique, where the first Townsend coefficient can be determined by comparing the electric current in the avalanche mode and the primary ionization current, produced by an nitrogen laser beam incidence in a metallic electrode (cathode) of a parallel plate chamber, which the anode is a resistive electrode ($\rho=2 \times 10^{10} \Omega.\text{m}$). The experimental setup, previously operated only at atmospheric pressure, was adapted to work also at low pressure (120 hPa), in order to increase the investigated E/N range. The validation of both method and detection system modifications was made by employing three TEGs' components, nitrogen, carbon dioxide and methane, whose transport parameters are extensively studied. The parameter α in the methane-based TEG follows the behavior observed in pure methane. In the isobutane-based TEG, it is compatible with the first Townsend coefficient in carbon dioxide for E/N above 170 Td. The parameter α in the n-butane-based TEG lies between the obtained values of α in carbon dioxide and nitrogen. The experimental results, included in tabular form, agree with those from Magboltz 2 simulations within the experimental uncertainties.

SUMÁRIO

	<i>Página</i>
1 INTRODUÇÃO.....	9
2 OBJETIVOS.....	14
3 MULTIPLICAÇÃO GASOSA.....	15
3.1 Primeiro Coeficiente de Townsend.....	15
3.2 Coeficiente de Captura Eletrônica.....	18
3.2 Segundo Coeficiente de Townsend.....	21
3.4 Não-equilíbrio em um campo elétrico uniforme.....	23
3.4.1 Influência dos eletrodos.....	23
3.4.2 Carga Espacial.....	24
4 DETERMINAÇÃO EXPERIMENTAL DO PRIMEIRO COEFICIENTE DE TOWNSEND.....	26
4.1 Técnica de Townsend Pulsada e derivações.....	29
4.2 Técnica de Tempo de Voo.....	31
4.3 Método estacionário.....	32
5 MISTURAS GASOSAS EQUIVALENTES AO TECIDO HUMANO MOLE.....	34
6 MATERIAIS E MÉTODOS.....	37
6.1 Câmara de gás.....	37
6.2 Sistema de circulação de gases.....	38
6.3 Produção dos elétrons primários.....	41
6.4 Determinação do primeiro coeficiente de Townsend de ionização.....	42

7	SIMULAÇÃO.....	46
8	RESULTADOS E ANÁLISE.....	52
8.1	<i>Validação do aparato experimental e método.....</i>	52
8.1.1	<i>Nitrogênio.....</i>	52
8.1.2	<i>Dióxido de Carbono.....</i>	58
8.1.3	<i>Metano.....</i>	64
8.2	<i>Isobutano e n-butano.....</i>	69
8.3	<i>Mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole.....</i>	78
8.3.1	<i>Mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole baseada no metano.....</i>	78
8.3.2	<i>Mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole baseada nos isômeros do butano.....</i>	84
9	CONCLUSÃO.....	91
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	93

1. INTRODUÇÃO

A microdosimetria foi proposta por H. H. Rossi quando observou, ao estudar a deposição de energia em pequenas massas irradiadas, que para uma dada dose absorvida, a energia transmitida (*energy imparted*) às células ou às estruturas subcelulares pode ser tanto nula como ordens de grandeza maior do que o valor esperado, sendo estes desvios mais significativos para pequenos volumes, baixas doses ou ainda radiações altamente ionizantes [1]. Desta forma, o principal objetivo da microdosimetria é determinar a energia transmitida a regiões microscópicas, denominadas de sítios (*sites*), e suas distribuições de probabilidade, que estão relacionadas aos efeitos biológicos [1,2].

Dentre os diversos métodos de detecção das grandezas microdosimétricas, destaca-se o emprego dos detectores gasosos, principalmente dos contadores proporcionais e das câmaras de ionização, sendo que somente os contadores proporcionais podem ser empregados para a medição da distribuição de eventos únicos (*single-event distributions*) para diversos tipos de radiação incidente, incluindo fótons, nêutrons e partículas carregadas pesadas [3]. Construídos com materiais equivalentes ao tecido humano mole, estes detectores são usualmente preenchidos com misturas gasosas compostas de um hidrocarboneto, nitrogênio e dióxido de carbono, cuja composição atômica e, portanto, seu poder de freamento assemelham-se também ao do tecido humano mole (*Tissue-Equivalent Gas – TEG*) [2,3]. Por esta razão estes detectores são chamados de câmara de ionização equivalente ao tecido (*Tissue-Equivalent Ionization Chamber*) e contador proporcional equivalente ao tecido (*Tissue-Equivalent Proportional Counter – TEPC*), ambos desenvolvidos por H. H. Rossi e colaboradores na década de 50 [3-5].

Os *TEPCs* possuem geometria esférica ou cilíndrica (neste caso, com altura igual ao diâmetro do cilindro) com diâmetro típico de poucos centímetros. Com o mesmo contador, para simular diferentes tamanhos de sítios biológicos, varia-se a pressão do gás. Entretanto, os *TEPCs* convencionais são inadequados para acessar quantidades microdosimétricas em feixes de alta intensidade, como os típicos de hadronterapia, devido ao empilhamento de sinais. [6].

Desta forma, observa-se nos microdosímetros gasosos a mesma tendência de miniaturização da área ativa que ocorre com detectores gasosos empregados em Física de Altas Energias, destacando-se a *TEPC* baseada em um multiplicador gasoso de elétrons (*Gas Electron Multiplier – GEM*), conhecida comumente como *GEM-based TEPC* [7-9] e a mini-*TEPC*, para aplicações em terapia por captura de nêutrons pelo boro (*Boron Neutron Capture Therapy – BNCT*) [10, 11] e protonterapia [12,13]. Estes detectores conseguem simular sítios biológicos de até 5 nm de diâmetro [14], enquanto o limite das *TEPCs* convencionais é de 100 nm [15]. Todos os detectores citados operam com multiplicação gasosa, o que torna imprescindível o conhecimento do primeiro coeficiente de Townsend de ionização, α , do *TEG* empregado.

O parâmetro α corresponde ao número de elétrons secundários produzidos por elétron primário por unidade de trajetória e é fundamental para projetar e compreender detectores gasosos que operam com elevado ganho em carga. Em conjunto com outros parâmetros de transporte, α é empregado na simulação de descargas elétricas para validar secções de choque de colisões elásticas e inelásticas de elétrons [16, 17].

Apesar da importância do primeiro coeficiente de Townsend, há poucos estudos experimentais sobre este parâmetro em hidrocarbonetos, que são os componentes das misturas gasosas empregadas em *TEPCs*. As características diferenciadas destes gases como inibidores de descargas auto-mantidas, dentre as quais se destacam a complexidade das moléculas e a existência de múltiplos níveis de excitação rotacionais e vibracionais, representam uma motivação adicional para as medidas de parâmetros de transporte de elétrons nestas misturas, dada à escassez de valores precisos de secções de choque colisionais e dos coeficientes de captura eletrônica e de difusão em regiões de elevado campo elétrico reduzido (campo elétrico, E , normalizado para a densidade numérica do gás, N), acima de 100 Td ($1 \text{ Td} = 10^{-21} \text{ V.m}^2$).

Para o isobutano puro, por exemplo, não existem valores experimentais de α na faixa de campos elétricos entre 200 a 500 Td (Fig. 1.1). Abaixo desta faixa, os únicos dados existentes foram obtidos por C. C. Bueno e colaboradores [18-20], utilizando um método para a investigação da velocidade de deriva e do primeiro coeficiente de Townsend baseado em uma nova versão da Técnica de Townsend Pulsada. O arranjo empregado possui configuração semelhante à de um contador de placas paralelas e resistivas (*Resistive Plate Counter – RPC*), sendo o anodo um eletrodo resistivo. A ionização primária é gerada

pela fotoemissão de elétrons produzida pela incidência de um feixe de laser de nitrogênio pulsado em um eletrodo metálico (catodo).

FIGURA 1.1. Primeiro coeficiente de Townsend de ionização do isobutano em função do campo elétrico reduzido. Os símbolos representam conjuntos dados experimentais e as linhas contínuas foram calculadas por método Monte Carlo utilizando o programa Magboltz 2 [20].

Neste trabalho, o primeiro coeficiente de Townsend foi determinado através da relação entre as correntes elétricas medidas nos regimes de ionização e de avalanche utilizando um eletrômetro. Para validação da técnica proposta e das modificações do arranjo experimental empregado anteriormente [18-20], o parâmetro α no nitrogênio foi previamente determinado, uma vez que este gás, que é o componente minoritário dos *TEGs*, tem sido amplamente estudado [21-23], sendo adotado como referência desde os primeiros estudos empregando o método descrito previamente, onde o detector foi operado exclusivamente em pressão atmosférica [18, 19]. Também foram empregados para a validação outros dois componentes dos *TEGs*, o dióxido de carbono e o metano, devido à extensa literatura disponível sobre seus parâmetros de transporte [22-29]. Em relação aos trabalhos anteriores publicados por C. C. Bueno e colaboradores [18-20], foi necessário modificar o sistema de detecção para que este possa operar com pressão variável, de modo

a mimetizar a pressão comumente utilizada em *TEPCs*, além de permitir estender a região de campo elétrico reduzido investigada.

Além de sua aplicação como inibidores de descargas, os hidrocarbonetos também são empregados como gás majoritário em *TEGs*, sendo as mais populares as misturas com metano e propano, propostas por Rossi e Failla [5] e Srdoc [15], respectivamente. É importante destacar que a primeira é mais equivalente ao tecido humano mole, enquanto a segunda permite atingir maiores valores de ganhos gasosos (razão entre os números de elétrons secundários e primários) [2]. Também têm sido utilizados *TEGs* com hidrocarbonetos mais pesados, como o etileno [30] e o isobutano [31].

Dados do primeiro coeficiente de ionização em *TEGs* são raros e sempre obtidos a partir de estudos de ganho gasoso em contadores proporcionais cujo campo elétrico possui simetria cilíndrica [32]. Nestas condições, efeitos de não-equilíbrio, relacionados por exemplo ao gradiente de campo e ao movimento do elétron ao redor do fio anodo, podem afetar os resultados experimentais, obtendo-se valores tanto menores quanto maiores do que α/N [33]. Por isto, usualmente a determinação deste coeficiente é realizada empregando detectores cujo campo elétrico é uniforme. Assim, devido ao interesse na obtenção do parâmetro α em geometria planar, são aqui apresentados pela primeira vez resultados experimentais do primeiro coeficiente de Townsend de ionização em *TEGs* com metano, isobutano e n-butano e todos os seus constituintes. Estas informações servem de subsídio para validar secções de choque de colisões com elétrons são necessários para a simulação do comportamento de detectores de microestrutura e auxiliam a compreensão dos fenômenos físicos responsáveis pela evolução de avalanches em detectores com elevado ganho em carga [33].

Esta tese está dividida em 9 capítulos. Neste Capítulo (Capítulo 1), foi brevemente discutida a importância do conhecimento do primeiro coeficiente de Townsend de ionização em misturas gasosas equivalentes ao tecido. Os objetivos desta tese são apresentados no Capítulo 2.

No Capítulo 3 é abordado o processo de multiplicação de cargas em um contador proporcional de placas paralelas, representado pelos coeficientes de Townsend de ionização. Uma vez que alguns dos gases aqui investigados são eletronegativos, incluindo o dióxido de carbono, que é o segundo gás mais abundante em todos os *TEGs*, também é abordado o efeito da eletronegatividade neste processo e introduzido o coeficiente de

captura eletrônica, que expressa a afinidade de uma molécula para a formação de um íon negativo.

Os métodos experimentais para a determinação do primeiro coeficiente de ionização são apresentados no Capítulo 4. Primeiramente são discutidas as dificuldades provenientes do emprego de contadores proporcionais de geometria não-planar. Em seguida, as três principais técnicas adotadas em contadores de placas paralelas (nomeadamente método pulsado de Townsend, método de tempo de voo e método estacionário) são expostas. Os resultados apresentados nesta tese foram comparados com dados experimentais presentes na literatura obtidos por meio de uma destas três técnicas.

No Capítulo 5 são apresentadas as misturas equivalentes ao tecido humano mole e é discutido o princípio de equivalência entre estas misturas e o tecido.

No Capítulo 6 são descritos o aparato experimental, incluindo todas as modificações necessárias para a operação em pressão variável e para a confecção de misturas gasosas, e o método adotado para a determinação do primeiro coeficiente de Townsend de ionização.

No Capítulo 7, o programa Magboltz 2, empregado para simulação dos parâmetros de transporte de elétrons, é descrito brevemente, sendo apresentados os resultados de taxa de ionização nos métodos pulsado e estacionário obtidos para os diversos gases e misturas equivalentes ao tecido aqui estudados, de forma a avaliar a dependência do primeiro coeficiente de Townsend com a metodologia experimental adotada em sua determinação.

No Capítulo 8 são apresentados os resultados obtidos para todos os gases que compõem as misturas gasosas equivalentes ao tecido presentemente estudadas, nomeadamente nitrogênio, dióxido de carbono, metano, isobutano e n-butano, destacando-se novamente a escassez de dados do primeiro coeficiente de Townsend nestes dois últimos gases. Também estão presentes os valores do primeiro coeficiente de Townsend de ionização em *TEGs*, inéditos para geometria planar, cujos gases majoritários são o metano, o isobutano e o n-butano, sendo a conclusão desta tese exposta no Capítulo 9.

2. OBJETIVOS

Objetivos Gerais

Determinação dos primeiros coeficientes de Townsend de ionização em misturas de hidrocarbonetos com nitrogênio e dióxido de carbono em regiões de elevado campo elétrico utilizando a Técnica de Townsend Pulsada. Estas misturas, que possuem poder de freamento equivalente ao dos tecidos moles do corpo humano, são fundamentais para operação de detectores proporcionais utilizados em microdosimetria.

Objetivos Específicos

- Aprimoramento e validação do aparato experimental para operação tanto em baixa pressão quanto pressão atmosférica;
- Determinação do primeiro coeficiente de Townsend de ionização para o isobutano e n-butano.

3. MULTIPLICAÇÃO GASOSA

3.1 Primeiro Coeficiente de Townsend

Numa faixa de campo elétrico de baixa intensidade, típica da operação de câmaras de ionização, o número de pares de íons (cátion + elétron) gerados no volume de gás pela incidência de uma dada radiação independe do valor de campo elétrico, pois os portadores de carga primários não conseguem adquirir energia suficiente entre duas colisões para ionizar as moléculas do gás durante o processo de deriva até os respectivos eletrodos coletores. Mesmo para valores maiores de campo elétrico, os íons adquirem pouquíssima energia entre as colisões, devido a sua baixa mobilidade. Por outro lado, os elétrons livres, por terem massa pequena, são facilmente acelerados pelo campo e podem atingir valores significativos de energia cinética antes de uma colisão. A partir de um dado valor de campo elétrico, o elétron pode receber energia superior ao potencial de ionização de uma molécula neutra do gás, criando um par de íons adicional. Por sua vez, os elétrons secundários também produzirão novas ionizações, iniciando um efeito em cadeia denominado de avalanche de Townsend. Esta multiplicação de cargas é encerrada quando todos os elétrons livres são coletados no anodo.

Para explicar o crescimento da corrente elétrica em função do aumento do campo elétrico, John S. Townsend introduziu o coeficiente de ionização, ou primeiro coeficiente de Townsend, denotado por α [34]. O parâmetro α é definido como o número de elétrons secundários produzidos pelo elétron primário por unidade de trajetória. Assim, Townsend propôs que o aumento no número de elétrons dn por unidade de trajetória do elétron primário dx segue a relação:

$$dn = n\alpha dx \quad (3.1)$$

Para eletrodos planos paralelos, cujo campo elétrico é uniforme, o número de elétrons produzidos em um intervalo de trajetória x é:

$$n = n_0 e^{\alpha x} \quad (3.2)$$

onde n_0 é o número de elétrons primários. Desta forma, o ganho gasoso em um contador de geometria planar é expresso por:

$$G = \frac{n}{n_0} = e^{\alpha x} \quad (3.3)$$

Os processos secundários, como a emissão de fótons de desexcitação, que induzem novas avalanches, e a deformação do campo elétrico devido ao efeito de carga espacial, resultam na ruptura gasosa e transição para o regime de faíscas. Fisicamente, há um limite para a multiplicação antes da ruptura do gás, dado pela condição de Raether [35], em que $\alpha x \sim 20$ ou o ganho, $G \sim 10^8$. Com o aumento da distância x , a condição de Raether será atingida para menores valores de α , ou seja, para uma dada intensidade de campo elétrico, a probabilidade de ruptura cresce com x . Na prática, a distribuição estatística da energia dos elétrons, e, portanto o G , em geral, não permite operar o detector com um ganho médio acima de $\sim 10^6$ para evitar faíscas [36]. O ganho nos *TEPCs* convencionais, por exemplo, não ultrapassa 10^4 [15].

O parâmetro α depende do tipo de gás, de sua temperatura, T , pressão, p , e campo elétrico, E . Por isto, para permitir a intercomparação entre diferentes conjuntos de dados, ele deve ser normalizado em relação à densidade numérica do gás, N :

$$N = N_0 \frac{p \text{ (Torr)}}{760} \frac{273,15}{T \text{ (K)}} \quad (3.4)$$

sendo N_0 o número de Loschmidt ($N_0 = 2,687 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$). Desta forma, $\alpha/N = f(E/N)$, onde E/N é denominado de campo elétrico reduzido. É importante destacar que, até a década de 90, era prática comum apresentar os valores destes parâmetros por unidade de pressão (α/p , E/p) e escalonados para $T = 0^\circ\text{C}$ (E/p_0) [27, 37]. Entretanto, para compará-los com os determinados em temperatura ambiente, como no caso de Bhalla e Craggs [24] e Schmitz e Booz [32], é necessário converter todos os resultados para grandezas independentes da densidade numérica do gás utilizando a temperatura informada pelos autores.

Há na literatura diversas aproximações para representar a $\alpha/N = f(E/N)$, sendo que nenhuma delas é válida em grandes faixas de campo elétrico reduzido. Dentre estas

expressões, a mais amplamente empregada, inclusive em dados obtidos com contadores de placas paralelas de α/N em diversos gases [38], foi proposta por Korff [39]:

$$\frac{\alpha}{N} = A \exp\left(-B \frac{N}{E}\right) \quad (3.5)$$

Embora os parâmetros A e B sejam ditos como constantes características somente do tipo de gás, eles podem variar significativamente para diferentes regiões de E/N investigadas [40, 41], conforme pode ser observado na Fig. 3.1, onde para pressões abaixo de 10 kPa, os valores diminuam em torno de 50%. Entretanto, a flutuação de B/A presentes na literatura para mesmo gás é consideravelmente menor, o que possibilita a comparação entre os resultados experimentais [40-42]. Na Fig. 3.1, o parâmetro B/A, simbolizado por V, variou em até 10% em toda a faixa de pressão estudada pelos autores. A razão B/A também pode ser comparada com o potencial de ionização efetivo, que deve estar no intervalo entre o primeiro potencial de ionização do gás e a energia média necessária para um elétron produzir um par de íons no gás [43].

