

СИСТЕМА ГЛУБОКОЙ ОЧИСТКИ АРГОНА И ПРИБОР ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ СУММАРНОЙ КОНЦЕНТРАЦИИ ЭЛЕКТРООТРИЦАТЕЛЬНЫХ ПРИМЕСЕЙ В БЛАГОРОДНЫХ ГАЗАХ И НАСЫЩЕННЫХ УГЛЕВОДОРОДАХ

А. С. БАРАБАШ, О. В. КАЗАЧЕНКО, А. А. ГОЛУБЕВ, А. Н. ЗЕЛЕНСКИЙ,
Б. М. ОВЧИННИКОВ

Создана система глубокой очистки Ar, Ne и He от электроотрицательных примесей, использующая металлический Са. Однократное пропускание через систему промышленного Ar со скоростью 2 м³/ч позволяет получать газ с чистотой $\leq 3 \cdot 10^{-9}$ экв. O₂. Разработанный способ очистки Ar решает проблему создания жидкостных ионизационных камер весом до нескольких тонн.

Создан детектор для определения по захвату электронов суммарного содержания электроотрицательных примесей в благородных газах и насыщенных углеводородах с диапазоном измерений $10^{-1} \div 5 \cdot 10^{-11}$ экв. O₂. С детектором, полностью заполненным жидким Ar с чистотой $\leq 3 \cdot 10^{-9}$ экв. O₂, при регистрации γ -квантов с энергией 1,836 МэВ получено энергетическое разрешение 5%.

Импульсные ионизационные камеры на основе сконденсированных благородных газов позволяют получать высокое энергетическое ($1 \div 3\%$ [1, 2]), пространственное (до 10 мкм [3]), а при использовании сцинтилляционных свойств, и временное (10^{-9} с [4]) разрешение при большой массе чувствительного объема детектора (десятки тонн [5, 6]). Перечисленные свойства жидкостных ионизационных камер делают их особенно полезными в нейтринной физике [5 ÷ 7]. Основной трудностью при создании подобных детекторов с зазорами в несколько сантиметров является получение больших объемов рабочей жидкости с суммарным содержанием электроотрицательных примесей на уровне 10^{-9} эквивалентной концентрации кислорода в относительных объемных единицах. Например, оценки показывают, что для изучения процесса упругого рассеяния реакторных антинейтрино на электронах детектор должен содержать ~ 2 т Ar с чистотой, близкой к 10^{-9} экв. O₂. Для решения этой задачи необходимы система очистки со значительно большими производительностью и эффективностью, чем существующие [8], и возможность точного и оперативного измерения в получаемом жидком Ar суммарной концентрации электроотрицательных примесей. Следует отметить, что получение сверхчистых благородных газов в больших количествах необходимо также для производственных целей: при выполнении сварочных работ, в металлургии, при выращивании полупроводниковых кристаллов и т. д.

Нами создана система очистки Ar, Ne и He, позволяющая получать 2 м³/ч газа с чистотой $\leq 3 \cdot 10^{-9}$ экв. O₂ [9]. Система очистки (рис. 1) состоит из реактора 1 объемом 3,5 л и ϕ 100 мм

наполненного стружкой Са, двух термокомпрессоров 2, баллонов 3 для сбора очищенного газа и 4 с исходным газом, титанового металлокерамического фильтра тонкой очистки 5 с размерами пор 20 мкм, детектора электроотрицательных примесей 6 и системы вентилялей. Все элементы системы выполнены из нержавеющей стали, прокладки — медные и из фторопласта. В процессе подготовки стенки реактора обезгаживали в вакууме до 10^{-5} тор, температуре 800 °С в течение 100 ч. При этом из стенок реактора была в значительной степени удалена окись углерода.

Стружку Са размером $\sim 10 \times 20 \times 0,2$ мм³ приготавливали фрезерованием металлической заготовки и пересыпали ее в реактор в среде благородного газа без контакта с воздухом. Приготовление в инертной среде позволило избежать окисления стружки и повысило активность ее взаимодействия с примесями в Ar. После плотного заполнения стружкой реактор

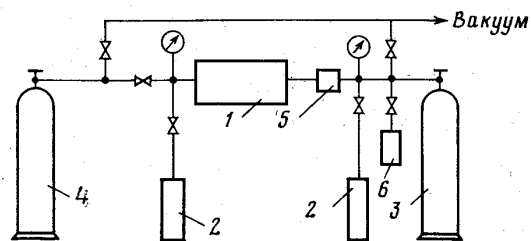


Рис. 1. Система очистки Ar. 1 — реактор со стружкой Са при 700 °С, 2 — термокомпрессоры, 3 — баллон для сбора очищенного газа, 4 — баллон с исходным газом, 5 — металлокерамический фильтр из Ti, 6 — детектор электроотрицательных примесей.

