

УДК 539.1.71.002

Пилотная установка по очистке «теплой жидкости» тетраметилсилана и проведения «неускорительных экспериментов»

© 2019 г. В. В. Сиксин[§]

*Физический институт имени П. Н. Лебедева РАН,
Ленинский просп., д. 53, Москва, 119991, Россия*

Аннотация. Применение «теплой жидкости» тетраметилсилана (ТМС) является актуальным в больших массивных калориметрах (с объемом несколько сот литров) для поиска процессов с очень малыми энерговыделениями. Это направление в современной ядерной физике называется «неускорительные» эксперименты с низкофоновыми детекторами.

Такие эксперименты возможны с помощью полностью отработанной технологии получения в больших количествах «теплой жидкости» ТМС. С помощью этих экспериментов можно проверить стандартную модель электрослабых взаимодействий частиц и выполнить поиск слабовзаимодействующих вимпов (W -частиц). В ФИАН, при консультативной помощи ГНИИХТЭОС, разработана пилотная установка для очистки ТМС до степени 24 ppb, при которой возможно наполнение калориметров и микродозиметров ТМС. Очистка состоит из пяти этапов. На первом этапе, концентрат ТМС, так называемый «легкий погон», получают с завода. Рассматривается создание на большом количестве высокоочищенной «теплой жидкости» ТМС, нового класса детекторов с рекордной чувствительностью к редким и слабоионизирующим частицам, так называемые детекторы «без стенок». Предлагаемый двухфазный эмиссионный низкофоновый детектор (ДЭНД), в котором одновременно находятся две фазы ТМС, — жидкость и газ, что позволяет проводить эксперименты по наблюдению когерентного рассеяния реакторных нейтрино и по поиску W -частиц.

Ключевые слова: ФЭУ с усилителем, электроотрицательная примесь, «теплая жидкость», выход свободных электронов, тетраметилсилан (ТМС), жидкостные ионизационные камеры, «неускорительные эксперименты»

Введение

Одним из актуальных материалов применяемых в современной электронной технике, являются так называемые «теплые жидкости», в частности тетраметилсилан (ТМС) [1]. ТМС в жидком состоянии при комнатных температурах ниже 26,65 °С является неполярным диэлектриком и технология его очистки ключевой фактор создания больших по объему детекторов. Ранее для детектирования процессов со слабыми энерговыделениями, использовали калориметры, содержащие сжиженный аргон или ксенон охлаждаемые до низких температур криогенной системой (температура кипения Ar — -185,9 °С). Из ТМС можно изготавливать высокоэффективные детекторы излучений определяющие сорта частиц [2], детекторы для дозиметров излучений [1]. Сам материал ТМС можно использовать в химической промышленности в качестве добавки для создания материалов с новыми свойствами. ТМС (также как и благородные газы типа аргона и ксенона), является активным веществом для создания больших по

объему детекторов — калориметров для изучения слабовзаимодействующих частиц. ТМС можно использовать для получения нанопродуктов, например пленок в тлеющем разряде, или аморфного SiC в плазме и т. д. В последнее время очень актуальна низкофоновая физика — в частности поиск темной материи. Для этих экспериментов нужны детекторы с большой массой и регистрирующие очень малое энерговыделение. ТМС как активная среда для таких детекторов — идеальный материал [2]. В статье рассматривается создание на ТМС диффузионного эмиссионного низкофонового детектора (ДЭНД) большого объема — более 100 л. За счет эффекта электролюминесценции ДЭНД на ТМС позволит регистрировать очень слабые энерговыделения — в виде 2—3 электронов ионизации. Возможность применения ТМС для создания таких детекторов обосновывается их самыми большими выходами свободных носителей и самым большим временем жизни электронов среди «теплых жидкостей». Этот метод так же актуален для регистрации процесса когерентного рассеяния реакторных антинейтрино на атомных ядрах [3, 4]. В статье описывается один из вариантов пилотной установки по получению конечного продукта ТМС со степенью чистоты 24 ppb,

Сиксин Виктор Васильевич[§] — канд. физ.-мат. наук, старший научный сотрудник, e-mail: antktech@yandex.ru

[§] Автор для переписки

пригодного для создания большого детектора ДЭНД для поиска W-частиц. Мощность созданной установки около 100 л ТМС за месяц.

Цель работы — создание установки по очистке исходного продукта — «легкого погона» получаемого с завода до степени 24 ppb, и системы тестирования конечного продукта ТМС на присутствие электроотрицательных примесей, поглощающих свободные носители заряда (электроны).

Ионизационные камеры на «теплых» диэлектрических жидкостях

Ионизационные камеры на «теплых» диэлектрических жидкостях имеют преимущества перед всеми типами детекторов применяемых в дозиметрии.

Количество заряда, собираемого в активной среде дозиметра, связано с количеством электроотрицательных примесей, присутствующих в ней, поэтому основным условием повышения качества работы дозиметров на «теплых жидкостях» является низкое содержание электроотрицательных примесей. Влияние основных электроотрицательных примесей на ток проводимости в

диэлектрических жидкостях было исследовано В. Шмидтом и А. Алленом в работе [5].

«Теплые» жидкости» обычно характеризуются следующими параметрами (по данным работ [2, 6]): T — температура кипения в градусах, °C; ϵ — относительная диэлектрическая константа; μ — подвижность свободных носителей заряда, $\text{м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$; G_{fi} — выход пар свободных электронов; d — плотность жидкости, $\text{г}/\text{см}^3$.

В таблице приведено сравнение параметров наиболее применяемых «теплых жидкостей» с высокой степенью очистки.

Ионизационные камеры на «теплых» жидкостях могут служить и дозиметром, и детектором частиц [2], так как здесь имеется возможность различать электроны, быстрые нейтроны и гамма кванты (рис. 1).

Электронные свойства «теплых жидкостей» используемых в ионизационных камерах

[Electronic properties of «warm liquids» used in ionization chambers]

Жидкость	$T, ^\circ\text{C}$	ϵ	$\mu, \text{м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$	G_{fi}	$d, \text{г}/\text{см}^3$
Изооктан	99,24	1,936	$5,3 \cdot 10^{-4}$	0,33	0,69
Тетраметилпентан	140,3	2,05	$29 \cdot 10^{-4}$	0,42	0,72
Тетраметилсилан	26,65	1,84	$105 \cdot 10^{-4}$	0,74	0,65