FIGURA 3.1. Coeficientes A e B da equação (3.5) e razão B/A, representada por V, em função da pressão do propano, DME e da mistura gasosa equivalente ao tecido cujo hidrocarboneto adotado é o propano. Dados obtidos com um contador proporcional cilíndrico [41].

3.2 Coeficiente de Captura Eletrônica

Alguns átomos ou moléculas apresentam tendência de formação de íons negativos estáveis na colisão com um elétron livre. Isto ocorre devido ao estado fundamental da molécula neutra possuir energia maior do que o menor estado de energia do íon negativo. Esta tendência para a formação de íons negativos é denominada de eletronegatividade, sendo maior quanto maiores forem a energia de ligação e a diferença de energia entre estes estados. O processo de adicionar um elétron ao átomo ou molécula é conhecido como captura eletrônica e pode ocorrer pelos seguintes meios:

- a) Captura eletrônica radiativa: $A + e^- \rightarrow A^- + h\nu$
- b) Captura eletrônica dissociativa: $AB + e^- \rightarrow A^- + B + Ec$
- c) Captura eletrônica envolvendo três corpos: $A + B + e^- \rightarrow A^- + B + Ec$

onde A e B representam átomos e/ou moléculas, A^- um íon negativo, e um elétron livre, $h\nu$ um fóton e Ec energia cinética. Embora todos estes processos sejam possíveis, a pequena secção de choque de (a) o torna desprezível quando comparado com (b) e (c). O resultado de todos estes processos é a remoção de elétrons livres da avalanche. Consequentemente, o ganho gasoso será reduzido.

Para os gases eletronegativos, α representa o primeiro coeficiente de Townsend de ionização efetivo, calculado pela diferença entre o primeiro coeficiente de Townsend total, α_T , e o coeficiente de captura eletrônica, η . Na Fig 3.2 são apresentados os resultados experimentais de α/N , η/N e α_T/N no dióxido de carbono [24] para a faixa de E/N de 70 a 170 Td.

O parâmetro η para a interação descrita em (c) apresenta uma dependência com N^2 , enquanto para os demais meios de captura eletrônica, este coeficiente varia linearmente com N . Em outras palavras, se a captura envolve três corpos, η/N será função de E/N e N [44]. Isto ocorre, por exemplo, para o oxigênio em campos inferiores a 12 Td. Acima deste valor, (b) torna-se a via de captura eletrônica predominante [44].

A formação de íons negativos no dióxido de carbono e no metano ocorrem por (b), sendo que no primeiro os mais abundantes são O^- e CO_3^- (resultante da reação $O^- + 2CO_2 \rightarrow CO_3^- + CO_2$) [45] e no segundo são H^- e CH_2^- [28]. Embora Davies et al. [28] não tenham observado experimentalmente a captura eletrônica no metano utilizando

dados de secção de choque, obtiveram por simulação a contribuição de cada um desses íons para o parâmetro η/N (Fig. 3.3).

FIGURA 3.2. Comportamento dos parâmetros α/N , η/N e α_T/N no dióxido de carbono em função do campo elétrico reduzido. Dados de [24].

FIGURA 3.3. Coeficientes de captura eletrônica calculados por simulação Monte Carlo, em preto, para a formação de H^- (círculo), CH_2^- (triângulo) e o total (quadrado) comparados com o limite superior para η/N estimado a partir de resultados experimentais de Davies et al. [28] para o primeiro coeficiente de ionização efetivo (quadrado branco) e os dados experimentais de Hunter et al. [46] (triângulo branco) [28].

A captura eletrônica é o processo dominante para campos elétricos de baixa intensidade e ocorre antes mesmo que a ionização por impacto eletrônico seja possível (Fig. 3.4). Quando estes dois processos tornam-se competitivos, a determinação dos coeficientes individualmente (α_T e η) é extremamente difícil, em muitos casos, resultando na expressiva divergência entre os dados experimentais publicados na literatura nesta região de campo elétrico [44]. Para campos elétricos reduzidos mais intensos, $\alpha_T/N \gg \eta/N$.

FIGURA 3.4. Coeficientes de ionização e captura eletrônica em função do campo elétrico reduzido para o oxigênio. α/N : ($\circ$) Schlumbohm [47], ($\square$) Naidu e Prasad [48], ($\blacktriangle$) Price et al. [49]. η/N : ($\triangle$) Geballe e Harrison [50], ($\bullet$) Grumberg [51], ($\blacksquare$) Naidu e Prasad [48]. As linhas α_1/N (contínua) e α_2/N (tracejada) representam o cálculo do primeiro coeficiente de Townsend com e sem correção para difusão, respectivamente [52, 53].

3.3 Segundo Coeficiente de Townsend

Além da avalanche iniciada pelo elétron primário, novas avalanches poderão ocorrer devido à produção de elétrons secundários gerados pela:

- a) interação de fótons de desexcitação emitidos por moléculas em estados excitados, átomos metaestáveis e íons com o gás e paredes do contador;
- b) neutralização dos íons positivos no catodo.

Estas avalanches adicionais espalham-se por todo volume do detector, além da resultante de (b) e da desexcitação de átomos metaestáveis apresentar atraso temporal em relação à primária. Considerando as ionizações secundárias, corrente elétrica é expressa por:

$$I = \frac{I_0 e^{\alpha x}}{1 - \gamma(e^{\alpha x} - 1)} \quad (3.6)$$

onde γ é o segundo coeficiente de Townsend. O parâmetro γ , além de depender do campo elétrico aplicado, do gás e sua densidade, depende também do material constituinte do catodo e das condições de sua superfície, como oxidação, uniformidade e ocorrências de descargas. A ocorrência de uma única faísca é o suficiente para alterar a superfície do catodo e, portanto, modificar tanto o valor, como o comportamento de γ [53]. Por isto o segundo coeficiente de Townsend não é uma grandeza reprodutível.

Em hidrocarbonetos, o segundo coeficiente de Townsend é pequeno ($\gamma < 10^{-4}$), podendo ser adicionados a outros gases para suprimir esse coeficiente [53]. Assim, para $\gamma \rightarrow 0$, i. e., quando os processos secundários forem desprezíveis, a equação (3.6) se reduz a:

$$I = I_0 e^{\alpha x} \quad (3.7)$$

Se o denominador na equação (3.6) for nulo, a corrente elétrica tende ao infinito, sendo limitada somente pela resistência externa no circuito. Isto implica que a corrente entre os eletrodos torna-se auto-mantida, devido à produção de elétrons secundários em

quantidade igual à de elétrons primários [53]. Esta condição, $\gamma(G - 1) = 1$, é denominada de critério de ruptura de Townsend [54]. De acordo com a lei de Paschen, a tensão de ruptura, V_s , é uma função linear somente do produto da pressão do gás, P , e da distância entre os eletrodos, d . As curvas de Paschen, $V_s \times Pd$, apresentam um ponto mínimo ($Pd \approx 1 \text{ cm} \times \text{mmHg} = 1,33 \text{ m} \times \text{Pa}$) que representa o valor de tensão mínima para que ocorra a ruptura dielétrica do meio gasoso (tensão mínima de ruptura, $V_{s,\min}$). Na Fig. 3.5 são apresentadas curvas de Paschen para o nitrogênio e os hidrocarbonetos alcanos, incluindo os três estudados neste trabalho (metano e os isômeros do butano).

FIGURA 3.5. Tensão de ruptura mínima para hidrocarbonetos alcanos: (1) metano, (2) etano, (3) propano, (4) n-butano, (5) isobutano e para o (6) nitrogênio. A curva pontilhada entre (4) e (1) ilustra o efeito da iluminação excessiva do catodo, resultando na diminuição de V_s obtido para o n-butano, devido ao efeito de carga espacial [54].

Para baixos valores de Pd ($\leq 2,5 \text{ cm} \times \text{mmHg}$), as curvas não possuem comportamento linear e, portanto, não seguem o comportamento previsto pela lei de Paschen. Heylen e Lewis [54] atribuem este desvio à influência das condições do catodo. Já para um meio gasoso de alta densidade numérica (N da ordem de 10^{25} m^{-3}), o processo de disruptura passa a ser governado predominantemente pelo desenvolvimento de carga espacial do que pelas condições do catodo ou de fotoionizações [53].

Observa-se também que quanto mais pesado é o alcano, maior é a tensão de disruptura e seu valor mínimo ocorre para Pd menores. Destaca-se também que V_s para o isobutano é maior do que para o n -butano em toda a faixa de Pd (1 a $150 \text{ cm} \times \text{mmHg}$) analisada por Heylen e Lewis [54].

3.4 Não-equilíbrio em um campo elétrico uniforme

O parâmetro α/N é função unicamente de E/N somente se a energia perdida pelos elétrons em colisões com moléculas neutras é balanceada pela energia adquirida do campo elétrico, condição denominada de equilíbrio [33,55]. Quando isto ocorre, o primeiro coeficiente de ionização e, consequentemente o ganho gasoso, dependem somente do campo elétrico reduzido. De acordo com Mitev et al. [55], esta condição só pode ser alcançada em contadores de placas paralelas, sendo que há duas principais situações que causam a perda deste estado de equilíbrio. O primeiro caso ocorre quando o elétron se move próximo aos eletrodos e o segundo se há distorção do campo elétrico devido ao efeito de carga espacial.

3.4.1 Influência dos eletrodos

Quando os elétrons primários são emitidos do catodo, eles necessitam percorrer uma dada distância até entrarem em equilíbrio com o campo elétrico. Esta distância é da ordem de poucos caminhos livre-médios e varia de acordo com as condições de emissão destes elétrons (densidade de elétrons e sua energia inicial), material do catodo, tipo e densidade do gás, campo elétrico [33, 55, 56].

Próximo ao anodo ocorre a perda de elétrons por retroespalhamento nas moléculas do gás [55], sendo que o comprimento desta região de não-equilíbrio é muito menor do que àquela próxima ao catodo [56]. Este fenômeno depende fortemente do campo elétrico reduzido na superfície do anodo, tornando-se mais importante com o aumento da

intensidade de E/N [55]. Na Fig. 3.6 é representada a ação destes efeitos no primeiro coeficiente de Townsend em um contador de placas paralelas e campo elétrico uniforme.

Em $P = 1$ Torr, as regiões de não-equilíbrio se localizam somente próximas aos eletrodos e o primeiro coeficiente de ionização é constante e igual ao valor de equilíbrio na maior parte do meio. Para pressões muito baixas e/ou espaçamento entre os eletrodos muito pequeno, pode ocorrer de os elétrons não atingirem o equilíbrio em ponto algum do detector, como observado em $P = 0,15$ Torr.

FIGURA 3.6. Variação espacial de α/N calculada por meio da equação de Boltzmann para um detector de geometria planar com metano em duas pressões diferentes, 0,15 e 1 Torr ($\sim 0,2$ e $1,3$ hPa, respectivamente), para $E/N = 798$ Td [55].

3.4.2 Carga Espacial

Como a velocidade de deriva dos elétrons é maior do que a dos íons por um fator de ~ 1000 [36], após todos os elétrons serem coletados no anodo, os íons positivos ainda estarão se dirigindo em direção ao catodo para serem neutralizados, distorcendo o campo elétrico localmente. Em gases eletronegativos, os íons negativos também contribuem para o efeito de carga espacial. Este efeito passa a ser importante se a distorção do campo é

significativa em um caminho livre-médio do elétron [33]. A queda no valor de tensão de ruptura do n-butano devida à iluminação excessiva do catodo, gerando um número excessivo de elétrons primários, demonstra este fenômeno (Fig. 3.5). Além do acúmulo de íons, o efeito de carga espacial também ocorre devido à alta densidade de carga em uma única avalanche para grandes fatores de multiplicação em pressões gasosas maiores, quando o número de elétrons pode chegar a $\sim 10^8$ [53].

4. DETERMINAÇÃO EXPERIMENTAL DO PRIMEIRO COEFICIENTE DE TOWNSEND

A maioria dos dados do primeiro coeficiente de Townsend deriva de experimentos realizados com contadores de placas paralelas. Porém, para alguns gases e misturas gasosas escassamente estudados em termos de seus parâmetros de transporte, como o isobutano e as misturas gasosas equivalentes ao tecido humano mole, α/N foi obtido em geometria não-planar por alguns autores [32, 41, 42], embora este método seja um tanto controverso. Além dos efeitos de não-equilíbrio descritos para contadores de placas paralelas (Cap. 3 item 3.4), outros fenômenos que serão descritos a seguir dificultam ainda mais a determinação de α/N em campos não-uniformes. Em geometria cilíndrica ou esférica, o ganho entre os pontos x_i e x_f é expresso por:

$$G = \exp \left[\int_{x_i}^{x_f} \alpha(x) dx \right] \quad (4.1)$$

Neste caso, o conhecimento do comportamento de α é fundamental para calcular o ganho G . Na prática, assume-se que a condição de equilíbrio é satisfeita e o primeiro coeficiente de ionização pode ser determinado através de dados de ganho gasoso aplicando a relação proposta por Townsend [34], em que $\alpha/N = f(E/N)$. Em detectores cilíndricos, comumente aplica-se a equação de ganho publicada pela primeira vez por Williams e Sara [57], derivada da aproximação de Korff (Eq. 3.5):

$$\frac{\ln G}{K} = \frac{A}{B} \left[\exp \left(B \frac{N}{E_a} \right) - \exp \left(B \frac{N}{E_c} \right) \right] \quad (4.2)$$

onde E é a intensidade do campo elétrico, sendo que os índices a e c representam o anodo e catodo, respectivamente. Se V é a tensão de polarização e r o raio dos eletrodos, temos que:

$$K = \frac{V}{\ln\left(\frac{r_c}{r_a}\right)} \quad (4.3)$$

Entretanto, de acordo com o estudo teórico de Mitev et al. [55], para campos elétricos não-uniformes, como no caso das geometrias cilíndrica e esférica, a adoção da teoria clássica é válida somente se $K > 400$ V. Para valores menores, é necessário considerar que tanto o ganho gasoso como α/N são função de E/N e K , como pode ser observado na Fig. 4.1. Neste caso, o valor do primeiro coeficiente de Townsend determinado a partir do ganho será sempre menor do que o obtido em condições de equilíbrio. Esta dependência é mais acentuada para baixas pressões, como no caso das *TEPCs*, que operam em torno de 100 hPa ou menos, e foi confirmada experimentalmente por Moro et al. [58] utilizando uma *TEPC* esférica de 5 cm de diâmetro interno preenchida com propano puro a 5,5 – 27,4 hPa.

FIGURA 4.1. Dependência do primeiro coeficiente de Townsend do metano com K e E/N em geometria cilíndrica. Campo elétrico reduzido no anodo foi de 3000 Td em todas as simulações [55].

Para baixas pressões ou anodos de pequeno raio, os elétrons circulam o fio anodo antes de serem coletados, aumentando o valor do primeiro coeficiente de Townsend [2, 33], sendo que este incremento será maior quanto menor for a pressão do gás. Este

fenômeno foi observado experimentalmente por Bronic e Grosswendt [41] ao determinar α/P no TEG com propano como gás majoritário (Fig. 4.2). Nesse trabalho, K variou entre 50 – 300 V e, portanto, era esperado que este parâmetro fosse menor do que o obtido em equilíbrio (representado pela simulação de Ségur et al. [59]). Porém, o efeito da rotação dos elétrons ao redor do anodo foi predominante.

FIGURA 4.2. α/P do TEG com propano em função do campo elétrico no anodo normalizado em relação à pressão ($E_a/P = S_a$). A linha contínua refere-se aos valores em condições de equilíbrio calculados por Ségur et al. pelo método de Monte Carlo [59]; as linhas tracejadas são os resultados experimentais obtidos por Waker [60]; [41].

Logo, o emprego de geometria planar é o meio mais indicado para a medição de α/N , uma vez que estes efeitos não ocorrem em campos elétricos uniformes, simplificando a análise dos resultados. Por isto, os dados apresentados nesta tese foram comparados apenas com valores de α/N determinados em geometria planar. Neste caso, há três técnicas que merecem destaque por serem amplamente empregadas: o método pulsado ou técnica de Townsend pulsada (*Pulsed Townsend Technique - PTT*), o método de tempo de voo (*Time-of-Flight - TOF*) e o método estacionário (*Steady-State Technique - SST*). Os

valores do primeiro coeficiente de Townsend reduzido obtidos com técnicas distintas diferem entre si, o que dificulta a intercomparação. Considerando os coeficientes de ionização do metano puro, os dados de Urquijo et al. [29] com o método pulsado e os determinados por Yoshida et al. [61] com o método estacionário foram concordantes até 500 Td. Acima deste campo, foi observada uma diferença de até 25% entre eles. Divergências entre resultados obtidos por estas duas técnicas também foram observadas para baixos campos ($E/N < 100$ Td) por Sakai et al. [62], que obtiveram uma diferença de até uma ordem de grandeza entre as razões de α/E em misturas de Ar-Ne, atribuída pelos autores ao efeito Penning. Yoshida et al [63] comparou α/N no N_2O com o método estacionário e uma versão adaptada da técnica de tempo de voo para regiões de campo elétrico onde ocorre multiplicação de carga (método de espectros de tempo de voo - *Arrival-Time Spectra* – *ATS*) e obteve excelente acordo entre os resultados a partir de 500 Td. Entretanto, para campos intermediários (100 – 500 Td), a técnica *ATS* forneceu valores de α/N sistematicamente inferiores aos obtidos por *SST*.

4.1 Técnica de Townsend Pulsada e derivações

A técnica de Townsend Pulsada e suas variações são adotadas em diversos trabalhos devido à vantagem de permitir a obtenção de até três importantes parâmetros de transporte de elétrons: coeficiente de ionização, velocidade de deriva e coeficiente de difusão longitudinal (denominados de parâmetros de transporte) [22, 23, 26, 29, 64]. Para este fim, é necessário o uso de um laser rápido, com duração média dos pulsos da ordem de ns [22, 23, 26, 29, 64] ou menos [19, 20, 65, 66]. Esse método também pode ser aplicado para a medição da velocidade de deriva de íons e a determinação de suas mobilidades [67, 68].

A *PTT* é empregada utilizando uma câmara de placas paralelas onde o feixe laser incide no catodo através de uma abertura central no anodo [22, 26, 29, 65, 66] ou ainda na parte posterior do catodo, que neste caso é constituído de um filme condutor depositado em um material transparente à radiação ultravioleta, como o quartzo [23].

