

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(21) **202092221** (13) **A1**

**(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОЙ ЗАЯВКЕ**

**(43)** Дата публикации заявки  
**2021.02.04**

**(51)** Int. Cl. **G01N 23/222 (2006.01)**

**(22)** Дата подачи заявки  
**2019.03.22**

**(54) УСТРОЙСТВО И СПОСОБ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА  
МАТЕРИАЛОВ МЕТОДОМ МЕЧЕННЫХ НЕЙТРОНОВ**

**(31)** 2018110356

**(32)** 2018.03.23

**(33)** RU

**(86)** PCT/RU2019/050030

**(87)** WO 2019/182482 2019.09.26

**(71)** Заявитель:

**ОБЩЕСТВО С ОГРАНИЧЕННОЙ  
ОТВЕТСТВЕННОСТЬЮ  
"ДИАМАНТ" (RU)**

**(72)** Изобретатель:

**Сапожников Михаил Григорьевич,  
Товстенко Юрий Геннадьевич,  
Разинков Егор Александрович, Рогов  
Юрий Николаевич, Алексахин Вадим  
Юрьевич (RU)**

**(74)** Представитель:

**Котлов Д.В., Пустовалова М.Л.,  
Яремчук А.А., Равлина Е.А. (RU)**

**(57)** Предложено устройство для определения элементного состава образцов твердых или жидких материалов, содержащее нейтронный блок, выполненный с приемным сосудом для размещения в нем исследуемого образца материала и снабженный: (a) нейтронным генератором, предназначенным для генерации потока меченых нейтронов и альфа-частиц, при этом в нейтронный генератор встроен альфа-детектор; (b) детекторами гамма-излучения, предназначенными для регистрации спектров характеристического гамма-излучения, возникающего при облучении образца материала потоком меченых нейтронов; (c) системой анализа данных, предназначенной для сбора и анализа данных, получаемых от альфа-детектора нейтронного генератора и детекторов гамма-излучения; и (d) биологической защитой нейтронного блока, обеспечивающей безопасную работу обслуживающего персонала, при этом система анализа данных выполнена с возможностью определения элементного состава образца материала с использованием только гамма-квантов, попадающих в выбранный временной интервал временного спектра альфа-гамма совпадений и соответствующих образцу материала, и с использованием другой части временного спектра альфа-гамма совпадений для энергетической калибровки полученных спектров гамма-излучения при каждом измерении каждого образца. Также предложен соответствующий способ, осуществляемый в предложенном устройстве.

**A1**

**202092221**

**202092221**

**A1**

# **Устройство и способ определения элементного состава материалов методом меченых нейтронов**

## **Область техники, к которой относится изобретение**

[0001] Изобретение относится к области исследования или анализа материалов радиационными методами с измерением вторичной эмиссии характеристического ядерного гамма-излучения, возникающего под действием быстрых меченых нейтронов, для определения элементного состава материалов.

## **Предпосылки изобретения**

[0002] Детекторы на основе метода меченых нейтронов (ММН) нашли применение для обнаружения взрывчатых веществ, скрытых в различных объектах досмотра. Однако по своей физической сути с помощью таких детекторов взрывчатых веществ осуществляется определение лишь относительных концентраций углерода, кислорода и азота.

[0003] Известны также способ и устройство для обнаружения алмазов в кимберлите с помощью метода меченых нейтронов (см. патент № RU 2521723 C1, опубликованный 10.07.2014 г.). Однако описанные в этом патенте способ и устройство позволяют определять только наличие в облучаемом образце превышения локальной концентрации углерода над его средним уровнем и не позволяют определять концентрацию углерода в образце.

## **Раскрытие сущности изобретения**

[0004] Технической задачей, на решение которой направлено предлагаемое изобретение, является определение концентраций различных химических элементов в образцах разных материалов и определение на основании результатов такого определения концентраций различных химических соединений (например, оксидов, минералов).

[0005] Еще одной технической задачей, на решение которой направлено предлагаемое изобретение, является обеспечение определения концентрации элементов в образцах большой массы и большой крупности (до 50 см в поперечнике), например, в образцах горной породы, взятых непосредственно из карьера, или из транспортных емкостей, или с ленты транспортера, причем без какой-либо пробоподготовки.

[0006] Поставленные задачи решаются следующими средствами, изложенными в формуле изобретения.

[0007] Пункт 1: Устройство для определения элементного состава образцов твердых или жидких материалов, содержащее нейтронный блок, выполненный с приемным сосудом для

размещения в нем исследуемого образца материала и снабжённый:

- (а) нейтронным генератором, предназначенным для генерации потока меченых нейтронов и альфа-частиц, при этом в нейтронный генератор встроен альфа-детектор;
- (b) детекторами гамма-излучения, предназначенными для регистрации спектров характеристического гамма-излучения, возникающего при облучении образца материала потоком меченых нейтронов; и
- (с) системой анализа данных, предназначенной для сбора и анализа данных, получаемых от альфа-детектора нейтронного генератора и детекторов гамма-излучения;
- (d) биологической защитой нейтронного блока, обеспечивающей безопасную работу обслуживающего персонала,

при этом система анализа данных выполнена с возможностью определения элементного состава образца материала с использованием только гамма-квантов, попадающих в выбранный временной интервал временного спектра альфа-гамма совпадений и соответствующих образцу материала, и с использованием другой части временного спектра альфа-гамма совпадений для энергетической калибровки полученных спектров гамма-излучения при каждом измерении каждого образца.

[0008] Пункт 2. Устройство по пункту 1, в котором нейтронный генератор в нейтронном блоке расположен под исследуемым образцом материала, а детекторы гамма-излучения расположены в нейтронном блоке над исследуемым образцом материала.

[0009] Пункт 3. Устройство по пункту 1, в котором нейтронный генератор в нейтронном блоке расположен над исследуемым образцом материала, а детекторы гамма-излучения расположены в нейтронном блоке под исследуемым образцом материала.

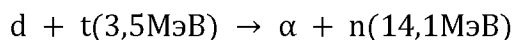
[0010] Пункт 4. Устройство по пункту 1, в котором нейтронный генератор расположен с первой боковой стороны от исследуемого образца материала, а детекторы гамма-излучения расположены со второй, противоположной первой боковой стороны от исследуемого образца материала.

[0011] Пункт 5. Устройство по пункту 1, в котором поток меченых нейтронов в нейтронном блоке имеет форму усеченной пирамиды, и, соответственно, приемный сосуд для размещения исследуемого образца материала тоже имеет форму усеченной пирамиды.

[0012] Пункт 6. Устройство по пункту 1, которое дополнительно содержит систему подачи образца материала в приемный сосуд, например, конвейер для поочередной подачи исследуемых образцов материала.

[0013] Пункт 7. Устройство по пункту 1, в котором нейтронный блок предназначен для

генерации потока меченых нейтронов и альфа-частиц при ускорении дейтронов и взаимодействии их с тритиевой мишенью за счет осуществления следующей бинарной реакции: [Математическая формула 1]



где  $d$  – дейтрон,  $t$  – тритон,  $\alpha$  – альфа-частица,  $n$  – нейтрон.

[0014] Пункт 8. Устройство по пункту 1, которое предназначено для определения элементного состава образцов годных пород, руд или рудных материалов.

[0015] Пункт 9. Устройство по пункту 1, в котором выбранный временной интервал составляет порядка 1-100 наносекунд.

[0016] Пункт 10. Способ определения элементного состава образцов твердых или жидких материалов, осуществляемый с использованием устройства по любому из пунктов 1-9, включающий следующие этапы:

(а) помещение исследуемого образца материала в приемный сосуд;  
 (b) облучение образца материала потоком быстрых меченых нейтронов;  
 (с) регистрация спектров характеристического гамма-излучения, возникающего при облучении упомянутого образца потоком быстрых меченых нейтронов на этапе (d); (е) анализ спектров характеристического гамма-излучения, зарегистрированных от упомянутого образца на этапе (с), с определением элементного состава образца, при этом для определения элементного состава образца используют только гамма-кванты, попадающие в выбранный временной интервал временного спектра альфа-гамма совпадений и соответствующие образцу материала, а другую часть временного спектра альфа-гамма совпадений используют для энергетической калибровки полученных спектров гамма-излучения при каждом измерении каждого образца.

[0017] Пункт 11. Способ по пункту 10, дополнительно включающий этап предварительной настройки и градуировки устройства перед этапом (а).

### **Краткое описание чертежей**

[0018] Предлагаемое изобретение поясняется далее подробнее на примере неограничительных чертежей, на которых показано следующее.

[0019] [Фиг. 1] – схематичное изображение общего принципа работы устройства по изобретению.

[0020] [Фиг. 2] – общий вид в перспективе одного конкретного варианта воплощения устройства по изобретению, расположенного в транспортном контейнере.

[0021] [Фиг. 3] – общий вид в перспективе с местным разрезом нейтронного блока

устройства по изобретению.

[0022] [Фиг. 4] – общий вид одного конкретного варианта воплощения устройства по изобретению с конвейером для подачи образцов руды.

[0023] [Фиг. 5] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения углерода.

[0024] [Фиг. 6] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения жидкой воды.

[0025] [Фиг. 7] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения кремния.

[0026] [Фиг. 8] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения магния.

[0027] [Фиг. 9] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения оксида железа.

[0028] [Фиг. 10] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения титана.

[0029] [Фиг. 11] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения алюминия.

[0030] [Фиг. 12] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения оксида кальция.

[0031] [Фиг. 13] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения никеля.

[0032] [Фиг. 14] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения марганца.

[0033] [Фиг. 15] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения меди.

[0034] [Фиг. 16] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения оксида циркония.

[0035] [Фиг. 17] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения оксида хрома.

[0036] [Фиг. 18] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения серы.

[0037] [Фиг. 19] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения висмута.

[0038] [Фиг. 20] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения олова.

[0039] [Фиг. 21] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения цинка.

[0040] [Фиг. 22] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения тетрафторметана.

[0041] [Фиг. 23] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения оксида фосфора.

[0042] [Фиг. 24] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения свинца.

[0043] [Фиг. 25] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения тетрахлорида углерода.

[0044] [Фиг. 26] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения карбоната

калия.

[0045] [Фиг. 27] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения карбоната натрия.

[0046] [Фиг. 28] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения меламина.

[0047] [Фиг. 29] – результат фитирования энергетического спектра характеристического гамма-излучения алюминия линиями алюминия и функцией фона.

[0048] [Фиг. 30] – результат фитирования энергетического спектра характеристического гамма-излучения алюминия линиями алюминия плюс континуум.

[0049] [Фиг. 31] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения образца кальцитового мрамора.

[0050] [Фиг. 32] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения образца доломитового мрамора.

[0051] [Фиг. 33] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения образца кальцифира.

[0052] [Фиг. 34] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения образца гнейса.

[0053] [Фиг. 35] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения образца амфиболита.

[0054] [Фиг. 36] – энергетический спектр характеристического гамма-излучения образца апатит-нефелиновой руды.

[0055] [Фиг. 37] – конкретные примеры временных спектров альфа-гамма совпадений.

[0056] [Фиг. 38] – график корреляционной связи при определении пентаоксида фосфора в апатит-нефелиновой руде.

[0057] [Фиг. 39] – пример градуировочной зависимости при определении пентаоксида фосфора в апатит-нефелиновой руде.

[0058] [Фиг. 40] – энергетический спектр гамма-квантов от облучения образца оксида алюминия.

[0059] [Фиг. 41] – энергетический спектр гамма-квантов от облучения образца карбоната кальция.

[0060] [Фиг. 42] – градуировочная зависимость, показывающая корреляцию между измеренной атомарной концентрацией кремния и массовой долей  $\text{SiO}_2$ , определенной химическим анализом, т.е. связь значений аналитического сигнала устройства по изобретению для проб крупностью -100 мм и -3 мм, причем на оси X отложены результаты

аналитического сигнала для проб -100 мм, а по оси Y – для тех же проб, раздробленных до крупности -3 мм.

[0061] [Фиг. 43] – градуировочная зависимость, показывающая корреляцию между измеренной атомарной концентрацией магния и массовой долей MgO, определенной химическим анализом, где красная линия – аппроксимирующая прямая вида  $Y=a+b \cdot X$ , а черная линия – диагональ.