и всю систему вакуумировали до 10^{-5} тор, реактор нагревали до 700 ± 10 °С и выдерживали в этом режиме в течение 4 ч, а затем заполняли исходным Ag под давлением 20 кгс/см² и производили очистку газа. Подача газа в реактор под давлением улучшала эффективность очистки благодаря увеличению времени контакта газа со стружкой и увеличению абсолютной концентрации примесей.

В качестве исходного газа использовали промышленный Ag «чистый марки А», содержащий в сжиженном состоянии примеси на уровне 10^{-5} экв. O₂. После однократного пропускания через реактор со средней скоростью 2 м³/ч Ag в сжиженном состоянии имел чистоту $\leq 3 \cdot 10^{-9}$ экв. O₂. Существенно улучшить достигнутую чистоту путем уменьшения скорости пропускания газа через реактор либо многократным последовательным пропусканием одной и той же порции газа через реактор не удавалось. Достигнутый предел чистоты, по-видимому, обусловлен выделением газов из самого Ag, стенок реактора и всей системы. При скорости пропускания через реактор исходного Ag 100 л/мин получена чистота 10^{-8} экв. O₂. Низкое суммарное содержание в Ag электроотрицательных примесей является надежным критерием его чистоты, так как молекулы большинства примесей заметно электроотрицательны, за исключением инертных газов, N₂, CO₂, насыщенных углеводородов и некоторых других слабоэлектроотрицательных веществ.

Увеличение поперечного сечения реактора в 10 раз позволит увеличить во столько же раз его производительность, которая будет равна при этом 20 м³/ч. Такая система позволит подготовить 2 т жидкого Ag с чистотой $3 \cdot 10^{-9}$ экв. O₂ за 50 ч. Возможным путем повышения производительности системы является увеличение давления газа в реакторе.

Для определения суммарного содержания электроотрицательных примесей в Ag использовался разработанный авторами электронно-захватный детектор с рабочим диапазоном измерений $10^{-1} \div 5 \cdot 10^{-11}$ экв. O₂. Для Xe, Kr и насыщенных углеводородов, молекулы которых слабо электроотрицательны, диапазон измерений не отличается существенно от диапазона измерений для Ag. Существовавшие ранее методы контроля по захвату электронов [9] обладали чувствительностью на уровне 10^{-7} экв. O₂, т. е. не были пригодны в нашем случае.

Детектор представляет собой плоскую импульсную ионизационную камеру (рис. 2). Анод 1 и катод 3 выполнены из нержавеющей стали и имеют ϕ 40 мм. Экранирующая сетка 2

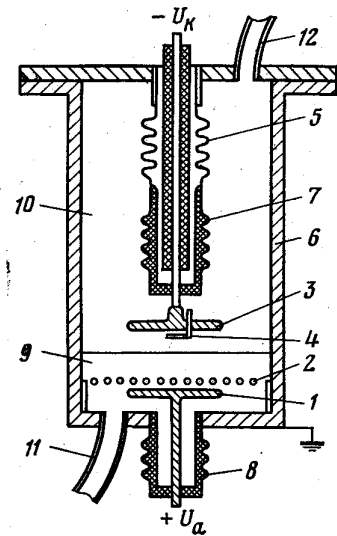


Рис. 2. Детектор примесей по захвату электронов. 1 — катод, 2 — экранирующая сетка, 3 — анод, 4 — α -источник, 5 — сильфон герметичного ввода, 6 — корпус детектора, 7, 8 — керамические изоляторы, 9 — анализируемый сжиженный Ag, 10 — газовая камера, 11 — трубка для подачи в детектор сжиженного Ag, 12 — трубка для подачи в детектор газа

намотана на оправку из нержавеющей стали проводом из бериллиевой бронзы ϕ 0,1 мм с шагом 1 мм. Зазор сетка — анод равен 2 мм, величина зазора сетка — катод может регулироваться в пределах $0 \div 17$ мм. Около катода расположен спектрометрический радиоактивный α -источник ²³⁹Pu 4, испускающий \sim α -частиц в секунду. Для получения низкой температуры, необходимой при работе с сжиженными благородными газами, камера помещена в криостат. Для измерения амплитуды ионизационных сигналов используется зарядчувствительный импульсный усилитель и многоканальный амплитудный анализатор лосциллограф.

