

ТЕХНИКА ЯДЕРНОГО
ЭКСПЕРИМЕНТА

УДК 66.088

ОЧИСТКА ЖИДКОГО КСЕНОНА ЭЛЕКТРОИСКРОВОМ МЕТОДОМ
ДЛЯ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ В ДВУХФАЗНЫХ
ЭМИССИОННЫХ ДЕТЕКТОРАХ

© 2017 г. Д. Ю. Акимов^{a, b}, В. А. Белов^{a, b}, А. К. Бердникова^a, С. В. Бобков^e,
А. И. Болоздыня^a, Ю. В. Гусаков^{a, d}, Д. В. Гусс^a, П. С. Джумаев^a, А. Г. Долголенко^b,
А. Г. Коваленко^{a, b}, Е. С. Козлова^a, М. Ю. Колпаков^e, А. М. Коновалов^{a, b, c}, Т. Д. Крахмалова^a,
А. В. Кумпан^a, А. В. Лукьяшин^{a, b}, Ю. А. Меликян^a, О. Е. Непочатая^a,
Д. Г. Рудик^{a, b}, М. Ю. Савинов^e, А. В. Сидоренко^a, Г. Е. Симаков^{a, b, c},
В. В. Сосновцев^a, Г. С. Таэр^a, А. В. Хромов^a, А. В. Шакиров^{a, *}

^a Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”
Россия, 115409, Москва, Каширское ш., 31

^b Институт теоретической и экспериментальной физики им. А.И. Аликханова
Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”
Россия, 117218, Москва, ул. Б. Черемушкинская, 25

^c Московский физико-технический институт (государственный университет)
Россия, 141700, Долгопрудный Московской обл., Институтский переулок, 9

^d Объединенный институт ядерных исследований
Россия, 141980, Дубна Московской обл., ул. Жолио-Кюри, 6

^e ООО “Хром”
Россия, 105064, Москва, Сусальный Нижний переулок, 3-5, стр. 13

* e-mail: shalexey91@mail.ru

Поступила в редакцию 26.12.2016 г.

Описана процедура электроискровой очистки образца жидкого ксенона массой 55 кг, в результате которой время жизни до захвата электроотрицательными примесями ионизационных электронов в жидком ксеноне возросло от ≤ 0.1 мкс до ≥ 50 мкс в электрическом поле напряженностью от 50 до 500 В/см. Очищенный таким образом ксенон предполагается использовать в детекторе РЭД-100 для наблюдения редких процессов, таких как когерентное рассеяние электронных антинейтрино на ядрах ксенона или двойной позитронный β -распад.

DOI: 10.7868/S0032816217050159

1. ВВЕДЕНИЕ

Двухфазные эмиссионные детекторы с жидким ксеноном в качестве рабочей среды использовались в наиболее чувствительных экспериментах по поиску холодной темной материи во Вселенной в виде слабовзаимодействующих массивных частиц – вимпов (WIMPs – weakly interacting massive particles) [1]. В готовящемся к установке эксперименте второго поколения LUX-ZEPLIN (LZ) планируется использовать около 7 т жидкого ксенона [2]. Обсуждаются также проекты построения детекторов третьего поколения, которые будут содержать 20–30 т жидкого ксенона [3].

Главной технической особенностью работы таких детекторов является необходимость эффективного собирания электронов ионизации из рабочих сред с линейными размерами порядка 1 м,

для чего требуется обеспечить время жизни электронов до захвата электроотрицательными примесями порядка 1 мс. В настоящее время необходимый уровень чистоты жидкого ксенона обеспечивается путем испарения части рабочей среды, пропусканием газа через геттеры, работающие в нормальных лабораторных условиях, и повторной конденсацией ксенона в детектор. Такой метод очистки требует значительного расхода энергии и постоянной динамической работы криогенной системы. С этой точки зрения представляется перспективным дальнейшее развитие метода очистки массивных образцов ксенона в жидкой фазе.