Resumidamente, na *PTT*, uma nuvem de elétrons primários é produzida por efeito fotoemissivo devido à incidência de um pulso de luz ultravioleta no catodo, iniciando o processo de multiplicação de cargas. A determinação dos parâmetros de transporte é realizada através da análise do desenvolvimento temporal do sinal induzido

pelo movimento dos portadores de carga (Fig. 4.3), sendo que diferentes funções de ajuste são adotadas na literatura.

FIGURA 4.3. Variação temporal da corrente de elétrons para a mistura gasosa Ar-CH₄ (50%-50%) e $E/N = 60$ Td, espaçamento entre eletrodos, $d = 2$ cm, $P = 3,33$ kPa. Na função de ajuste aplicada para o cálculo do coeficiente de ionização, $n_0 q_0$ é o produto do número de elétrons primário e a carga elétrica fundamental, T_e é o tempo de trânsito dos elétrons, v_e é a velocidade de deriva dos elétrons, sendo $v_e = d/T_e$ [64].

Há na literatura também variações da *PTT*, como a proposta em nosso grupo do Laboratório de Desenvolvimento de Detectores Gasosos do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN/SP) em colaboração com o Laboratório de Instrumentação e Física Experimental de Partículas (LIP) da Universidade de Coimbra em 2010 [18-20] para a medição da velocidade de deriva e do coeficiente de ionização. Nestes trabalhos eletrodos cuja configuração é semelhante à de uma câmara de placas paralelas e resistivas (*Resistive Plate Chamber - RPC*) foram adotados, onde o eletrodo de alta resistividade é um anodo de vidro ($\rho = 2 \times 10^{10} \Omega \cdot m$). Para produzir a ionização primária no catodo de alumínio, utilizou-se um feixe de laser de N₂, cujo pulso tem duração média de 700 ps, permitindo assim a medição da velocidade de deriva pela análise do sinal elétrico utilizando um amplificador e um osciloscópio de elevada largura de banda, da ordem de

GHz. Já o coeficiente de ionização pôde ser determinado tanto pela análise do sinal como pela comparação das correntes de ionização e avalanche medidas com um eletrômetro.

As *RPCs* também foram empregadas para a determinação de parâmetros de transporte de elétrons por Grancagnolo e colaboradores [65, 66]. Neste caso, a ionização primária é produzida pelo processo de absorção dupla de fótons por impurezas de baixo potencial de ionização adicionadas à mistura gasosa. Esse efeito é possível devido ao emprego de lentes para focalizar o feixe de laser pulsado de N_2 (também com pulso de duração média de 700 ps) e ocorre somente no ponto focal da lente, localizado próximo ao catodo.

A presença de pelo menos um eletrodo resistivo protege o arranjo contra o aparecimento de faíscas, porém origina uma diferença de potencial entre as superfícies do eletrodo resistivo (denominada queda ôhmica), que surge pelo acúmulo de carga na superfície interna do dielétrico, ocasionando uma diminuição do campo elétrico efetivo no gás. Assim, para valores mais elevados de campo elétrico, o aumento da tensão de polarização não implica necessariamente no crescimento de E/N efetivo no gás, como observado por Mangiarotti et al. [20], impondo um limite superior à faixa de campo elétrico reduzido utilizável. Por esta razão, para alcançar campos elétricos reduzidos superiores aos utilizados previamente, trabalharemos com a câmara à baixa pressão, de modo que o valor de E/N será maior devido à diminuição da densidade do gás, N .

4.2 Técnica de Tempo de Voo

Na técnica de tempo de voo, a formação da nuvem de elétrons primários é produzida de forma análoga à *PTT* e a determinação da velocidade de deriva é realizada através do registro do intervalo de tempo entre a fotoemissão dos elétrons e uma grade coletora. Em sua versão clássica, esta técnica é empregada em condições para as quais a ionização no meio gasoso é desprezível [61]. Desta forma, para que seja possível o cálculo também do primeiro coeficiente de Townsend, calcula-se o tempo de deslocamento dos elétrons para diferentes distâncias entre os eletrodos.

Yoshida et al. [61, 63] calcularam três parâmetros de transporte do metano e do óxido nitroso, incluindo α/N , empregando a equação de transporte de elétrons proposta por Kondo e Tagashira [69] a espectros de tempo de chegada, *ATS*.

Davies et al. [28] mediram o sinal de corrente induzido no catodo e no anodo para diversos espaçamentos, calculando a velocidade de deriva de elétrons e íons no metano através da inclinação da reta de tempo de trânsito em função do espaçamento. Para a determinação do primeiro coeficiente de Townsend do metano, os sinais de corrente do anodo foram integrados para a obtenção da carga total e, integrando apenas a componente rápida deste mesmo sinal, devida aos elétrons, obteve-se a carga eletrônica. A razão entre as cargas do anodo total e a eletrônica, y_d , foi calculada para cada espaçamento, sendo o incremento espacial fixo, representado por Δd . Ajustando uma reta ao gráfico de $y_{d+\Delta d} \times y_d$, o primeiro coeficiente de Townsend de ionização efetivo reduzido foi obtido através do coeficiente angular. Para obter os coeficientes α/N e η/N , a razão entre α/η foi calculada pelo quociente entre a carga dos íons positivos e a dos negativos, estimadas pela componente mais lenta do sinal de corrente do catodo e anodo, respectivamente.

4.3 Método Estacionário (SST)

Neste método, assume-se que os portadores de carga, produzidos pela iluminação contínua do catodo por luz ultravioleta, encontram-se numa região de equilíbrio sob um campo elétrico uniforme. No caso de Haydon e Williams [21], por exemplo, uma lâmpada de mercúrio à baixa pressão iluminou um filme de ouro depositado por trás do quartzo, sendo este o eletrodo fixo, e o eletrodo móvel era composto de cobre; a pressão utilizada foi de 10^{-7} Torr. Esta técnica também foi adotada por Bhalla e Craggs [24], Conti e Williams [25] e Heylen [27, 70]. Há basicamente duas versões deste método: variação da distância entre os eletrodos e variação da pressão do gás.

Na técnica de variação da distância entre os eletrodos, o campo elétrico reduzido é mantido constante e a corrente é medida para diversos espaçamentos dos eletrodos, d . Comumente na literatura, o parâmetro α é determinado empregando o método de análise da dependência da corrente com a distância entre os eletrodos proposto por Gosseries [71], onde são construídas curvas de $Y_d \times Y_{d+\Delta d}$, sendo Y_d e $Y_{d+\Delta d}$ o inverso das correntes correspondentes às separações entre os eletrodos d e $d + \Delta d$.

A estas curvas, denominadas de curvas de Gosseries, ajusta-se a função:

$$Y_d = \exp(\alpha \Delta d) Y_{d+\Delta d} + \frac{\gamma}{I_0} [\exp(\alpha \Delta d) - 1] \quad (4.4)$$

Se os coeficientes α e γ são espacialmente independentes e a corrente de ionização primária é constante, o ajuste será linear e o primeiro coeficiente de ionização pode ser obtido pelo coeficiente angular. Se I_0 for conhecido, γ também pode ser determinado pelo ponto onde a curva intercepta o eixo das ordenadas.

Na técnica de variação da pressão do gás, o número de moléculas por unidade de volume, N , é alterado. Para determinar o coeficiente de ionização, o espaçamento dos eletrodos é fixo e a equação (4.4) é reescrita como [72]:

$$Y_N = \exp\left(\frac{\alpha}{N}d\Delta N\right)Y_{N+\Delta N} + \frac{\gamma}{I_0}\left[\exp\left(\frac{\alpha}{N}d\Delta N\right) - 1\right] \quad (4.5)$$

5. MISTURAS GASOSAS EQUIVALENTES AO TECIDO HUMANO MOLE

As misturas gasosas equivalentes ao tecido (*TEGs*) são usadas para simular um volume pequeno de tecido humano mole em detectores gasosos empregados para a medição de grandezas microdosimétricas. O princípio de equivalência ao tecido baseia-se na observação empírica de que a transferência de energia de partículas carregadas depende mais significativamente da composição atômica do meio do que da ligação química de seus constituintes. Isto implica que para um material ter propriedades equivalentes de absorção de energia ele deve ser constituído dos quatro elementos mais abundantes no corpo humano: hidrogênio, carbono, nitrogênio e oxigênio [2, 3] de forma que o poder de freamento mássico seja igual ao do tecido simulado. Além disso, a perda de energia da radiação no meio gasoso deve ser igual à perda de energia no tecido, conforme a relação:

$$\Delta E_t = \left(\frac{dE}{\rho dx} \right)_t \rho_t \bar{l}_t = \left(\frac{dE}{\rho dx} \right)_g \rho_g \bar{l}_g = \Delta E_g \quad (5.1)$$

onde: ΔE representa a perda de energia no volume considerado, $\left(\frac{dE}{\rho dx} \right)$ e ρ o poder de freamento mássico e a densidade do meio. Os índices t e g referem-se ao tecido e ao gás, respectivamente, e $\bar{l}$ é o comprimento da corda média (*mean chord length*), definido como sendo o comprimento médio das cordas orientadas aleatoriamente em um dado volume [3]. Para um corpo convexo de volume V e área superficial S , $\bar{l}$ pode ser determinado através da seguinte relação [3]:

$$\bar{l} = 4 \frac{V}{S} \quad (5.2)$$

Se o poder de freamento for independente da densidade (poder de freamento mássico colisional), então o tecido considerado pode ser simulado ajustando a densidade do gás:

$$\rho_g = \frac{\rho_t \bar{l}_t}{\bar{l}_g} \quad (5.3)$$

Em 1950, Failla e Rossi propuseram a fórmula $C_5H_{40}O_{18}N$ para simular o tecido humano. Seis anos mais tarde, eles testaram duas misturas gasosas. A primeira, composta de 38,1% de hidrogênio, 22,2% de metano, 37,6% de oxigênio e 2,1% de nitrogênio, embora fosse a mais próxima da fórmula sugerida, como o O_2 é um gás fortemente eletronegativo, essa mistura não é adequada para o emprego em contadores proporcionais. A segunda, composta de 64,4% de metano, 32,4% de dióxido de carbono e 3,2 % de nitrogênio, não só foi satisfatória, como ainda hoje continua sendo amplamente utilizada e é conhecida como mistura gasosa equivalente ao tecido baseada em metano (CH_4 -TEG) [5].

Em 1970, Srdoc [15] substituiu o metano por propano, um hidrocarboneto com melhores características para a aplicação em detectores proporcionais, pois permite obter ganhos superiores, apesar de não ser tão equivalente ao tecido quanto à mistura CH_4 -TEG [2], como demonstrado na Fig. 5.1. A composição da mistura proposta foi 55 % de propano, 39,6 % de dióxido de carbono e 5,4% de nitrogênio, sendo conhecida como mistura gasosa equivalente ao tecido baseada em propano (C_3H_8 -TEG) e seu uso é amplamente difundido nos dias atuais.

Embora as misturas com metano e propano sejam consideradas TEGs padrão e recomendadas pela ICRU 36 [3], elas não são análogas em termos de sua resposta e desempenho. Kowalski [73] comparou a energia média depositada por partículas beta do ^{90}Sr (energia máxima de 2,3 MeV) e por fótons provenientes do ^{109}Cd (raios X de 22 keV) e do ^{137}Cs (raios gama de 662 keV) em contadores cilíndricos com diâmetros diferentes preenchidos com estas misturas. Para os diversos tamanhos simulados de sítio biológico (0,3 a 1,5 μm), a divergência entre a resposta dos TEGs foi de até 22%, devido à diferença da quantidade de energia depositada em um mesmo tamanho de sítio nestas duas misturas. A divergência no poder de freamento destas TEGs é maior para elétrons de baixa energia, que são os de maior importância em microdosimetria [33].

Devido às excelentes propriedades dos hidrocarbonetos como inibidores de descargas (*quenching*) e o fato de que a eficiência de extinção de descargas aumenta com o número atômico, outras misturas gasosas foram propostas seja adicionando pequenas quantidades de um hidrocarboneto mais pesado a mistura com metano, como no caso do etileno (67,92% de metano, 30,01 % de dióxido de carbono, 1,74% de nitrogênio e 0,33% de etileno [30]) ou utilizando um hidrocarboneto mais pesado como gás majoritário, por

exemplo, o isobutano (51,4% de isobutano, 42,3% de dióxido de carbono e 6,3% de nitrogênio [31]). Esta última mistura foi proposta por Schrewe et al. [31] para melhorar a resolução temporal de *TEPCs* que utilizam a técnica de tempo de voo. Estes microdosímetros são utilizados em casos em que é necessário discriminar diferentes componentes responsáveis pelo depósito de energia no meio para analisá-las individualmente com melhor precisão, como é o caso de campos mistos de nêutrons e raios gama e de nêutrons com energia acima de 20 MeV, que apresentam uma quantidade apreciável de nêutrons de baixa energia como radiação de fundo [31].

FIGURA 5.1. Diferença percentual entre o poder de freamento mássico, S , das misturas gasosas equivalentes ao tecido humano mole recomendadas pela ICRU 36 e da fórmula com quatro elementos químicos (C, H, N, O) recomendada pela ICRU 13 e ICRU 44 para a simulação deste tecido com qualquer material em relação ao do denominado tecido ICRP composto de treze elementos. Para o cálculo de S , foi utilizado o programa ESTAR [74].

A tendência geral é que quanto mais pesado o hidrocarboneto, menor será sua concentração na mistura gasosa, enquanto que maior será a concentração de dióxido de carbono. Este balanço é feito para aumentar o número de átomos de O na mistura. Entretanto, aumenta também o número de átomos de carbono, bem acima da fórmula de Failla e Rossi, o que torna a mistura cada vez menos equivalente ao tecido mole humano [2]. Portanto, a escolha do hidrocarboneto, bem como das concentrações dos demais componentes da mistura, é um compromisso entre o desempenho do detector proporcional e a equivalência da mistura gasosa com o tecido simulado.

6. MATERIAIS E MÉTODOS

6.1 Câmara de gás

A câmara de aço inoxidável utilizada possui no seu interior dois eletrodos paralelos em configuração semelhante a uma *RPC* e duas janelas de sílica fundida sintética, diametralmente opostas: uma para possibilitar a incidência do feixe de laser de nitrogênio no catodo e a outra para monitorá-lo. As janelas de sílica possuem revestimento apropriado para melhorar suas propriedades de transmissão na região do ultravioleta (Fig. 6.1).

FIGURA 6.1. Visão interna da câmara, onde (1) indica a janela de entrada do feixe laser (2), o anodo e (3) o catodo.

O anodo foi construído a partir de uma placa de vidro de $32,5 \times 32,5 \text{ mm}^2$ de alta resistividade ($2 \times 10^{10} \Omega \cdot \text{m}$) com 3,5 mm de espessura e fixado a uma placa de latão de 14 mm de diâmetro com uma fita dupla-face de cobre 3M[®] (Fig. 6.2), possibilitando sua polarização por meio de uma fonte de alta tensão Bertan[®] 225-30R. Esta fonte é

estabilizada, possui baixo ruído (*ripple* de 0,002%) e resolução de 1 V. O conjunto do anodo foi acoplado a três cabeçotes micrométricos Mitutoyo[®] 150-189 (precisão de 2 μm) por meio de um espaçador de esteatite com 30 mm de comprimento, permitindo o ajuste do paralelismo entre os eletrodos.

FIGURA 6.2. Detalhes do conjunto onde o anodo de vidro (1) está conectado à placa de latão (2) e ao espaçador de esteatite (3). Uma fita dupla-face de cobre (4) foi utilizada para fixar (1) em (2).

O catodo é constituído de uma placa de alumínio polida com 40 mm de diâmetro e está fixado em um parafuso micrométrico Huntington[®] L2241-2 de 2 μm de resolução de escala, que permite variar o espaçamento entre os eletrodos, d , em até 50 mm. Dois blocos padrão de aço inoxidável Mitutoyo[®] de $(1,5000 \pm 0,0008)$ mm são colocados entre os eletrodos, permitindo o ajuste simultâneo do espaçamento e do paralelismo.

6.2 Sistema de circulação de gases

Medidas realizadas anteriormente em nosso grupo [18-20] empregaram sistema de fluxo contínuo de gases em pressão ligeiramente superior à atmosférica. Com a finalidade de estender a região de E/N para valores maiores que 200 Td, o aparato experimental empregado anteriormente foi modificado no que diz respeito ao sistema de circulação de gases para permitir a operação da câmara tanto em pressão atmosférica como em baixa

pressão (120 hPa) com fluxo contínuo de gases em ambos os casos. Outra motivação para esta alteração é que os detectores que empregam as misturas gasosas equivalentes ao tecido operam em baixa pressão. Por exemplo, para simular sítios de 1 μm de diâmetro de tecido humano mole com um *TEPC* cilíndrico de 8 mm de diâmetro, a pressão da mistura equivalente ao tecido com metano (CH_4 -*TEG*) deve ser de 100 hPa [73].

O sistema de admissão de gases foi melhorado mediante a instalação de uma central de gases (Fig. 6.3). Após deixar o respectivo cilindro, cada gás passou por um conjunto de duas válvulas reguladoras e por uma válvula agulha ((1) na Fig. 6.3). A seguir, cada gás fluíu ou para um fluxímetro manual (2) da Cole Parmer®, para medições com um único gás como realizado nos trabalhos anteriores [18 – 20, 75, 76], ou para um controlador digital de fluxo Edwards® modelo 825 série B (fundo de escala de 10 cm^3/min para o N_2 e o CO_2 e de 100 cm^3/min para os hidrocarbonetos), para o preparo de misturas gasosas (3). Os controladores digitais estavam conectados a uma unidade multicanal controladora de fluxo gasoso Edwards® modelo 1605 (4).

FIGURA 6.3. Central de gases: (1) são as válvulas reguladoras e agulha, (2) os fluxímetros manuais, (3) as unidades digitais controladores de fluxo e (4) a unidade multicanal controladora de fluxo.

Para produzir as misturas equivalentes ao tecido, os fluxos parciais dos gases (produto do fluxo total do *TEG* e da porcentagem de cada componente da mistura) foram ajustados na unidade multicanal controladora (Fig. 6.4).

FIGURA 6.4. Esquema do sistema de gases para a composição dos *TEGs* (no caso, a mistura com metano), onde as setas representam o fluxo gasoso e as linhas pontilhadas os cabos de controle.

As misturas equivalentes ao tecido humano mole estudadas nesta tese foram:

- CH₄-*TEG*: 64,4% CH₄ + 32,4% CO₂ + 3,2% N₂;
- iC₄H₁₀-*TEG*: 51,4% iC₄H₁₀ + 42,3% CO₂ + 6,3% N₂;
- nC₄H₁₀-*TEG*: 51,4% nC₄H₁₀ + 42,3% CO₂ + 6,3% N₂.

O fluxo total do CH₄-*TEG* foi de 20,56 cm³/min e das demais de 15,74 cm³/min, sendo que este foi limitado pelo fundo de escala do controlador digital do CO₂, o segundo gás mais abundante nos *TEGs*. Por isto, quanto maior a porcentagem deste gás na mistura, menor foi o fluxo total utilizado.