## **Подробное описание вариантов воплощения изобретения**

[0062] Предлагаемое изобретение направлено, в частности, на достижение хотя бы одного из следующих технических результатов:

- определение элементного состава образца материала без какой-либо пробоподготовки позволяет значительно ускорить и упростить анализ на химические элементы, а также значительно снизить затраты на проведение этого анализа;
- проведение определения элементного состава образца материала с использованием только гамма-квантов, попадающих в выбранный временной интервал временного спектра альфа-гамма совпадений и соответствующих самому образцу материала, при использовании другой части временного спектра альфа-гамма совпадений для энергетической калибровки полученных спектров гамма-излучения при каждом измерении каждого образца, позволяет существенно улучшить точность и воспроизводимость результатов измерений;
- определение элементного состава образца материала без какой-либо пробоподготовки позволяет избежать загрязнения образца посторонними примесями, к примеру, в ходе операций измельчения, дробления, растворения, диспергирования и т.п., используемых в других известных методах;
- высокая проникающая способность быстрых нейтронов позволяет проанализировать элементный состав всего объема материала в образце, причем либо усредненный общий элементный состав, либо распределение элементного состава по образцу;
- определение концентраций различных химических элементов в образцах большой массы и крупности, например, образцах горной породы, руды или рудного материала, обеспечивает возможность входного контроля за качеством поступающей на обогатительные фабрики материала, что необходимо для правильного выбора режима обогащения;
- определение концентраций различных химических элементов в образцах большой массы и крупности, которое может быть проведено в полевых условиях, например, на образцах горной породы, руды или рудного материала, обеспечивает возможность оперативного

контроля за качеством руды, поступающей, например, из карьеров или горных выработок, или из геологических партий.

[0063] При этом, в зависимости от обстоятельств, любой из этих технических результатов может рассматриваться как главный, а остальные – как вспомогательные. Вместе с тем, в более предпочтительных вариантах воплощения изобретения все эти результаты достигаются совместно друг с другом.

[0064] С целью достижения по меньшей мере одного из этих технических результатов в устройстве или способе по изобретению, предназначенных для определения элементного состава самых различных твердых и/или жидких материалов, а в частности – концентраций различных химических элементов в горных породах, рудах или рудных материалах, облучают образец материала потоком быстрых меченых нейтронов, в результате такого облучения получают спектр гамма-излучения от реакций неупругого рассеяния нейтронов на ядрах облучаемого образца, и, исходя из полученного спектра, определяют концентрации различных химических элементов.

[0065] Как показано на общей схеме устройства по изобретению, приведенной на фиг. 1, в качестве источника быстрых меченых нейтронов используется следующая бинарная ядерная реакция: [Математическая формула 2]  $d + t \rightarrow \alpha + n$

где d – дейтрон (т.е. ядро изотопа водорода дейтерия,  $^2\text{H}$ ), t – тритон (т.е. ядро изотопа водорода трития,  $^3\text{H}$ ),  $\alpha$  – альфа-частица (т.е. ядро атома гелия,  $^4\text{He}$ ), а n – нейтрон, причем энергия дейтронов, падающих на тритиевую мишень, составляет порядка 60-100 кэВ, а значения энергий согенерируемых альфа-частицы и быстрого нейтрона составляют около 3,5 МэВ и около 14,1 МэВ соответственно.

[0066] Таким образом, в качестве источника быстрых меченых нейтронов в устройстве по изобретению используется нейтронный генератор, в котором протекает вышеуказанная бинарная ядерная реакция (1).

[0067] Нейтронный генератор служит в качестве источника быстрых меченых нейтронов в нейтронном блоке, который обязательно содержит: (а) нейтронный генератор и (b) детекторы гамма-излучения. Нейтронный генератор снабжен детектором альфа-частиц, который далее для краткости называется просто «альфа-детектором» и который может быть любого типа при условии, что он способен детектировать альфа-частицы. Альфа-детектор может быть подразделен на множество элементов (пикселей) и поэтому далее иногда называется «многоэлементным», при этом такое множество элементов (пикселей) означает «два или более», и их число может быть любым целым числом больше 2. Альфа-детектор



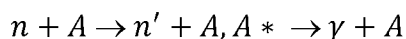
размещен и выполнен с возможностью работы внутри нейтронного генератора и поэтому называется также «встроенным». К примеру, альфа-детектор может быть кремниевым или же выполненным на основе другого полупроводникового материала. Например, нейтронный генератор может быть оборудован встроенным альфа-детектором с 9-64 пикселями. Нейтронный генератор может быть выполнен портативным. В частности, в одном конкретном варианте воплощения нейтронный генератор может быть нейтронным генератором модели ИНГ-27, выпускаемым ФГУП ВНИИА им. Н.Л.Духова (Москва).

[0068] Таким образом, с помощью нейтронного генератора образец материала облучают потоком быстрых нейтронов с энергией примерно 14,1 МэВ и с интенсивностью, например, от  $1 \times 10^7$  до  $4 \times 10^8$  нейтронов в секунду (н/с), предпочтительнее от  $1 \times 10^8$  до  $2 \times 10^8$  н/с. В результате неупругого рассеяния быстрых нейтронов на ядрах атомов, входящих в состав облучаемого образца, возникает характеристическое (т.е. характерное для каждого конкретного вида химического элемента) гамма-излучение с энергиями в диапазоне порядка 0,5-10 МэВ. Это характеристическое гамма-излучение регистрируют с помощью детекторов гамма-излучения, также входящих в состав нейтронного блока. Предпочтительно, детекторы гамма-излучения могут быть выполнены на основе кристаллов германата висмута (BGO) или ортосиликата иттрия-лютеция (LYSO), однако настоящее изобретение не ограничено конкретным типом и/или сцинтилляционным материалом детекторов гамма-излучения при условии, что они способны детектировать гамма-излучение в указанном диапазоне энергий. При этом с помощью многоэлементного альфа-детектора, встроенного в нейтронный генератор, регистрируют также направление вылета быстрых нейтронов из тритиевой мишени нейтронного генератора, приблизительно соответствующее направлению, противоположному направлению вылета альфа-частиц из тритиевой мишени (фактический угол разлета между согенерируемыми альфа-частицей и быстрым нейтроном составляет 171-175 градусов, для диапазона энергии дейтронов 50-150 кэВ), т.е. альфа-детектор производит так называемое «мечение» быстрых нейтронов (от англ. «tagging») по направлению их вылета в пространстве и по моменту их вылета во времени, поэтому в дальнейшем здесь в отношении таких быстрых нейтронов используется термин «меченые нейтроны». Здесь следует отметить, что быстрые нейтроны испускаются нейтронным генератором в полный телесный угол  $4\pi$ , однако за счет такого «мечения» быстрых нейтронов альфа-детектором поток меченых нейтронов, принимаемых в расчет при последующем анализе характеристического гамма-излучения, имеет расходящуюся от мишени форму с намного меньшим телесным углом, определяемым размерами альфа-

детектора и расстоянием между тритиевой мишенью и альфа-детектором. При этом число и положение в пространстве отдельных пучков меченых нейтронов в их общем потоке определяется числом и положением элементов (пикселей) альфа-детектора относительно тритиевой мишени нейтронного генератора. Характеристическое гамма-излучение, исходящее от исследуемого образца в виде спектров, регистрируют с помощью детекторов гамма-излучения (далее для краткости называемых гамма-детекторами). Зарегистрированные спектры характеристического гамма-излучения, поступающие с гамма-детекторов, анализируются системой анализа данных в совпадениях с сигналами с альфа-детектора, соответствующими каждому вокселю облучаемого образца. Здесь «вокселем» называется элемент объема облучаемого образца, причем в направлении потока меченых нейтронов размер вокселя определяется временным разрешением системы альфа-гамма-совпадений ( $\alpha$ - $\gamma$  совпадений), а в плоскости, перпендикулярной потоку меченых нейтронов, размеры вокселя определяются линейными размерами пикселя альфа-детектора и соотношением расстояния от тритиевой мишени до альфа-детектора в нейтронном генераторе и расстояния от тритиевой мишени до облучаемого материала, находящегося в объеме каждого вокселя образца (схематично обозначено как «s» на фиг. 1).

[0069] Кроме того, следует понимать, что употребляемый здесь термин «поток меченых нейтронов» означает по меньшей мере один пучок меченых нейтронов, необходимый для обеспечения принципиальной возможности реализации изобретения. Вместе с тем, в предпочтительных вариантах воплощения поток меченых нейтронов в целом может состоять из множества нейтронных пучков, число которых может быть равно числу нейтронных генераторов или числу пикселей в многоэлементном альфа-детекторе, например, 2, 3, 4, 5, 10, 16, 25, 36, 49, 64, 100, 192, 256, 500 и более пучков. Таким образом, употребляемые в отношении меченых нейтронов термины «поток» и «пучок» могут быть или не быть эквивалентными друг другу.

[0070] Выходящие из нейтронного генератора меченые нейтроны  $n$ , попадая в исследуемый образец, индуцируют реакции неупругого рассеяния в ядрах атомов  $A$  образца:  
[Математическая формула 3]



в результате которых возбуждение ядра снимается испусканием квантов гамма-излучения с энергетическим спектром, характерным для каждого конкретного химического элемента. Регистрация характеристического  $\gamma$ -излучения осуществляется гамма-детекторами в совпадениях с сигналом от альфа-детектора. Это дает возможность определить все три

координаты той области образца, из которой были испущены кванты гамма-излучения. Две координаты определяются по тому пикселю, в который попала  $\alpha$ -частица, а третья координата, характеризующая расстояние  $s$  от тритиевой мишени до точки испускания гамма-кванта, вычисляется с помощью время-пролетной методики. Действительно, зная расстояние от тритиевой мишени до альфа-детектора, расстояние  $s$  от тритиевой мишени до образца и расстояние от образца до гамма-детектора, а также зная, что скорость быстрого нейтрона с энергией 14,1 МэВ постоянна и составляет 5 см/нс, а скорость  $\gamma$ -кванта (т.е. скорость света  $c$ ) приблизительно составляет  $3 \cdot 10^8$  м/с, и измерив разность во времени между моментом времени регистрации  $\alpha$ -частицы в альфа-детекторе (Т1) и моментом времени регистрации  $\gamma$ -кванта в гамма-детекторе (Т2), легко определить точку испускания  $\gamma$ -кванта в образце.

[0071] Далее, измерив гамма-детектором суммарный  $\gamma$ -спектр образца, состоящего из нескольких химических элементов, можно разложить суммарный  $\gamma$ -спектр на составляющие и определить доли каждого химического элемента в образце.

[0072] Таким образом, отличие метода меченых нейтронов (ММН) от хорошо известных методов нейтронно-активационного анализа (НАА) состоит в том, что идентификация химического(их) элемента(ов) ведется по спектру прямых  $\gamma$ -квантов, испускаемых в реакциях неупругого рассеяния ( $n, n' \gamma$ ), причем в расчет при анализе образца принимаются только  $\gamma$ -кванты, пришедшие в течение короткого временного интервала с момента прихода сигнала от  $\alpha$ -частицы, в частности, временного интервала порядка 1-100 нс (в конкретном воплощении изобретения используется временной интервал 6 нс). Это дает возможность отобрать  $\gamma$ -кванты, испускаемые непосредственно из образца, а не от окружающей его среды, что существенно улучшает фоновые условия при измерении. Показано, что применение ММН позволяет увеличить отношение сигнал-фон в 200 и более раз.

[0073] Другое важное отличие ММН состоит в использовании именно быстрых нейтронов с энергией 14,1 МэВ, которые позволяют хорошо определять концентрации легких элементов, таких как Li, Be, B, C, N, O, F, что является затруднительным как для метода НАА, так и для рентгено-флуоресцентного анализа (РФА), поскольку методом РФА сложно определять элементы с  $Z < 11$ .

[0074] Кроме того, по сравнению с другими методами экспресс-анализа элементного состава материалов, такими, например, как РФА, можно отметить следующие преимущества

ММН:

(1) большая исследуемая зона, поскольку приборы РФА имеют исследуемую зону в

несколько миллиметров, а исследуемая зона в случае детекторов ММН может составлять, например, 30×30 см при расстоянии 60 см;

(2) возможно определять распределения концентрации элементов внутри образца;

(3) использование детекторов ММН не требует никакой пробоподготовки;

(4) использование детекторов ММН не требует использования дорогостоящих эталонных образцов.

[0075] Наконец, немаловажным является возможность применения ММН в полевых условиях. В отличие от метода НАА, в ММН не нужно облучать образцы в ядерном реакторе, а роль источника нейтронов выполняет портативный нейтронный генератор, габаритные размеры которого могут составлять лишь несколько десятков сантиметров (в частности, примерно 30 см) и масса которого может составлять лишь несколько килограмм (в частности, примерно 8 кг).

[0076] В настоящем изобретении в качестве тех материалов, в которых определяются концентрации химических элементов, могут быть использованы твердые и/или жидкие материалы самых разных составов (к примеру, неорганические, органические, металлические, оксидные, галогенидные или смешанные, и т.д. и т.п.) и разного происхождения (природные, искусственные или смешанные), в качестве предпочтительного варианта – образцы горных пород, руды или рудного материала, причем это могут быть любые горные породы, любые руды или любые рудные материалы. В частности, в настоящее время хорошо изучена и экспериментально подтверждена возможность применения изобретения для анализа 24 химических элементов: Na, Mg, C, N, O, F, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Zr, Pb, Sn и Bi, и на основе такого анализа – определение относительного атомного или массового содержания химических соединений и/или минералов (таких как, например, SiO<sub>2</sub>, CaO, MgO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> и др.), например, в горных породах. Однако, в принципе, изобретение может быть использовано для определения концентрации практически любого химического элемента в практически любом образце.