В нейтринном детекторе нового поколения РЭД-100 [4, 5] используется ксенон, из которого с помощью газовых центрифуг был выделен изотоп ^{136}Xe для использования в эксперименте ECHO-200

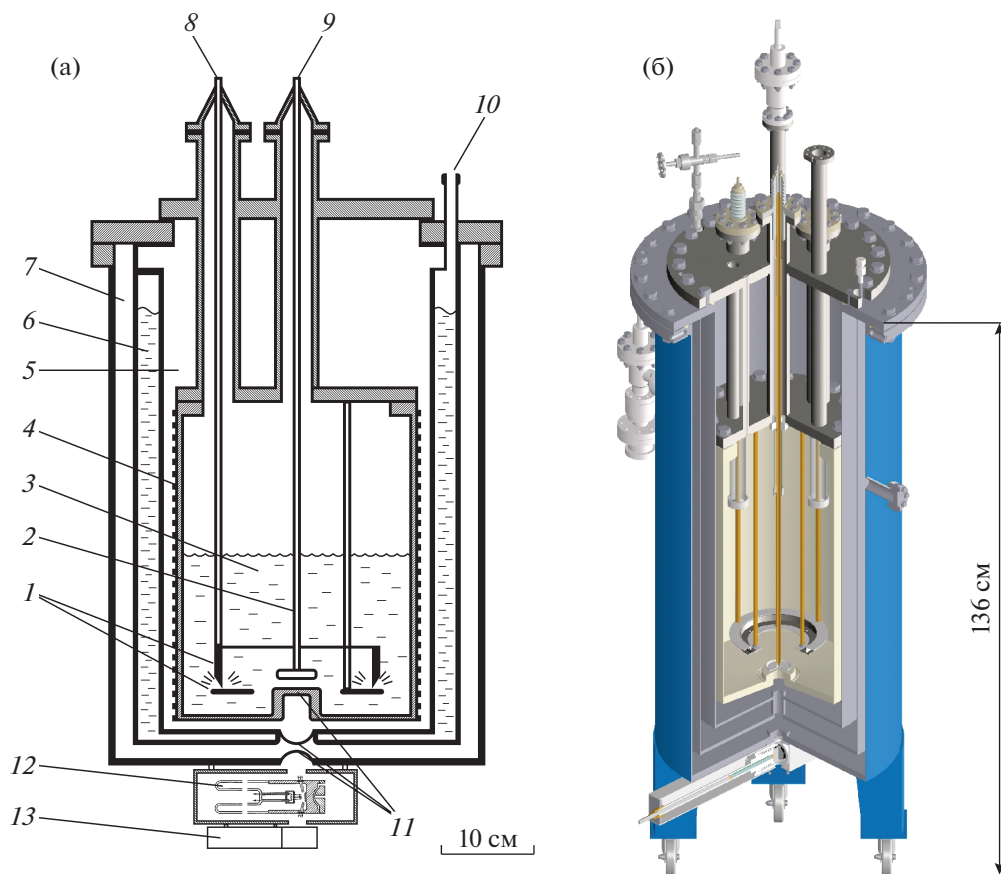


Рис. 1. Схема установки искровой очистки “Мойдодыр” (а) и общий вид устройства в разрезе (б). 1 – титановые электроды типа “острие–плоскость”; 2 – анод ионизационной камеры для измерения чистоты жидкости; 3 – жидкий ксенон; 4 – холодная камера, окруженная медным экраном, на котором установлены электрические нагреватели; 5 – газовая азотная рубашка; 6 – металлический экран, охлаждаемый жидким азотом; 7 – вакуумная рубашка; 8 – ввод высокого напряжения, подаваемого на разрядный промежуток; 9 – ввод для регистрации ионизационного сигнала; 10 – патрубок для залива жидкого азота; 11 – алюминиевые окна для ввода рентгеновского излучения в межэлектродный промежуток диодной ионизационной камеры; 12 – рентгеновская трубка; 13 – сцинтилляционный детектор.

[6]. При этом обедненный ксенон оказался загрязненным высокомолекулярными примесями на уровне $\sim 10^{-4}\%$ и не поддавался очистке геттерами. Так, геттер SAES MONOTOR model PS3-MT3-R-2 потерял химическую активность уже после пропускания через него 200 л (при н.у.) загрязненного газообразного ксенона.

В данной статье описана процедура очистки загрязненного высокомолекулярными примесями образца ксенона массой 55 кг с помощью установки “Мойдодыр” [7, 8], применявшейся ранее для искровой очистки жидкого криптона для прототипа сцинтилляционного калориметра установки GEM, которую планировали использовать на коллайдере SSC [9].

2. ОПИСАНИЕ УСТАНОВКИ

Электроискровой метод очистки благородных газов разработан в МИФИ в конце 1970-х годов

[10] и сегодня весьма эффективно применяется для очистки газообразного ксенона, используемого в γ -спектрометрах на сжатом ксеноне (см. табл. 5.4 в монографии [11]). Как правило, искровую обработку используют для очистки образцов сжатого ксенона массой до нескольких килограмм.