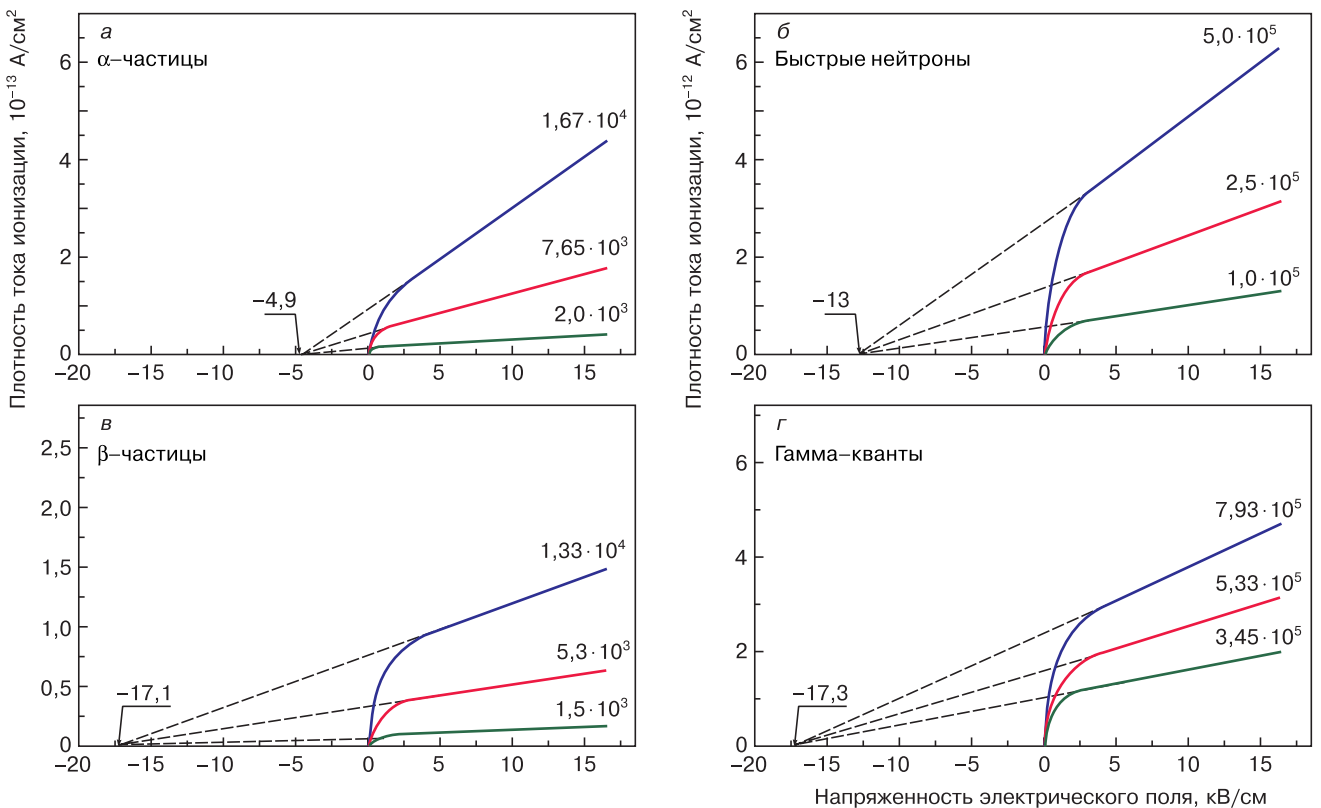


Рис. 1. Плотность тока ионизации при напряженности электрического поля для различных типов излучения: а — ^{210}Po - α (5,3 МэВ); б — нейтроны с энергией 14,7 МэВ; в — ^{63}Ni — β ($E_{\text{max}} = 65$ кэВ); г — ^{60}Co — γ ($E_\gamma = 1,17$ и $1,33$ МэВ) — при облучении «теплой жидкости» *n-hexane*

Fig. 1. Ionization current density at an electric field for various types of radiation: (a) ^{210}Po - α (5.3 MeV), (б) neutrons with an energy of 14.7 MeV, (в) ^{63}Ni — β ($E_{\text{max}} = 65$ keV), (г) ^{60}Co — γ ($E_\gamma = 1.17$ and 1.33 MeV) — upon irradiation of a «warm liquid» *n-hexane*

Важнейшим выводом экспериментальных исследований [2] было то, что при использовании «теплых жидкостей» экстраполяция линейной части кривой тока и напряженности поля ионизации на нулевой ток, пересекала абсциссу (напряженность поля) в разных точках для разных типов радиационных «качеств». В этом и заключается возможность определения «показателя качества», которая достаточно наглядно показана на рис. 1.

В работе [1] описано применение ионизационной камеры на «теплой жидкости» — изооктане, выпускаемой фирмой RTW под коммерческим названием «Microlion». В отличие от «Microlion» у тетраметилсилана больше выход свободных электронов, поэтому здесь нет необходимости в использовании особо дорогих электрометрических усилителей. Авторы работы [1] утверждают, что эффективность камер на ТМС по крайней мере на 50 % выше, чем на изооктане.

Оценка качества очищенной «теплой жидкости» ТМС от электроотрицательных примесей

Для ионизационных камер на «теплых жидкостях» наиболее перспективным является использование тетраметилсилана в качестве активной среды [5].

Для повышения точности калориметров на тетраметилсилане, необходимо решить две основные задачи — разработать технологию получения тетраметилсилана с тонкой очисткой и обеспечить контроль степени чистоты тетраметилсилана.

Основные предпосылки для повышения степени очистки тетраметилсилана при использовании его в качестве активной среды для ионизационных камер состоят в том, что электроны, образованные при прохождении ионизирующей частицы, должны обладать более высокой дрейфовой подвижностью и иметь достаточно большое время жизни относительно захвата электроотрицательными примесями.

Этим обеспечивается увеличение проводимости, количества собираемого заряда и, как следствие, повышение точности измерений. Для «теплых» жидкостей концентрация электронных акцепторов не должна превышать $1 \cdot 10^{-8}$ моль/л.

На рис. 2 приведена схема измерения электропроводности.

Зазор между электродами составлял 1,8 мм. Мощность источни-

ка гамма-квантов с энергией 660 кэВ позволяет получать в рабочем объеме измерительной ячейки экспозиционную дозу, равную 22 мР/имп. Экспозиционное время составляло 100 с (за один импульс). За время экспозиции на интегрирующей цепочке операционного усилителя собирался заряд Q , который определялся с помощью вольтметра 8 по напряжению на вторичной обкладке конденсатора $C_{o.y.}$ операционного усилителя.

Для каждого значения высокого напряжения на ионизационной камере набиралась статистика и за несколько последовательных экспозиций вычислялось среднее значение Q .

Также были получены вольт-амперные характеристики зависимости собранного заряда в ионизационной камере от высокого напряжения (рис. 3), подаваемого на ионизационную камеру (с источником гамма-квантов и без него):

- Q — заряд в кулонах, собранный в ионизационной камере при облучении ее от источника;
- Q_T — заряд в кулонах, собранный в ионизационной камере при отсутствии источника.

Приведена разность $Q - Q_T$, (см. рис. 3, кривая 1), когда ионизационная камера облучалась источником, на кривой 2 — собираемый ионизационной камерой темновой заряд (Q_T), когда источник отсутствовал (токи утечки очищенной жидкости).

При прохождении гамма-квантов от источника верхняя кривая имеет плато по напряжению, что указывает на высокую степени очистки тетраметилсилана.

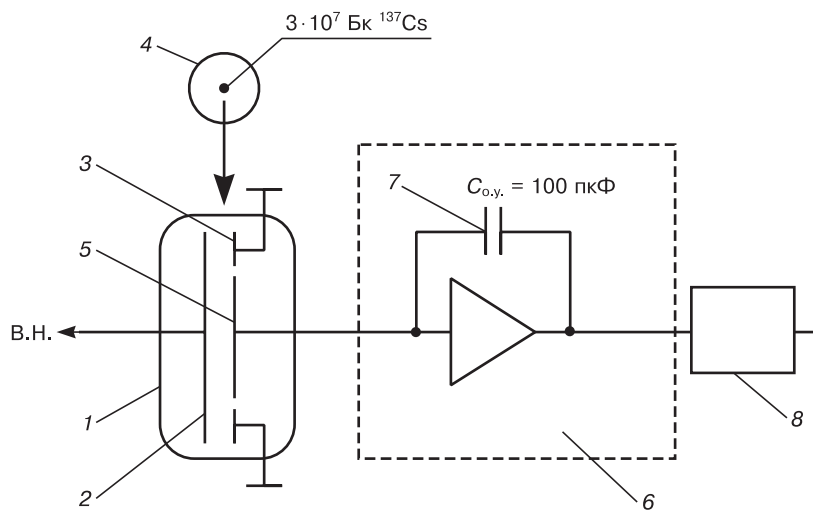


Рис. 2. Схема измерения электропроводности (свободного выхода электронов G_{if}):