No circuito de saída do fluxo de gás foi instalada uma bomba de vácuo tipo diafragma, KNF modelo 816.1.2KT.45P (duplo estágio a seco), para reduzir a pressão no interior da câmara com sistema de fluxo contínuo de gás. Para monitorar a pressão no interior da câmara, foi instalado um transdutor Honeywell®, modelo FP2000, com fundo de escala de 15 psia (≈1034 hPa) e precisão de 0,25% (Fig. 6.5), alimentado por uma fonte

DC da Minipa[®] modelo MPL-1303M. A corrente de saída do transdutor, entre 4 a 20 mA, foi registrada em um multímetro Fluke[®] modelo 289 (com precisão de 0,05% para correntes contínuas de até 50 mA) e os valores de pressão calculados utilizando o certificado de calibração fornecido pelo fabricante. O desvio padrão da média da pressão para um conjunto de dados é $\leq 0,12\%$.

FIGURA 6.5. 1) Transdutor de pressão Honeywell[®]; 2) cabeçotes micrométricos Mitutoyo[®]; 3) saída do gás ou mistura.

6.3 Produção de elétrons primários

Os elétrons primários foram gerados por efeito fotoemissivo devido à incidência de um feixe de laser de nitrogênio pulsado no catodo metálico. Cada disparo do laser LTB[®] modelo MNL200-LD produz um pulso com duração média (FWHM) de 700 ps. O feixe de laser possui baixa divergência, $1 \times 2 \text{ mm}^2$ de área, comprimento de onda na região do ultravioleta (337,1 nm) e energia nominal de 100 μJ . A área de projeção do feixe de laser no catodo foi estimada em $3 \times 5 \text{ mm}^2$, posicionando um papel milimetrado na superfície deste eletrodo. Por meio de uma interface com um computador e utilizando o software fornecido pelo fabricante, é possível selecionar a taxa de repetição do pulso

desejada (10, 15 ou 20 Hz) e monitorar a temperatura, energia do feixe e pressão do nitrogênio. Para todos os resultados aqui apresentados, foi adotada a taxa de repetição de 15 Hz e a pressão do gás manteve-se em 2600 hPa. Como as medidas são sensíveis ao alinhamento do arranjo experimental e à focalização do laser, o conjunto laser-câmara foi mantido sobre uma mesa ótica, projetada para este fim.

6.4 Determinação do Primeiro Coeficiente de Townsend de Ionização

O movimento de cargas entre os eletrodos produz uma corrente elétrica, medida com um eletrômetro Keithley® modelo 6517B (exatidão de 1% + 3 fA para correntes de até 20 pA), diretamente conectado ao catodo, conforme circuito representado na FIG. 6.6.

FIGURA 6.6. Esquema do circuito eletrônico das correntes do catodo e medição da pressão no interior da câmara

Para cada valor de tensão de polarização do anodo foram adquiridos os seguintes parâmetros:

- Corrente de fundo, i_{BG} : 100 medições da corrente elétrica com o feixe de laser ligado e bloqueado por um obturador eletricamente controlado instalado na saída do laser;
- Corrente total, i_T : 300 medições da corrente elétrica com o feixe de laser incidindo no catodo;
- Pressão no interior da câmara: medida com um transdutor Honeywell®, modelo FP2000, conforme detalhado no item 6.2;

- Pressão atmosférica, umidade e temperatura do laboratório, utilizando um medidor (*datalogger*) Extech RHT50, com precisões de 17 hPa, 3,5% e 0,1°C, respectivamente. A temperatura durante as medições foi mantida em $(18 \pm 1) ^\circ\text{C}$ com o auxílio de um sistema de ar condicionado.

Nos trabalhos anteriores, a faixa de E/N era limitada, além da pressão, também pela queda ôhmica no vidro [20, 75, 76]. No nitrogênio, por exemplo, acima de 6000 V não houve aumento do campo elétrico reduzido efetivo no gás [75]. Para minimizar este efeito, a intensidade do feixe laser e, consequentemente da corrente elétrica fluindo entre os eletrodos, foi atenuada interpondo-se grades metálicas entre a janela de saída do feixe e a janela de entrada da câmara. Deste modo, nas medidas efetuadas neste trabalho, a queda ôhmica representou menos de 1% do valor da tensão de polarização.

A corrente líquida, i , foi determinada como a diferença entre os valores médios de i_T e i_{BG} . Através da curva $i \times V$ é possível observar tanto a região de ionização, onde a corrente mantém-se aproximadamente constante, quanto à região de avalanche, onde ocorre a multiplicação de cargas. A corrente de ionização primária, I_0 , foi calculada como o valor médio das correntes líquidas na região de ionização e I representa a corrente líquida, i , para cada valor de tensão na região de avalanche.

O crescimento da carga coletada ou da corrente medida para um campo elétrico uniforme, como é o caso, segue um comportamento exponencial. Desta forma, podemos determinar o primeiro coeficiente de Townsend, α , através da relação:

$$\alpha = \frac{1}{d} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (6.1)$$

O parâmetro α/N foi obtido em função do campo elétrico reduzido, E/N , na faixa de 85 a 334 Td, com incerteza total de 15%. Os valores experimentais do primeiro coeficiente de Townsend de ionização são apresentados no Capítulo 8. Na Tab. 1 são discriminadas as fontes de incerteza na determinação de α/N e suas respectivas contribuições, sendo que a maior delas provém da não uniformidade do campo elétrico entre os eletrodos, estimada pela comparação entre os resultados de diferentes conjuntos de medição para o mesmo valor de E/N [18-20]. A dispersão observada deve-se principalmente à focalização do feixe laser, pois embora ele possua baixa divergência, sua

incidência no catodo é rasante e o espaçamento entre os eletrodos sendo muito pequeno, não permite evitar colisão de alguns elétrons nas bordas dos eletrodos.

TABELA 1. Componentes da incerteza total nas medidas de α/N .

	TIPO A	TIPO B
Cálculo da corrente líquida	$\leq 5\%$	1,0%
Desvio padrão da média de I_0	$\leq 5\%$	-----
d – Bloco padrão Mitutoyo®	-----	0,05%
Temperatura	$\leq 6\%$	0,25%
Pressão - Honeywell®	-----	0,6%
Pressão - Fluke®	$\leq 0,12\%$	0,05%
<i>Ripple</i> – fonte de alta tensão	-----	0,002%
Reprodutibilidade	$\leq 12\%$	-----
Total por tipo	15%	1,2%
TOTAL	15%	

Devido às alterações descritas no item 6.2, de modo a garantir a confiabilidade de nossos resultados, primeiramente o parâmetro α/N foi determinado em função do campo elétrico reduzido, E/N , para o nitrogênio (Air Products® - 99,999% de pureza) em 930 hPa (pressão ligeiramente acima da atmosférica) e a 120 hPa. A escolha deste gás deve-se à disponibilidade na literatura de conjuntos de dados em uma ampla faixa de E/N , incluindo dados por nós obtidos em pressão atmosférica antes das modificações descritas no item 6.2 [19]. Outros dois componentes dos *TEGs*, o dióxido de carbono (Air Products® - 99,9995% de pureza) e o metano (AGA® - 99,995% de pureza), também possuem literatura tão vasta em parâmetros de transporte quanto o nitrogênio, de modo que foram igualmente empregados para validar o aparato experimental e o método empregados.

Uma vez validado, o método foi empregado para a determinação do primeiro coeficiente de Townsend em *TEGs*. Estas misturas são tradicionalmente compostas de nitrogênio, dióxido de carbono e um hidrocarboneto, sendo estudados nesta tese o metano, o isobutano (Praxair® - 99,9% de pureza) e o n-butano (Praxair® - 99,5% de pureza). Devido à ausência de dados de α/N em *TEGs* em geometria planar, os resultados destas

misturas são apresentados em conjunto com os determinados para os seus componentes individuais. A escassez de dados experimentais de α/N nos isômeros do butano foi uma motivação adicional para estender os estudos a estes gases.

7. SIMULAÇÃO

Os valores experimentais do primeiro coeficiente de Townsend para cada gás ou mistura gasosa foram confrontados com os resultados de outros autores (quando obtidos com contadores proporcionais de placas paralelas e disponíveis para a mesma faixa de E/N aqui analisada) e aqueles simulados pelo Dr. Alessio Mangiarotti, do Instituto de Física da Universidade de São Paulo, utilizando duas versões do programa Magboltz 2, em linguagem FORTRAN. Este programa foi desenvolvido por S. Biagi [77-80] para calcular os parâmetros de transporte de elétrons a partir da simulação de colisões individuais entre elétron e átomo pelo método de Monte Carlo, nos regimes estacionário e pulsado. Magboltz 2 utiliza a fórmula analítica proposta por Opal et al. [81] para descrever a distribuição de energia dos elétrons produzidos por ionização por impacto e possui, de acordo com a disponibilidade de conjuntos de secção de choque, três opções de formalismos para espalhamento: isotrópico (“iso”) e dois tipos anisotrópicos (“aniso 1” - Longo and Capitelli [82] e “aniso 2” - Okhrimovskyy et al. [83]), sendo a última a opção padrão.

Na maioria dos casos (N_2 , CO_2 , CH_4 e os *TEGs*) foi utilizada somente a versão 8.6 do Magboltz 2, já adotada em trabalhos anteriores [19, 20, 75, 76]. Para o nitrogênio há dois conjuntos de secção de choque, “ N_2 2004” e “ N_2 2008”. Como a diferença entre eles é desprezível (ver a comparação entre eles em [19]), optou-se por usar o conjunto mais recente. Também há dois conjuntos disponíveis para o dióxido de carbono, “ CO_2 2004” e “ CO_2 2007”, ambos adotados neste trabalho, sendo que para o primeiro há somente a opção do formalismo de Okhrimovskyy et al. [83]. No caso do metano, há apenas um conjunto, “ CH_4 2008”. Para os isômeros do butano também se utilizou a versão 7.1 do programa Magboltz 2. No caso do isobutano, isto foi feito porque cada versão emprega um conjunto de secção de choque diferente (“ iC_4H_{10} 1999” – 7.1 e “ iC_4H_{10} 2009” – 8.6), sendo seus resultados significativamente divergentes. Já no caso do n-butano, o mesmo conjunto (“ nC_4H_{10} 2003”) está disponível para ambas as versões, porém permite apenas o formalismo isotrópico.

O presente método para determinar o primeiro coeficiente de Townsend a partir do crescimento da corrente elétrica é característico da técnica estacionária, embora tenha

sido utilizado um feixe de laser pulsado para a geração dos elétrons primários. Para verificar a validade da aplicação da análise típica da *SST* a dados gerados em condições similares a de experimentos *PTT*, foram comparados os resultados das simulações dos parâmetros de transporte nas misturas equivalentes ao tecido e em seus componentes para ambas as técnicas (Figs. 7.1 - 7.7). Conforme apontado por Sakai e Takashira [84, 85], para descrever a multiplicação de cargas na técnica estacionária, o parâmetro mais adequado é o primeiro coeficiente de Townsend, enquanto na técnica pulsada é a taxa de ionização, R_i . Ambas as grandezas são fornecidas pelo programa Magboltz 2, de modo que, para compará-las, foi determinado o produto $\alpha \cdot v_d$, que corresponde à taxa de ionização em *SST*, sendo v_d a velocidade de deriva dos elétrons. Até 200 Td, as quantidades R_i (*PTT*) e $\alpha \cdot v_d$ (*SST*) são praticamente coincidentes e mesmo para campos mais intensos (350 Td), a divergência entre as curvas é inferior a incerteza total de 15% dos resultados experimentais (Tab. 1). Na Fig. 7.8, é apresentada a diferença percentual entre R_i (*PTT*) e $\alpha \cdot v_d$ (*SST*), sendo 13% o valor máximo obtido, ou seja, inferior tanto à incerteza total quanto à discrepância entre os dados experimentais de diferentes autores (em torno de 25% - ver Cap. 4). Desta forma, pode-se dizer que qualquer diferença observada nos resultados desta tese não se deve ao método adotado.

FIGURA 7.1. Comparação entre a taxa de ionização, R_i , (*PTT*) e o produto $\alpha \cdot v_d$ (*SST*) para o nitrogênio.

FIGURA 7.2. Comparação entre o R_i (*PTT*) e o produto $\alpha.v_d$ (*SST*) para o dióxido de carbono.

FIGURA 7.3. Comparação entre o R_i (*PTT*) e o produto $\alpha.v_d$ (*SST*) para o metano.

FIGURA 7.4. Comparação entre o R_i (PTT) e o produto $\alpha \cdot v_d$ (SST) para o isobutano.

FIGURA 7.5. Comparação entre o R_i (PTT) e o produto $\alpha \cdot v_d$ (SST) para o n-butano.

FIGURA 7.6. Comparação entre o R_i (PTT) e o produto $\alpha \cdot v_d$ (SST) para a mistura TEG com metano.

FIGURA 7.7. Comparação entre o R_i (PTT) e o produto $\alpha \cdot v_d$ (SST) para a mistura TEG com isobutano.

FIGURA 7.8. Diferença percentual entre a taxa de ionização, R_i , (PTT) e o produto $\alpha.v_d$ (SST), que corresponde à taxa de ionização na técnica estacionária.

Para os gases eletronegativos, Magboltz 2 calcula separadamente o primeiro coeficiente de Townsend total, α_T , e o coeficiente de captura eletrônica, η . Assim, para estes gases, $\alpha = \alpha_T - \eta$. Na Tab. 2, estão discriminados os gases eletronegativos aqui estudados e o campo elétrico reduzido para o qual a diferença entre α e α_T é superior a 5%.

TABELA 2. Campo elétrico reduzido máximo para o qual a diferença entre o primeiro coeficiente de Townsend total e o efetivo, ambos calculados pelo programa Magboltz, é superior a 5%.

Gás ou mistura gasosa	E/N máximo (Td)
Dióxido de carbono	180
Metano	120
N-butano	144
CH ₄ -TEG	163
iC ₄ H ₁₀ -TEG	204

8. RESULTADOS E ANÁLISE

8.1 Validação do aparato experimental e do método empregados

8.1.1 Nitrogênio

O nitrogênio é empregado em diversas áreas, incluindo lasers [86] e sistemas de isolamento elétrico [87], além de ser considerado quase um padrão para estudos teóricos de espalhamento em baixas energias [53]. As diversas aplicações do N_2 têm motivado o estudo extensivo de suas secções de choque e seus parâmetros de transporte, nomeadamente coeficiente de difusão, velocidade de deriva e primeiro coeficiente de Townsend de ionização, como pode ser visto nas compilações dos dados disponíveis na literatura para estas grandezas apresentadas por Dutton [44] e Raju [38, 53]. Além disso, este gás é utilizado em microdosimetria, não apenas como constituinte minoritário dos *TEGs*, mas também puro [88]. Devido a todos os argumentos expostos, o nitrogênio foi escolhido para validar nosso arranjo experimental.

Os valores de corrente elétrica medidos para o nitrogênio em função do campo elétrico reduzido são apresentados na Fig. 8.1. Antes das modificações no arranjo experimental [19], a pressão no interior da câmara não era medida: adotava-se o valor de pressão lido em um medidor externo, dp Union mod. 99760-00.

A corrente em pressão atmosférica medida após as alterações realizadas no aparato experimental manteve o mesmo comportamento que o observado anteriormente. As diferenças entre as correntes medidas para o mesmo campo elétrico devem-se à diferença entre as pressões. Para baixos valores de E/N , as correntes medidas são praticamente iguais, caracterizando o regime de ionização. A região de avalanche, caracterizada pelo crescimento exponencial da corrente, teve início em torno de 116 Td.

Para a pressão de 120 hPa, a corrente elétrica medida também apresenta comportamento exponencial, porém é sempre menor do que a lida em pressão atmosférica. A corrente de ionização média, por exemplo, é quase três vezes menor em baixa pressão do que em 930 hPa. O patamar de ionização também possui extensão diferenciada, uma vez que é possível notar que abaixo de 50 Td, a corrente ainda cresce com o aumento do

campo, evidenciando processos de recombinação existentes; já o limiar entre os regimes de ionização e proporcional ocorre em 145 Td.

FIGURA 8.1. Correntes elétricas em função do campo elétrico reduzido para o nitrogênio. As barras de incerteza são menores do que a dimensão dos pontos.

Os primeiros coeficientes de Townsend de ionização normalizados para a densidade do gás em função do campo elétrico reduzido do nitrogênio em diferentes pressões são apresentados na Fig. 8.2 e na Tab. 3, assim como valores simulados com o programa Magboltz 2 e os presentes na literatura.

Dentre a profusão de trabalhos publicados sobre o primeiro coeficiente de ionização para o nitrogênio, bem como para o dióxido de carbono e o metano, foram selecionados para comparar com os resultados desta tese aqueles obtidos com contadores proporcionais de placas paralelas (campo elétrico uniforme), cujas incertezas foram informadas, evitando-se publicações diferentes do mesmo grupo de pesquisa, contanto que os dados fossem consistentes entre si. Além disso, em pelo menos uma publicação o método adotado deveria ser *PTT* e em outra o *SST* (ver Cap. 4), de modo a avaliar também experimentalmente se as diferenças observadas originam-se do método empregado. Quando possível, optou-se por publicações mais recentes. As principais características dos trabalhos selecionados sobre α/N do nitrogênio estão apresentadas na Tab. 4.

TABELA 3. Parâmetro α/N do nitrogênio em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	α/N (10^{-22} m^2)	
	930 hPa	120 hPa
117	0,23 $\pm$ 0,04	
131	0,42 $\pm$ 0,06	
146	0,71 $\pm$ 0,11	0,86 $\pm$ 0,13
152	0,91 $\pm$ 0,14	1,04 $\pm$ 0,16
157	1,14 $\pm$ 0,17	
163	1,44 $\pm$ 0,22	1,61 $\pm$ 0,24
169	1,62 $\pm$ 0,24	1,83 $\pm$ 0,27
175	2,0 $\pm$ 0,3	2,1 $\pm$ 0,3
189		3,5 $\pm$ 0,5
216		5,7 $\pm$ 0,9
243		7,9 $\pm$ 1,2
270		12,3 $\pm$ 1,9
284		14,3 $\pm$ 2,2

FIGURA 8.2. Primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função do campo elétrico reduzido para o nitrogênio. Os símbolos fechados correspondem aos resultados obtidos no presente trabalho. Os dados da literatura estão representados em símbolos abertos e as curvas contínuas foram calculadas com o programa Magboltz 2 [80].

TABELA 4. Informações técnicas relevantes das referências selecionadas para comparação com os resultados experimentais de α/N obtidos neste trabalho para o nitrogênio.