Схема установки “Мойдодыр”, предназначенной для искровой очистки сжиженных благородных газов объемом до 100 л, приведена на рис. 1. Для генерации искрового разряда в установке используется кольцевая электродная пара типа “лезвие–плоскость” 1 из титанового сплава ВТ1 с межэлектродным зазором 0.5–0.7 мм. Электродная пара 1 вместе с анодом 2 ионизационной камеры, предназначенной для контроля времени жизни электронов, помещена в охлаждаемую (холодную) камеру 4 из нержавеющей стали с внутренним объемом $\varnothing 40 \times 70$ см³, заполняемую жидким благородным газом 3. На внешней поверхно-

сти холодной камеры размещен медный экран с нагревательным элементом, обеспечивающим регулировку температуры камеры. Холодная камера заключена в газовую азотную рубашку 5, регулировка давления газа в которой в зависимости от режима работы установки позволяет изменять эффективность теплообмена между холодной камерой и металлическим экраном 6, охлаждаемым жидким азотом (жидкоазотной рубашкой). Рубашка 6 изолирована от внешней среды вакуумной рубашкой 7 и заполняется жидким азотом через патрубок 10. Металлокерамические высоковольтные вводы 8, 9 вынесены за пределы криостата и работают при комнатной температуре. Штанги, на которых подвешены электроды, дополнительно изолированы стеклянными трубками. В центральной части дна холодной камеры, азотной и вакуумной рубашек установлены алюминиевые окна 11 для ввода рентгеновского излучения, используемого для измерения времени жизни электронов в жидком благородном газе в процессе очистки.

Для выполнения поставленной задачи – очистки жидкого ксенона – установка “Мойдодыр” была модифицирована. Дополнительно были установлены:

- 1) 9 прецизионных платиновых датчиков температуры типа Pt-100;
- 2) нагреватели и вакуумная суперизоляция на холодном сосуде 4;
- 3) цифровые датчики давления газа в газовой рубашке 5 для регулирования теплообмена между холодным сосудом 4 и жидкоазотной рубашкой 6;
- 4) измеритель уровня жидкого азота в рубашке 6 и вакуумная суперизоляция внутри вакуумной рубашки 7.

Эффективное удаление электроотрицательных и сложных молекулярных примесей при электроискровой очистке ксенона обусловлено двумя процессами: 1) жестким ультрафиолетовым излучением, возникающим при электрическом разряде в жидком благородном газе; 2) генерацией в объеме жидкости химически активной мелкодисперсной металлической пыли из материала электродов. Наилучшие результаты по очистке жидкого ксенона были достигнуты при использовании титановых разрядных электродов, так как титановые наночастицы служат очень эффективным химическим геттером, особенно при охлаждении [12].

3. ИЗМЕРЕНИЕ ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ ЭЛЕКТРОНОВ В ЖИДКОМ КСЕНОНЕ

Контроль процесса очистки осуществлялся путем измерения времени жизни электронов ионизации до их захвата электроотрицательными примесями. Время жизни электронов определя-

лось по форме импульса напряжения, получаемого на выходе зарядочувствительного преусилителя (з.ч.п.у.), подключенного к аноду двухэлектродной ионизационной камеры 2 (см. рис. 1) с дрейфовым промежутком 1.8 см. Заряд в ионизационной камере создавался импульсным рентгеновским излучением, вводимым через три последовательно расположенных алюминиевых окна 11 в донной части установки. Внутреннее окно (находившееся под нулевым потенциалом) служило одновременно катодом ионизационной камеры. Анод ионизационной камеры находился под положительным потенциалом. Сигнал с него подавался через разделительный конденсатор на з.ч.п.у., выходной импульс с которого оцифровывался с частотой дискретизации 50 МГц и записывался в память цифрового осциллографа LeCroy WaveRunner 640Zi.

Источником рентгеновского излучения служила импульсная управляемая рентгеновская трубка БСВ-7 с серебряным анодом и воздушным охлаждением. Трубка генерировала с частотой порядка 1 кГц два одновременных пучка рентгеновского излучения, которые были направлены в противоположные стороны: один пучок вводился через алюминиевые окна в ионизационную камеру установки “Мойдодыр”, а второй пучок регистрировался внешним сцинтилляционным счетчиком, контролирующим работу трубки. Максимальная энергия рентгеновских квантов составляла ~30 кэВ.

Подавляющая доля рентгеновских фотонов поглощалась в слое жидкого ксенона толщиной <1 мм. Длительность рентгеновского импульса по основанию составляла <1 мкс, т.е. была много меньше времени дрейфа электронов в жидком ксеноне между катодом и анодом ионизационной камеры. При таких условиях движение образовавшегося в результате ионизации заряда эквивалентно движению квазиточечного облака электронов в направлении дрейфа. В случае идеально чистой среды дрейф электронного облака в однородном электрическом поле должен приводить к возникновению постоянного по величине тока анода. При наличии электроотрицательных примесей наблюдаемое отклонение тока от постоянной величины свидетельствует о захвате электронов в процессе их дрейфа между электродами.