1 — ионизационная камера на очищенном тетраметилсилане; 2 — высоковольтный электрод диаметром 25 мм; 3 — охранный электрод; 4 — источник ионизирующего излучения; 5 — коллектор диаметром 18 мм; 6 — электрометрический усилитель типа ДРГ2-01; 7 — интегрирующая емкость операционного усилителя; 8 — вольтметр; B.H. — высокое напряжение

Fig. 2. Scheme for measuring electrical conductivity (free electron output G_{if}): (1) ionization chamber on purified tetramethylsilane, (2) high voltage electrode with a diameter of 25 mm, (3) security electrode, (4) source of ionizing radiation, (5) collector with a diameter of 18 mm, (6) electrometric amplifier type DRG2-01, (7) integrating capacity of the operational amplifier, (8) voltmeter; B.H. — high voltage

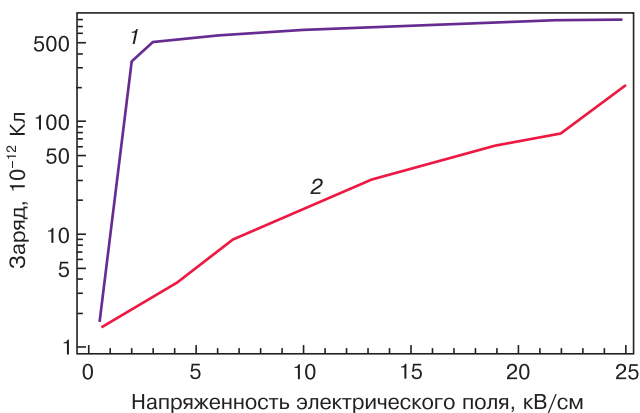


Рис. 3. Заряд, собранный ионизационной камерой, в зависимости от напряженности электрического поля (аппроксимация экспериментальных точек): 1 — разность тока при включенном источнике излучения (Q) и при выключенном источнике излучения (Q_T); 2 — темновой ток очищенной жидкости (Q_T)

Fig. 3. The charge collected by the ionization chamber, depending on the electric field strength (approximation of experimental points): (1) current difference when the radiation source is on and off, (2) dark current of the purified liquid

Из вольт–амперной характеристики (см. рис. 3) следует, что в данном образце ТМС наблюдается электронная проводимость, превышающая ток утечки Q_T в 10 раз. Обратная ей величина характеризует удельное сопротивление и является основной величиной, характеризующей степень очистки ТМС от электроотрицательных примесей.

Получены следующие величины удельного сопротивления до и после очистки: 10^{12} Ом · см до тонкой очистки после автоматизированной ректификационной установки и $5 \cdot 10^{17}$ Ом · см после тонкой очистки при 5 кВ/см. Полученные результаты согласуются с результатами работы [7].

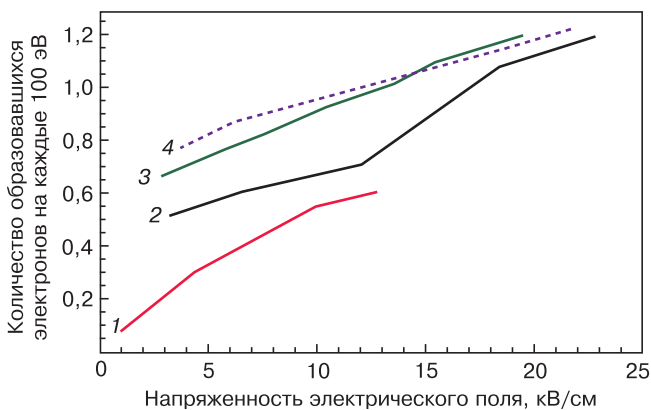


Рис. 4. Выход свободных электронов G_{if} в зависимости от напряженности электрического поля в ионизационной камере: 1 — результаты, полученные в работе [7]; 2 — результаты, полученные в работе [11]; 3 — результаты, полученные в работе [12]; 4 — результаты контроля ТМС, полученного на пилотной установке (измерительной ячейкой) и совпадающие с данными работ [8–10]

Fig. 4. The output of free electrons G_{if} , depending on the electric field strength in the ionization chamber: (1) results [7], (2) results [11], (3) results [12], (4) results of the TMS control obtained at the pilot installation (measuring cell) and coinciding with the data obtained in [8–10]

При измерениях выхода свободных электронов G_{if} в данной работе использовалась схема измерительной электроники аналогичная системе контроля за степенью чистоты тетраметилсилана (см. рис. 2), но встроенная в систему очистки. При данной схеме подключения измерительной ячейки к электрометрическому усилителю измерялась только электронная компонента тока, наведенного источником в камере. Выход электронов на каждые 100 эВ энергии, потерянной на ионизацию, вычислялся по формуле:

$$G_{if} = \frac{Q \cdot 10^{10}}{Ddv},$$

где D — доза, поглощенная в рабочем объеме, мР/имп; d — плотность тетраметилсилана, г/см³; v — рабочий объем ячейки, см³.

Выход электронов G_{if} является одной из основных физических величин, использующихся при проектировании ионизационных камер на «теплых жидкостях».

На рис. 4 показан выход свободных электронов G_{if} в зависимости от напряженности электрического поля в ионизационной камере на очищенном тетраметилсилане полученный системой контроля (аналогичной рис. 2) [7–12].

Пилотная установка для наработки «теплой жидкости» — тетраметилсилана, свободной от электроотрицательных примесей

Пилотная установка созданная в ФИАН (г. Москва), создавалась на основе наработок автора по созданию аналогичной установки в ИФВЭ (г. Протвино) [8, 13, 14] и при консультативной помощи института ГНИИХТЭС (г. Москва). Основным назначением пилотной установки является проверка основных технических решений, полученных при разработке опытной полупромышленной установки описанной в работах [8, 9, 13, 14]. Первый этап очистки — ректификация легко кипящих фракций (**ЛКФ**), был создан на основе работ [8, 9, 13, 14]. Четвертая стадия технологии, аналогична схеме описанной в работе [9]. Производительность установки составляет до 100 л в месяц.

Единственным источником ТМС в больших количествах, в настоящее время является прямой синтез метилхлорсиланов (**МХС**). В продуктах прямого синтеза ТМС присутствует обычно в количествах менее 1 % [15]. Однако, объемы производства самих МХС составляют более 3 млн т. При этом весь ТМС производителями МХС перерабатывается в целевые продукты без выделения в виде индивидуального вещества.