[0077] Вместе с тем, имеются определенные физические ограничения. Для эффективной работы метода меченых нейтронов требуется, чтобы в спектре элемента присутствовали одна или несколько узких гамма-линий с большим сечением возбуждения быстрыми нейтронами. Значение имеет также желательное отсутствие близлежащих по энергии гамма-линий от других элементов, которые могут мешать правильному распознаванию линий искомого элемента. И хотя дальнейшее описание приводится в основном

применительно к рудам (в частности, минералам), изобретение не ограничено каким-то одним конкретным видом материала, или же конкретным видом руды или рудного материала.

[0078] Обращаясь теперь к конкретным и предпочтительным вариантам воплощения изобретения, устройство по изобретению может быть выполнено так, как изображено на любой из фигур 2-4.

[0079] Устройство по изобретению, показанное на фиг. 2, содержит нейтронный блок 1, блок гамма-детекторов 2, шкаф 3 для электроники системы анализа данных и для электропитания гамма-детекторов. Также имеется рабочее место 4 оператора. Устройство по изобретению может быть заключено внутри контейнера, при этом рабочее место 4 оператора может находиться как в том же контейнере, в котором размещено устройство по изобретению, так и вне этого контейнера. Таким образом, устройство по изобретению может быть установлено непосредственно в месте добычи руды.

[0080] Как показано на фиг. 3, нейтронный блок 1 содержит нейтронный генератор 8, окруженный биологической защитой 6. Блок гамма-детекторов состоит из отдельных гамма-детекторов 5, окруженных кожухом и расположенных полностью или частично вокруг приемного сосуда (например, лотка) 7, в который помещается образец (например, образец руды или образец с помещенной в упаковку рудой).

[0081] В одном из конкретных вариантов воплощения изобретения, показанном на фиг. 4, образцы руды могут подаваться на анализ в нейтронный блок 1 на конвейере 9, проходящем между расположенным под ним нейтронным блоком 1 и расположенным над ним блоком гамма-детекторов 2 с окруженными кожухом гамма-детекторами 5.

[0082] Одним из признаков изобретения может быть то, что приемный сосуд (например, лоток) 7 имеет в своем сечении форму, соответствующую форме потока меченых нейтронов.

[0083] Способ работы устройства в предпочтительных вариантах воплощения изобретения может содержать один или более из следующих конкретных операций (этапов).

[0084] Непосредственно перед включением устройства следует подать на него напряжение, включить внутреннее освещение в контейнере, включить персональный компьютер (ПК) на рабочем месте 4 оператора и дождаться его полной загрузки. При этом автоматически откроется удаленный рабочий стол с программой управления нейтронным генератором 8.

[0085] Затем производят загрузку образца в приемный сосуд 7. Образцом может быть, например, одна проба или две или более пробы руды, к примеру с размером частиц

(крупностью) до -100 мм, при этом весь образец может иметь массу 3-7 кг. Они могут быть помещены в приемный сосуд 7 в полотняных мешках, непосредственно в которые производился их отбор из карьера. Никакой предварительной пробоподготовки образца не требуется.

[0086] После этого, оператор через специальный интерфейс по линии связи с блоком управления нейтронным генератором 8 подает команду на включение нейтронного генератора 8 в режим испускания нейтронов. Начинается процесс измерения образца, при котором нейтронный генератор 8 испускает быстрые нейтроны, альфа-детектор, встроенный в нейтронный генератор 8, производит мечение этих быстрых нейтронов, регистрируя испущенные одновременно с ними альфа-частицы, а гамма-детекторы 5 регистрируют характеристическое гамма-излучение материала образца.

[0087] В режиме on-line всю информацию, полученную с альфа-детектора нейтронного генератора 8 и с гамма-детекторов 5, подают в блок 3 регистрирующей электроники, являющийся частью системы анализа данных, с целью приема, сбора и обработки этих данных и предварительного отбора событий, зарегистрированных упомянутыми альфа- и гамма-детекторами. При этом с очень высокой точностью (такой как менее 1 наносекунды (нс), например, менее 0,1 нс или менее 0,01 нс) определяют время, истекшее с момента регистрации альфа-частиц альфа-детектором нейтронного генератора 8 до момента регистрации гамма-излучения в каждом из гамма-детекторов 5. После набора требуемой статистики событий, зарегистрированных альфа-детектором и гамма-детекторами 5, и предварительного анализа этих событий, информацию о предварительно проанализированных событиях (например, предварительно отобранных, в частности отфильтрованных событий) подают по линии связи (например, по линии Ethernet) из блока 3 регистрирующей электроники через интерфейс на пульт 4 оператора. Согласно программе, установленной в пульте 4 оператора, производят амплитудный и временной анализ событий, предварительно проанализированных (отобранных) блоком 3 регистрирующей электроники, с целью получения данных о концентрации химических элементов в образце.

[0088] Способ работы устройства по другому предпочтительному варианту воплощения изобретения, приведенному на фиг. 4, осуществляют следующим образом. Руда загружается в/на конвейер 9 (являющийся в данном случае приемным сосудом, например, в виде желоба), затем по команде от пульта 4 оператора осуществляется приведение в действие конвейера 9, который приходит в поступательное движение. Первая порция руды,

расположенной на конвейере 9, перемещается в нейтронный блок 1 в область облучения руды потоком меченых нейтронов. Производится облучение содержимого первой порции руды потоком меченых нейтронов. В режиме on-line информация с альфа-детектора и гамма-детекторов 5 нейтронного блока 1 поступает в блок 3 регистрирующей электроники с целью приема и предварительного отбора событий, зарегистрированных альфа- и гамма-детекторами. После набора требуемой статистики зарегистрированных альфа-детектором и гамма-детекторами 5 событий и их предварительного анализа и отбора, информацию по линии Ethernet подают из блока 3 регистрирующей электроники через интерфейс на пульт 4 оператора. Согласно программе, установленной в пульте 4 оператора, производят амплитудный и временной анализ предварительно отобранных событий блоком 3 регистрирующей электроники с целью получения данных о концентрации химических элементов в первой порции руды. После чего поступает сигнал на продолжение движения конвейера 7 и подачи в область облучения следующей порции руды.

[0089] Кроме того, в различных вариантах воплощения настоящего изобретения могут быть использованы следующие признаки и достигнуты следующие преимущества:

[0090] Устройство по изобретению для определения элементного состава образца использует метод меченых нейтронов, предполагающий анализ гамма-излучения только во временном окне, соответствующем сигналу от исследуемого образца. Использование  $\alpha$ - $\gamma$ -совпадений приводит к существенному подавлению фона. Так, например, для образца апатитовой руды с массой 500 г. было показано, что отношение сигнал/фон увеличивается в 176 раз по сравнению с обычным нейтронно-активационным анализом (НАА).

[0091] Поскольку меченые нейтроны с энергией порядка 14 МэВ относятся к категории быстрых нейтронов, они имеют малое сечение взаимодействия с веществом, что приводит к тому, что они практически не наводят радиоактивность в облучаемой руде, что делает предложенные устройство и способ безопасными для персонала, обслуживающего устройство или работающего впоследствии с проанализированной рудой.

[0092] Выполнение приемного сосуда с формой, соответствующей форме потока меченых нейтронов, например, лотка с сечением в виде перевернутой усеченной пирамиды, позволяет облучать нейтронами содержимое сосуда в полном объеме. В случае же использования сосуда в виде прямоугольного параллелепипеда с размерами, равными линейным размерам потока меченых нейтронов в плоскости дна сосуда, будет наблюдаться неправильное определение элементной концентрации всего объема образца, поскольку часть потока меченых нейтронов будет взаимодействовать с материалом окружающих

конструкций. В случае же использования сосуда в виде прямоугольного параллелепипеда с размерами, равным линейным размерам потока меченых нейтронов в самой верхней плоскости сосуда, потоком нейтронов будет облучаться только лишь часть руды, находящейся в сосуде в объеме, ограниченном внешним контуром потока меченых нейтронов. Остальная часть руды, находящейся в сосуде, окажется вне зоны облучения потоком меченых нейтронов, что приведет к неправильному определению концентрации химических элементов.

[0093] Вышеуказанные варианты воплощения устройства по изобретению могут быть использованы как в стационарном варианте, например, на борту горного карьера или на обогатительной фабрике, так и в мобильном варианте, когда нейтронный блок перемещается на самоходном шасси, или в прицепном варианте, когда нейтронный блок перемещается в прицепе автомобиля.

[0094] В основе способа определения концентраций химических элементов методом меченых нейтронов лежит идея о том, что, зная сечение  $\sigma_{ij}$  определенной характеристической гамма-линии  $i$  элемента  $j$ , можно определить количество атомов этого элемента в образце. Для этого необходимо знать массу облучаемого образца, величину нейтронного потока, прошедшего через образец, и выполнить оценку эффективности и аксептанса устройства (т.е. телесного угла, охватываемого гамма-детекторами) с учетом различных эффектов перерассеяния и поглощения нейтронов и квантов гамма-излучения в образце.

[0095] Для тонкого образца из одного единственного химического элемента число гамма-квантов  $N_f$ , попадающих в гамма-детектор в результате взаимодействия нейтронов с атомами этого элемента, можно вычислить по следующей формуле:  
[Математическая формула 4]

$$N_f = \frac{N_{in} \rho N_{Av} l}{A} \sigma W$$

где  $N_{in}$  – число падающих на образец нейтронов,  $\sigma$  – полное сечение реакции (n,n'  $\gamma$ ),  $N_{Av}$  – число Авогадро,  $\rho$  – плотность образца,  $l$  – толщина образца,  $A$  – атомный вес элемента в образце,  $W$  – вероятность регистрации гамма-кванта гамма-детектором.

[0096] В случае образца, состоящего из  $j$  различных элементов, формула (2) преобразуется для суммирования по всем элементам  $j$ , принимая следующий вид:  
[Математическая формула 5]



$$N_f = N_{in} \rho l \sum_i \frac{N_{Av}}{n_i A_i} n_i w_i \sigma_i$$

где  $N_{in}$  – число падающих на образец нейтронов,  $\rho$  – плотность образца,  $l$  – толщина образца,  $N_{Av}$  – число Авогадро,  $\sigma_j$  – сечение взаимодействия для элемента  $j$  в образце,  $n_j$  – количество ядер элемента  $j$  в образце,  $w_j$  – вероятность регистрации гамма-спектра от элемента  $j$  в образце гамма-детектором,  $A_j$  – атомный номер элемента  $j$  в образце.

[0097] Энергетический спектр гамма-квантов от облучения образца быстрыми нейтронами с энергией примерно 14 МэВ представляется в виде суммы спектров отдельных гамма-линий, спектра континуума и спектра фона:  
[Математическая формула 6]

$$F(E) = \sum_j N_j \left( \sum_{i=1}^{i=n_j} \sigma_{ij}(E) P_{ij}(E) + R_j^{Cont} F_j^{Cont}(E) \right) + BG(E)$$

где  $N_j$  – параметр, определяющий содержание элемента  $j$  в образце, причем данный параметр пропорционален числу атомов элемента в образце и является единым для всех гамма-линий  $i$  элемента  $j$ ;  
 $n_j$  – количество гамма-линий  $i$  у элемента  $j$ ;  
 $\sigma_{ij}(E)$  – сечение рождения гамма-квантов с энергией  $E$ , соответствующей гамма-линии  $i$ , при взаимодействии нейтрона с элементом  $j$ ;  
 $P_{ij}$  – функция отклика гамма-детектора, соответствующая гамма-линии  $i$  элемента  $j$ ;  
 $F_j^{Cont}(E)$  – амплитуда спектра континуума, который наблюдается при высоких энергиях возбуждения практически для всех ядер, кроме легчайших;  
 $R_j^{Cont}$  – нормировочный коэффициент для спектра континуума;  
 $BG(E) = A \cdot \exp^{-BE}$  – функция фона,  
 $A$  и  $B$  – параметры подгонки (фита).