Время жизни измерялось следующим образом. Оцифрованные импульсы напряжения с з.ч.п.у. (амплитуда $U(t) \sim Q_d(t)$, где $Q_d(t)$ – заряд, накопленный на динамической емкости преусилителя к моменту t) усреднялись программным образом (по 10000 событий) при помощи осциллографа, при этом запуск осциллографа осуществлялся сигналом с генератора, управляющего рентгеновской трубкой. Примеры осциллограмм сигналов, зарегистрированных цифровым осциллографом, показаны на рис. 2.

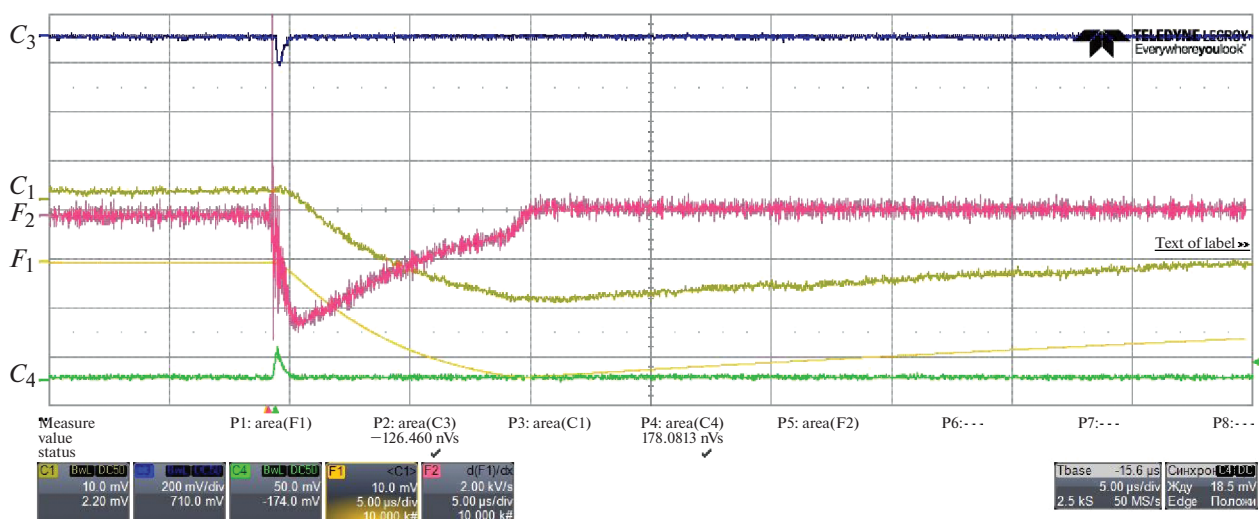


Рис. 2. Пример осциллограмм, записанных на экране цифрового осциллографа LeCroy WaveRunner 640Zi при измерении времени жизни электронов в жидком ксеноне с помощью ионизационной камеры: C_1 – импульс с з.ч.п.у.; C_3 – сигнал с контрольного сцинтилляционного детектора; C_4 – импульс, отпирающий управляемую рентгеновскую трубку; F_1 – сигнал с з.ч.п.у., усредненный по 10000 событиям; F_2 – сигнал dF_1/dt . Напряжение на аноде – 1000 В. Масштаб: по горизонтальной оси – 5 мкс/деление, по вертикальной оси: 10 мВ/деление для C_1 и F_1 , 50 мВ/деление для C_4 , 2 кВ/(с · деление) для F_2 .

Дальнейшая обработка записанных усредненных импульсов (рис. 3а, 3г) заключалась в поточечном дифференцировании и сглаживании. Полученные таким образом зависимости $dQ_d(t)/dt$ показаны на рис. 3б, 3д. Они представляют собой сумму тока, протекающего в цепи камеры, и тока, обусловленного разрядом динамической емкости предусилителя. Последняя составляющая хорошо видна на осциллограммах импульсов напряжения (рис. 3а, 3г), где она проявляется как спад импульса начиная с момента времени ~ 17 мкс, соответствующего приходу электронов ионизации на анод. На рис. 3б, 3д разряд входной цепи предусилителя проявляется в виде заметного положительного “выброса” над нулевой линией после 17 мкс. Очевидно, что в интервале от 0 до 17 мкс зависимость $dQ_d(t)/dt$ также не отражает реальной формы импульса тока в цепи камеры. Скорректированные путем математической обработки зависимости $dQ_d^*(t)/dt$, в которых составляющая, обусловленная разрядом динамической емкости предусилителя, удалена, показаны на рис. 3в, 3е. Спадающая часть сигнала аппроксимировалась экспоненциальной зависимостью вида $I_0 \exp(-t/\tau)$, где I_0 – сила тока электронов без захвата, τ – время жизни электронов до захвата электроотрицательными примесями. Для зависимостей $dQ_d^*(t)/dt$, показанных на рис. 3в, 3е, время жизни электронов составило $\tau = (10.0 \pm 0.5)$ мкс и $\tau = (44.0 \pm 1.5)$ мкс, соответственно.