При ректификации продуктов прямого синтеза ТМС концентрируется в виде ЛКФ, содержащих до 75 % ТМС. Помимо ТМС в составе ЛКФ присутству-

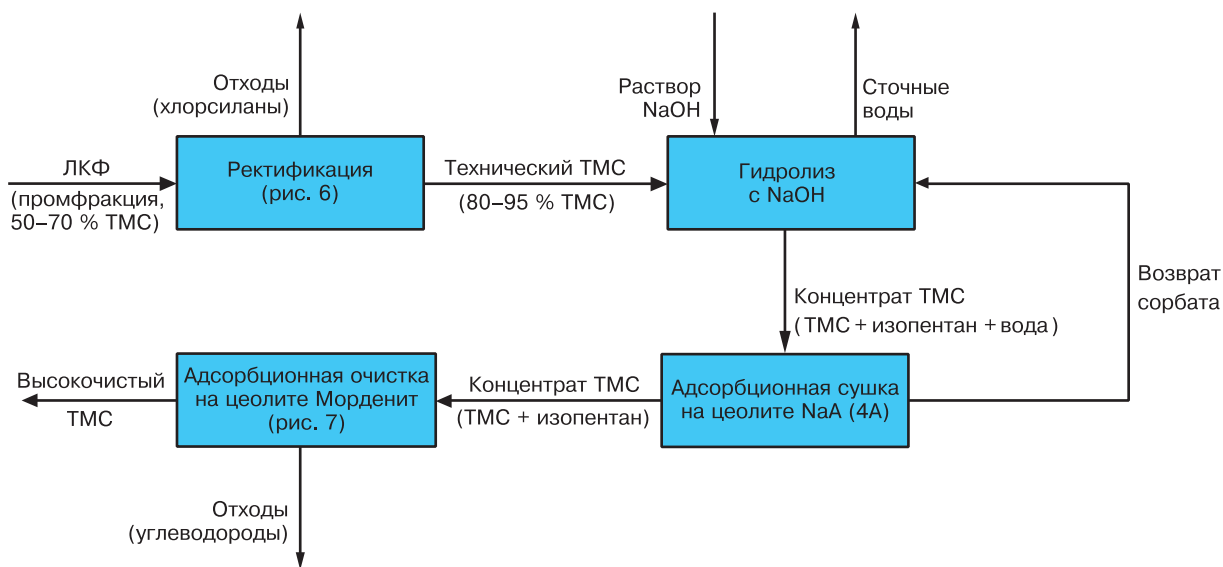


Рис. 5. Блок-схема процесса получения высокоочищенного ТМС из промфракции, выделяемой при производстве метилхлорсиланов

Fig. 5. The flowchart of the process of obtaining high-purity TMS from the industrial fraction extracted in the production of methylchlorosilanes

ют хлорсодержащие продукты (HCl , CH_3Cl , H_2SiCl_2 , HSiCl_3 , $(\text{CH}_3)_2\text{HSiCl}_2$, $(\text{CH}_3)\text{HSiCl}_2$) и органические углеводороды: метан и изопентан. Содержание последнего продукта может достигать 15 %, чаще менее 10 %. Температуры кипения тетраметилсилана и изопентана близки (26,65 и 27,9 °C, соответственно), поэтому методом ректификации отделить их друг от друга практически невозможно.

На рис. 5 представлена блок-схема установки реализованной в ФИАН и АО ГНИИХТЭОС, которая позволяет получить высокоочищенный ТМС, пригодный для использования его в качестве активной среды ионизационных камер большого объема, а также в микро дозиметрах.

Процесс очистки ТМС состоит из пяти стадий. Первые три стадии позволяют получить технический ТМС, содержащий в основном только изопентан.

Первая стадия. Первый этап очистки — ректификация ЛКФ, создан на основе разработок, описанных в работах [8, 13, 14], в установках малого объема для отработки режимов процесса и наработки образцов высокоочищенного ТМС. На первой стадии (рис. 6) промышленный образец ЛКФ из прямого синтеза МХС (полученный на АО СИЛАН) или от других поставщиков подвергаются дополнительной ректификации. Основное назначение данной стадии — снижение содержания хлорсодержащих продуктов. Ректификационную очистку проводят по стандартной методике в периодическом режиме.

При техническом расчете колонн определены диаметр и высота ректификационной колонны. Возможно использование двух вариантов колонн — тарельчатого типа и с насадкой. Во втором варианте используют стеклянную ректификаци-

онную колонну 2, диаметром 40 мм, заполненную спирально-призматической насадкой на высоту 1500 мм. Насадка выполнена из нержавеющей проволоки с размером элементов $3 \times 4 \text{ мм}^2$. Кубовая часть 1 колонны имеет объем 10 л. В качестве дистиллята получают смесь ТМС и изопентана с содержанием хлорсиланов около 0,2 %. Ректификационная колонна позволяет получать 4 л технического ТМС за 8 ч работы установки.

Вторая стадия. Вторая стадия аналогична технологии разработанной в ГНИИХТЭОС [9] и примененной в ФИАН. Основное назначение данной стадии

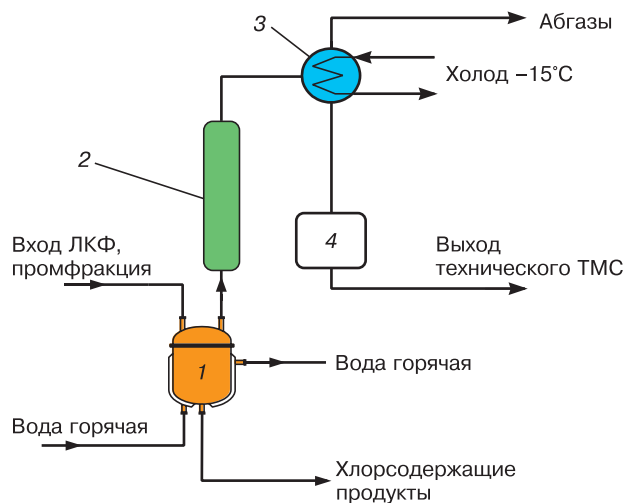


Рис. 6. Принципиальная схема ректификационной установки для очистки промфракции ЛКФ от хлорсиланов: 1 — куб колонны; 2 — колонна ректификационная насадочная; 3 — дефлегматор; 4 — сборник технического ТМС

Fig. 6. Schematic diagram of a distillation unit for purifying industrial fractions of easily boiling fractions from chlorosilanes: (1) cube of the column, (2) distillation column packed, (3) reflux condenser, (4) collection of technical TMS

заключается в полном удалении из технического ТМС хлорсодержащих микропримесей. Для этого технический ТМС обрабатывают около 5 ч в двадцатилитровой стеклянной емкости с пропеллерной мешалкой 10%-ым раствором NaOH. Обработку проводят при комнатной температуре. Емкость снабжена обратным холодильником, охлаждаемым тосолом до $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$. Реакционный слой отстаивают в течение 1 ч и затем декантируют, удаляя нижний (водный) слой. Оставшийся ТМС дважды промывают дистиллированной водой при интенсивном перемешивании. Каждая промывка имеет продолжительность не менее 30 мин. Водный слой отделяют методом декантирования. Очищенный ТМС перекачивают в атмосфере инертного газа (аргон, ОСЧ) в емкость хранения очищенного технического продукта, снабженную якорной мешалкой и рубашкой, охлаждаемой до температуры $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$. Помимо изопентана и возможных следов углеводородов промытый ТМС, содержит воду в пределах 50—100 ppm.

Сточную воду от промывки технического ТМС, содержащую остаточное количество щелочи и растворенные силикаты натрия отправляют на уничтожение.

За один восьмичасовой рабочий день на данной стадии получают около 15 л очищенного ТМС.

Третья стадия. Основное назначение стадии — сушка ТМС. В емкость хранения технического продукта добавляют цеолит NaA (молекулярное сито 0,4 нм), в количестве до 30 % от объема жидкости. Суспензию периодически перемешивают в течение 8—10 ч. После этого суспензия отстаивается в течение не менее 1 ч. Осушенная смесь ТМС и изопентана декантируется в емкость для хранения или непосредственно в расходную емкость 1 (рис. 7). На данной стадии за 10—12 ч получают 14 л осушенной смеси ТМС и изопентана. Влажный сорбент направляется на регенерацию. Выделенный сорбат возвращается на предыдущую (вторую) стадию, осушенный сорбент используется повторно.