[0098] Функция  $P_{ij}$  отклика гамма-детектора для одной гамма-линии  $i$  элемента  $j$  представляется в виде суммы трех гауссианов  $G(x, \sigma)$ , соответствующих пику полного поглощения и пикам однократной и двукратной утечки гамма-квантов с энергией 0,511 МэВ из кристалла сцинтиллятора гамма-детектора при регистрации гамма-квантов с энергией  $E_i$ , а также функции  $S(E_i, E)$ , которая описывает процесс комптоновского рассеяния с учетом возможных многократных взаимодействий гамма-кванта с кристаллом сцинтиллятора  
гамма-детектора:  
[Математическая формула 7]

$$P_{ij}(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_i^r \varepsilon} G(E_i, \sigma_i^r) + \frac{R_{es} N_i^{es}}{\sqrt{2\pi}\sigma_i^{es}} G(E_i - 511, \sigma_i^{es}) + \frac{N_{es2}}{\sqrt{2\pi}\sigma_i^{es2}} G(E_i - 1022, \sigma_i^{es}) + RC(E_i, E)$$

где  $\sigma_i^r = A_\varepsilon \sqrt{E_i}$  – энергетическое разрешение гамма-детектора, соответствующее пику полного поглощения при энергии гамма-кванта  $E_i$ ;  $A_\varepsilon$  – параметр фита;  $\varepsilon$  – эффективность регистрации гамма-квантов с энергией, соответствующей пику полного поглощения, причем зависимость этого параметра от энергии гамма-кванта устанавливается в результате моделирования отклика гамма-детектора методом Монте-Карло;

$\sigma_i^{es}$ ,  $\sigma_i^{es2}$  – энергетические разрешения гамма-детектора, соответствующие пикам однократной и двукратной утечек гамма-квантов с энергией 0,511 МэВ из кристалла сцинтиллятора гамма-детектора;  $N_i^{es}$  и  $N_i^{es2}$  – параметры, определяющие амплитуды пиков утечек;  $R$  – подстроечный коэффициент для амплитуды функции  $C(E_i, E)$ .

[0099] Зависимость отношений  $N_i^{es}/N_j$  и  $N_i^{es2}/N_i^{es}$  от энергии гамма-квантов также устанавливается по результатам моделирования, однако для подстройки используется параметр  $R_{es}$ .

[0100] Вклад от комптоновского рассеяния и многократных взаимодействий гамма-квантов с кристаллом сцинтиллятора гамма-детектора определяется путем аппроксимации его функцией  $C(E_i, E)$ :

$$[Математическая формула 8] C(E_i, E) = F1(E) + F2(E)$$

где  $F1(E)$  – функция, описывающая однократное комптоновское рассеяние:

$$[Математическая формула 9] F1(E) = F1v(E) \times F1t(E)$$

$$\text{где [Математическая формула 10]} F1v(E) = P_0 V_0 \operatorname{Erfc} \left( \frac{E - (E_i - P_1)}{\sqrt{2} P_2} \right)$$

$$[Математическая формула 11] F1t(E) = e^{(E - (E_i - P_1)) P_3}, E < E_i - P_1$$

$$[Математическая формула 12] F1t(E) = 1, E > E_i - P_1$$

$F2(E)$  – функция, описывающая комптоновское рассеяние аннигиляционного фотона:

$$[Математическая формула 13] F2(E) = F2v(E) \cdot F2t(E),$$

Где

Математическая формула 14]

$$F_{2v}(E) = P_0 P_4 V_0 \operatorname{Erfc} \left( \frac{E - (E_i - P_1 - P_6)}{\sqrt{2} P_5} \right)$$

[Математическая формула 15]  $F_{2t}(E) = e^{(E - (E_i - P_1 - P_6)) P_3}, E < E_i - P_1 - P_6$

[Математическая формула 16]  $F_{2t}(E) = 1, E > E_i - P_1 - P_6$

[Математическая формула 17]  $V_0 = (E_i/E_p + E_p/E_i - 1. + \cos \theta^2)$

[Математическая формула 18]  $\cos \theta = 1. + m_0/E_i - m_0/E_p$

где  $m_0$  – масса электрона,  $E_i$  – энергия падающего фотона,  $E$  – наблюдаемая энергия фотона,  $E_p = E_i - E$ .

[0101] Параметры  $P_0$ - $P_6$  зависят от энергии фотона и определяются по результатам моделирования.

[0102] Оценив относительные доли элементов в образце по формуле:

[Математическая формула 19]  $v_j = N_j / \sum_i N_i$

и предполагая соблюдение соотношения:

[Математическая формула 20]  $\sum_i v_j = 1$

можно вычислить массовые доли элементов в образце как

[Математическая формула 21].  $w_j = \frac{v_j m_j}{\sum_i v_i m_i}$

где  $m_j$  – атомный вес элемента  $j$ .

[0103] Для вычисления массовых долей оксидов элементов  $W_j$  определим массовую долю  $\eta_j$  элемента  $j$  в оксиде, формула которого в общем виде может быть представлена как  $J_x O_y$ :

[Математическая формула 22]  $r_j = \frac{x \eta_j}{x \eta + y \eta_o}$

[0104] Тогда  $W_j$  есть:

[Математическая формула 23]

$$W_j = \frac{\frac{v_j m_j}{r_j}}{\sum_i \frac{v_i m_i}{r_i}}$$

[0105] Практически для ядер всех элементов, кроме легчайших, известно существование непрерывного спектра гамма-квантов, так называемого континуума, при энергиях возбуждения выше типичной энергии отделения нейтрона ( $\approx 8$  МэВ). Для определения спектра континуума для каждого чистого химического элемента экспериментальный спектр фитируется набором спектров дискретных линий и экспоненциальной подложкой BG(E). Затем отклик от дискретных линий для каждого чистого химического элемента фиксируется и определяется спектр континуума как разность между экспериментально измеренным спектром и суммой вкладов от дискретных линий.

[0106] В результате, фитирующая функция для отдельного химического элемента представляет собой сумму, состоящую из откликов для всех заданных дискретных гамма-линий, комптоновского вклада и гистограммы континуума  $F^{\text{Cont}}_j(E)$ , с определенной по эталонному спектру данного элемента нормировкой.

[0107] Таким образом, для определения элементного состава исследуемого образца фитируется 6 общих параметров спектра A, B, A<sub>c</sub>, R<sub>cs</sub>, R, R<sup>Cont</sup> и несколько параметров N<sub>j</sub>, непосредственно связанных с концентрациями отдельных химических элементов.

[0108] Правильное описание так называемой «подложки» под пиками полного поглощения и пиками утечек принципиально важно для правильного определения относительных концентраций различных химических элементов в образце. Обычная параметризация фона в виде полинома или экспоненциальной функции может дать хорошее общее описание спектра, но принципиально неверное разложение спектра по элементному составу. Например, использование экспоненциального фона для описания спектра воды может симулировать появление сигнала азота, который возникает за счет линии кислорода на 5108 кэВ.

[0109] Таким образом, параметры аппроксимирующей функции определяются для всех элементов и всех возможных значений энергии гамма-квантов, участвующих в процедуре фитирования экспериментально измеренных спектров характеристического излучения образца материала.

[0110] Далее будут приведены некоторые экспериментальные результаты,

подтверждающие практическую применимость изобретения с достижением указанных технических результатов.

## **Экспериментальная часть А**

### **1. Спектры чистых элементов**

[0111] Для определения опорных энергетических спектров чистых элементов методом меченых нейтронов были измерены спектры некоторых чистых химических элементов и относительно простых неорганических и органических соединений. Число характеристических гамма-линий, их энергии и сечения рождения для конкретного элемента являются предметом настройки на основе имеющихся таблиц и библиотек сечений, а также полученных авторами экспериментальных спектров.

#### **1.1. Углерод**

[0112] Измеренный энергетический спектр углерода (по ГОСТ 7885-86, масса образца 1,8 кг) показан на Фиг. 5, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Он наиболее простой по сравнению со спектрами других элементов. Виден четкий сигнал от линии 4439 кэВ (т.е. 4,439 МэВ). Ее сечение было определено нами в 209,7 мб.

#### **1.2. Кислород**

[0113] Энергетический спектр кислорода был извлечен из измеренного спектра воды (по ТУ 0131-005-51909887-12, объем образца 0,5 л), который приведен на Фиг. 6, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Доминирующими линиями в спектре являются линии на 6130 кэВ и 3684 кэВ.

#### **1.3. Кремний**

[0114] Для измерения спектра кремния был использован образец химически чистого кремния (по ТУ 48-0513/91-8-7, масса образца 0,5 кг). Полученный энергетический спектр кремния приведен на Фиг. 7, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. В нем выделяется пик от линии 1779 кэВ, сечение которого составляет 400 мб. То есть сигнал от этой линии кремния почти в два раза сильнее, чем сигнал от линии углерода 4439 кэВ.

#### **1.4. Магний**

[0115] Измеренный энергетический спектр магния (по ТУ 3-303-10, масса образца 0,5 кг) приведен на Фиг. 8, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Характерная линия Mg при 1369 кэВ тоже имеет

большое сечение – 425 мб. Это обстоятельство облегчает выделение магния.

#### 1.5. Железо

[0116] Измеренный энергетический спектр оксида железа  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (по ТУ 1526-12, масса образца 0,5 кг) приведен на Фиг. 9, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Доминирующая линия Fe находится при 1238 кэВ и тоже имеет большое сечение – 393 мб.

#### 1.6. Титан

[0117] Измеренный энергетический спектр титана Ti (масса образца 0,4 кг) приведен на Фиг. 10, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. В нем доминирует линия 984 кэВ с сечением в 470 мб.

#### 1.7. Алюминий

[0118] Измеренный энергетический спектр алюминия (по ТУ 6-09-02-529-92, масса образца 0,5 кг) приведен на Фиг. 11, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Он характеризуется тремя линиями при 1809, 2211 и 3004 кэВ.

#### 1.8. Кальций

[0119] Для определения кальция измеряли оксид кальция CaO (по ГОСТ 4530-76, масса образца 0,5 кг). Его энергетический спектр приведен на Фиг. 12, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита, и характеризуется тремя линиями при 1809, 2211 и 3004 кэВ.

#### 1.9. Никель

[0120] Измеренный энергетический спектр никеля Ni (по ГОСТ 4341-78, масса образца ТУ 3-272-10) показан на фиг. 13, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Он характеризуется двумя линиями при 1334 и 1454 кэВ.

#### 1.10. Марганец

[0121] Измеренный энергетический спектр марганца Mn (по ТУ 2-26810, масса образца 0,5 кг) показан на фиг. 14, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Он характеризуется двумя линиями при 858 и 1164 кэВ.

#### 1.11. Медь

[0122] Измеренный энергетический спектр меди Cu (по ТУ 3-270-10, масса образца 0,5 кг) показан на фиг. 15, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита. Он характеризуется двумя линиями при 962 и 1179 кэВ.

#### 1.12. Цирконий

[0123] Для определения циркония измеряли оксид циркония  $ZrO_2$  (по ТУ 6-09-2486-77, масса образца 0,5 кг), энергетический спектр которого приведен на Фиг. 16, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.13. Хром

[0124] Для определения хрома измеряли оксид хрома  $Cr_2O_3$  (по ТУ 6-09-4272-84, масса образца 0,5 кг), энергетический спектр которого приведен на фиг. 17, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.14. Сера

[0125] Измеренный энергетический спектр серы S (по ТУ 6-09-2546-77, масса образца 0,5 кг) приведен на фиг. 18, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.15. Висмут

[0126] Измеренный энергетический спектр висмута Bi (по ТУ 6-09-3616-82, масса образца 0,5 кг) приведен на фиг. 19, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.16. Олово

[0127] Измеренный энергетический спектр олова Sn (по ТУ 3-291-10, масса образца 0,5 кг) приведен на фиг. 20, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.17. Цинк

[0128] Измеренный энергетический спектр цинка Zn (по ТУ 6-09-5294-86, масса образца 0,5 кг) приведен на фиг. 21, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.18. Фтор

[0129] Для определения спектра фтора измеряли тетрафторид углерода  $CF_4$  (4,4 кг), энергетический спектр которого приведен на фиг. 22, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.19. Фосфор

[0130] Для определения спектра фосфора измеряли оксид фосфора  $P_2O_5$  (по ТУ 1-250-10, масса образца 0,5 кг), энергетический спектр которого приведен на фиг. 23, где

экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.20. Свинец

[0131] Измеренный энергетический спектр свинца Pb (по ТУ 6-09-02-987-95, масса образца 0,5 кг) приведен на фиг. 24, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.21. Хлор

[0132] Для определения хлора измеряли тетрахлорметан  $\text{CCl}_4$  (по ГОСТ 20288-74, масса образца 1,6 кг), энергетический спектр которого приведен на фиг. 25, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.22. Калий

[0133] Для определения калия измеряли карбонат калия  $\text{K}_2\text{CO}_3$  (по ГОСТ 422-76, масса образца 0,5 кг), энергетический спектр приведен на фиг. 26, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.23. Натрий

[0134] Для определения натрия измеряли карбонат натрия  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  (по ГОСТ 83-79, масса образца 1 кг), энергетический спектр которого приведен на фиг. 27, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.24. Азот

[0135] Для определения азота измеряли меламина  $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$  (по ГОСТ 7579-76, масса образца 0,7 кг). Энергетический спектр  $\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$  приведен на фиг. 28, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показаны результаты фита.