Оценка относительной погрешности измерений времени жизни τ данным методом, проведенная варьированием границ области аппроксимации, показала, что она, как правило, не превышает 5%.

4. ОЧИСТКА ЖИДКОГО КСЕНОНА

Очистка жидкого ксенона в установке “Мой-додыр” выполнялась в два этапа. На первом этапе высокомолекулярную примесь “выжигали” интенсивным ультрафиолетовым излучением при одновременной генерации титановой пыли, на втором этапе ксенон в жидкой фазе очищали только наработанной титановой пылью.

4.1. Фотолиз высокомолекулярных примесей

Ультрафиолетовое излучение широко используется для очистки различных веществ от высокомолекулярных примесей. Известно, что электрический разряд в благородных газах является источником интенсивного жесткого ультрафиолетового излучения, для которого сам благородный газ является прозрачным [11]. Это позволяет использовать генерируемый при электрическом разряде ультрафиолет для очистки благородных газов путем фотолиза сложных молекулярных примесей. Поглощение ультрафиолетового света в сложных молекулярных примесях приводит к их диссоциации в менее сложные и химически более активные компоненты, которые могут эффективно взаимодействовать с химическими геттерами. Эффективность ультрафиолетового фотолиза примесей на

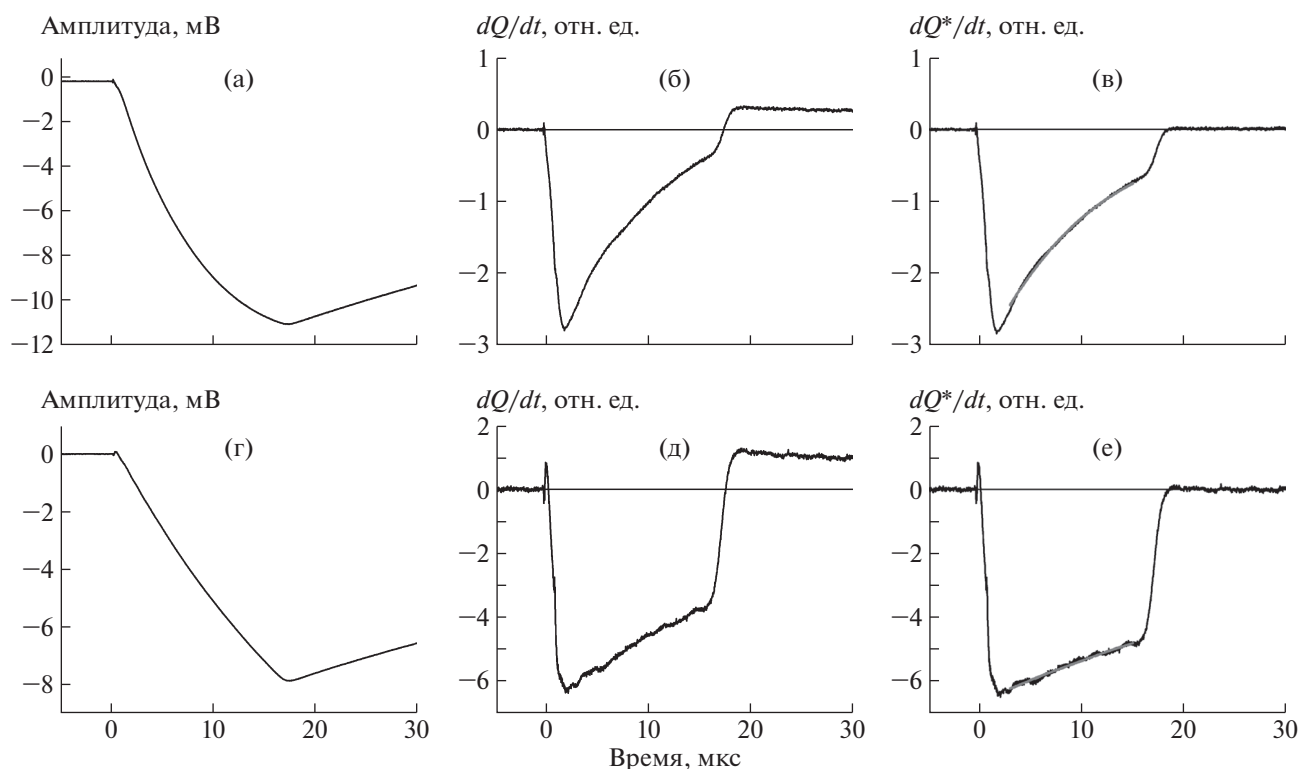


Рис. 3. Сигналы с рентгеновской ионизационной камеры установки “Мойдодыр” при напряжении на межэлектродном ионизационном промежутке 100 В. Время, прошедшее с момента начала искровой очистки, для верхнего ряда (а, б, в) составляет 100 ч, для нижнего ряда (г, д, е) – 200 ч; а, г – импульсы напряжения, полученные усреднением по 10000 импульсов, записанных цифровым осциллографом; б, д – зависимости $dQ_d(t)/dt$, полученные численным дифференцированием импульсов напряжения (а, г) соответственно; в, е – зависимости $dQ_d^*(t)/dt$ (см. текст).

установке “Мойдодыр” была исследована при очистке образца жидкого ксенона массой 55 кг.