Referência	Método	d (mm)	Pressão	E/N (Td)	α/N	Comentários
Lima et al. 2012 [19]	<i>PTT</i>	1,5	~1013 hPa	100 – 170	Valores tabelados	Eletrodos de Al e resistivo (anodo). Incidência rasante. Laser de N ₂ (337 nm) com pulso de 700 ps
Haydon e Williams 1976 [21]	<i>SST</i>	2 -3	5000 Torr (6,67 hPa)	85 – 3400	Valores tabelados	Eletrodos de cobre tipo Rogowski. Incidência normal. Lâmpada de mercúrio.
Yousfi et al. 2009 [22]	<i>PTT</i>	30	0,6 – 600 Torr (0,8 – 800 hPa)	110 – 360	Valores digitalizados a partir de gráfico	Eletrodos de 12 cm de diâmetro. Incidência normal. Laser Nd – YAG (355 nm) com pulso de 5 ns.
Dahl et al. 2012 [23]	<i>PTT</i>	9 – 18	10 – 110 hPa	50 – 180	Valores tabelados*	Eletrodos tipo Rogowski. Incidência normal. Laser de estado sólido (266 nm).

*autores informam uma equação para o cálculo deste parâmetro a partir de grandezas tabeladas na publicação

A operação em baixa pressão permitiu estender o limite superior de campo elétrico reduzido de 170 Td [19] para 284 Td. A diferença entre os dados atuais em diferentes pressões foi de, no máximo, 13%. Diferenças entre os valores de α/N publicados por Lima et al. [19] e os atuais superiores à barra de incerteza (até 16%) foram obtidas acima de 163 Td, região onde o efeito de queda ôhmica no eletrodo resistivo resultou em coeficientes de ionização menores do que o esperado, considerando a tensão de polarização [20], pois a intensidade das correntes elétricas em Lima et al. [19] não foi atenuada.

O comportamento do parâmetro α/N resultante deste estudo foi compatível com os resultados presentes na literatura e com os calculados com o programa Magboltz 2, independentemente da pressão no interior da câmara. Assim como era esperado, também é possível observar que as diferenças não se devem ao método, pois o único conjunto de

dados que não foi obtido por *PTT* (Haydon e Williams [21]) é o que apresenta valores intermediários entre os conjuntos.

Como os valores do primeiro coeficiente de Townsend variam em duas ordens de grandeza dentro da faixa de campo elétrico reduzido estudada, para melhor avaliar a consistência dos dados apresentados na Fig. 8.2, na Fig. 8.3 são apresentados o $\ln(\alpha/N)$ em função do inverso do campo elétrico reduzido. Desta forma, através de um ajuste linear (entre 100 a 300 Td), foram determinados os parâmetros A e B da parametrização de Korff (Eq. 3.5), pois o coeficiente linear é igual ao $\ln A$ e o coeficiente angular é B. O ajuste foi realizado em todos os conjuntos de dados experimentais presentes na Fig. 8.2 sem ponderar as incertezas aclamadas por cada grupo, devido aos diferentes métodos empregados para estimá-las. Apenas para ilustrar, Haydon e Williams [21] informam apenas o desvio padrão, enquanto o grupo de Urquijo e colaboradores [22, 26, 29] fornecem o desvio máximo dos dados experimentais em relação a uma equação de ajuste.

Através dos resíduos resultantes do ajuste (Fig. 8.4), os diferentes conjuntos de α/N podem ser devidamente comparados. Uma vez que não há distinção na Fig. 8.2 entre as curvas simuladas e os dados experimentais, os valores calculados pelo programa Magboltz também foram confrontados com os provenientes da Eq. 3.5. Na Fig. 8.4 para os primeiros coeficientes de Townsend deste trabalho, são apresentadas as incertezas do tipo B (barras de incerteza contínuas) e total (barras de incerteza pontilhadas).

Na Fig. 8.4, observa-se mais claramente que o primeiro coeficiente de Townsend na região de campo elétrico reduzido estudada não apresenta uma tendência com relação ao método experimental empregado. Ainda que os valores simulados estejam superestimados abaixo de 175 Td, os conjuntos de Dahl et al. [23] e Lima et al [19] são concordantes com as curvas simuladas, sendo que esta discrepância diminui com a introdução de tratamentos anisotrópicos. Para todos os gases analisados, os maiores desvios entre os dados simulados e experimentais ocorrem para pequenos valores de α/N , na região imediatamente seguinte ao início do processo de multiplicação de cargas.

Acima de 250 Td, os resultados atuais estão em torno de 25% maiores do que os calculados com a aproximação de Korff e 20% maiores do que os simulados e os de Haydon e Williams [21]. Isto possivelmente deve-se à contribuição de elétrons secundários que são produzidos em maior número quando E/N próximo ao valor de ruptura. Para campos inferiores, os primeiros coeficientes de Townsend aqui determinados concordam com a parametrização dentro de 20%.

FIGURA 8.3. Aplicação da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do nitrogênio na faixa de campo elétrico reduzido entre 100 – 300 Td.

FIGURA 8.4. Resíduos referentes ao ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do nitrogênio. As curvas contínuas e tracejadas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

8.1.2 Dióxido de Carbono

O dióxido de carbono é uma molécula apolar cujo interesse nos processos colisionais é motivado pela sua aplicação em laser, além de sua importância na composição da atmosfera terrestre [25, 53]. Suas secções de choque e seus parâmetros de transporte foram medidos por diversos autores. Compilações de dados de secção de choque foram apresentadas por Raju [53] e de parâmetros de transporte por Dutton [44] e Gallagher et al. [45].

Os valores de corrente elétrica medidos para o dióxido de carbono em função do campo elétrico reduzido são apresentados na Fig. 8.5. Ao contrário do que foi observado para o nitrogênio (Fig. 8.1), o início do patamar de ionização ocorreu para o mesmo campo elétrico reduzido, independentemente da pressão. Entretanto, em baixa pressão ele se estendeu até $E/N = 72$ Td e, em pressão atmosférica, até $E/N = 57$ Td.

FIGURA 8.5. Corrente elétrica em função do campo elétrico reduzido para o dióxido de carbono. As barras de incerteza são menores do que a dimensão dos pontos.

A região de avalanche começou em 86 Td em 933 hPa e 114 Td em 120 hPa. Entre 25 Td e 114 Td, tanto em 930 hPa quanto 120 hPa, observa-se uma ligeira oscilação da corrente elétrica. Isto provavelmente deve-se à significativa eletronegatividade deste

gás, pois o mesmo fenômeno ocorreu para o n-butano em pressão atmosférica. Gallagher et al. [45] destacaram a existência de três regiões de E/N: abaixo de 50 Td, onde não ocorrem ionização ou captura eletrônica; entre 50 e 90 Td, em que há predomínio da captura eletrônica dissociativa e, acima de 90 Td, onde a captura e a ionização ocorrem simultaneamente.

O campo elétrico reduzido para o qual a produção de portadores de carga por ionização supera a perda destes portadores por captura eletrônica nos experimentos conduzidos por Davies [89] ocorreu em 82 Td e por Bhalla e Craggs [24] em 80 Td. De fato, considerando todos os trabalhos analisados [22-26, 89], somente Hernández-Ávila et al. [26] não obtiveram valores positivos do primeiro coeficiente de ionização efetivo para campos entre de 80 e 90 Td, o que está em acordo com o limiar para o regime proporcional observado em pressão atmosférica.

Os primeiros coeficientes de Townsend de ionização normalizados para a densidade do gás em função do campo elétrico reduzido (86 – 255 Td) do dióxido de carbono em diferentes pressões são apresentados na Fig. 8.6 e na Tab. 5, assim como valores simulados com o programa Magboltz 2 e os extraídos da literatura. No método aqui empregado, determina-se o primeiro coeficiente de Townsend de ionização efetivo, mas, por conveniência, a mesma denominação utilizada no nitrogênio continuará a ser adotada.

TABELA 5. Parâmetro α/N do dióxido de carbono em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	$\alpha/N (10^{-22} \text{ m}^2)$	
	930 hPa	120 hPa
86	0,21 $\pm$ 0,03	
100	0,51 $\pm$ 0,08	
114	1,03 $\pm$ 0,15	0,93 $\pm$ 0,14
129	1,82 $\pm$ 0,27	2,0 $\pm$ 0,3
145		3,0 $\pm$ 0,5
167		4,5 $\pm$ 0,7
190		6,3 $\pm$ 0,9
212		8,7 $\pm$ 1,3
235		10,8 $\pm$ 1,6
256		13,9 $\pm$ 2,1

FIGURA 8.6. Primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função do campo elétrico reduzido para o dióxido de carbono. Os símbolos fechados correspondem aos resultados obtidos no presente trabalho. Os dados da literatura estão representados em símbolos abertos e as curvas contínuas e tracejadas foram calculadas com o programa Magboltz 2 [80].

Com relação ao primeiro coeficiente de Townsend presente na literatura, a maioria dos estudos emprega a *SST* [45]. Somente estudos mais recentes adotaram a *PTT* [22, 23, 26]. Os trabalhos da literatura utilizados nesta tese para comparação com nossos resultados atuais estão listados na Tab. 6. Devido à significativa dispersão dos valores experimentais do coeficiente de ionização para campos elétricos reduzidos abaixo de 100 Td, excepcionalmente para este gás foram selecionadas cinco publicações.

O comportamento do primeiro coeficiente de Townsend é compatível com os valores experimentais e simulados de α/N , principalmente para campos entre 100 a 175 Td. A partir de 175 Td, os resultados desta tese e os devidos a Hernández-Ávila et al. [26] estão sistematicamente abaixo das curvas simuladas. Entre 120 e 930 hPa, a diferença foi de até 11%.

Na Fig. 8.7, são apresentados o $\ln(\alpha/N)$ do dióxido de carbono em função do inverso do campo elétrico reduzido para E/N . A parametrização de Korff foi aplicada na

faixa entre 100 a 260 Td. Esta limitação inferior deve-se à grande dispersão entre os dados para campos abaixo deste limite.

Para campos mais baixos (< 100 Td), tanto os valores simulados quanto os experimentais demonstram a dificuldade em determinar o parâmetro α no início da região proporcional, onde a ionização e a captura eletrônica são competitivas [44]. Dentre todos os conjuntos, somente os dados presentes obtidos em pressão atmosférica alinham-se com a reta ajustada. Todos os demais são inferiores ao previsto pela aproximação de Korff.

TABELA 6. Informações técnicas relevantes das referências selecionadas para comparação com os resultados experimentais de α/N obtidos neste trabalho para o dióxido de carbono.

Referência	Método	d (mm)	Pressão	E/N (Td)	α/N	Comentários
Yousfi et al. 2009 [22]	<i>PTT</i>	30	0,6 – 600 Torr (0,8 – 800 hPa)	110 – 360	Valores digitalizados a partir de gráfico	Eletrodos de 12 cm de diâmetro. Incidência normal. Laser Nd – YAG (355 nm) com pulso de 5 ns.
Dahl et al. 2012 [23]	<i>PTT</i>	9 – 18	10 – 110 hPa	50 – 180	Valores tabelados*	Eletrodos tipo Rogowski. Incidência normal. Laser de estado sólido (266 nm).
Bhalla e Craggs 1960 [24]	<i>SST</i>	Até 40	0,5 – 100 mmHg (0,67 – 133,3 hPa)	79 – 3643	Valores tabelados	Eletrodos tipo Rogowski. Incidência normal. Lâmpada de mercúrio.
Conti e Williams 1975 [25]	<i>SST</i>	2 – 30	14 – 667 Torr (19 – 889 hPa)	85 – 167	Valores tabelados	Eletrodos de cobre. Incidência normal. Lâmpada de mercúrio.
Hernández-Ávila et al. 2002 [26]	<i>PTT</i>	30	0,26 – 10 hPa	90 – 380	Valores digitalizados a partir de gráfico	Eletrodos de 12 cm de diâmetro. Incidência normal. Laser N ₂ .

*autores fornecem uma equação para o cálculo deste parâmetro a partir de grandezas tabeladas na publicação

FIGURA 8.7. Aplicação da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do dióxido de carbono na faixa de campo elétrico reduzido entre 100 – 260 Td.

Entre 80 – 90 Td, a divergência entre os resultados experimentais supera 100%. Para a mesma faixa de campo elétrico reduzido, a maior diferença (73%) entre as curvas resultantes da simulação com o programa Magboltz 2 ocorreu para o mesmo formalismo anisotrópico com conjuntos de secções de choque diferentes. Para o mesmo conjunto, “CO2 2007”, os resultados das simulações que consideraram o espalhamento isotrópico e anisotrópico divergem em 27,5%. É importante destacar, entretanto, que as discrepâncias obtidas entre diferentes formalismos e conjuntos de secções de choque são inferiores à diferença entre os valores experimentais. Acima de 90 Td, a divergência entre as curvas calculadas via Magboltz 2 é inferior a 6%.

Os resíduos do ajuste da Eq. 3.5 são apresentados na Fig. 8.8 e, analogamente à metodologia adotada para o nitrogênio, o desvio percentual dos resultados simulados com o programa Magboltz também é apresentado.

FIGURA 8.8. Resíduos referentes ao ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do dióxido de carbono. As curvas contínuas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

Como observado na Fig. 8.6, os resultados deste trabalho são concordantes com os apresentados nas publicações descritas na Tab. 3 e com os calculados pelo programa Magboltz, para campos até 170 Td. Acima deste valor, os dados de Bhalla e Craggs [24] são aproximadamente 40% maiores do que os obtidos em 120 hPa e os publicados por Hernández-Ávila et al. [26] e até 10% maiores do que as curvas simuladas. Esta diferença não pode ser atribuída ao método adotado, pois entre 175 – 200 Td, estes dados são compatíveis com os de Yousfi et al. [22], que utilizou a mesma técnica e o mesmo aparato experimental (com exceção do laser) que Hernández-Ávila et al. [26] (ver Tab. 4). Portanto, isto provavelmente ocorreu porque, a partir de 170 Td, os autores ignoraram a captura eletrônica, assumindo que o primeiro coeficiente de Townsend total era igual ao primeiro coeficiente de Townsend efetivo. Uma vez que o respectivo coeficiente foi subestimado, isto justifica o valor maior comparado ao das demais referências do coeficiente de ionização obtido.

8.1.3 Metano

O metano tem sido utilizado em detectores gasosos há décadas, destacando-se seu emprego como gás inibidor de descargas em misturas gasosas, como a denominada P-10, composta de argônio e 10% de metano [90] e o *TEG* baseada no metano. Este hidrocarboneto é também amplamente usado em processos por plasma, onde o conhecimento dos parâmetros de transporte é fundamental para as simulações realizadas previamente à execução destes processos [29]. Devido a sua importância, o metano é um gás com extensiva literatura a respeito de suas secções de choque e parâmetros de transporte, sendo uma compilação destes dados publicada recentemente por Raju [38, 53].

Os valores de correntes elétricas medidos para o metano em função do campo elétrico reduzido são apresentados na Fig. 8.9.

A extensão do patamar de ionização, bem como o início da região de avalanche, foram iguais no metano em 120 e 930 hPa, diferentemente do que foi observado no nitrogênio e no dióxido de carbono. O limiar para a região proporcional também é inferior, em torno de 100 Td. As correntes máximas para este gás imediatamente antes de sua ruptura são aproximadamente dez vezes maiores do que as obtidas com os gases anteriores.

Embora o primeiro coeficiente de Townsend para o metano tenha sido investigado por diversos autores, há uma divergência quanto à eletronegatividade deste gás. As publicações anteriores a 1986 consideravam que o metano não era eletronegativo, como é o caso das medições em *SST* de Heylen [27]. Entretanto, os experimentos em *PTT* conduzidos por Hunter et al. [46] demonstraram que o metano é fracamente eletronegativo, sendo que a captura eletrônica foi significativa em relação à ionização para campos entre 80 Td a 150 Td. Davies et al. [28], utilizando um tubo de deriva e uma fonte de radiação ultravioleta pulsada, não observaram experimentalmente a captura eletrônica, embora por simulação tenham estimado o coeficiente correspondente a este processo (Fig. 3.3). Este fenômeno também foi observado experimentalmente por de Urquijo et al. [29] entre 120 – 320 Td. Desta forma, quando o coeficiente de captura eletrônica é informado nos trabalhos discriminados na Tab. 7, determinou-se α pela diferença entre o coeficiente de ionização total e ele. Caso contrário, assumiu-se que foi o coeficiente de ionização efetivo que foi medido.

O primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função do campo elétrico reduzido na faixa de 90 – 300 Td para o metano em diferentes pressões é apresentado na Fig. 8.10 e na Tab. 8.

FIGURA 8.9. Corrente elétrica em função do campo elétrico reduzido para o metano. As barras de incerteza são menores do que a dimensão dos pontos.

TABELA 7. Informações técnicas relevantes das referências selecionadas para comparação com os resultados experimentais de α/N obtidos neste trabalho para o metano.

Referência	Método	d (mm)	Pressão	E/N (Td)	α/N	Comentários
Heylen 1963[27]	<i>SST</i>	Até 12	0,5; 3; 30; 200 Torr (0,67 - 267 hPa)	85 – 8500	Valores tabelados	Eletrodos tipo Rogowski. Incidência normal. Lâmpada UV.
Davies et al. 1989 [28]	<i>TOF</i>	7 – 52	0,1 – 1000 Torr (0,13 - 1333 hPa)	80 - 1000	Valores tabelados	Tubo de deriva. Lâmpada de xenônio
Urquijo et al. 1999 [29]	<i>PTT</i>	35	1,33 – 667 hPa	70 – 700	Valores digitalizados a partir de gráfico	Eletrodos de 12 cm de diâmetro. Incidência normal. Laser N ₂ (377 nm) com pulso de 3ns.

FIGURA 8.10. Primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função do campo elétrico reduzido para o metano. Os símbolos fechados correspondem aos resultados obtidos no presente trabalho. Os dados da literatura estão representados em símbolos abertos e as curvas contínuas e tracejadas foram calculadas com o programa Magboltz 2 [80].

TABELA 8. Parâmetro α/N do metano em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	α/N (10^{-22} m^2)	
	930 hPa	120 hPa
100	0,71 $\pm$ 0,11	
114	1,36 $\pm$ 0,20	1,26 $\pm$ 0,19
128	2,3 $\pm$ 0,3	2,1 $\pm$ 0,3
157		4,2 $\pm$ 0,6
182		6,9 $\pm$ 1,0
211		10,8 $\pm$ 1,6
233		14,5 $\pm$ 2,2
251		17 $\pm$ 3
257		18 $\pm$ 3
268		20 $\pm$ 3
278		21 $\pm$ 3

Assim como ocorreu para o nitrogênio e o dióxido de carbono, não houve diferenças apreciáveis entre os dados em baixa pressão e pressão atmosférica, sendo inferior a 7%. Para campos acima de 150 Td, os parâmetros α/N desta tese são sistematicamente menores do que os valores experimentais presentes na literatura e os simulados de α/N . Entretanto, considerando a incerteza experimental, eles estão de acordo com os demais dados, principalmente com os de Davies et al. [28] em campos mais elevados. Para $E/N \approx 250$ Td, onde há resultados publicados por todos os trabalhos citados, os valores de α/N deste trabalho divergem entre 13,7% [28] e 25,8% [29].