#### 1.25. Учет спектра континуума

[0136] Практически для ядер всех атомов, кроме легчайших, известно существование непрерывного спектра гамма-квантов, так называемого континуума, при энергиях возбуждения выше типичной энергии отделения нейтрона ( $\sim 8$  МэВ). Это объясняется тем, что плотность ядерных уровней обычно невысока при небольших энергиях возбуждения  $E_{\text{ex}}$  (расстояние между уровнями  $\Delta E$  порядка 1 МэВ) и резко возрастает при увеличении  $E_{\text{ex}}$  ( $\Delta E$  уменьшается до десятков кэВ). Например, у ядра  $^{28}\text{Si}$  число уровней с  $E_{\text{ex}} < 8$  МэВ составляет порядка 10, а число уровней с  $8 < E_{\text{ex}} < 14$  МэВ – уже порядка 70. С учетом того, что снятие возбуждений обычно происходит через каскады, множественность гамма-квантов при высоких  $E_{\text{ex}}$  значительна, и в совокупности с близостью различных уровней



эти факторы приводят к наблюдению практически непрерывных спектров континуума.

[0137] На фиг. 29 приведен результата фитирования энергетического спектра алюминия. Экспериментальный спектр показан черными точками, результат фита линиями алюминия и функцией фона BG(E) показан сплошной линией, сумма отклика от всех дискретных линий алюминия показана штрихпунктирной линией с тремя точками, а разность между экспериментальными точками и суммой дискретных линий алюминия показана треугольниками, а в квадрате справа сверху приведены параметры фитирования. Эта гистограмма, нормированная на сумму сечений дискретных линий, и использовалась в качестве спектра континуума алюминия. В итоге фитирующая функция для отдельного элемента алюминия является суммой вышеуказанных функций (6) для всех заданных дискретных линий и гистограммой континуума, с определенной по эталонному спектру элемента нормировкой. Учет континуума существенно улучшает точность описания экспериментальных данных подгоночными кривыми. На фиг. 30 приведен пример результата фитирования энергетического спектра алюминия с учетом спектра континуума, где черные точки – экспериментальный спектр, а сплошная линия – результат фита линиями алюминия плюс континуум. видно, что в фите на фиг. 30 по сравнению с фитом на фиг. 29  $\chi^2$  уменьшился с  $1,118 \cdot 10^4$  до  $7,267 \cdot 10^{-6}$ , причем нормировка функции фона A уменьшилась на два порядка, что свидетельствует о существенном уменьшении плохо контролируемых факторов.

## **Экспериментальная часть Б**

### **1. Образцы и постановка опытов**

[0138] В качестве еще одного примера далее приведены результаты применения ММН для определения элементного состава горных пород в полевых условиях. Для исследований были использованы выборки из силикатных пород основного состава и карбонатных пород, отобранных на Ольхонском геодинамическом полигоне. Измерения проводили на геологической базе Черноруд (ИрГТУ). Основная цель этих измерений состояла в проверке возможности ММН осуществлять правильный экспресс-анализ элементного состава пород из относительно однородных групп по индикаторным элементам. Так, для карбонатных пород важным является разделение на кальцитовые мраморы (без магния), доломитовые и доломит-кальцитовые мраморы (с существенной долей магния) и кальцифиры (породы с существенной примесью силикатов и варьирующими соотношениями кальция и магния). Было интересно проверить, насколько правильно результаты ММН соотносятся с

результатами петрографического анализа, выполненного в полевых условиях, и насколько хорошо они коррелируют с контрольными результатами химического анализа, проведенного в лаборатории.

[0139] Измерения проводили с помощью портативного детектора ДВИН-1. Детектор ДВИН-1 состоит из измерительного модуля, который соединен кабелем с компьютером оператора. Измерительный модуль имеет размеры 740×510×410 мм и массу 40 кг. Внутри измерительного модуля размещены источник нейтронов, гамма-детектор и электроника системы анализа данных. Питание измерительного модуля осуществляется от сети 220 В или от автономного аккумулятора. Потребляемая мощность составляет примерно 300 Вт. Источником нейтронов является портативный нейтронный генератор ИНГ-27 производства ФГУП «ВНИИА им. Н.Л.Духова» со встроенным 9-пиксельным кремниевым  $\alpha$ -детектором. Интенсивность потока нейтронов, создаваемого нейтронным генератором (НГ), была  $I = 5 \cdot 10^7$  н/с. Встроенный в НГ кремниевый  $\alpha$ -детектор представляет собой матрицу пикселей 3×3 с размером каждого пикселя 10×10 мм. Кремниевый  $\alpha$ -детектор расположен на расстоянии 62 мм от тритиевой мишени. Предусилители сигналов  $\alpha$ -детектора смонтированы на фланце, состыкованном с корпусом НГ.

[0140] Детектирование  $\gamma$ -квантов осуществлялось одним гамма-детектором на основе кристалла BGO диаметром 76 мм и толщиной 65 мм. Гамма-детекторы на основе кристаллов BGO обладают достаточно хорошим энергетическим разрешением порядка (8-2,5%) в диапазоне энергий характеристического излучения 1-12 МэВ. На  $\gamma$ -линии углерода ( $E_\gamma = 4,439$  МэВ) энергетическое разрешение гамма-детектора на основе BGO в среднем составляло 4,4%. Гамма-детекторы на основе BGO отличаются также высокой эффективностью регистрации  $\gamma$ -квантов в указанном интервале энергий и низкой чувствительностью по отношению к регистрации фоновых нейтронов. Временное разрешение  $\alpha$ - $\gamma$  совпадений составляет 3,3 нс.

[0141] Регистрирующая электроника системы сбора и анализа данных с альфа- и гамма-детекторов выполнена в виде 16-канальной платы, которая имеет размер стандартной PCI-карты с возможностью установки в PCI-E слот персонального компьютера (ПК). Обмен информацией с ПК осуществляется через PCI-E шину. В основу системы регистрации сигналов с альфа- и гамма-детекторов положен принцип их оцифровки с последующим восстановлением временных и амплитудных характеристик импульсов. Для обеспечения требуемой скорости передачи данных по PCI шине интерфейс работает в режиме прямого доступа к памяти ПК.

[0142] При измерениях на Ольхонском геодинамическом полигоне с базированием в стационаре Черноруд (ИрГТУ) детектор ДВИН-1 был установлен в помещении геологической базы, в котором осуществлялся экспресс-анализ образцов горных пород из ближайших районов. Правила радиационной безопасности при эксплуатации детектора ДВИН-1 требуют соблюдение оператором радиуса безопасности в 8,5 м, а для населения радиус безопасности составляет 10 м.

[0143] Размер образцов варьировался от 20 до 50 см, а их масса – от 2 до 6 кг. Никакой пробоподготовки не проводилось. Для анализа были представлены образцы нерегулярной формы из трех групп горных пород: карбонатные породы (доломитовые, кальцитовые мраморы и кальцифиры, всего 17 образцов), гнейсы (всего 23 образца) и амфиболиты (всего 7 образцов).

## **2. Контрольные измерения химическими методами**

[0144] С целью сравнения с предложенным способом химический состав образцов определяли также контрольным химическим методом силикатного анализа в Аналитическом центре Института земной коры СО РАН по стандартным методикам. Для разложения образцов применялось сплавление со смесью соды и буры в муфельной печи при  $t = 940^{\circ}\text{C}$  и кислотное вскрытие смесью хлорной и плавиковой кислот. Химический метод определения кремния, алюминия и общего железа основан на способности этих элементов к образованию окрашенных комплексов. Определение элементов из растворов их окрашенных комплексов проводилось на спектрофотометрическом комплексе GENESYS 10S, Thermo Fisher Scientific, США. Для контрольного определения содержания кальция и магния использовался метод атомно-абсорбционной спектроскопии с распылением исследуемого раствора в пламени (ацетилен-воздух) в виде аэрозоля и измерением степени ослабления излучения стандартного источника света (лампы с полым катодом) вследствие поглощения этого излучения атомами анализируемого элемента. Определение проводилось на спектрофотометре SOLAAR M6, Thermo Elemental, INTERTECH Corporation, США. Для устранения мешающего влияния посторонних элементов при определении CaO и MgO в качестве спектрофотометрического буфера в исследуемые растворы вводился хлорид лантана(III). Для контрольного определения содержания двуокиси углерода ( $\text{CO}_2$ ) применялся метод объемного титрования с разложением пробы соляной кислотой и выделением углекислоты. Гигроскопическая вода определялась высушиванием навески породы в тигле до постоянного веса при  $10^{\circ}\text{C}$ . Потери при прокаливании определялись прокаливанием навески при температуре  $1000^{\circ}\text{C}$  до постоянного веса. Силикатный анализ

завершался подсчетом суммы всех определяемых компонентов, которая должна быть близкой к 100%. В большинстве случаев это является хорошим ориентиром для контроля качества сравнительного анализа. Точность определения компонентов в пробах контролировалась многократным измерением стандартных образцов с известными аттестованными концентрациями элементов.

### 3. Результаты измерений и обработки спектров

#### 3.1 Кальцитовые мрамора

[0145] На фиг. 31 показан энергетический спектр от облучения образца кальцитового мрамора с элементным составом  $\text{CaCO}_3$  (проба SE2869), где экспериментальные данные показаны крестиками, вклады элементов Ca, C, O показаны соответствующими линиями, а сплошной линией показан результат подгонки всех параметров. Хорошо видны характеристические линии кислорода, показанные на фиг. 31 штриховыми линиями. Три кислородных пика видны при  $E = 2742, 3089$  и  $3854$  кэВ. В характеристическом спектра кальция выделяется пик при энергии  $E = 3737$  кэВ. Наложение этой линии на пик, соответствующий каскадному переходу при девозбуждении ядра кислорода (энергия перехода  $E = 3854$  кэВ), создает некоторую размытую структуру негауссовой формы. Характеристический спектр углерода наиболее прост – в нем четко выделяется только одна линия при  $E = 4439$  кэВ и пик утечки одного гамма-кванта, сдвинутый на 500 кэВ от основной линии. Эти качественные особенности кальцитов подтверждаются и количественными результатами определения элементного состава с помощью процедуры подгонки параметров. В Таблице 1 приведены значения массовых долей различных элементов для некоторых проб кальцитовых мраморов, полученные в центральном меченом пучке, который на образце покрывал зону размером  $3 \times 3$  см.

[Таблица 1]

| Образец | Si, %         | Mg, % | Fe, % | Al, %         | Ca, %          | C, %           | O, %           |
|---------|---------------|-------|-------|---------------|----------------|----------------|----------------|
| SE2869  | -             | -     | -     | $2,6 \pm 1,0$ | $34,9 \pm 1,8$ | $13,3 \pm 0,6$ | $48,8 \pm 1,4$ |
| SE2801  | -             | -     | -     | -             | $42,3 \pm 1,3$ | $16,1 \pm 0,7$ | $41,6 \pm 1,2$ |
| SE2766  | $1,0 \pm 0,4$ | -     | -     | -             | $43,6 \pm 1,7$ | $13,2 \pm 0,6$ | $42,1 \pm 1,1$ |

Массовые доли элементов в пробах кальцитовых мраморов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне

1σ.

### 3.2 Доломитовые мрамора

[0146] На Фиг. 32 показан спектр образца доломитового мрамора с элементным составом  $\text{CaCO}_3 \times \text{MgCO}_3$  (проба SE2789), где экспериментальные данные показаны крестиками, вклады элементов Mg, Ca, C, O показаны соответствующими линиями, а сплошной линией показан результат подгонки всех параметров. В спектре на фиг. 32, помимо характеристических линий Ca, C и O, присутствовавших и на фиг. 31, хорошо виден сигнал от линии магния при 1369 кэВ. Это отражается и в результатах определения концентраций элементов, приведенных в Таблице 2. Они правильно показывают четыре основных элемента, присутствующих в доломитовых мраморах. Массовая доля магния достигает 7-10%.

[Таблица 2]

| Образец | Si, %   | Mg, %   | Fe, %   | Al, %   | Ca, %    | C, %     | O, %     |
|---------|---------|---------|---------|---------|----------|----------|----------|
| SE2789  | 0,2±0,8 | 9,6±0,6 | -       | 2,5±1,0 | 27,5±2,2 | 14,4±0,7 | 45,3±1,9 |
| SE2871  | 0,5±0,8 | 7,7±0,6 | 2,1±1,1 | -       | 25,3±2,0 | 15,0±0,7 | 48,8±1,7 |
| SE2842  | -       | 8,9±0,6 | -       | 2,0±0,8 | 28,3±2,1 | 15,9±0,8 | 44,6±1,7 |

Массовые доли элементов в пробах доломитовых мраморов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ.