Четвертая стадия. На четвертой стадии проводят очистку осушенного ТМС от изопентана и возможных следов других углеводородов. Для этого емкость 1 (рис. 7) [9] объемом 75 л заполняют осушенной смесью ТМС и изопентана, полученной на третьей стадии. Емкость 1 снабжена рубашкой для подогрева смеси до температуры $50\text{--}60\text{ }^{\circ}\text{C}$ с помощью горячей воды. Пары ТМС и изопентана направляются попеременно в одну из двух адсорбционных колонн 2. Адсорбционные колонны (диаметр 50 мм, высота слоя сорбента 1200 мм) заправляются предварительно подготовленным цеолитом Морденит с размером частиц $200\text{+}500\text{ }\mu\text{m}$. Адсорбционные колонны снабжены электрообогревом, используемым для регенерации сорбента.

Предварительная подготовка цеолита заключается в удалении воды и кислорода путем прогрева

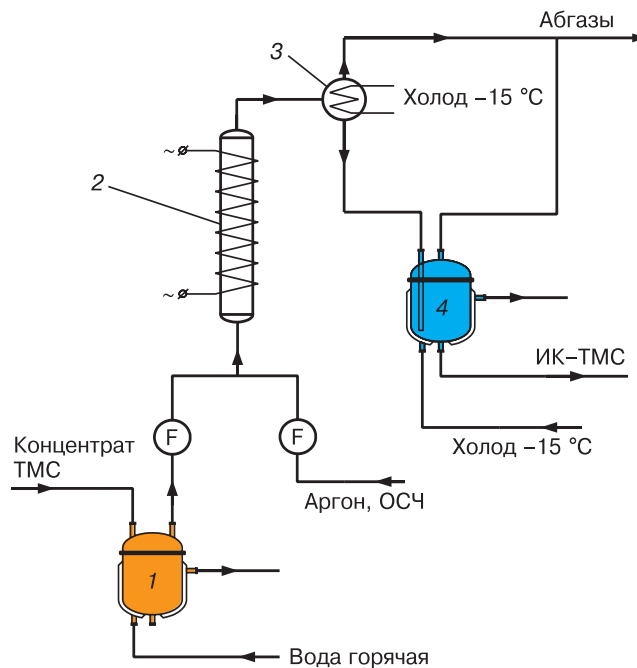


Рис. 7. Четвертая стадия — принципиальная схема установки для очистки ТМС от примесей изопентана:

1 — емкость с рубашкой; 2 — адсорбер с электрообогревом; 3 — холодильник-конденсатор; 4 — сборник высокочистого ТМС; F — регуляторы расхода

Fig. 7. The fourth stage is a schematic diagram of the installation for the purification of TMS from impurities of isopentane: (1) capacity with a shirt, (2) adsorber with electric heating, (3) refrigerator-condenser, (4) collection of high-purity TMS, F — flow regulators

цеолита до $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ при вакуумировании до остаточного давления $1 \cdot 10^{-3}\text{ мм Hg}$ в течение не менее 4 ч.

На стадии адсорбции происходит сорбция изопентана из газовой фазы. Адсорбционная очистка проводится при $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ и давлении 1—1,5 атм. (абс.). Пары ТМС после адсорбционной колонны поступают в холодильник 3, охлаждаемый тосолом до минус $15\text{ }^{\circ}\text{C}$. Конденсат ТМС собирают в приемной емкости 4 и далее используют по назначению. К приемной емкости подключена измерительная ячейка (на рис. 7 не показана), которая по стандартной методике измеряет ВАХ и выход электронов G_{if} . Измерительная ячейка представляет собой плоскопараллельную ионизационную камеру подсоединенную к 4, через переходной разъем-вентиль. Аналогичная измерительная ячейка применяется также на пятой стадии.

После насыщения адсорбционной колонны изопентаном, подачу паров смеси ТМС и изопентана переводят на вторую колонну. Насыщенную изопентаном колонну переводят в режим десорбции. В режиме десорбции колонну нагревают до температуры $250\text{--}300\text{ }^{\circ}\text{C}$ в токе инертного газа (аргон, ОСЧ). Пары, уходящие от колонны, поступают на собственную систему охлаждения и конденсации (на рис. 7 не показана). Уловленный продукт, представляющий собой изопентан с примесями ТМС, направляется на утилизацию. На четвертой стадии,

при непрерывной работе установки с попеременной регенерацией цеолита, удастся получать около 100 л высококачественного ТМС в месяц (20 рабочих дней).

Пятая стадия. Пятая стадия применяется, если после четвертой стадии ТМС проверяемый на тестирующей измерительной ячейке не показывает необходимые результаты по выходу свободных электронов G_{if} . Пятая стадия может применяться, также сразу после первой стадии, если требуется получить быстро конечный продукт в небольших количествах для ионизационных камер небольшого размера. Пятая стадия представляет собой систему тонкой очистки, но по другой упрощенной технологии. По этой технологии все внутренние емкости и трубопроводы установки подвергаются очистке, — сначала дистиллированной, а потом особо чистой водой. Перед началом работы вся установка обезгаживается. Затем производится подготовка колонн с молекулярными ситами следующим образом. Предварительная подготовка колонн заключается в удалении воды и кислорода путем прогрева молекулярного сита до 250 °С при вакуумировании до остаточного давления $1 \cdot 10^{-4}$ мм Нг в течение не менее 4 ч. Затем, переносной объем исходного продукта (после третьей или первой стадии) подключается к установке. Принципиальная схема установки по тонкой очистке, применяемой на пятой стадии очистки показана на рис. 8. В пятой стадии измерительная ячейка совмещена с объемом 4, в котором сверхчистый до степени 24 ppb ТМС может храниться перед наполнением из него физических приборов — ионизационных камер и калориметров.

Позиционно чувствительный калориметр на ТМС — ДЭНД для регистрации слабоионизирующих частиц

На базе пилотной установки по очистке «теплой жидкости ТМС», мощность которой составляет около 4 л за рабочий день очищенного до степени 24 ppb, конечного продукта ТМС, создается высокочувствительный калориметр ДЭНД для регистрации событий со слабыми энерговыделениями. ДЭНД является двухфазным эмиссионным низкофоновым детектором. Аналогичные детекторы описанные в работе [16], в качестве активного вещества использовали благородные газы (жидкий ксенон — LXe), что предполагает создание криогенных сосудов для охлаждения.