Na Fig. 8.11, são apresentados o $\ln(\alpha/N)$ do metano em função do inverso do campo elétrico reduzido para E/N .

FIGURA 8.11. Aplicação da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do dióxido de carbono na faixa de campo elétrico reduzido entre 100 – 311 Td.

A parametrização de Korff na Fig. 8.11 foi aplicada na faixa de 100 - 311 Td. Novamente foi necessário limitar o valor inferior de E/N , já que abaixo deste valor o comportamento do primeiro coeficiente de ionização determinado experimentalmente não é linear, ainda que a dispersão observada seja menor do que para o CO_2 .

Os resíduos do ajuste da Eq. 3.5 são apresentados na Fig. 8.12, em conjunto com o desvio percentual dos resultados simulados com o programa Magboltz.

Os resultados obtidos em 120 e 930 hPa abaixo de 150 Td são concordantes com os presentes na literatura e a simulação. Acima deste campo, eles são compatíveis com os demais dentro da incerteza experimental, ainda que estejam em torno de 20% abaixo dos valores calculados através da parametrização de Korff e do programa Magboltz 2. Uma vez que os maiores valores de α/N em campos acima de 250 Td foram obtidos por Urquijo et al. [29], que também utilizou um laser de N_2 pulsado, esta divergência não pode ser atribuída à diferença de método empregado.

FIGURA 8.12. Resíduos referentes ao ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do metano. As curvas contínuas e tracejadas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

Destaca-se também o excelente acordo entre os dados de Urquijo et al. [29] e os simulados entre 100 – 225 Td. Em toda a faixa de E/N estudada, as curvas calculadas por método Monte Carlo preveem satisfatoriamente o comportamento médio dos dados experimentais, representado pela parametrização de Korff (linha contínua preta).

Considerando os resultados obtidos para o nitrogênio, dióxido de carbono e metano, três gases cujo primeiro coeficiente de Townsend já foi amplamente estudado, pode-se estender a metodologia descrita no Capítulo 6 aos isômeros do butano e às misturas gasosas equivalentes ao tecido humano mole.

8.2 Isobutano e n-Butano

A eficiência para inibição de descargas cresce com o número de átomos de uma molécula, o que torna hidrocarbonetos mais pesados, como o isobutano e o n-butano, escolhas apropriadas para sua aplicação como gás inibidor em detectores gasosos que operam com altos ganhos em carga [36]. De fato, o isobutano tem sido amplamente empregado em misturas gasosas usadas em câmaras multi-fios [36], *RPCs* [91, 92], câmaras de deriva (*Drift Chambers*) [93] e *TEPCs* [31, 94], dentre outros tipos de contadores proporcionais. Ele também é adotado em detectores em regime de descarga auto-limitada tanto puro [95], como em misturas com argônio [96]. A essência da ação dos hidrocarbonetos como inibidores de descargas são os processos de dissociação, cuja principal desvantagem é o envelhecimento dos detectores devido à formação de polímeros [36].

O isobutano e o n-butano são isômeros estruturais do butano (C_4H_{10}), sendo a estrutura do primeiro em cadeia ramificada e do segundo em cadeia linear. Como explicado na introdução, as secções de choque e os parâmetros de transporte do isobutano não são tão bem estudados quanto a dos gases anteriormente analisados. Raju [38, 53] publicou compilações de dados para ambos os isômeros, sendo que a maioria da informação ali contida refere-se somente ao n-butano. A similaridade observada entre os resultados de secção de choque de espalhamento total para isômeros estruturais [53], somada à escassez de dados para o isobutano, conduz a prática de utilizar dados do n-butano para o isobutano. Entretanto, algumas propriedades físico-químicas conhecidas são diferentes. Por exemplo, o potencial de ionização do isobutano é 10,68 eV e do n-butano é 10,57 eV [97]. Além disso, Heylen e Lewis [54] observaram que, para o mesmo valor do produto da pressão e do espaçamento entre os eletrodos, o isobutano possui tensão de

disruptura maior do que o n-butano (Fig. 3.5). Assim, há interesse não só de obter dados de primeiro coeficiente de Townsend para o isobutano em regiões de E/N onde ele é ainda desconhecido, mais também de verificar se o comportamento deste parâmetro depende ou não da estrutura do isômero do butano.

Os valores de correntes elétricas medidos para o nC_4H_{10} e o iC_4H_{10} em função do campo elétrico reduzido são apresentados na Fig. 8.13.

FIGURA 8.13. Corrente elétrica em função do campo elétrico reduzido para o isobutano e o n-butano. As barras de incerteza são menores do que a dimensão dos pontos.

As correntes máximas medidas para os isômeros do butano são da mesma ordem de grandeza das determinadas para o metano (Fig. 8.9) e, portanto, quase dez vezes maior do que para o dióxido de carbono (Fig. 8.5) e duas ordens de grandeza maior do que para o nitrogênio (Fig. 8.1). Isto se deve ao menor potencial de ionização dos hidrocarbonetos em comparação aos gases poliatômicos mais simples. Para o mesmo campo elétrico reduzido, a corrente medida no n-butano é sempre maior do que no isobutano.

O final do patamar de ionização do nC_4H_{10} é aproximadamente 30 Td abaixo do obtido para o iC_4H_{10} . Assim como o CO_2 , o n-butano é eletronegativo, o que justifica a

observação da mesma oscilação no valor de corrente entre o final do patamar de ionização (em torno de 120 Td) e o início da região de avalanche em 158 Td (Figs. 8.5 e 8.13, respectivamente). Raju [38] reportou secções de choque de captura eletrônica do n-butano, mas não há informação sobre a eletronegatividade do isobutano na literatura consultada [38, 42, 53, 98 - 100].

O limiar entre a região de ionização e de avalanche no isobutano foi 157 Td em 120 hPa e 143 Td em 930 hPa. No n-butano, o predomínio da ionização, em relação à captura eletrônica, ocorreu a partir de 153 Td em pressão atmosférica. Não houve diferença entre os isômeros em relação ao valor máximo de E/N antes da ruptura do gás em pressão atmosférica. Já no isobutano em 120 hPa, foi possível atingir $E/N = 334$ Td. Desta forma, a mudança do aparato experimental permitiu aumentar em 140 Td o campo máximo antes da ocorrência de descargas no isobutano.

O primeiro coeficiente de Townsend em função do campo elétrico reduzido para o isobutano e o n-butano é apresentado na Fig. 8.14 e nas Tabs. 9 e 10, respectivamente.

TABELA 9. Parâmetro α/N do isobutano em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	$\alpha/N (10^{-22} \text{ m}^2)$	
	930 hPa	120 hPa
143	0,103 $\pm$ 0,015	
149	0,165 $\pm$ 0,025	
154	0,22 $\pm$ 0,03	
160	0,38 $\pm$ 0,06	
165	0,55 $\pm$ 0,08	
170	0,60 $\pm$ 0,09	0,86 $\pm$ 0,13
177	0,79 $\pm$ 0,12	
182	1,03 $\pm$ 0,15	1,82 $\pm$ 0,27
189	1,14 $\pm$ 0,17	
193	1,24 $\pm$ 0,19	2,5 $\pm$ 0,4
206		3,6 $\pm$ 0,5
216		5,2 $\pm$ 0,8
241		7,0 $\pm$ 1,1
269		10,8 $\pm$ 1,6
295		15,1 $\pm$ 2,3
308		17,5 $\pm$ 2,6
320		22 $\pm$ 3
334		25 $\pm$ 4

TABELA 10. Parâmetro α/N do n-butano em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	α/N (10^{-22} m^2) 930 hPa
158	0,23 $\pm$ 0,03
172	0,63 $\pm$ 0,10
180	0,90 $\pm$ 0,14
189	1,28 $\pm$ 0,19
195	1,61 $\pm$ 0,24

Os únicos dados de α/N em geometria de placas paralelas presentes na literatura dentro da faixa de campo aqui investigada foram obtidos para o n-butano em experimentos *SST* conduzidos por Heylen [70] e para o isobutano em trabalhos anteriores publicados por Bueno et al. [18-20] em pressão atmosférica, sendo escolhida a publicação mais recente dentre estes (Tab. 11).

TABELA 11. Informações técnicas relevantes da referência selecionada para comparação com os resultados experimentais de α/N obtidos neste trabalho para os isômeros do butano.

Referência	Método	d (mm)	Pressão	E/N (Td)	α/N	Comentários
ISOBUTANO						
Mangiarotti et al. 2012 [20]	<i>PTT</i>	1,5	~1013 hPa	143 – 190	Valores tabelados	Eletrodos de Al e resistivo (anodo). Incidência rasante. Laser de N_2 (337 nm) com pulso de 700 ps
N-BUTANO						
Heylen 1975 [70]	<i>SST</i>	Até 12	1, 5, 20, 100, 400 Torr (1,33 - 533 hPa)	133 – 5660	Valores tabelados	Eletrodos tipo Rogowski. Incidência normal. Lâmpada UV.

FIGURA 8.14. Primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função de E/N para o isobutano (A) e o n-butano (B). Os símbolos fechados correspondem aos resultados deste trabalho. As curvas referem-se às simulações com o programa Magboltz 2 [80].

A diferença entre o parâmetro α do n-butano calculados pelo programa Magboltz 2 considerando ou não a captura eletrônica chega a 6%, sendo que o campo para o qual o coeficiente de ionização e o de captura são iguais encontra-se entre 80 – 100 Td. Os valores simulados para o n-butano foram menores do que para o isobutano, mas isto não foi observado experimentalmente. Em pressão atmosférica, os valores experimentais para ambos os isômeros são compatíveis entre si dentro da incerteza experimental e também com todas as curvas simuladas, com exceção da calculada para o isobutano com a versão 8.6 do programa Magboltz 2. Os dados de Heylen [70] para o n-butano estão acima das duas curvas simuladas para este gás (Fig. 8.14-B).

Como foi observado para os três gases anteriormente analisados (Figs. 8.2, 8.6 e 8.10), era esperado que o comportamento do α/N fosse independente da pressão. Entretanto, os valores medidos do primeiro coeficiente de Townsend do isobutano para o mesmo campo elétrico foram maiores para pressões menores, sendo que o α/N em 120 hPa é até o dobro do determinado em 930 hPa. Em baixa pressão, os dados experimentais obtidos para o isobutano estão em conformidade com os valores simulados para este mesmo gás com o Magboltz 2.8.6 e com os determinados por Heylen [70] para o n-butano.

Na Fig. 8.15 são apresentados o $\ln(\alpha/N)$ do isobutano em função do inverso do campo elétrico reduzido. Os resíduos da aplicação da Eq. 3.5 aos dados experimentais estão expostos nas Figs. 8.16 (isobutano) e 8.17 (n-butano). Como não foi observada a independência do primeiro coeficiente de Townsend reduzido com a pressão, foram ajustadas duas curvas para o isobutano. As diversas faixas de E/N para as quais a parametrização de Korff foi aplicada estão disponibilizadas na Tab. 12.

TABELA 12. Região de campo elétrico reduzido correspondente a cada par de parâmetros da Eq. 3.5 ajustada aos dados de α/N dos isômeros do butano.

Gás	Conjuntos	Faixa de E/N válida (Td)
Isobutano	930 hPa e Mangiarotti et al [20]	143 – 194
	120 hPa	169 – 334
N-butano	930 hPa e Heylen [70]	133 – 283

FIGURA 8.15. Aplicação da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do isobutano (A) e n-butano (B).

FIGURA 8.16. Resíduos do ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do isobutano em 930 hPa (A) e 120 hPa (B). As curvas contínuas e tracejadas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

FIGURA 8.17. Resíduos do ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do n-butano em 930 hPa. As curvas contínuas e tracejadas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

Os valores de α/N do isobutano em 930 hPa reproduziram os resultados obtidos antes das modificações do arranjo, publicados por Mangiarotti et al. [20]. Entretanto, como observado anteriormente, este parâmetro medido em baixa pressão é até 85% (Fig. 8.15-A) maior do que em 930 hPa. Para o isobutano, o programa Magboltz 2 utiliza conjuntos de secções de choque diferentes (“1999” e “2009”) para as versões 7.1 e 8.6, respectivamente. Entre 100 – 200 Td, a diferença entre as duas versões chega a 40%, diminuindo lentamente até atingir 15% em 327 Td. Os dados experimentais em baixa pressão são mais concordantes com a versão mais recente do programa, embora para $E/N > 225$ Td, eles também sejam compatíveis com a versão mais antiga.

O parâmetro α/N no n-butano medido em pressão atmosférica está em acordo com as curvas simuladas. Os valores experimentais de Heylen [70] são sistematicamente superiores em toda a faixa de E/N analisada. Os cálculos realizados com as duas versões do programa Magboltz 2 são visualmente iguais, sendo a diferença entre elas inferior a 0,4%, pois este programa utiliza o mesmo conjunto de secção de choque em ambas as versões.

8.3 Mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole

8.3.1 Mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole baseada no metano

Este *TEG* foi proposto em 1956 por Rossi e Failla [5] e continua sendo amplamente empregada em *TEPCs* e suas variações por ser a mistura gasosa com melhor equivalência ao denominado tecido *ICRU* [2]. Apesar de sua importância, praticamente não há trabalhos experimentais sobre os parâmetros de transporte desta mistura. O primeiro coeficiente de Townsend, por exemplo, foi determinado unicamente por Schmitz e Bootz [32] a partir de medições do ganho em uma *TEPC*. O ganho nesta mistura também foi determinado por outros autores e a comparação entre todos estes resultados foi publicada por Akande [101], que demonstrou que não há acordo entre os dados de ganho presentes na literatura para o CH_4 -*TEG*. Este fato, somado à discussão prévia acerca da determinação de parâmetros de transporte em campos elétricos de simetria cilíndrica, motivou o estudo desta mistura em geometria de placas paralelas.

Os valores de correntes elétricas medidos para o CH_4 -*TEG* em função do campo elétrico reduzido são apresentados na Fig. 8.18. Assim como ocorreu para a maioria dos gases, o limiar entre a região de ionização e avalanche é maior em baixa pressão (114 Td) do que em pressão atmosférica (100 Td). Em 120 hPa, embora a corrente de ionização na mistura seja consideravelmente inferior a dos gases com maior concentração neste *TEG* (CH_4 e CO_2), o comportamento da corrente em regime de multiplicação segue o obtidos para estes dois gases. Com a mistura, foi possível atingir campos elétricos reduzidos mais altos antes da ruptura gasosa do que com qualquer um dos seus componentes. Para estes, o maior E/N foi 283 Td para o nitrogênio e com este *TEG*, chegou-se a 291 Td.

O primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função de E/N para o CH_4 -*TEG* em diferentes pressões é apresentado na Fig. 8.19 e na Tab. 13. Pela ausência de dados na literatura para esta mistura em campos elétricos uniformes, os parâmetros α/N determinados para os componentes da mistura (Figs. 8.2, 8.6, 8.10) também são exibidos. Para facilitar a visualização, uma vez que o primeiro coeficiente de Townsend medido no nitrogênio, dióxido de carbono e metano foram independentes da pressão, os dados são representados como conjunto único, sem diferenciar os resultados de acordo com a pressão do gás.

FIGURA 8.18. Corrente elétrica em função do campo elétrico reduzido para o $\text{CH}_4\text{-TEG}$. As barras de incerteza são menores do que a dimensão dos pontos.

FIGURA 8.19. Primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função do campo elétrico reduzido para o $\text{CH}_4\text{-TEG}$ e seus constituintes. As curvas contínuas foram calculadas com o programa Magboltz 2 [80]

TABELA 13. Parâmetro α/N do $\text{CH}_4\text{-TEG}$ ($\text{CH}_4 - 64,4\%$, $\text{CO}_2 - 32,4\%$ e $\text{N}_2 - 3,2\%$) em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	$\alpha/N (10^{-22} \text{ m}^2)$	
	930 hPa	120 hPa
100	0,62 $\pm$ 0,09	
115	1,06 $\pm$ 0,16	1,22 $\pm$ 0,18
129	1,62 $\pm$ 0,24	
142		3,0 $\pm$ 0,5
158		4,4 $\pm$ 0,7
171		6,8 $\pm$ 1,0
183		8,1 $\pm$ 1,2
194		9,5 $\pm$ 1,4
206		10,5 $\pm$ 1,6
213		11,4 $\pm$ 1,7
217		12,2 $\pm$ 1,8
224		13,3 $\pm$ 2,0
235		14,8 $\pm$ 2,2
247		16,7 $\pm$ 2,5
258		19,1 $\pm$ 2,9
280		23 $\pm$ 4
291		25 $\pm$ 4

A comparação entre o parâmetro α do $\text{CH}_4\text{-TEG}$ e o de seus componentes foi motivada pelos resultados obtidos através de simulação empregando o método de Monte Carlo realizada por Ségur et al [33] para um contador proporcional de geometria cilíndrica. Eles demonstraram que o primeiro coeficiente de ionização do $\text{CH}_4\text{-TEG}$ assemelha-se fortemente ao este parâmetro no metano puro para campos elétricos reduzidos inferiores a aproximadamente 2650 Td. Acima deste campo, ele segue o comportamento do α/N no dióxido de carbono puro. É importante destacar que a curva simulada para o CO_2 , o segundo componente mais abundante nos TEGs , é só ligeiramente inferior à calculada para o metano puro na faixa de E/N aqui investigada.

O programa Magboltz 2 permite habilitar para misturas gasosas ou não o efeito Penning, que é a transferência de energia de excitação devida à colisão entre diferentes tipos de moléculas. Este fenômeno só é significativo quando o componente majoritário da mistura possui potencial de ionização maior do que o componente menos abundante. Como observado na Fig. 8.19, o nitrogênio é único gás deste TEG cujo primeiro coeficiente de Townsend é muito menor do que os outros. Isto significa que é necessário que o elétron

adquirir uma energia superior para ionizar o N_2 do que para produzir o mesmo efeito nas demais moléculas. De fato, o CH_4 possui o menor potencial de ionização na mistura [97]. Logo, não é esperado que o efeito Penning fosse observado, o que foi comprovado pela simulação, já que os resultados obtidos com e sem levar em conta este efeito são exatamente iguais para esta mistura.

Dentro da incerteza experimental, não há diferenças apreciáveis entre os parâmetros α/N do CH_4 -TEG obtidos com diferentes pressões. De fato, a divergência entre eles é de, no máximo, 14,7%. Estes também são coincidentes com os primeiros coeficientes de ionização do metano puro em toda extensão de campo elétrico reduzido, sendo a diferença entre eles inferior a 13,7%, confirmando as observações de Ségur et al. [33]. Para $E/N > 150$ Td, os valores de α/N no CO_2 são ligeiramente inferiores aos resultados obtidos para a mistura e o metano, embora, considerando a incerteza experimental, eles sejam compatíveis entre si.