### 3.3 Кальцифиры

[0147] На фиг 33 приведен энергетический спектр гамма-квантов от облучения образца кальцифира (проба SE2803). Экспериментальные данные показаны крестиками, вклады элементов Si, Ca, C, O показаны соответствующими линиями, а сплошной линией показан результат подгонки всех параметров. Кальцифиры состоят из кальцита или доломита с примесью силикатных материалов. И действительно, в показанном на фиг. 33 спектре образца кальцифира появляется характерный пик кремния при  $E = 1779$  кэВ. Величина этого пика невелика, поскольку примесь кремния составляет 3-4% (см. Таблицу 3).

[Таблица 3]

| Образец | Si, %   | Mg, % | Fe, % | Al, % | Ca, %    | C, %     | O, %     |
|---------|---------|-------|-------|-------|----------|----------|----------|
| SE2841  | 3,9±0,9 | -     | -     | -     | 40,2±2,7 | 14,0±0,8 | 39,9±2,0 |

| Образец | Si, %   | Mg, % | Fe, % | Al, %   | Ca, %    | C, %     | O, %     |
|---------|---------|-------|-------|---------|----------|----------|----------|
| SE2803  | 2,9±1,0 | -     | -     | 2,2±1,4 | 39,6±2,5 | 13,9±0,8 | 41,4±2,0 |
| SE2794  | 3,0±0,7 | -     | -     | -       | 43,7±1,2 | 14,2±0,6 | 38,5±0,9 |

Массовые доли элементов в пробах кальцифиров, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне  $1\sigma$ .

### 3.4 Гнейсы

[0148] На Фиг. 34 показан спектр от типичного образца гнейса (проба SE2840), где экспериментальные данные показаны крестиками, вклады элементов Si, Fe, Al, O показаны соответствующими линиями, а сплошной линией показан результат подгонки всех параметров. В спектре отсутствует углеродный пик при 4,439 МэВ. Нет также вклада от кальция. Это соответствует элементному составу гнейсов, в который главный вклад вносит кремнезем  $\text{SiO}_2$  и глинозем  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Результаты определения массовых долей этих элементов, приведенных в Таблице 4, полностью соответствует этой закономерности.

[Таблица 4]

| Образец | Si, %    | Mg, %   | Fe, %   | Al, %    | Ca, %   | C, %    | O, %     |
|---------|----------|---------|---------|----------|---------|---------|----------|
| SE2840  | 26,9±1,5 | 6,7±0,7 | 0,9±1,3 | 16,4±1,7 | 6,8±2,4 | -       | 42,4±1,9 |
| SE2870  | 33,1±2,3 | 2,8±0,8 | -       | 13,4±2,2 | 0,8±3,3 | 1,2±0,8 | 47,1±3,0 |
| SE2786  | 32,1±1,8 | 1,5±0,6 | 4,7±1,4 | 11,5±1,6 | 6,5±2,2 | -       | 43,3±1,9 |

Массовые доли элементов в пробах образцов гнейсов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне  $1\sigma$ .

### 3.5 Амфиболиты

[0149] На фиг. 35 показан энергетический спектр гамма-квантов от облучения образца амфиболита (проба SE2843), где экспериментальные данные показаны крестиками, вклады элементов Si, Fe, Al, O показаны соответствующими линиями, а сплошной линией показан результат подгонки всех параметров. В этом спектре отсутствует линия углерода, виден яркий сигнал от кремния и пики от алюминия и магния. Это согласуется с элементным составом амфиболитов, главным образом состоящих из силикатов и алюмосиликатов магния, железа и кальция. Данные по элементному составу некоторых образцов амфиболитов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1, приведены в Таблице 5.

[Таблица 5]

| Образец | Si, %    | Mg, %   | Fe, %    | Al, %    | Ca, %    | C, %    | O, %     |
|---------|----------|---------|----------|----------|----------|---------|----------|
| SE2843  | 22,9±1,9 | 6,0±0,9 | 10,3±2,1 | 7,8±2,0  | 9,8±4,7  | -       | 42,6±3,0 |
| SE2850  | 17,6±1,6 | 4,1±0,7 | 9,9±1,6  | 11,5±1,7 | 15,3±2,8 | -       | 41,6±2,7 |
| SE2816  | 21,4±1,6 | 4,7±0,7 | 11,1±1,7 | 10,7±1,7 | 12,3±2,7 | 0,8±0,6 | 39,0±2,3 |

Массовые доли элементов в пробах образцов амфиболитов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне  $1\sigma$ .

#### 4. Обсуждение результатов анализа горных пород

[0150] Спектры, приведенные на фиг. 31-35, наглядно показывают возможности ММН по определению ключевых породообразующих элементов – C, O, Si, Mg, Al, Fe, Ca. Ранее применение ММН ограничивалось определением концентраций углерода, азота и кислорода.

[0151] У этих элементов самое большое сечение возбуждения под действием нейтронов 14,1 МэВ имеет линия углерода 4439 кэВ, сечение возбуждения которой составляет 210 мб. Для сравнения, сечение линии кремния 1779 кэВ составляет 400 мб, а линия магния 1369 кэВ имеет сечение 425 мб. Отдельные линии железа, кальция и алюминия также обладают значительными сечениями возбуждения, что делает перспективным определение их концентраций.

[0152] Данные, приведенные в Таблицах 1-5, показывают, что ММН в целом правильно воспроизводит соотношение массовых долей различных элементов в исследуемых образцах.

[0153] Зная значения массовых долей элементов, можно по формулам (20)-(22) рассчитать концентрации соответствующих оксидов. В Таблице 6 приведены концентрации оксидов Si, Al, Fe, Mg, Ca и C, полученные для различных проб с использованием ДВИН-1, а также контрольные результаты силикатного анализа.

[Таблица 6]

| Образец    | SiO <sub>2</sub> , % | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , % | FeO <sub>общ</sub> , % | MgO, %    | CaO, %     | CO <sub>2</sub> , % |
|------------|----------------------|------------------------------------|------------------------|-----------|------------|---------------------|
| SE2843,CA  | 47,16±0,1            | 15,67±0,14                         | 11,69±0,06             | 6,66±0,08 | 10,97±0,11 | 0,44±0,07           |
| SE2843,ММН | 47,8±5,0             | 14,3±3,8                           | 12,9±2,8               | 9,7±1,5   | 13,3±6,4   | -                   |
| SE2850,CA  | 44,28±0,1            | 14,96±0,14                         | 13,62±0,06             | 6,84±0,08 | 17,18±0,11 | -                   |

| Образец    | SiO <sub>2</sub> , % | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , % | FeO <sub>общ</sub> , % | MgO, %    | CaO, %     | CO <sub>2</sub> , % |
|------------|----------------------|------------------------------------|------------------------|-----------|------------|---------------------|
| SE2850,ММН | 39,9±3,7             | 18,7±3,2                           | 13,9±2,1               | 5,2± 1,1  | 21,8±3,9   | 0,5±2,5             |
| SE2869,СА  | 2,29±0,1             | -                                  | -                      | 0,68±0,08 | 53,35±0,11 | 42,3±0,07           |
| SE2869,ММН | -                    | 4,8±1,8                            | -                      | -         | 47,4±2,8   | 47,2±2,5            |
| SE2801,СА  | 1,1±0,1              | -                                  | 0,12±0,06              | 0,65±0,08 | 54,4±0,11  | 42,98±0,07          |
| SE2801,ММН | -                    | -                                  | -                      | -         | 50,1±1,8   | 50,0±2,3            |
| SE2841,СА  | 4,95±0,1             | 0,5±0,14                           | 0,51±0,06              | 0,31±0,08 | 51,8±0,11  | 40,18±0,07          |
| SE2841,ММН | 7,0±1,7              | -                                  | -                      | -         | 47,3±3,5   | 43,2±2,9            |
| SE2840,СА  | 66,2±0,1             | 16,25±0,14                         | 4,65±0,06              | 1,87±0,08 | 3,02±0,11  | -                   |
| SE2840,ММН | 52,2±3,4             | 28,1±3,0                           | -                      | 2,8±1,3   | 8,6±3,0    | -                   |
| SE2870,СА  | 73,16±0,1            | 13,34±0,14                         | 2,79±0,06              | 0,81±0,08 | 2,38±0,11  | -                   |
| SE2870,ММН | 65,4±5,8             | 23,4±4,0                           | -                      | 4,2±1,3   | -          | 4,0±2,8             |
| SE2786,СА  | 73,13±0,1            | 14,06±0,14                         | 2,36±0,06              | 0,53±0,08 | 3,58±0,11  | 0,51±0,07           |
| SE2786,ММН | 62,7±4,3             | 19,8±2,9                           | 5,5±1,7                | 2,3±0,9   | 8,3±2,9    | -                   |
| SE2800,СА  | 62,31±0,1            | 17,05±0,14                         | 6,54±0,06              | 2,34±0,08 | 3,72±0,11  | -                   |
| SE2800,ММН | 54,5±3,9             | 21,0±2,8                           | 5,7±1,9                | 5,4±0,4   | 12,6±3,2   | -                   |

Концентрации оксидов в различных пробах, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1 (обозначаются ММН) и в результате выполнения силикатного анализа (СА). Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ. FeO<sub>общ</sub> представляет собой сумму вкладов оксидов железа FeO и 0,9Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

[0154] Сравнение данных по измерениям проб с использованием ДВИН-1 с контрольными результатами силикатного анализа показало в целом хорошую сопоставимость результатов. Для некоторых проб значения концентраций оксидов, полученных двумя методами ММН и СА, совпадали в пределах 3σ. В ряде проб отличия в концентрациях оксидов, полученных двумя методами ММН и СА, были более значимы. Это неудивительно, поскольку никакой пробоподготовки для измерений с ДВИН-1 не проводилось, в отличие от приготовления проб для силикатного анализа. Тем не менее, вопрос о величине систематических ошибок метода ММН потребовал отдельного изучения. Необходимо было выполнить многократные измерения сертифицированных образцов.

[0155] Результаты, приведенные в Таблицах 2-6, дают представление о точности измерений. Хотелось бы отметить, что для настоящего анализа использовались данные только для центрального меченого пучка. Если же брать результаты по всем 9 пучкам, то



ошибка определения концентрации уменьшается, в среднем, в два раза.

[0156] Основной результат проведенных испытаний состоит в том, что измерения по методу меченых нейтронов правильно воспроизвели все основные характеристики исследуемых пород. Так, измерения по ММН правильно воспроизвели элементный состав кальцитовых, доломитовых мраморов и кальцифиров (мраморов с примесью силикатных минералов): в кальцитовых мраморах фиксируются незначительные содержания Mg и Si, в доломитовых мраморах значительно снижается количество Ca и появляются значимые концентрации Mg, в кальцифирах наблюдается повышенное содержание Si (см. Таблицы 1-3). В амфиболитах содержание Si составляет 18-20%, фиксируются повышенные концентрации Fe, Mg, Ca, что характерно для пород основного состава (Таблица 5). В гнейсах содержание кремния выше, чем в амфиболитах (25-30% Si) при весьма низких концентрациях Ca и Mg (Таблица 4). Результаты ММН правильно показали отсутствие углерода в обеих группах силикатных пород.

[0157] Таким образом, результаты измерений в полевых условиях показали, что детекторы на основе ММН могут быть успешно использованы для определения Si, Al, Fe, Mg, Ca, C и их окислов в горных породах. Однако следует подчеркнуть, что метод ММН не обязательно служит альтернативой традиционным методам анализа, а может эффективно использоваться при необходимости оперативного определения элементного состава горных пород. Использование детекторов ММН позволяет в полевых условиях получить относительно точный результат после 15-20 минут облучения. Для повышения точности измерений методом ММН следует повысить длительность времени набора статистики событий, например, до 30-60 минут (1 часа) или более.

[0158] Востребованность экспресс-анализа состава горных пород наиболее вероятна при определении положения горных выработок (карьеры, шахты, штольни) на действующих и разведываемых месторождениях и рудопроявлениях.

[0159] Полученные методом ММН результаты по элементному составу различных групп горных пород полностью согласуются с выявленными минералого-петрографическими признаками.

[0160] Поскольку определение элементного состава горных пород с помощью ММН в полевых условиях проводилось впервые в мировой практике, несомненно, будут проведены дальнейшие исследования по отработке методики на эталонных образцах с известным содержанием компонентов. Целесообразно обратить особое внимание на определение содержаний рудных компонентов (S, Ni, Pb, Cu, Zn, Zr) для использования прибора в

геолого-разведочных работах.

[0161] Метод меченых нейтронов имеет хорошие перспективы для использования в геологической практике при анализе образцов пород. Преимуществом метода является его экспрессность, отсутствие требований для пробоподготовки, возможность определения элементного состава внутри породы на значительной толщине, возможность определения вариаций компонентов в объеме породы непосредственно на объектах разведки или добычи полезных ископаемых.