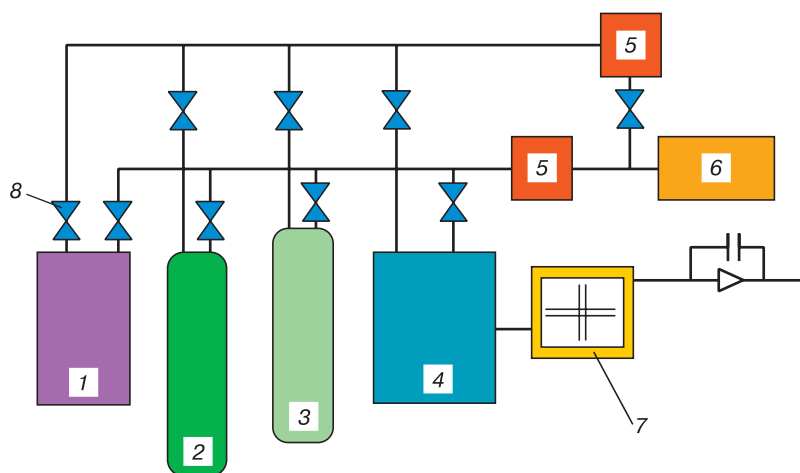


Рис. 8. Принципиальная схема установки по тонкой очистке — 5 стадия: 1 — переносной объем исходного продукта после четвертой стадии; 2 — колонна с молекулярным ситом 1,0 нм; 3 — колонна с молекулярным ситом 0,4 нм; 4 — объем для приема конечного сверхчистого до степени 24 ppb ТМС для хранения; 5 — азотная ловушка; 6 — вакуумный турбомолекулярный насос; 7 — измерительная ячейка; 8 — вентили

Fig. 8. Schematic diagram of the installation for fine cleaning — stage 5: (1) portable volume of the initial product after the fourth stage, (2) column with a molecular sieve of 1.0 nm, (3) column with a molecular sieve of 0.4 nm, (4) volume for receiving the final ultrapure to a degree of 24 ppb TMS for storage, (5) nitrogen trap, (6) vacuum turbomolecular pump, (7) measuring cell, (8) valves

Основная идея заложенная в создание ДЭНД на ТМС, создание детектора с повышенной чувствительностью к редким и слабоионизирующим частицам, так называемый детектор «без стенок». Принцип работы детектора «без стенок»: исследуемое излучение взаимодействует с жидким ТМС, в результате возникает сигнал № 1 в виде сцинтилляции ТМС. Этот сигнал запускает систему съема информации с детектора, вследствие приложенного электрического поля электроны ионизации дрейфуют по глубине вверх к аноду и выходят из жидкого ТМС в газовую фазу. При этом генерируют второй усиленный сигнал № 2 — стример электронов ионизации. Усиление второго сигнала происходит электролюминесценцией ТМС в виде газа. Матрица фотоумножителей расположенная в газовой среде над поверхностью жидкой фазы регистрирует двухкоординатное распределение точки первичного взаимодействия сигнала № 1. Вычисляя время дрейфа электронов между сигналом № 1 и сигналом № 2, определяем глубину взаимодействия (третья координата).

Схема конструкции калориметра ДЭНД на ТМС приведена на рис. 9. От каждого «светопикселя» свет через WLS-волокно, через систему световой кодировки описанной в работе [17] выходит из газовой среды калориметра на верхнюю крышку калориметра к соответствующему ФЭУ-86. Матрица «светопикселей» со световой кодировкой выполняет измерение x и y координаты. Световые сигналы выводятся из зоны (жидкая фаза — газовая фаза), из матрицы 16×16 «светопикселей», на внешнюю

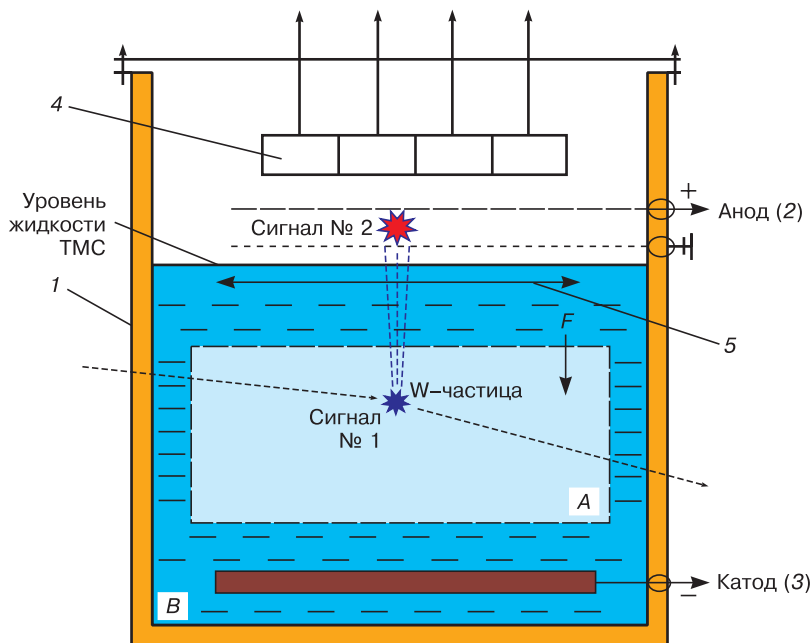


Рис. 9. Схема конструкции калориметра «без стенок» ДЭНД на ТМС: 1 — герметичная камера из нержавеющей стали с очищенной внутренней поверхностью; 2 — анод; 3 — катод; 4 — матрица «свето-пикселей» оптически отделенных друг от друга майларом; 5 — электронный затвор; А — чувствительный объем, из которого отбирают полезные события; В — защитный слой, в котором происходят события связанные с излучением от окружающих материалов

Fig. 9. The design diagram of the calorimeter «without walls» DAND on TMS: (1) sealed stainless steel chamber with a cleaned inner surface, (2) anode, (3) cathode, (4) a matrix of «light pixels» optically separated from each other by mylar; (5) electronic shutter, (A) sensitive volume from which useful events are selected, (B) protective layer in which events associated with radiation from surrounding materials occur

крышку калориметра, где размещены модули ФЭУ–86 с усилителями сигнала [18, 19]. Благодаря применению световой кодировки [17], удается в два раза уменьшить количество ФЭУ–86. А благодаря применению разработанного модуля ФЭУ–86 с усилением сигнала [18, 19], удается вывести сигналы на большое расстояние около 500 м от детектора в шахте до домика экспериментатора на поверхности земли. Калориметр представляет собой цилиндр с герметичной вакуумной изоляцией.

Калориметр ДЭНД в эксперименте по поиску слабозаимодействующих частиц располагается под землей на глубине около 500 м и регистрирует низкофоновые события. Возможно, так же применение детектора ДЭНД для регистрации нейтрино низких энергий — реакторных антинейтрино. Это процесс когерентного рассеяния реакторных антинейтрино на атомных ядрах [3, 4].

Калориметр ДЭНД представляет собой «бесстеночный эмиссионный детектор» заполненный ТМС (активного ТМС около 100 л). Идея аналогичного детектора только на сжиженном газе — жидком ксенеоне, описана в работе [20]. Работает «бесстеночный эмиссионный детектор» ДЭНД следующим образом: регистрируемая частица взаимодействует с ТМС и ионизирует его (с образованием положительных ионов и быстрой компоненты свободных носителей за-

ряда — электронов). Электроны дрейфуют в ТМС к ее поверхности под действием внешнего электрического поля создаваемого между сетчатым анодом 2 и катодом 3. Под действием высокого электрического поля электроны эмитируют из жидкой фазы в газовую фазу, где производят электролюминесценцию в зазоре между поверхностью жидкости и анодом. Сцинтилляционный сигнал (№ 1) и электролюминесцентный сигнал (№ 2) регистрируют с помощью матрицы «светопикселей» 4, находящейся в газе. Для разгрузки поверхности раздела фаз жидкость—газ от электронов ионизации используют электронный затвор 5.

Внутри калориметра между анодом и катодом приложено напряжение создающее электрическое поле F . После выхода части электронов в газовую фазу происходит вспышка (стример) усиление свечения — появляется второй световой многократно усиленный сигнал (№ 2, см. рис. 9) пропорционально количеству электронов вырвавшихся в газ. Матрица «светопикселей» годоскопа определяет координату x и y . Второй сигнал приходит с задержкой равной времени дрейфа

электронов в ТМС. Зная скорость электронов в ТМС (их подвижность μ (см. таблицу), можно определить глубину взаимодействия z . Определив координаты (x, y, z) , можно отбирать нужные события.