Схема разрядной цепи и типичная вольт-амперная характеристика разряда приведены на рис. 4. Полное время работы искрового разряда со средней мощностью около 2 Вт составило примерно 70 ч. Хотя в результате искровой очистки высокомолекулярная примесь была удалена, время жизни τ электронов до захвата их электроотрицательными примесями не превысило ~ 1 мкс. Вскрытие камеры показало наличие на разрядных электродах примерно 10 мг углеродной пыли, что согласуется с оценками содержания органической примеси в исходном образце ксенона на уровне $\sim 10^{-4}\%$. В последующих сеансах очистки этого образца ксенона отложения подобного рода не наблюдались.

4.2. Тонкая очистка с помощью нанодисперсного титанового геттера

Длительность второго этапа – тонкой очистки 55 кг жидкого ксенона, очищенного ранее ультрафиолетовым излучением, – составляла 10 сут. В течение первых 7 сут шла наработка титановой

пыли в разряде, в результате чего время жизни электронов возросло до ~ 10 мкс. Последние трое суток разряд был выключен, но очистка продолжалась за счет поглощения примесей титановой пылью. При этом прирост времени жизни электронов до захвата составил порядка 15 мкс/день. К концу сеанса время жизни электронов достигло ~ 50 мкс (рис. 5). При вскрытии установки обнаружено наличие сфероидальных наночастиц титана со средним диаметром ≤ 100 нм (рис. 6).

Результаты химического анализа содержания примесей в ксеноне до и после очистки приведены в таблице в строках “Начальная” и “Конечная” соответственно. Следует обратить внимание на то, что в результате очистки содержание SF_6 – примеси с высокой степенью электроотрицательности – в исходном образце упало по крайней мере на 3 порядка (ниже уровня чувствительности аналитической аппаратуры). Заметно уменьшилось также содержание высокомолекулярных примесей типа $C_nH_mR_k$, но при этом несколько повысилось содержание водорода, что связано, вероятно, с выделением чистого углерода после 1-го этапа очистки (п. 4.1.).