## **Экспериментальная часть В**

[0162] На фиг. 36 приведен еще один экспериментальный пример энергетического спектра образца апатит-нефелиновой руды и результата его аппроксимации, где также показаны вклады от спектров различных химических элементов.

[0163] Важным отличием предлагаемых в изобретении устройства и способа определения элементного состава образца, т.е. конкретных концентраций входящих в состав образца химических элементов, является особый отбор событий, использующий информацию о временном распределении событий альфа-гамма совпадений.

[0164] На фиг. 37 показаны примеры временных спектров альфа-гамма совпадений, получающихся при облучении образца апатит-нефелиновой руды. Они состоят из плато случайных совпадений и пика от гамма-квантов, возникающих при облучении образца мечеными нейтронами. В обычном методе нейтронно-активационного анализа (НАА) нет возможности разделить события от образца и от внешнего фона, поскольку информация о временном распределении событий отсутствует. В методе меченых нейтронов (ММН) можно выделить гамма-излучение только от ядер элементов самого образца. Поэтому для определения концентрации элементов в образце отбираются только события внутри интервала времени (временного окна), показанного на фиг. 37 двумя сплошными вертикальными линиями. В данном случае этот интервал составляет 6 нс. Этот прием особого отбора событий позволяет резко снизить уровень фона и лучше выделить полезный сигнал именно от исследуемого образца. Применение данного приема для апатит-нефелиновой руды позволило увеличить отношение сигнал/фон в 176 раз.

[0165] Помимо фона случайных совпадений имеется и так называемый корреляционный фон, который непосредственно связан с измеряемым объектом и обусловлен рассеянием нейтронов на веществе образца. Поскольку скорость полета нейтрона меньше скорости гамма-кванта, то во временном распределении пик от таких событий появляется при более поздних временах, чем пик от гамма-квантов характеристического излучения. Двугорбая

структура временного спектра хорошо видна на фиг. 37. Поэтому важной особенностью предлагаемого изобретения является алгоритм определения временного окна, внутри которого производится анализ энергетического спектра образца.

[0166] Другим важным отличием метода, как уже упоминалось выше, является использование быстрых нейтронов с энергией порядка 14 МэВ. Это дает возможность корректного определения массовой концентрации химических элементов в образцах большой крупности (например, 100-300 мм) и большой массы (например, несколько кг) без какой-либо пробоподготовки. С физической точки зрения этот результат закономерен: энергия нейтронов 14 МэВ вполне достаточна для того, чтобы возбудить ядра вещества толщиной 100-300 мм. Энергия гамма-квантов характеристического излучения также высока и составляет 0,5-7 МэВ. Это позволяет гамма-квантам достаточно свободно выходить из вещества образца и попадать в детектор гамма-излучения.

[0167] Более того, в предлагаемом изобретением устройстве и способе определения элементного состава образцов важную роль представляется калибровка спектров по энергиям. Она позволяет в автоматическом режиме вносить коррекцию в измеренные спектры зарегистрированного характеристического гамма-излучения при каждом измерении каждого образца. То есть, для каждого измерения амплитудные распределения приводятся к распределениям, полученным при некоторых фиксированных условиях. Тем самым существенно снижается систематическая ошибка и повышается стабильность измерений во времени.

[0168] Энергетическая калибровка проводится для каждого измерения. Для нее используются данные о положении 6 линий элементов, которые извлекаются из показанного на фиг. 37 временного окна спектра альфа-гамма совпадений. Для энергетической калибровки отбираются события, находящиеся вне показанного и выделенного вертикальными линиями на фиг. 37 пика от гамма-квантов от образца. По своей физической природе эти события чаще всего возникают при облучении нейтронами материала биологической защиты 6 нейтронного блока 1 (см. фиг. 3). Поскольку биологическая защита 6 всегда присутствует в процессе измерений, наличие 6 реперных линий всегда гарантировано.

[0169] Для получения значения массовой концентрации химического элемента в образце большой массы и большой крупности (до размера 300 мм) проводится двойное преобразование полученного значения аналитического сигнала устройства по изобретению. Рассмотрим это на примере определения пятиоксида фосфора в апатит-

нефелиновой руде. Соответствующий график корреляционной связи показан на фиг. 38.

[0170] Пробу весом 5 кг и крупностью -100 мм, непосредственно взятая из карьера, без какой-либо пробоподготовки, измеряли на устройстве по изобретению. Затем пробу дробили до крупности -3 мм и их сигналы сравнивали. На основе этих данных была получена зависимость №1:

$$[\text{Математическая формула 24}] Y - 3mm = a1 + b1 \cdot X - 100mm$$

[0171] Аналитический сигнал от образцов малой крупности (-3 мм), измеренных на устройстве по изобретению, сравнивали с контрольными результатами химического анализа данных образцов. На основе этих данных была построена градуировочная зависимость №2:

$$[\text{Математическая формула 25}] Y_{XA} = a2 + b2 \cdot X - 3mm$$

[0172] Пример такой градуировочной зависимости показан на фиг. 39.

[0173] Зная коэффициенты в уравнениях типа (23) и (24), можно провести определение концентрации химических элементов в любом образце руды необходимой массы и крупности.

[0174] В этом конкретном варианте воплощения изобретения относительная точность определения концентрации пятиокси фосфора в апатит-нефелиновой руде была меньше 5% на уровне достоверности  $P=0,95$ . При этом следует отметить, что точность определения можно при необходимости повысить путем увеличения времени измерений (длительности набора статистики событий), числа гамма-детекторов и повышения интенсивности нейтронного генератора.

## **Экспериментальная часть Г**

### **1. Разложение спектров оксидов на элементы**

[0175] На фиг. 40 приведен спектр гамма-квантов от облучения образца  $Al_2O_3$  быстрыми мечеными нейтронами, где экспериментальные данные показаны крестиками, а сплошной линией показан результат фита. Штриховая линия отражает вклад спектра кислорода, штрихпунктирная линия с двумя точками – вклад спектра алюминия. Фит определил долю атомов алюминия  $n_{Al} = 0,4 \pm 0,002$  и долю атомов кислорода  $n_O = 0,6 \pm 0,003$ . Это хорошо согласуется с химической формулой оксида алюминия.

[0176] Стоит отметить, что настройка сечений алюминия выполнялась по образцу из химически чистого алюминия, поэтому правильное разложение спектра оксида алюминия на элементы является проверкой метода в целом.

[0177] На фиг. 41 приведен спектр гамма-квантов от облучения образца  $\text{CaCO}_3$  быстрыми нейтронами, где экспериментальные данные показаны крестиками, сплошной линией показан результат фита, штриховая линия показывает вклад кислорода, пунктирная линия – вклад углерода, штрихпунктирная линия с двумя точками – вклад кальция. Фит определил долю атомов кальция  $n_{\text{Ca}} = 0,206 \pm 0,001$ , долю атомов углерода  $n_{\text{C}} = 0,196 \pm 0,002$  и долю атомов кислорода  $n_{\text{O}} = 0,597 \pm 0,003$ . Видно, что соотношения между атомами Ca и C воспроизводятся очень хорошо, тогда как вклад атомов кислорода несколько недооценен, на величину меньше двух статистических ошибок.

[0178] Аналогичное разложение спектра ацетона  $\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$  привело к следующему соотношению между атомами C и O: доля атомов углерода  $n_{\text{C}} = 0,732 \pm 0,005$  и доля атомов кислорода  $n_{\text{O}} = 0,237 \pm 0,002$ .

## 2. Определение элементного состава горных пород

[0179] Для определения элементного состава веществ, состоящих из нескольких элементов, были изучены 8 геологических проб с известным элементным составом, взятых в ходе работ на Ольхонском геодинамическом полигоне. Пробы представляли собой порошок в картонных конвертах. Масса отдельной пробы составляла от 300 до 600 г. Время измерения проб составляло 30 мин. Специфика контрольного химического анализа в данном случае состояла в том, что определялись относительные концентрации оксидов, а не первичных элементов. Поэтому мы использовали два способа представления результатов: сравнение концентраций элементов и сравнение концентраций оксидов.

### 2.1. Сравнение концентраций оксидов

[0180] Для сравнения с данными контрольного химического анализа проб, которые были представлены в виде процентного содержания различных оксидов, был применен метод построения калибровочных кривых. Пример таких кривых приведен на фиг. 42 и фиг. 43.

[0181] Каждое из 8 измерений на этих графиках представлено в виде точки, абсцисса которой соответствует значению параметра фита (атомарной концентрации элемента), а ордината – значению массовой концентрации оксидов, определенному с помощью контрольного химического анализа. Видно, что результаты всех измерений с хорошей точностью ложатся на прямые линии. Отклонения отдельных измерений от прямой линии не превышают 1-2%. Это указывает на то, что процедура фитирования правильно определяет иерархию содержания данного элемента в исследуемом образце.

[0182] Величины относительных концентраций различных оксидов, пересчитанные с

помощью калибровочных кривых, приведены в Таблице 7.

[0183] Здесь для каждого образца приведено два значения. Первое значение, считающееся без экспериментальных ошибок, соответствует контрольному результату химического анализа. Второе значение, помеченное ММН, соответствует результату измерений способом по изобретению. Видно, что по всем элементам имеется хорошее согласие, результаты измерений методом ММН отличаются от контрольных результатов химического анализа не более, чем на 1-2%.

## 2.2. Сравнение концентраций различных элементов

[0184] Исходными величинами, определяемыми в результате фитирования, являются относительные атомные концентрации отдельных элементов. Их величины приведены в Таблице 8. В первой строке этой таблицы приведены контрольные результаты химического анализа, пересчитанные в концентрации элементов, во второй строке – результаты, полученные способом по изобретению с помощью ММН без учета калибровки, а в третьей строке – результаты, полученные способом по изобретению с помощью ММН с учетом калибровки.

[0185] Видно, что результаты, полученные способом по изобретению методом ММН с калибровкой, находятся ближе к контрольным результатам химического анализа. Однако данные, полученные при непосредственном фитировании, вполне удовлетворительно описывают общее соотношение между элементами в образцах.

[0186] Точность определения элементного состава находится на уровне 1-1,5% для концентраций элементов на уровне 0,2-0,5.

[Таблица 7]:

|                                    | SiO <sub>2</sub> | MgO             | FeO             | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | CaO             | CO <sub>2</sub> |   |
|------------------------------------|------------------|-----------------|-----------------|--------------------------------|-----------------|-----------------|---|
| 13A142 габбро флогопитовое         | 0,5431           | 0,0536          | 0,07851         | 0,167                          | 0,0984          | 0,0006          |   |
| ММН                                | 0,527<br>0,007   | ±0,046<br>0,004 | ±0,071<br>0,006 | ±0,186<br>0,006                | ±0,065<br>0,008 | ±0,005<br>0,005 | ± |
| 13A243 габбро метасоматизированное | 0,4698           | 0,0657          | 0,06847         | 0,1852                         | 0,1734          | 0,0007          |   |
| ММН                                | 0,471<br>0,007   | ±0,077<br>0,004 | ±0,058<br>0,006 | ±0,171<br>0,007                | ±0,169<br>0,009 | ±0,013<br>0,006 | ± |
| 13A254 габбро метасоматизированное | 0,4678           | 0,0548          | 0,04218         | 0,2142                         | 0,1882          | 0,0068          |   |

|                               | SiO <sub>2</sub> | MgO           | FeO           | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | CaO           | CO <sub>2</sub> |  |
|-------------------------------|------------------|---------------|---------------|--------------------------------|---------------|-----------------|--|
| MMH                           | 0,466 ± 0,005    | 0,068 ± 0,003 | 0,039 ± 0,004 | 0,191 ± 0,005                  | 0,200 ± 0,007 | 0,000 ± 0,004   |  |
| AS229C трахидолерит           | 0,4778           | 0,0537        | 0,13352       | 0,1444                         | 0,0965        | 0,0011          |  |
| MMH                           | 0,483 ± 0,006    | 0,037 ± 0,003 | 0,139 ± 0,005 | 0,155 ± 0,005                  | 0,103 ± 0,007 | 0,017 ± 0,004   |  |
| SE2536A метапорфирит          | 0,5046           | 0,0383        | 0,12586       | 0,1435                         | 0,0793        | 0,0013          |  |
| MMH                           | 0,530 ± 0,005    | 0,051 ± 0,003 | 0,128 ± 0,004 | 0,163 ± 0,005                  | 0,075 ± 0,007 | 0,000 ± 0,004   |  |
| SE2699C кальцифир             | 0,138            | 0,2147        | 0,00885       | 0,0464                         | 0,3111        | 0,2291          |  |
| MMH                           | 0,127 ± 0,003    | 0,214 ± 0,002 | 0,022 ± 0,003 | 0,037 ± 0,003                  | 0,326 ± 0,005 | 0,214 ± 0,003   |  |
| SE2357-6 кальцитовый мрамор-1 | 0,0467           | 0,0265        | 0,00362       | 0,0015                         | 0,5138        | 0,3379          |  |
| MMH                           | 0,050 ± 0,003    | 0,022 ± 0,003 | 0,011 ± 0,004 | 0,001 ± 0,023                  | 0,514 ± 0,008 | 0,338 ± 0,006   |  |
| SE2365A кальцитовый мрамор-2  | 0,009            | 0,0016        | 0,0038        | 0,0025                         | 0,5502        | 0,3379          |  |
| MMH                           | 0,010 ± 0,002    | 0,000 ± 0,003 | 0,000 ± 0,005 | 0,006 ± 0,004                  | 0,530 ± 0,008 | 0,361 ± 0,005   |  |

Массовые доли оксидов согласно химическому анализу и определенные по изобретению в результате фитирования. Для каждого образца в первой строке приведены результаты химического анализа, во второй строке – результаты, полученные способом по изобретению с помощью ММН. В качестве кальцифира был форстерит-шпинелевый кальцифир с тажеранитом. Кальцитовый мрамор-1 – образец кальцитового мрамора с форстеритом и графитом. Кальцитовый мрамор-2 – образец кальцитового мрамора с графитом.