При анализе чистоты Ag, содержащего примеси в диапазоне $10^{-5} \div 5 \cdot 10^{-11}$ экв. O₂, анализируемый газ сжижают и заполняют жидкостью детектор так, чтобы анод и сетка были погружены в жидкость, а катод с α -источником находились в газообразном Ag над жидкостью. Зазор между α -источником и жидкостью и давление газа $2 \div 10$ кгс/см² устанавливают так, чтобы пробеги α -частиц укладывались в нее. Используемый в камере α -источник обеспечил разрешение камеры для α -линии 5 МэВ, равное 5%. Измеряя энергетическое смещение α -линии из-за потерь электронов

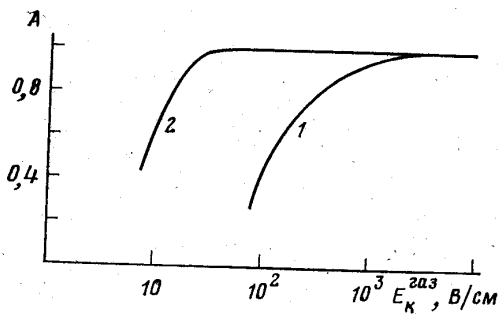


Рис. 3. Амплитудные характеристики детектора с двухфазным (1) и газовым (2) наполнением

примесей жидкости, определяют суммарное количество электроотрицательных примесей в жидкости.

Для определения области напряженности электрического поля, в которой наблюдается заметное поглощение электронов, измеряют амплитудную характеристику камеры. Например, на рис. 3 представлены результаты измерений с жидкими Ag, очищенным до $9 \cdot 10^{-9}$ экв. O_2 (кривая 1). Для повышения точности используют разностную методику измерений, с этой целью дополнительно снимают калибровочную амплитудную характеристику с газовым наполнением камеры (кривая 2). При этом газ находится под давлением, равным давлению газа при измерениях с жидкостью. Во всех измерениях соотношение напряженностей электрических полей до и после сетки поддерживается равным $1/2$, чтобы, с одной стороны, транспортировать электроны через сетку без потерь [10], с другой стороны, чтобы поле из анодного зазора не давало существенного вклада из-за проницаемости сетки в поле катодного промежутка.

Как можно видеть из рис. 3, эффект рекомбинации на треках α -частиц в газе становится существенным только в области $E_K^{газ} < 20$ В/см. Именно это обстоятельство позволяет достичь в случае частичного заполнения детектора жидкостью высокой чувствительности, поскольку в случае чистой жидкости достаточно приложить небольшую разность потенциалов между катодом и сеткой, чтобы вытянуть все электроны с треков α -частиц. Далее электроны транспортируются через жидкость при слабой напряженности электрического поля, когда коэффициенты поглощения электронов примесями велики. Искомая суммарная концентрация электроотрицательных примесей определяется

по формуле

$$C = \frac{E_K^{жк} \ln(A_{газ}/A_{жк})}{4 \cdot 10^6 (2X_1 + X_2)}$$

где C — искомая суммарная концентрация электроотрицательных примесей, выраженная в эквивалентном содержании кислорода в относительных объемных единицах; $E_K^{жк}$, кВ/см, — напряженность электрического поля в жидкости в катодном зазоре; $A_{жк}$ — амплитуда сигнала, полученного при частичном заполнении детектора жидкостью в области заметного поглощения ($A_{жк}/A_{газ} = 0,99 \div 0,1$); $A_{газ}$ — амплитуда сигнала, полученного с газовым наполнением детектора при том же значении, $E_K^{газ}$, что и при измерении $A_{жк}$; $E_K^{газ}$ — напряженность электрического поля в газе у катода; X_1 , см, — толщина слоя жидкого Ag над сеткой; X_2 , см, — зазор сетка — анод.

При измерениях параметры X_1 и $E_K^{жк}$ варьируют в зависимости от предполагаемой чистоты в пределах: $X_1 = 2 \div 10$ мм, $E_K^{жк} = 0,02 \div 10$ кВ/см.