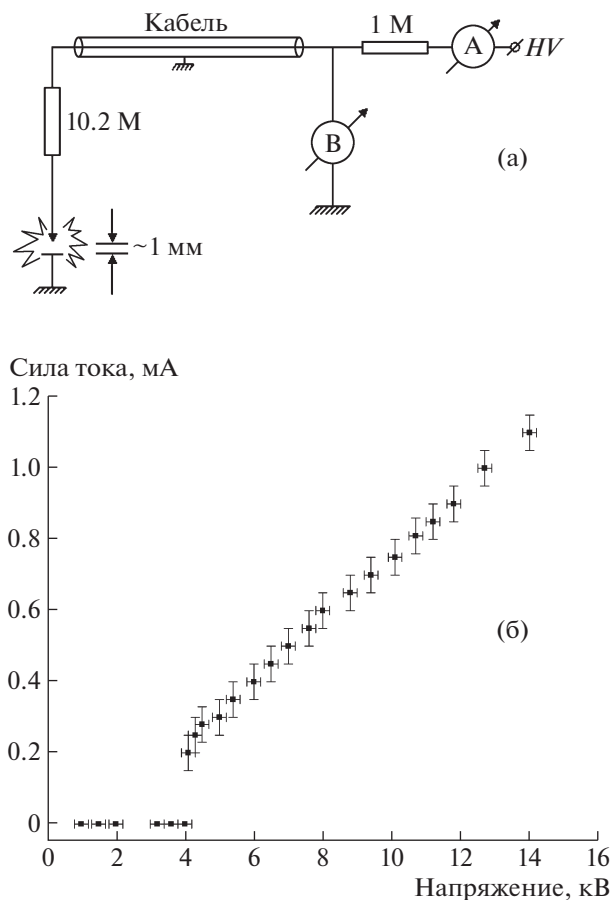


Рис. 4. Схема электрической цепи высоковольтного разрядника (а) и типичная вольт-амперная характеристика искрового разряда (б).

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе впервые продемонстрирована возможность очистки в промышленных количествах загрязненного высокомолекулярной электроотрицательной примесью жидкого ксенона с помощью искрового разряда между титановыми электродами. Такая очистка позволила увеличить время жизни τ электронов ионизации в жидком ксеноне с ≤ 0.1 мкс до ≥ 50 мкс в полях от 50 до 500 В/см. При этом было показано, что сложные молекулярные примеси могут быть удалены интенсивным ультрафиолетовым излучением, но наибольшие значения времени жизни электро-

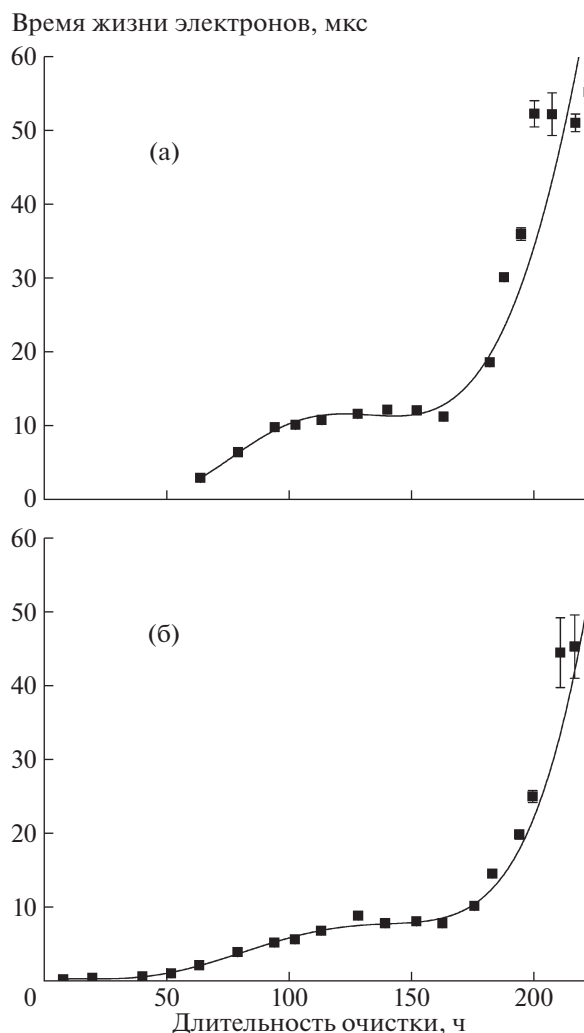


Рис. 5. Время жизни электронов до захвата электроотрицательными примесями в жидком ксеноне при температуре 167 К в зависимости от времени очистки при напряжении на аноде ионизационной камеры 100 В (а) и 1000 В (б).

нов достигаются за счет химической активности титановых наночастиц (нанопыли), генерируемых в жидком ксеноне при электрическом разряде между титановыми электродами.

Очищенный описанным способом ксенон может быть использован в детекторе РЭД-100 для первого наблюдения упругого когерентного рас-

Содержание, ppm, молекулярных примесей в ксеноне до (“Начальная”) и после (“Конечная”) процедуры очистки, согласно анализу, проведенному ООО “Хром”

Стадия очистки	Содержание, ppm, примесей								
	H ₂	N ₂	O ₂	CF ₄	CH ₄	CO ₂	H ₂ O	SF ₆	C _n H _m R _k
Начальная	0.325	0.950	0.180	<0.001	0.210	0.835	1.4	0.015	7.450
Конечная	0.600	0.700	0.050	<0.001	0.065	0.015	1.0	<0.0001	1.520