На таком детекторе можно проводить эксперименты аналогичные описанным в работе [21] по поиску W -частиц и малоэнергетичных нейтрино на реакторах. Надо иметь ввиду (при работе на глубине в скальной породе), необходимо подавлять гамма-фон от естественной радиоактивности. При каждой определенной массе детектора 100, 200 и 300 л наблюдается разный эффект в подавлении гамма-фона. Отсутствие криогенных элементов в конструкции ДЭНД (криогенные рубашки, системы наполнения и производство жидких благородных газов) позволило существенно сократить габариты и стоимость установки ДЭНД.

Заключение

В статье приведены принципы работы одного из вариантов полупромышленной установки по очистке ТМС созданной в ФИАН. На основе отработки этих принципов создана пилотная установка для наработки образцов высокочистого ТМС, позволяющая получать до 4 л очищенного до степени 24 ppb ТМС за 8 ч работы.

ТМС полученный на данной установке используется для наполнения координатно-чувствительных ионизационных камер на ТМС, позволяющих измерять ширину и высоту дозного профиля пучка ионизирующего излучения. Камеры на ТМС могут применяться для измерения дозного профиля пика Брэгга в водном фантоме для калибровки ускорителя перед сеансами протонной терапии.

Очищенный ТМС возможно использовать для получения нанопродуктов, например пленок в тлеющем разряде, или аморфного SiC в плазме и. т.д.

Возможно так же наполнение от этой пилотной установки больших ДЭНД для проведения «неуско- рительных экспериментов» по поиску W-частиц и экспериментов с малоэнергетичными нейтрино на реакторах по наблюдению когерентного рассеяния реакторных нейтрино.

Библиографический список

- Benítez E. M., Casado F. J., García-Pareja S., Martín-Viera J. A., Moreno C., Parra V. Evaluation of a liquid ionization chamber for relative dosimetry in small and large fields of radiotherapy photon beams // Radiation Measurements. 2013. V. 58. P. 79—86. DOI: 10.1016/j.radmeas.2013.08.009
- Hummel A., Schmidt W. F. Ionization of dielectric liquids by high-energy radiation studied by means of electrical conductivity methods // Radiation Research Reviews. 1974. V. 5. P. 199—300.
- Freedman D. Z. Coherent effects of a weak neutral current // Phys. Rev. D. 1974. V. 9, Iss. 5. P. 1389. DOI: 10.1103/PhysRevD.9.1389
- Hagmann C., Bernstein A. Two-phase emission detector for measuring coherent neutrino-nucleus scattering // IEEE Transactions on Nuclear Science. 2004. V. 51, Iss. 5. P. 2151—2155. DOI: 10.1109/TNS.2004.836061
- Schmidt W. F., Allen A. O. Yield of free ions in irradiated liquids; determination by a clearing field // J. Phys. Chem. 1968. V. 72, Iss. 11. P. 3730—3736. DOI: 10.1021/j100857a005
- Eberle K., Engler J., Hartmann G., Hofmann R., Hörandel J. R. First tests of a liquid ionization chamber to monitor intensity modulated radiation beams // Phys. Med. Biol. 2003. V. 48, N 21. P. 3555—3564. DOI: 10.1088/0031-9155/48/21/007
- Engler J., Keim H., Wild B. Performance test of a TMS calorimeter // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 1986. V. 252, Iss. 1. P. 29—34. DOI: 10.1016/0168-9002(86)90932-0
- Матвеева О. В., Сиксин В. В. Полупромышленная установка для получения тетраметилсилана (ТМС) — рабочего вещества в адронной калориметрии: препринт ИФВЭ 90—17. Протвино, 1990.
- Сиксин В. В., Ендовин Ю. П. Создание микродозиметров для лучевой терапии на основе сверхчистого тетраметилсилана и проверка его электропроводности // Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева РАН. 2018. Т. 45, № 6. С. 42—49.
- Сиксин В. В. Дозовые характеристики ионизационной камеры на основе «теплой» жидкости ТМС // Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева РАН. 2018. № 4. С. 26—30.
- Dodelet J.-P., Shinsaka K., Freeman G. R. Molecular structure effects on electron ranges and mobilities in liquid hydrocarbons: chain branching and olefin conjugation: mobility model // Can. Chem. J. 1976. V. 54, Iss. 5. P. 744—759. DOI: 10.1139/v76-108
- Munoz R. C., Cumming J. B., Holroyd R. A. Ionization of tetramethylsilane by alpha particles // Chem. Phys. Lett. 1985. V. 115, Iss. 6. P. 477—480. DOI: 10.1016/0009-2614(85)85174-5
- Сиксин В. В. Установка по очистке тетраметилсилана (ТМС) от электроотрицательных примесей и система контроля за электропроводностью ТМС после очистки: препринт ИФВЭ ОНФ 90—112. Протвино, 1990.
- Воробьев А. П., Матвеева О. В., Сиксин В. В. Автоматизированная ректификационная установка и очистка жидкостей методом разделения»: Препринт ИФВЭ ОНФ, 88—90. Серпухов, 1988.
- Перерва О. В., Ендовин Ю. П., Шкодик В.Ф. Технология получения кремнийорганических мономеров : учебное пособие. Казань: Изд-во КНИТУ, 2017. 168 с.
- Bolozdynya A. Emission Detectors. Word Scientific Publishing Co., 2010. 224 p. DOI: 10.1142/6984
- Бугорский А. П., Борисов А. А., Деревщиков А. А., Матуленко Ю. А., Мещанин А. П., Нурушев С. Б., Соловьянов В. С., Соловьев Л. Ф., Смирнов Е. В., Сиксин В. В., Шалашов И. М. Сцинтилляционный годоскоп световой кодировкой // Приборы и техника эксперимента. 1973. № 2. С. 89—91.
- Деревщиков А. А., Мещанин А. П., Нурушев С. Б., Сиксин В. В., Смирнов Е. В. Сцинтилляционные счетчики на базе малогабаритных фотоумножителей ФЭУ-60 // Приборы и техника эксперимента. 1970. № 6. С. 39—40.
- Бугорский А. П., Деревщиков А. А., Матуленко Ю. А., Мещанин А. П., Нурушев С. Б., Селезнев В. С., Сиксин В. В., Смирнов Е. В., Соловьев Л. Ф., Соловьянов В. Л., Ходырев Ю. С. Применение годоскопа для анализа частиц по импульсам в магнитооптических каналах // Приборы и техника эксперимента. 1973. № 5. С. 40—43.
- Bolozdynya A. I., Egorov V. V., Miroshnichenko V. P., Rodionov B. U. Emission detectors // IEEE Trans Nucl. Sci. 1995. V. 42. P. 565—569.
- McKinsey D. N., Akerib D., Bedikian S., Bernsteinc A., Bolozdynyad A., Bradleyb A., Chapmana J., Clarkb K., Classenf T., Curionik A. The LUX dark matter search // J. Phys.: Conf. Ser. 2010. V. 203, N 1. P. 012026 (3 pp.). DOI: 10.1088/1742-6596/203/1/012026

Автор благодарит А. И. Львова за консультации по проведению работки электронного тракта ДЭНД калориметра на ТМС.

Автор также выражает признательность сотруднику АО «ГНЦ РФ Государственный ордена Трудового Красного знамени Научно-исследовательский институт химии и технологии элементоорганических соединений («ГНИИХТЭОС») Ю. П. Ендовину за предоставление сведений об установке получения высокочистого тетраметилсилана (ТМС).

Статья поступила в редакцию 2 ноября 2019 г.

Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronics Engineering. 2019, vol. 22, no. 2, pp. 118—127.
DOI: 10.17073/1609-3577-2019-2-118-127

Pilot installation for the purification of the «warm liquid» of tetramethylsilane and conducting «non-accelerating experiments»

V. V. Siksin^{1,§}

¹ *Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences,
53 Leninsky Prospekt, Moscow 119991, Russia*

Abstract. It is urgent to use a «warm liquid» tetramethylsilane (TMS) in large massive calorimeters (with a volume of several hundred liters) to search for processes with very small energy releases. This direction in modern nuclear physics is referred to as «non-accelerated» experiments with low-background detectors. Such experiments are possible using a fully developed technology for producing large quantities of «warm liquid» TMS. Using these experiments, you can test the standard model of electroweak particle interactions and search for weakly interacting wimps (W-particles). In FIAN, with the advice of State Research Institute of Chemistry and Technology of Organoelement Compounds, a pilot plant has been developed for cleaning TMS to the degree of 24 ppb, at which it is possible to fill TMS calorimeters and microdosimeters. Cleaning consists of five stages. At the first stage, the TMS concentrate, the so-called «light epaulette», is obtained from the factory. We consider the creation of a new class of detectors with a record sensitivity to rare and weakly ionizing particles, the so-called «wallless» detectors, based on a large amount of highly purified «warm liquid» TMS. The proposed two-phase emission low-background detector (TELD), which simultaneously contains two TMS phases — liquid and gas, allows conducting experiments to observe coherent scattering of reactor neutrinos and search for W-particles.

Keywords: photomultiplier with signal amplification, electronegative impurities, «warm liquids», free electron yield, tetramethylsilane (TMS), liquid ionization chambers, «non-accelerating experiments»

References

1. Benitez E. M., Casado F. J., Garcia-Pareja S., Martin-Viera J. A., Moreno C., Parra V. Evaluation of a liquid ionization chamber for relative dosimetry in small and large fields of radiotherapy photon beams. *Radiation Measurements*, 2013, vol. 58, pp. 79—86. DOI: 10.1016/j.radmeas.2013.08.009
2. Hummel A., Schmidt W. F. Ionization of dielectric liquids by high-energy radiation studied by means of electrical conductivity methods. *Rad. Res. Rev.*, 1974, vol. 5, pp. 199—300.
3. Freedman D. Z. Coherent effects of a weak neutral current. *Phys. Rev. D*, 1974, vol. 9, no. 5, p. 1389. DOI: 10.1103/PhysRevD.9.1389
4. Hagmann C., Bernstein A. Two-phase emission detector for measuring coherent neutrino-nucleus scattering. *IEEE Trans Nucl. Sci.*, 2004, vol. 51, no. 5, pp. 2151—2155. DOI: 10.1109/TNS.2004.836061
5. Schmidt W. F., Allen A. O. Yield of free ions in irradiated liquids; determination by a clearing field. *J. Phys. Chem.*, 1968, vol. 72, no. 11, pp. 3730—3736. DOI: 10.1021/j100857a005
6. Eberle K., Engler J., Hartmann G., Hofmann R., Hörandel J. R. First tests of a liquid ionization chamber to monitor intensity modulated radiation beams. *Phys. Med. Biol.*, 2003, vol. 48, no. 21, pp. 3555—3564. DOI: 10.1088/0031-9155/48/21/007
7. Engler J., Keim H., Wild B. Performance test of a TMS calorimeter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1986, vol. 252, no. 1, pp. 29—34. DOI: 10.1016/0168-9002(86)90932-0
8. Matveeva O. V., Siksin V. V. Preprint IFVE-90-17. Protvino: Institute of High-Energy Physics, 1990.
9. Siksin V. V., Endovin Yu. P. Development of microdosimeters for beam therapy based on superpure tetramethylsilane and testing of its conductivity. *Bull. Lebedev Phys. Inst.*, 2018, V. 45. 190—194. DOI: 10.3103/S1068335618060064
10. Siksin V. V. Dose characteristics of the ionization chamber based on TMS «warm liquid». *Bull. Lebedev Phys. Inst.*, 2018, vol. 45, no. 4, pp. 112—114. DOI: 10.3103/S1068335618040048
11. Dodelet J.-P., Shinsaka K., Freeman G. R. Molecular structure effects on electron ranges and mobilities in liquid hydrocarbons:

chain branching and olefin conjugation: mobility model. *Can. Chem. J.*, 1976, vol. 54, no. 5, pp. 744—759. DOI: 10.1139/v76-108

12. Munoz R. C., Cumming J. B., Holroyd R. A. Ionization of tetramethylsilane by alpha particles. *Chem. Phys. Lett.*, 1985, vol. 115, no. 6, pp. 477—480. DOI: 10.1016/0009-2614(85)85174-5

13. Siksin V. V. Installation for the purification of tetramethylsilane (TMS) from electronegative impurities and the TMS conductivity monitoring system after purification: preprint ONF 90-112. Protvino: Institute of High-Energy Physics, 1990.

14. Vorob'ev A. P., Matveeva O. V., Siksin V. V. Automated distillation unit and purification of liquids by separation method. Preprint ONF 88-90. Serpukhov: Institute of High-Energy Physics, 1988.

15. Pererva O. V., Endovin Yu. P., Shkodich V. F. Technology for the production of organosilicon monomers: a training manual. Kazan: KNITU Publishing House, 2017. 168 p.

16. Bolozdynya A. Emission Detectors. Word Scientific Publishing Co., 2010. 224 p. DOI: 10.1142/6984

17. Bugorskii A. P., Borisov A. A., Derevshchikov A. A., Matulenko Yu. A., Meshchanin A. P., Nurushev S. B., Solov'yanov V. S., Solov'ev L. F., Smirnov E. V., Siksin V. V., Shalashov I. M. Scintillation hodoscope with light coding. *Pribory i tekhnika eksperimenta = Instruments and Experimental Techniques*, 1973, no. 2, pp. 89—91.

18. Derevshchikov A. A., Meshchanin A. P., Nurushev S. B., Siksin V. V., Smirnov E. V. Scintillation counters based on small-sized photomultipliers FEU-60. *Pribory i tekhnika eksperimenta = Instruments and Experimental Techniques*, 1970, no. 6, pp. 39—40.

19. Bugorskii A. P., Derevshchikov A. A., Matulenko Yu. A., Meshchanin A. P., Nurushev S. B., Seleznev V. S., Siksin V. V., Smirnov E. V., Solov'ev L. F., Solov'yanov V. L., Khodyrev Yu. S. Application of a hodoscope for analysis of particles by momentum in magneto-optical channels. *Pribory i tekhnika eksperimenta = Instruments and Experimental Techniques*, 1973, no. 5, pp. 40—43.

20. Bolozdynya A. I., Egorov V. V., Miroshnichenko V. P., Rodionov B. U. Emission detectors. *IEEE Trans Nucl. Sci.*, 1995, vol. 42, pp. 565—569.

21. McKinsey D. N., Akerib D., Bedikian S., Bernstein A., Bolozdynyad A., Bradleyb A., Chapmana J., Clarkb K., Clansent T., Curionik A. The LUX dark matter search. *J. Phys.: Conf. Ser.*, 2010, vol. 203, no. 1, p. 012026 (3 pp.). DOI: 10.1088/1742-6596/203/1/012026

Information about author:

Viktor V. Siksin^{1,§}: Cand. Sci. (Phys.-Math.), Senior Researcher (antktech@yandex.ru)

§ Corresponding author

Received November 2, 2019