В жидкостных камерах существенна не абсолютная величина концентрации примесей, а средняя длина дрейфа электронов до поглощения $\lambda = 1/KC$, где K — коэффициент поглощения электронов примесями в жидкости. Погрешность определения величины λ определяется в основном ошибкой в измерении тол-

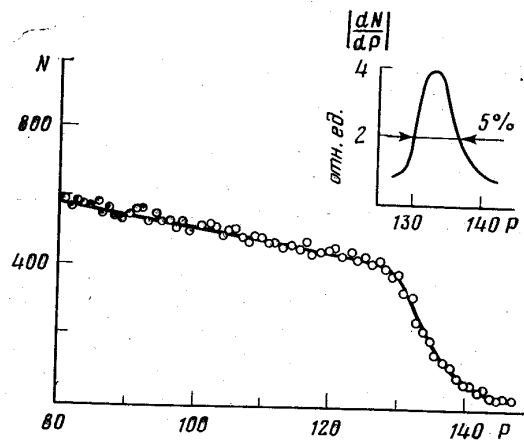


Рис. 4. Амплитудное распределение сигналов ионизации, полученное при облучении детектора γ -квантами ^{60}Co . P — номер канала, N — число отсчетов в канале

щины слоя Ag над сеткой X_1 и составляет $\sim 10\%$ для $X_1 = 10$ мм. При вычислении абсолютной концентрации вносится дополнительная погрешность, связанная с погрешностями коэффициентов K [11, 12]. При этом следует однако отметить, что независимые измерения коэффициентов поглощения в работах [11, 12] согласуются между собой в пределах 20%. Важно подчеркнуть, что контролируемая среда в рассматриваемом режиме работы детектора — жидкость, как и в ионизационной камере, для которой готовится благородный газ. Суммарная концентрация электроотрицательных примесей в одной и той же порции благородного газа, находящегося в сжиженном состоянии и газообразном, может оказаться различной из-за вымораживания некоторых примесей при низкой температуре.

При измерении концентраций примесей $10^{-1} \div 10^{-5}$ экв. O_2 детектор заполняют анализируемой средой в газообразном состоянии под давлением, зависящем от концентрации примесей; для более чистого газа используется большее давление (до 10 кгс/см²).

Камера была также испытана при заполнении жидким Ag с чистотой $\leq 3 \cdot 10^{-9}$ экв. O_2 всего катодного зазора, размер которого равнялся 10 мм. На рис. 4 представлено амплитудное распределение ионизационных сигналов, полученное при облучении камеры γ -квантами ^{88}Y . Использование метода дифференцирования жесткого края комптоновского спектра, соответствующего γ -линии 1,836 МэВ, позволило определить энергетическое разрешение камеры [13]. На рис. 4 изображен интересующий нас участок кривой $|dN/dP| = f(P)$, имеющий форму пика с полной шириной на полувысоте, равной 5%. В эту величину полученного энергетического разрешения камеры основной вклад

вносят, по-видимому, шумы предусилителя и граничные эффекты, обусловленные влетом и вылетом электронов из камеры.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность М. В. Лобашеву за многочисленные полезные обсуждения вопросов, затронутых в работе, постоянное внимание и помощь в работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Hitlin, J. F. Martin, C. C. Morehouse et. al. Nucl. Instrum. and Methods, 1976, 137, 225.
2. E. Shibamura, A. Hitachi, T. Doko et. al., Nucl. Instrum. Methods, 1975, 131, 249.
3. S. E. Derenzo, D. B. Smith, R. G. Smits et. al. Nature, 1971, 233, 617.
4. Б. А. Долгошеин, Б. У. Родионов, Сб. МИФИ Элементарные частицы и космические лучи, 1969, вып. 2, стр. 164, Атомиздат.
5. Е. Д. Жижин, Р. В. Коноплич, Ю. П. Никитин, Б. У. Родионов, Сб. МИФИ Элементарные частицы и космические лучи, 1976, вып. 4, стр. 71, Атомиздат.
6. J. Engler, B. Friend, W. Holmann et. al., Nucl. Instrum. and Methods, 1974, 120, 157.
7. Г. Т. Зацепин, Б. М. Погтекорев, Письма ЖЭТФ, 1970, 12, 347.
8. H. Zaklad, Preprint Berkley UCRL-20690, 1971.
9. А. С. Барабаш, А. А. Голубев, А. Н. Зеленский и др., Препринт ИЯИ АН СССР, № 60, 1977, Москва.
10. O. Bunemann, T. E. Cranshaw, J. A. Harley, Can. J. Res., 1949, A27, 191.
11. L. S. Miller, S. Howe, W. E. Spear, Phys. Rev. 1968, 166, 871.
12. W. Hoffmann, U. Klein, M. Schulz et. al., Nucl. Instrum. and Methods 1976, 135, 151.
13. В. И. Кужтевич, О. А. Трыков, Л. А. Трыков, Спектральный анализ сцинтилляционных спектров, 1971, стр. 75, Атомиздат.

Институт ядерных исследований АН СССР, Москва
Получено 21.X.1978