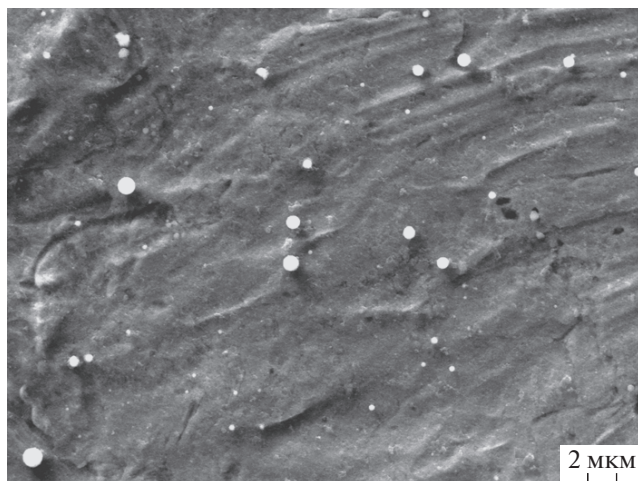


Рис. 6. Сфероидальные частицы титановой пыли на металлической детали, погруженной в жидкий ксенон во время очистки. Фотография сделана с помощью растрового электронного микроскопа Carl Zeiss EVO 50.

сеяния реакторных электронных антинейтрино на ядрах ксенона [5] или для поиска позитронного β -распада изотопа ^{124}Xe [13].

Авторы благодарны С.Н. Анисимову, А.С. Барабашу и В.Н. Стеханову за содействие в создании установки “Мойдодыр”.

Данная работа была поддержана Российским научным фондом и выполнена в рамках проекта повышения конкурентоспособности НИЯУ МИФИ (контракт 02.а03.21.0005 от 27.08.2013).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bolozdynya A.I.* // *Physics Procedia*.-2015. V. 74. P. 405. doi 10.1016/j.phpro.2015.09.212
2. LUX collaboration. *Akerib D.S. et al.* Results from a search for dark matter in the complete LUX exposure // arXiv:1608.07648v2. 2016.
3. DARWIN collaboration. *Aalbers J. et al.* // *Journal of Cosmology and Astroparticle Physics*. 2016. V. 11 P. 017. doi 10.1088/1475-7516/2016/11/017
4. *Akimov D.Y., Berdnikova A.K., Belov V.A., Bolozdynya A.I., Burenkov A.A., Efremenko Y.V., Gusakov Y.V., Etenko A.V., Kaplin V.A., Khromov A.V., Kononov A.M., Kovalenko A.G., Kozlova E.S., Kumpan A.V., Krakhmalova T.D. et al.* // *J. Phys. Conf. Ser.* 2016. V. 675. P. 012016. doi 10.1088/1742-6596/675/1/012016
5. *Акимов Д.Ю., Белов В.А., Болоздыня А.И., Буренков А.А., Власик К.Ф., Гусakov Ю.В., Дмитренко В.В., Долголенко А.Г., Ефременко Ю.В., Каплин В.А., Коваленко А.Г., Козлова Е.С., Коновалов А.М., Крахмалова Т.Д., Кумпан А.В. и др.* // ПТЭ. 2017. № 2. С. 22.
6. EXO collaboration. *Auger M. et al.* // *JINST*. 2012. V. 7. P05010. doi 10.1088/1748-0221/7/05/P05010
7. *Анисимов С.Н., Барабаш А.С., Болоздыня А.И., Стеханов В.Н.* Препринт ИТЭФ № 87-106. М.: ЦНИИ-атоминформ, 1987.
8. *Анисимов С.Н., Барабаш А.С., Болоздыня А.И., Стеханов В.Н., Чураков Д.Л.* // ПТЭ. 1991. № 2. С. 73.
9. *Chen M., Mullins M., Pelly D., Shotkin S., Sumorok K., Akyuz D., Chen E., Gaudreau M.P.J., Bolozdynya A., Tchernyshev V., Goritchev P., Khovansky V., Koutchenkov A., Kovalenko A., Lebedenko V. Et al.* // *Nucl. Instrum. and Methods in Physics Research*. 1993. V. A327. P. 187. doi 10.1016/0168-9002(93)91439-T
10. *Ободовский И.М., Покачалов С.Г., Шилов В.А.* // *ЖТФ*. 1980. Т. 50. № 9. С. 2028.
11. *Aprile E., Bolotnikov A.E., Bolozdynya A.I., Doke T.* *Noble Gas Detectors*. Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2006.
12. *Иванов-Есипович Н.К.* *Физико-химические основы производства радиоэлектронной аппаратуры*. 2-е издание. М.: Высшая школа, 1979.
13. *Bolozdynya A., Egorov V., Koutchenkov A., Safronov G., Smirnov G., Medved S., Morgunov V.* // *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 1997. V. 44. P. 1046.