Na Fig. 8.20, são apresentados o $\ln(\alpha/N)$ da mistura equivalente ao tecido baseada no metano em função do inverso do campo elétrico reduzido para E/N . A parametrização de Korff foi aplicada na faixa de 100 - 291 Td. Os resíduos do ajuste da Eq. 3.5 são apresentados na Fig. 8.21, em conjunto com o desvio percentual dos resultados simulados com o programa Magboltz. Considerando a incerteza total, os valores experimentais de α/N estão em acordo com as curvas simuladas, embora haja a tendência do programa Magboltz 2 de superestimar os resultados. A introdução dos formalismos anisotrópicos fornece resultados até 2% menores.

Devido à ausência de dados da literatura para esta mistura, determinou-se a razão B/A , utilizando os coeficientes do ajuste na Fig. 8.20, para verificar a consistência dos resultados aqui apresentados, sendo que os valores obtidos dos parâmetros A e B são $(17,4 \pm 1,1) \times 10^{-21} \text{ m}^2$ e $(570 \pm 1) \text{ Td}$, respectivamente, sendo $B/A = (32,7 \pm 2,1) \text{ eV}$. Como discutido no Cap. 3, esta razão deve variar entre o primeiro potencial de ionização e a energia média necessária para a produção de um par de íons no meio via colisão elétron-molécula. Somente é informado o primeiro potencial de ionização de gases. Logo, para estimar este valor na CH_4 -TEG, calculou-se a média ponderada dos primeiros potenciais de ionização de cada componente da mistura [97], obtendo-se o valor de 13,08 eV. Já a energia média foi reportada por Waibel e Grosswendt [102] e varia entre 29,60 eV e 58,61 eV. Logo, o valor calculado com os dados desta tese está em acordo com a faixa de valores de energia esperados.

FIGURA 8.20. Aplicação da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais da mistura *TEG* baseada no metano na faixa de campo elétrico reduzido entre 100 – 291 Td.

FIGURA 8.21. Resíduos referentes ao ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do $\text{CH}_4\text{-TEG}$. As curvas contínuas e tracejadas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

Embora os únicos dados de α/N na mistura equivalente ao tecido humano mole baseada no metano tenham sido obtidos em geometria cilíndrica e para campos elétricos reduzidos superiores aos aqui empregados, utilizou-se a extrapolação da parametrização de Korff para comparar os resultados de Schmitz e Booz [32] e os apresentados na Fig. 8.20, sendo esta comparação apresentada na Fig. 8.22. Para facilitar a visualização do gráfico, somente uma curva calculada pelo programa Magboltz é disponibilizada.

FIGURA 8.22. Comparação entre os dados para o metano puro e o $\text{CH}_4\text{-TEG}$.

Considerando as observações de que os valores do primeiro coeficiente de Townsend no metano puro e neste *TEG* são coincidentes para campos elétricos reduzidos menos intensos, foram representados também os resultados experimentais presentes para o metano.

Schmitz e Booz [32] empregaram na medição do ganho gasoso e do primeiro coeficiente de Townsend um contador proporcional do tipo Rossi, caracterizado por ser esférico (diâmetro interno de 1,27 cm), mas devido a uma hélice colocada em torno do fio anodo (com diâmetro de 46 μm), possui campo elétrico de simetria cilíndrica. Os valores

de α/N são apresentados na forma de gráfico no intervalo de campo elétrico normalizado pela pressão de 110 – 1780 V. cm⁻¹.torr⁻¹ e pressão da mistura entre 56,27 a 562,69 torr (75,02 – 750,32 hPa). Utilizando a temperatura informada em seu trabalho (20°C), estes valores foram digitalizados e convertidos para unidades independentes da densidade do gás. Desta forma, a faixa de campo elétrico reduzido estudada por estes autores foi de 315 – 5045 Td.

Na Fig. 8.22, observa-se que todos os resultados obtidos para o metano e a mistura equivalente ao tecido em geometria de placas paralelas são coincidentes, embora a extrapolação da aproximação de Korff apresentada na Fig. 8.20 tenha a tendência de subestimar os valores de α/N para campo acima de 500 Td, lembrando que a região em que ela é válida vai de 100 – 291 Td. Entretanto, os dados de Schmitz e Booz [32] são em torno de 20% maiores do que todos os demais. A origem desta discrepância, como discutido no Cap. 4, pode ser atribuída à possibilidade de o elétron antes de atingir o fio anodo, circundá-lo, aumentando o número de colisões, resultando em valores de α/N superiores aos obtidos em condições de equilíbrio. Este efeito é mais acentuado em baixa pressão, condição empregada no *TEPC* utilizado por Schmitz e Booz.

8.3.2 Mistura gasosa equivalente ao tecido humano mole baseada nos isômeros do butano.

O uso do isobutano na composição da mistura denominada *iC₄H₁₀-TEG*: 51,4% de *iC₄H₁₀*, 42,3% de CO₂ e 6,3% de N₂ foi a solução encontrada por Schrewe et al. [31] na proposição de um microdosímetro com tempo de resposta suficientemente rápido para ser combinado com a técnica de Tempo de Voo. O único estudo encontrado na literatura a respeito das características deste gás para aplicação em detectores proporcionais foi realizado por Bronic e Grosswendt [42], que mediram o ganho em um contador cilíndrico a 100 hPa, mas não determinaram o primeiro coeficiente de ionização. Como não há trabalhos sobre *TEGs* com o n-butano, utilizou-se a mesma concentração de cada gás da mistura com isobutano para o *nC₄H₁₀-TEG*. Portanto, pela primeira vez, o primeiro coeficiente de Townsend de ionização é investigado em *TEGs* compostos por isômeros do butano, já que nem mesmo simulações deste parâmetro foram publicadas.

Os valores de corrente elétrica medidos para os *TEGs* compostos por isômeros do butano em função do campo elétrico reduzido são apresentados na Fig. 8.23.

FIGURA 8.23. Corrente elétrica em função do campo elétrico reduzido para os *TEGs* compostas por isômeros do butano. As barras de incerteza são menores do que as dimensões dos pontos.

A corrente de ionização média no *iC₄H₁₀-TEG* é praticamente igual em 120 e 935 hPa, divergindo em apenas 4,2%. Analogamente aos resultados obtidos para a maioria dos gases, o limiar entre o regime de ionização e de avalanche é maior em baixa pressão, sendo esta diferença de 27 Td com a *TEG* baseada no isobutano. Em comparação com os hidrocarbonetos puros, o limiar para o início do regime proporcional e o valor de *E/N* imediatamente anterior à ruptura são sempre menores nas misturas.

O primeiro coeficiente de Townsend de ionização em função de *E/N* para as misturas *iC₄H₁₀-TEG* e *nC₄H₁₀-TEG* é apresentado na Fig. 8.24, em conjunto com seus componentes (Figs. 8.2, 8.6 e 8.14), e nas Tabs. 14 e 15. Como alguns componentes da mistura são eletronegativos, foi calculado o α/N efetivo.

Os valores do primeiro coeficiente de Townsend de ionização no *iC₄H₁₀-TEG* em diferentes pressões são compatíveis entre si dentro da incerteza experimental e, por isto, são apresentados como um conjunto único. As curvas simuladas com o programa Magboltz 2 são coincidentes com os resultados experimentais do *iC₄H₁₀-TEG* para ambas as pressões e do *nC₄H₁₀-TEG* para pressão atmosférica.

TABELA 14. Parâmetro α/N do iC_4H_{10} -TEG (iC_4H_{10} – 51,4%, CO_2 – 42,3% e N_2 – 6,3%) em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	$\alpha/N (10^{-22} m^2)$	
	930 hPa	120 hPa
115	0,20 $\pm$ 0,03	
129	0,60 $\pm$ 0,09	
143	1,26 $\pm$ 0,19	1,54 $\pm$ 0,23
155	2,0 $\pm$ 0,3	
158	2,4 $\pm$ 0,4	2,6 $\pm$ 0,4
169		3,9 $\pm$ 0,6
183		5,4 $\pm$ 0,8
192		6,4 $\pm$ 1,0
206		8,2 $\pm$ 1,2
216		9,6 $\pm$ 1,4
240		13,2 $\pm$ 2,0
267		18,1 $\pm$ 2,7

TABELA 15. Parâmetro α/N do nC_4H_{10} -TEG (nC_4H_{10} – 51,4%, CO_2 – 42,3% e N_2 – 6,3%) em função do campo elétrico reduzido.

E/N (Td)	$\alpha/N (10^{-22} m^2)$
	930 hPa
99	0,104 $\pm$ 0,016
117	0,30 $\pm$ 0,05
131	0,63 $\pm$ 0,09
145	1,22 $\pm$ 0,18
149	1,49 $\pm$ 0,22
153	1,63 $\pm$ 0,24

Para campos abaixo de 170 Td, o parâmetro α/N no iC_4H_{10} -TEG tem um comportamento intermediário entre o nitrogênio e o dióxido de carbono. Como este coeficiente é muito menor no hidrocarboneto do que no CO_2 , observa-se que o α/N na mistura vai crescendo mais rapidamente do que no seu gás majoritário, até atingir os valores obtidos com o dióxido de carbono. A partir de 170 Td, os conjuntos do primeiro coeficiente de ionização na mistura com isobutano e no CO_2 são concordantes entre si, dentro do intervalo de incerteza. Já no nC_4H_{10} -TEG em pressão atmosférica, assim como ocorreu para o iC_4H_{10} -TEG, o primeiro coeficiente de Townsend possui valores intermediários aos do nitrogênio e do dióxido de carbono.

FIGURA 8.24. α/N em função de E/N para os TEGs compostos por isômeros do butano e seus constituintes. Em (A) estão apresentados os dados para o isobutano e em (B) para o n-butano. As curvas contínuas e tracejadas foram calculadas com o programa Magboltz 2 [80].

Na Fig. 8.25, são apresentados o $\ln(\alpha/N)$ da mistura equivalente ao tecido baseada nos isômeros do butano em função do inverso do campo elétrico reduzido. As diversas faixas de E/N em que os parâmetros A e B da parametrização de Korff são válidos estão disponibilizadas na Tab. 16.

TABELA 16. Região de campo elétrico reduzido correspondente a cada par de parâmetros da Eq. 3.5 ajustada aos dados de α/N nos *TEGs* baseadas nos isômeros do butano.

Gás majoritário	Conjuntos	Faixa de E/N válida (Td)
isoC ₄ H ₁₀	930 hPa e 120 hPa	115 – 267
nC ₄ H ₁₀	930 hPa	101 – 153

Os resíduos do ajuste da Eq. 3.5 na Fig. 8.25 são apresentados na Fig. 8.26, em conjunto com o desvio percentual dos resultados simulados com o programa Magboltz.

Bom acordo é observado entre os dados do iC₄H₁₀-*TEG* em diferentes pressões e do nC₄H₁₀-*TEG* em pressão atmosférica com as curvas calculadas utilizando o programa Magboltz 2. De acordo com a simulação, o coeficiente de ionização efetivo passa a ser positivo entre 100 – 122 Td.

Assim como realizado para o *TEG* com metano, foi calculada a razão B/A para ambas as misturas para avaliar a consistência destes resultados (Tab. 17). As médias ponderadas dos primeiros potenciais de ionização de cada componente das duas misturas são 12,30 eV e 12,22 eV para o isobutano e o n-butano, respectivamente [97]. Já a energia média (25,2 eV) foi reportada por Bronic e Srdoc [103], sendo que não é especificado para qual isômero do butano este valor é válido. Todos os ajustes forneceram resultados dentro da faixa esperada, demonstrando a confiabilidade dos valores de α/N aqui apresentados.

TABELA 17. Valores de B/A determinados a partir dos ajustes presentes na Fig. 8.25.

Gás	Conjuntos	B/A (eV)
Isobutano	930 hPa e 120 hPa	15 ± 3
N-butano	930 hPa	23,1 ± 1,8

FIGURA 8.25. Aplicação da aproximação de Korff (eq. 3.5) aos dados dos iC_4H_{10} -TEG (A) e nC_4H_{10} -TEG (B).

FIGURA 8.26. Resíduos referentes ao ajuste da parametrização de Korff (Eq. 3.5) aos dados experimentais do iC_4H_{10} -TEG (A) e nC_4H_{10} -TEG (B). As curvas contínuas e tracejadas representam a diferença percentual dos valores calculados pelo programa Magboltz e através da parametrização de Korff.

9. CONCLUSÃO

O arranjo experimental empregado para a medida do primeiro coeficiente Townsend de ionização em misturas equivalentes ao tecido humano, baseado em uma nova versão da técnica de Townsend pulsada, foi aperfeiçoado em relação ao utilizado em resultados anteriormente publicados. Nesta condição, conseguiu-se ampliar a região de campo elétrico reduzido para a qual não há dados deste parâmetro no isobutano puro, além de permitir a operação do sistema em pressões de até 120hPa, compatíveis com as pressões típicas de *TEPCs* usadas em microdosimetria. A interposição de atenuadores entre as janelas de saída do laser e de entrada da câmara minimizou a queda ôhmica no anodo de vidro, que representou menos de 1% do valor de tensão de polarização. Os resultados experimentais obtidos em misturas *TEGs* são inéditos e poderão ser utilizados pela primeira vez na simulação da resposta de microdosímetros.

O primeiro coeficiente de ionização determinado para nitrogênio, o dióxido de carbono e o metano em pressão atmosférica e a 120 hPa são compatíveis entre si e com os resultados simulados e publicados por outros autores, permitindo aplicarmos o método aqui adotado na investigação do primeiro coeficiente de Townsend em gases e misturas gasosas equivalentes ao tecido para os quais este parâmetro é escassamente estudado ou, até mesmo, desconhecido experimentalmente. Devido às características eletronegativas no dióxido de carbono e o metano, abaixo de 100 Td observou-se uma dispersão significativa entre os resultados de diferentes autores e, até mesmo, da simulação com o programa Magboltz 2.

Era esperado que o parâmetro α/N fosse independente da pressão, o que foi observado para estes gases e as misturas equivalentes ao tecido com metano e com isobutano. Porém, isto não foi obtido para isobutano puro. Para este gás, os dados em baixa pressão são maiores do que em pressão atmosférica, embora ambos os conjuntos concordem com as curvas calculadas com o programa Magboltz 2. Os valores de α/N determinados em 930 hPa é compatível com a simulação realizada com o conjunto de secção de choque mais antigo (“iC₄H₁₀ 1999”) e em 120 hPa, com o mais recente (“iC₄H₁₀ 2009”).

Em baixa pressão, com o isobutano foi possível aumentar o valor de campo elétrico máximo antes da ruptura em 110 Td. Não foram observadas diferenças significativas entre os resultados em pressão atmosférica entre os isômeros do butano, que também estão em acordo com as curvas simuladas com o programa Magboltz 2 para o n-butano e para o isobutano com a versão 7.1.

O primeiro coeficiente de Townsend em *TEGs* foi determinado pela primeira vez em campos elétricos uniformes entre 100 – 290 Td, ressaltando-se que para os *TEGs* compostas por isobutano e n-butano, nenhum dado deste parâmetro foi publicado anteriormente. Os comportamentos do metano puro e do *TEG* composta por metano foram muito similares, corroborando com os resultados obtidos por Ségur et al. via simulação de um contador proporcional cilíndrico para campos inferiores a aproximadamente 2650 Td. No caso do *TEG* constituída por isobutano, o parâmetro α/N assemelha-se ao obtido no dióxido de carbono para campos acima de 170 Td, pois este coeficiente é muito maior no CO₂ do que no gás majoritário e a diferença de concentração entre eles é pequena. O primeiro coeficiente de Townsend do nC₄H₁₀-*TEG* apresenta comportamento intermediário entre o observado no dióxido de carbono e no nitrogênio. As simulações realizadas com o programa Magboltz 2 demonstraram que o efeito Penning não é significativo nas misturas equivalentes ao tecido humano mole. Bom acordo foi observado entre os dados experimentais e os simulados dos *TEGs*. Além disso, a razão B/A para todas as misturas está dentro do intervalo esperado, demonstrando a consistência dos resultados obtidos para os *TEGs*.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] KELLERER, A.M. *Fundamentals of Microdosimetry*. In: KASE, K.; BJARNGARD, B; ATTIX, F. The dosimetry of ionizing radiation. 1st ed. Florida, USA: Academia Press, 1985. vol 1. p. 78 – 163.
- [2] ROSSI, H. H.; ZAIDER, M. *Microdosimetry and its applications*. 1st ed. New York, USA: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1996.
- [3] INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS & MEASUREMENTS. *Microdosimetry*. Report nº 36. ICRU: USA, 1983 (ICRU 36).
- [4] ROSSI, H. H.; ROSENZWEIG, W. A device for the measurement of dose as a function of specific ionization. *Radiology*, v. 64, p. 404-411, 1955.
- [5] ROSSI, H. H.; FAILLA, G. Tissue-equivalent ionization chambers. *Nucleonics*, v. 12, p. 32-37, 1956.
- [6] AGOSTEO, S. Overview of novel techniques for radiation protection and dosimetry, *Radiation Measurements*. v. 45, p. 1171-1177, 2010.
- [7] ANJOMANI, Z.; HANU, A. R.; PRESTWICH, W. V.; BYUN, S. H. Monte Carlo design study for thick gas electron multiplier-based multi-element microdosimetric detector. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 757, p. 67-74, 2014.
- [8] ORCHARD, G. M.; PUDDU, S.; WAKER, A. J. Design and function of an electron mobility spectrometer with a thick gas electron multiplier. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 815, p. 62-67, 2016.
- [9] FARAHMAND, M.; DE NARDO, L. Microdosimetric measurements of a tissue-equivalent proportional counter based on a gas electron multiplier down to 140 nm simulated sizes. *Rad. Prot. Dosim.* v. 171, p. 304-312, 2016.
- [10] MORO, D.; COULATTI, P.; GUALDRINI, G.; MASI, M. CONTI, V.; DE NARDO, L.; TORNIELLI, G. Two miniaturised TEPCS in a single detector for BNCT microdosimetry. *Rad. Prot. Dosim.* v. 122, p. 396-400, 2006.
- [11] TUNG, C. J.; LIU, C. S.; WANG, J. P.; CHANG, S. L. Calculations of cellular microdosimetry parameters for alpha particles and electrons. *Appl. Rad. Isotopes*. v. 61, p. 739-743, 2004.
- [12] DE NARDO, L.; COLAUTTI, P.; HERAULT, J.; CONTE, V.; MORO, D. Microdosimetric characterisation of a therapeutic proton beam used for conjunctival melanoma treatments. *Radiation Measurements*. v. 45, p. 1387-1390, 2010.

- [13] ROLLET, S.; COLAUTTI, P.; GROSSWENDT, B.; MORO, D.; GARGIONI, E.; CONTE, V.; DE NARDO, L. Monte Carlo simulation of mini TEPC microdosimetric spectra: Influence of low energy electrons. *Radiation Measurements*, v. 45, p. 1330-1333, 2010.
- [14] KLIAUGA, P. Measurement of single-event energy deposition at 5 nm to 250 nm simulated site sizes. *Rad. Prot. Dosim.*, v. 31, p. 119-123, 1990.
- [15] SRDOC, D. Experimental technique of measurements of microscopic energy distribution in irradiated matter using Rossi counter. *Radiat. Res.* v. 43, p. 302-319, 1970.
- [16] HUXLEY, L. G. H.; CROMPTON, R. W. *The diffusion and drift of electron in gases*. NY: John Wiley & Sons, 1974.
- [17] WHITE, R. D.; TATTERSALL, W.; BOYLE, G.; ROBSON, R. E.; DUJKO, S.; PETROVIC, Z. L.; BANKOVIC, A.; BRUNGER, M. J.; SULLIVAN, S. J.; GARCIA, G. Low-energy electron and positron transport in gases and soft-condensed systems of biological relevance. *Appl. Radiat. Isotopes*, v. 83, p. 77-85, 2014.
- [18] FONTE, P.; MANGIAROTTI, A.; BOTELHO, S.; GONÇALVES, J.A.C.; RIDENTI, M. A.; BUENO, C.C. A dedicated setup for the measurements of the electron transport parameters in gases at large electric fields. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 613, p. 40-45, 2010.
- [19] LIMA, I. B., MANGIAROTTI, A., VIVALDINI, T.C., GONÇALVES, J.A.C., BOTELHO, S., FONTE, F., TAKAHASHI, J., TARELHO, L.V., BUENO, C.C. Experimental investigations on the first Townsend coefficient in pure isobutane. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 670, p. 55-60, 2012.
- [20] MANGIAROTTI, A.; LIMA, I.B.; VIVALDINI, T.C.; GONÇALVES, J.A.C.; PETRI, A.R.; BOTELHO, S.; FONTE, P.; BUENO, C.C. Secondary effects on electron multiplication in pure isobutane. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 694, p. 162-166, 2012.
- [21] HAYDON, S. C.; WILLIAMS, O. M. Experimental investigations of ionization growth in nitrogen II. *J. Phys. B:Atom. Molec. Phys.*, v. 9, p. 523-536, 1976.
- [22] YOUSFI, M.; DE URQUIJO, J.; JUÁREZ, A.; BASURTO, E.; HERNÁNDEZ-ÁVILA, J. L. Electron swarm coefficients in CO₂-N₂ and CO₂-O₂ mixtures. *IEEE Transactions on Plasma Science*, v. 37, p. 764-772, 2009.
- [23] DAHL, D.; TEICH, T.; FRANCK, C. Obtaining precise electron swarm parameters from a pulsed Townsend setup. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 45, 485201, 2012.
- [24] BHALLA, M. S.; CRAGGS, J. D. Measurement of ionization and attachment coefficients in carbon dioxide in uniform fields. *Proc. Phys. Soc.*, v. 76, p. 369-377, 1960.

- [25] CONTI, V. J.; WILLIAMS, A. W. Ionization growth in carbon dioxide. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 8, p. 2198-2207, 1975.
- [26] HERNÁNDEZ-ÁVILA, J. L., BASURTO, E.; DE URQUIJO, J. Electron transport and swarm parameters in CO₂ and its mixtures with SF₆. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 35, p. 2264-2269, 2002.
- [27] HEYLEN, A. E. D. Influence of molecular bonding on the Townsend ionization coefficients of hydrocarbon gases. *J. Chem. Phys.*, v. 38, p. 765-771, 1963.
- [28] DAVIES, D. K.; KLINE, L. E.; BIES, W. E. Measurements of swarm parameters and derived electron collision cross sections in methane. *J. Appl. Phys.*, v. 85, p. 3311-3323, 1989.
- [29] DE URQUIJO, J.; ARRIAGA, C. A.; CISNEIROS, C.; ALVAREZ, I. A time-resolved study of ionization electron attachment and positive-ion drift methane. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 32, p. 41-45, 1999.
- [30] NUTTON, D. H. AND HARRIS, S. J. Tissue equivalence in neutron dosimetry. *Phys. Med. Biol.*, v. 25, p. 1173-1180, 1980
- [31] SCHREWE, U. J.; BREDE, H. J.; LANGNER, F.; SCHUHMACHER, H. The use of microdosimetric detectors combined with time-of-flight techniques. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 299, p. 226-230, 1990.
- [32] SCHMITZ, T.; BOOZ, J.; Measurements of the gas amplification coefficient in a TEPC. *Rad. Prot. Dosim.*, v. 29, p. 31-36, 1989.
- [33] SÉGUR, P.; PÉRÈS, I.; BOEUF, J. P.; BORDAGE, M. C. Microscopic Calculation of the gas gain in cylindrical proportional counter. *Rad. Prot. Dosim.*, v. 29, p. 23-30, 1989.
- [34] TOWNSEND, J. S. *The theory of ionization of gases by collision*. London, UK: Constable & Company LTD, 1910.
- [35] RAETHER, H. *Electron avalanches and breakdown in gases*. London, UK: Butterworth, 1964.
- [36] SAULI, F. *Principles of Operation of Multiwire Proportional and Drift Chambers*. CERN European Organization for Nuclear Research: Geneva, Switzerland, 1977 (Report CERN 77-09).
- [37] HEYLEN, A. E. D. Townsend's First Ionization Coefficient in Pure Nitrogen. *Nature*, v. 183, p. 1545-1546, 1959.
- [38] RAJU, G. G. *Gaseous Electronics: Tables, Atoms and Molecules*. Boca Raton, USA: Taylor & Francis Group, 2012.
- [39] KORFF, S. A. *Electron and Nuclear Counters*. New York, USA: D. Van. Nostrand Company, 1946

- [40] ZASTAWNY, A. Standardization of gas amplification description in proportional counters. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 385, p. 239-242, 1997.
- [41] BRONIC, I. K.; GROSSWENDT, B. Ionization coefficient in propane, propane-based tissue equivalent and dimethyl-ether in strong non-uniform electric fields. . *Phys. D.: Appl. Phys.*, v. 32, p. 3179-3187, 1999.
- [42] BRONIC, I. K.; GROSSWENDT, B. Gas amplification and ionization coefficients in isobutane and argon-isobutane mixtures at low pressures. *Nucl. Instr. And Meth. B*, v. 142, p. 219-244, 1998.
- [43] VON ENGEL, A. *Ionized Gases*, 2nd. ed. Oxford, UK.: Clarendon Press, 1965.
- [44] DUTTON. J. A survey of electron swarm data. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, v. 4, p. 577-856, 1975.
- [45] GALLAGHER, J. W.; BEATY, E. C.; DUTTON, J.; PITCHFORD, L. C. An annotated compilation and appraisal of electron swarm data in electronegative gases. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, v. 12, p. 109-152, 1983.
- [46] HUNTER, S. R.; CARTER, J. G.; CHRISTOPHOROU, L. G. Electron transport measurements in methane using an improved Townsend technique. *J. Appl. Phys.* v. 60, p. 24-35, 1986.
- [47] SCHLUMBOHM, H. Electron-impact ionization coefficient (α) for organic vapors and oxygen. *Zeitschrift fuer Angewandte Physik*, v. 11, p. 156-159, 1959.
- [48] NAIDU, M. S.; PRASAD, A. N. Mobility, diffusion and attachment of electrons in oxygen. *J. Phys. D.: Appl. Phys.*, v. 3, p. 957-965, 1970.
- [49] PRICE, D. A.; LUCAS, J.; MORUZZI, J. L. Current growth in oxygen. *J. Phys. D.: Appl. Phys.*, v. 6, p. 1514-1524, 1973.
- [50] GEBALLE, R.; HARRISON, M. A. Negative Ion Formation in Oxygen. *Phys. Rev.*, v. 85, p. 372, 1952.
- [51] GRUMBERG, R. Messungen des Anlagerungskoeffizienten von Elektronen in Sauerstoff. *Naturforsch*, v. 24a, p. 1039-1048, 1969.
- [52] LIU, J.; RAJU, R. G. Calculation of electron swarm parameters in oxygen using a rigorous Boltzmann equation analysis. *Can. J. Phys.*, v. 70, p. 216-224, 1992.
- [53] RAJU, G. G. *Gaseous Electronics: Theory and Practice*. Boca Raton, USA: Taylor & Francis Group, 2006.
- [54] HEYLEN, A. E. D.; LEWIS, T. J. The electric strength of hydrocarbon gases. *Brit. Journal of Appl. Physics*, v. 7, p. 411 – 415, 1956.
- [55] MITEV, K.; SÉGUR, P.; ALKAA, A.; BORDAGE, M. C.; FURSTOSS, C.; KHAMPHAN, C.; DE NARDO, L.; CONTE, V; COLAUTTI, P. Study of non-equilibrium electron avalanches, application to proportional counters. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 538, p. 672-685, 2005.

- [56] MANGIAROTTI, A. *A theoretical study of the fast signal induced by avalanche growth in pure Nitrogen and pure Isobutane*. Relatório de atividades do projeto FAPESP nº 07/50591-4: São Paulo, SP, 2007.
- [57] WILLIAMS, A.; SARA, R. I. Parameters affecting the resolution of a proportional counter. *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes*. v.13, p. 229-238, 1962.
- [58] MORO, D.; CHIRIOTTI, S.; COLAUTTI, P.; CONTE, V. TEPC gas gain measurements in propane. *Rad. Prot. Dosim.*, v. 161, p. 459-463, 2014.
- [59] SEGUR, P.; OLKO, P.; COLAUTTI, P. Numerical Modelling of Tissue-Equivalent Proportional Counters. *Rad. Prot. Dosim.*, v. 61, p. 323-350, 1995.
- [60] WAKER, A. J. *Gas gain characteristics of some walled proportional counters used in microdosimetry*. Proc. 8th. Symp. on Microdosimetry. Luxembourg, Belgium: Commission of the European Communities, p. 1017-1030, 1982 (CEC Report EUR 8395).
- [61] YOSHIDA, K.; OHSHIMA, T.; OHMORI, Y.; OHUCHI, H.; TAGASHIRA, H. The measurement of electron transport coefficients in methane by a double-shutter drift tube method combined with ATS analysis. *J. Phys. D: Appl. Phys.* v. 29, p. 1209-1216, 1996.
- [62] SAKAI, Y.; SAWADA, S.; TAGASHIRA, H. Effect of Penning ionisation on the Townsend first ionisation coefficient of pulsed and steady-state Townsend experiments in Ar /Ne mixtures. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 19, p. 2393-2400, 1986.
- [63] YOSHIDA, K.; SASAKI, N.; OHUCHI, H.; HASEGAWA, H.; SHIMOZUMA, M.; TAGASHIRA, H. Measurement of electron-transport coefficients in N₂O by a double-shutter drift-tube method. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 32, p. 862-868, 1999.
- [64] DE URQUIJO, J.; ALVAREZ, I.; BASURTO, E.; CISNEROS, C. Measurement of ionization and electron transport in methane–argon mixtures. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 32, p. 1646–1649, 1999.
- [65] COLUCCI, G. et al. Measurements of drift velocity and amplification coefficient in C₂H₂F₄ – isobutene mixtures for avalanche-operated resistive-plate counters. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 425, p. 84, 1999
- [66] CHIODINI, G. et al. Studies of electron drift velocity and charge spectra in RPC by UV laser source. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 602, p. 757, 2009.
- [67] DE URQUIJO, J. et al. Ion mobilities and transport cross sections of daughter negative ions in N₂O e N₂O-N₂ mixtures. *Plasma Sources*, v. 22, 02004, 2013.
- [68] PETROVIC, Z.L. et al. Data and Modeling of Negative Ion Transport in Gases of Interest for Production of Integrated Circuits and Nanotechnologies. *Applied Surface Science*, v. 253, p. 6619, 2007.

- [69] KONDO, K.; TAGASHIRA, H. Evolution equation and transport coefficients defined by arrival-time spectra of swarms. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 23, p. 1175-1183, 1990.
- [70] HEYLEN, A. E. D. Ionization coefficients and sparking voltages from methane to butane. *International Journal of Electronics*, v. 39, p. 653-660, 1975.
- [71] GOSSERIES, A. La détermination des coefficients d'ionisation α et γ dans les gaz. *Physica*, v. 6, p. 458, 1939.
- [72] MALLER, V. N.; NAIDU, M. S. Growth of ionization currents in nitrogen. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 7, p. 1406-1411, 1974.
- [73] KOWALSKI, T. Z. *Microdosimetric response of proportional counters filled with different tissue equivalent gas mixtures*. In: 10TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON POSITION SENSITIVE DETECTORS, Surrey, U.K., 2015 JINST 10, C03006, 2014.
- [74] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY – NIST, *Stopping-power and range tables for electrons* (ESTAR). Disponível em: <<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>> . Acesso em: 23 mar 2017.
- [75] PETRI, A. R. *Medidas do primeiro coeficiente de Townsend de ionização no isobutano puro submetido a campos elétricos uniformes*. 2013. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
- [76] LIMA, I. B. *Medidas do primeiro coeficiente Townsend de ionização em gases inibidores de descargas*. 2014. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
- [77] BIAGI, S. F. Accurate solution of the Boltzmann transport equation. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 273, p. 533-535, 1988.
- [78] BIAGI, S. F. A multiterm Boltzmann analysis of drift velocity, diffusion, gain and magnetic-field effects in argon-methane-water-vapour mixtures. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 283, p. 716-722, 1989.
- [79] BIAGI, S. F. Monte Carlo simulation of electron drift and diffusion in counting gases under the influence of electric and magnetic fields. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 421, p. 234-240, 1999.
- [80] BIAGI, S. F. *Magboltz*, The Fortran source code of the stand-alone version is freely downloadable from <<http://consult.cern.ch/writeup/magboltz/>> . Acesso em: 23 mar 2017.
- [81] OPAL, C. B.; PETERSON, W. K.; BEATY, E. C. Measurements of secondary-electron spectra produced by electron impact ionization of a number of simple gases. *J. Chem. Phys.*, v. 55, p. 4100-4107, 1971.

- [82] LONGO, S.; CAPITELLI, M. A simple approach to treat anisotropic elastic collisions in Monte Carlo calculations of the electron energy distribution function in cold plasmas. *Plasma Process*, v. 14, p. 1-13, 1994.
- [83] OKHRIMOVSKYY, A.; BOGAERTS, A.; GLIJBELS, R. Electron anisotropic scattering in gases: a formula for Monte Carlo simulations. *Physical Review E*, v. 65, 037402, 2002.
- [84] SAKAI, Y.; TAKASHIRA, H.; SAKAMOTO, S. The development of electron avalanches in argon at high E/N values. I. Monte Carlo simulation. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 10, p. 1035-1050, 1977.
- [85] TAKASHIRA, H.; SAKAI, Y.; SAKAMOTO, S. The development of electron avalanches in argon at high E/N values. II. Boltzmann equation analysis. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, v. 10, p. 1051-1064, 1977.
- [86] HAYDON, S. C.; WILLIAMS O. M. Experimental investigations of ionization growth in nitrogen II. *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* v. 6, p. 227-231, 1973.
- [87] DANIEL, T. N.; HARRIS, F.M. The spatial growth of ionization current in nitrogen at voltages up to 500kV. *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* v.3, p.363-368, 1970.
- [88] PSZONA, S.; KULA, J.; MARJANSKA, S. A new method for measuring ion clusters produced by charged particles in nanometer track sections of DNA size. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v.447, p. 601-607, 2000.
- [89] DAVIES, D. K. Ionization and attachment coefficient in CO₂:N₂:He and pure CO₂. *J. Appl. Phys.*, v. 49, p. 127-131, 1978.
- [90] BUENO, C. C.; FRAGA, M. M.; GONÇALVES, J. A. C.; MARQUES, R. F.; POLICARPO, A. J. P. L.; SANTOS, M. D. DE S. Rate effects in a proportional counter with resistive cathode. *Nucl. Instr. And Meth. A*, v. 408, p. 496-502, 1998.
- [91] LEE, K. S. Six-gap resistive plate chambers for high-rate muon triggers. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 661, p. S90-S93, 2012.
- [92] PARK, S. K. et al. Test of a four-gap resistive plate chamber with cosmic muons and high-rate gamma-rays. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 680, p. 134-138, 2012.
- [93] CASCELLA, M.; GRANCAGNOLO, F.; MICOLLI, A.; PANAREO, M.; TASSIELLI, G. Ultra-light gas mixtures for drift chambers. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 718, p. 409-411, 2013.
- [94] LANGEN, K. M.; BINNS, P.J.; LENNOX, A.J.; KROC, T.K.; DeLUCA Jr.; P.M. Pileup correction of microdosimetric spectra. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 484, p. 595-612, 2002.
- [95] DAVYDOV, Y.; OPENSHAW, R. Self-quenching streamer mode in quenching gases initiated by alpha particles. *IEEE transactions on nuclear science*, v. 56, n. 5, p. 2880-2884, 2009.

- [96] GRUPEN, C. *Particle Detectors*. 2nd ed. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2008.
- [97] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY – NIST, *NIST Chemistry Webbook*. Disponível em: < <http://webbook.nist.gov/chemistry> > . Acesso em: 23 mar 2017.
- [98] NAKHOSTIN, M.; BABA, M.; OHTSUKI, T.; OISHI, T.; ITOGA, T. Precise measurements of first Townsend coefficient, using parallel plate avalanche chamber. *Nucl. Instr. and Meth. A*. v. 572, p. 999-1003, 2007.
- [99] NAKHOSTIN, M.; WAKER, P. M. Determination of gas amplification factor by digital waveform analysis of avalanche counter signals. *Nucl. Instr. and Meth. A*. v. 615, p. 53-56, 2010.
- [100] LU, C.; McDONALD, K. T.; ZHU, Y. Helium gas mixture for ring imaging Cherenkov detectors with CsI photocathodes. *Nucl. Instr. and Meth. A*, v. 334, p. 328-338, 1993.
- [101] AKANDE, W. Parametrisation of gas amplification in tissue and muscle-equivalent proportional counters. *Rad. Prot. Dosim.*, v. 48, p. 191-197, 1993.
- [102] WAIBEL, E.; GROSSWENDT, B. W values and other transport data on low energy electrons in tissue equivalent gas. *Phys Med Biol.*, v. 37, p. 1127-1145, 1992.
- [103] BRONIC, I. K.; SRDOC, D. A comparison of calculated and measured W values in tissue-equivalent gas mixture. *Radiation Research*, v. 137, p. 18-24, 1994.