[Таблица 8]

|        | Si          | Mg          | Fe          | Al          | Ca          | Ti          | C           | O           |
|--------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| 13A142 | 0,266       | 0,034       | 0,064       | 0,093       | 0,074       | 0,006       | 0,000       | 0,459       |
| raw    | 0,236±0,003 | 0,020±0,001 | 0,059±0,003 | 0,093±0,003 | 0,042±0,006 | 0,034±0,005 | 0,011±0,002 | 0,505±0,005 |

|             | Si              | Mg              | Fe              | Al              | Ca              | Ti              | C               | O               |
|-------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| calib       | 0,258±<br>0,004 | 0,028±<br>0,002 | 0,058±<br>0,005 | 0,103±<br>0,004 | 0,045±<br>0,007 | 0,026±<br>0,009 | 0,001±<br>0,002 | 0,476±<br>0,005 |
| 13A243      | 0,226           | 0,0407          | 0,055           | 0,101           | 0,127           | 0,004           | 0,000           | 0,443           |
| raw         | 0,208±<br>0,003 | 0,031±<br>0,001 | 0,050±<br>0,003 | 0,085±<br>0,004 | 0,112±<br>0,006 | 0,011±<br>0,007 | 0,013±<br>0,002 | 0,489±<br>0,005 |
| calib       | 0,230±<br>0,003 | 0,048±<br>0,003 | 0,047±<br>0,005 | 0,095±<br>0,005 | 0,126±<br>0,008 | 0,002±<br>0,008 | 0,003±<br>0,002 | 0,466±<br>0,005 |
| 13A254      | 0,223           | 0,034           | 0,033           | 0,116           | 0,137           | 0,002           | 0,002           | 0,449           |
| raw         | 0,206±<br>0,003 | 0,028±<br>0,001 | 0,040±<br>0,003 | 0,093±<br>0,003 | 0,133±<br>0,004 | 0,002±<br>0,005 | 0,009±0,0<br>01 | 0,489±0,0<br>04 |
| calib       | 0,229±0,0<br>03 | 0,042±0,0<br>02 | 0,032±0,0<br>05 | 0,104±0,0<br>04 | 0,150±0,0<br>06 | 0,000±0,0<br>06 | 0,000±0,0<br>01 | 0,466±0,0<br>04 |
| AS229<br>C  | 0,236           | 0,034           | 0,110           | 0,081           | 0,073           | 0,026           | 0,000           | 0,435           |
| raw         | 0,209±0,0<br>03 | 0,016±0,0<br>01 | 0,096±0,0<br>03 | 0,075±0,0<br>03 | 0,067±0,0<br>06 | 0,040±0,0<br>04 | 0,014±0,0<br>01 | 0,483±0,0<br>04 |
| calib       | 0,236±0,0<br>03 | 0,022±0,0<br>02 | 0,115±0,0<br>06 | 0,086±0,0<br>03 | 0,076±0,0<br>07 | 0,034±0,0<br>09 | 0,005±0,0<br>01 | 0,469±0,0<br>04 |
| SE2536<br>A | 0,255           | 0,025           | 0,106           | 0,082           | 0,061           | 0,021           | 0,000           | 0,445           |
| raw         | 0,233±0,0<br>03 | 0,022±0,0<br>01 | 0,092±0,0<br>03 | 0,080±0,0<br>03 | 0,049±0,0<br>04 | 0,016±0,0<br>05 | 0,007±0,0<br>01 | 0,501±0,0<br>04 |
| calib       | 0,259±0,0<br>04 | 0,032±0,0<br>02 | 0,107±0,0<br>06 | 0,090±0,0<br>04 | 0,054±0,0<br>06 | 0,007±0,0<br>07 | 0,000±0,0<br>01 | 0,479±0,0<br>04 |
| SE2699<br>C | 0,067           | 0,136           | 0,007           | 0,026           | 0,233           | 0,000           | 0,066           | 0,460           |
| raw         | 0,056±0,0<br>01 | 0,085±0,0<br>01 | 0,031±0,0<br>03 | 0,019±0,0<br>01 | 0,231±0,0<br>04 | 0,012±0,0<br>02 | 0,079±0,0<br>01 | 0,487±0,0<br>05 |
| calib       | 0,063±0,0<br>02 | 0,135±0,0<br>03 | 0,017±0,0<br>05 | 0,021±0,0<br>02 | 0,250±0,0<br>07 | 0,002±0,0<br>04 | 0,063±0,0<br>01 | 0,443±0,0<br>05 |
| SE2357<br>6 | 0,023           | 0,017           | 0,003           | 0,001           | 0,393           | 0,000           | 0,099           | 0,459           |



|        | Si        | Mg        | Fe        | Al        | Ca        | Ti        | C         | O         |
|--------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| raw    | 0,019±0,0 | 0,012±0,0 | 0,025±0,0 | 0,001±0,0 | 0,361±0,0 | 0,002±0,0 | 0,118±0,0 | 0,460±0,0 |
|        | 01        | 01        | 03        | 12        | 06        | 05        | 02        | 06        |
| calib  | 0,025±0,0 | 0,014±0,0 | 0,009±0,0 | 0,002±0,0 | 0,396±0,0 | 0,000±0,0 | 0,099±0,0 | 0,422±0,0 |
|        | 02        | 02        | 05        | 13        | 10        | 06        | 02        | 05        |
| SE2365 | 0,005     | 0,001     | 0,003     | 0,001     | 0,432     | 0,000     | 0,101     | 0,451     |
| A      |           |           |           |           |           |           |           |           |
| raw    | 0,001±0,0 | 0,002±0,0 | 0,014±0,0 | 0,003±0,0 | 0,377±0,0 | 0,010±0,0 | 0,127±0,0 | 0,466±0,0 |
|        | 01        | 01        | 03        | 01        | 06        | 05        | 02        | 05        |
| calib  | 0,006±0,0 | 0,000±0,0 | 0,000±0,0 | 0,004±0,0 | 0,409±0,0 | 0,000±0,0 | 0,105±0,0 | 0,423±0,0 |
|        | 02        | 02        | 05        | 02        | 10        | 06        | 02        | 05        |

Относительные атомные концентрации согласно химическому анализу и полученные способом по изобретению методом ММН в результате фитирования. Для каждого образца в первой строке приведены контрольные результаты химического анализа, во второй строке – результаты, полученные способом по изобретению с помощью ММН без учета калибровки (обозначены «raw»), в третьей строке – результаты, полученные способом по изобретению с помощью ММН с учетом калибровки (обозначены «calib»).

[0187] Следовательно, предложенные в изобретении устройство и способ определения элементного состава образцов самых различных материалов методом меченых нейтронов были успешно опробованы на практике. В частности, сравнение полученных методом ММН результатов определения элементного состава горных пород с контрольными значениями согласно данным химического анализа показывает, что эти значения находятся в хорошем согласии с учетом статистических погрешностей.

[0188] Таким образом, этап предварительной настройки и градуировки устройства по изобретению в способе по изобретению может предпочтительно включать в себя следующие стадии:

(0-1) измеряют энергетические спектры отдельных химических элементов, которые предположительно присутствуют в образце и массовые концентрации которых предполагается оценить, с целью экспериментального определения парциальных сечений образования гамма-квантов с набором определенных энергий для каждого отдельного химического элемента;

(0-2) описывают энергетический спектр гамма-квантов, полученный в результате облучения образца быстрыми нейтронами, в виде функционала, представляющего собой

сумму трех слагаемых: функции, описывающей набор химических элементов, входящих в состав образца и соответствующих их спектрам отдельных гамма-линий; функции, описывающей континуум гамма-спектра; и функции, описывающей фоновый спектр событий, зарегистрированных гамма-детекторами;

(0-3) параметризуют энергетическую зависимость отклика гамма-детектора в соответствии с результатами моделирования методом Монте-Карло;

(0-4) определяют континуум в непрерывном спектре гамма-квантов от каждого отдельного химического элемента как разность между измеренным экспериментальным спектром и суммой вкладов от спектров дискретных линий;

(0-5) проводят двойное преобразование полученного значения аналитического сигнала устройства для данного химического элемента (или его оксида) с получением значения массовой концентрации химического элемента в образце большой массы и большой крупности (до размера 300 мм);

(0-6) сравнивают аналитический сигнал устройства от образца большой массы и большой крупности с аналитическим сигналом устройства от того же образца, раздробленного до малой крупности, в результате чего получают зависимость №1 корреляционной связи этих сигналов;

(0-7) сравнивают аналитический сигнал от образца малой крупности с контрольными результатами химического анализа, в результате чего получают градуировочную зависимость №2 для образца малой крупности; и

(0-8) получают в результате преобразования зависимостей №1 и №2 градуировочную зависимость для образца большой крупности.

[0189] Предшествующее описание было приведено в виде различных вариантов воплощения или реализации настоящего изобретения. При этом следует понимать, что в такие варианты специалистом могут быть внесены многочисленные и различные модификации и изменения без отклонения от сущности настоящего изобретения, которая определяется исключительно прилагаемой формулой изобретения.

[0190] Так, например, конструктивный элемент устройства или этап способа, упомянутый здесь в единственном числе, следует понимать как не исключающий возможности наличия множественных элементов или этапов, если такое исключение не указано в явном виде или не следует из контекста. Кроме того, ссылки на «вариант воплощения» или «вариант реализации» не должны интерпретироваться как исключающие существование других вариантов, которые также включают в себя указанные признаки. Кроме того, если явно не

указано иное, варианты, «включающие в себя», «содержащие» или «имеющие» некий элемент или множество элементов с неким конкретным свойством или признаком, могут включать в себя дополнительные элементы независимо от того, обладают ли они этим свойством или признаком.

[0191] Следует также отметить, что конкретная компоновка конструктивных элементов устройства по изобретению (например, их число, типы, размещение и т.п.) или конкретная последовательность этапов способа в проиллюстрированных вариантах воплощения может быть изменена на другие в различных альтернативных вариантах воплощения. В различных вариантах воплощения могут использоваться разные количества некоего данного модуля или блока, может использоваться другой тип или типы некоего данного модуля или блока, некий данный модуль или блок может быть добавлен, или же некий данный модуль или блок может быть исключен.

[0192] Следует четко понимать, что вышеприведенное описание предназначено для иллюстрации настоящего изобретения, а не для ограничения объема его охраны. Например, вышеописанные варианты воплощения (и/или их признаки) могут использоваться в любой комбинации друг с другом. В дополнение к этому могут быть проделаны многочисленные модификации для адаптации одного конкретного варианта воплощения к сведениям из различных других вариантов воплощения без отступления от объема охраны изобретения. Размеры, типы, ориентации, число и положения различных описанных здесь конструктивных элементов предназначены характеризовать параметры считающихся предпочтительными в настоящее время вариантов воплощения и являются ни в коем случае не ограничивающими, а просто примерными вариантами. После рассмотрения вышеприведенного описания специалисту в данной области техники станут очевидными многочисленные другие варианты и модификации изобретения в рамках сущности и объема охраны изобретения. Следовательно, объем охраны должен определяться с учетом лишь формулы изобретения, наряду с полным объемом эквивалентов, на которые эта формула изобретения дает право.

[0193] В настоящем описании и формуле изобретения термины «включающий», «включающий в себя», «содержащий», «имеющий», «снабженный» и другие их грамматические формы не предназначены для истолкования в исключительном смысле, а, напротив, используются в неисключительном смысле (т.е. в смысле «имеющий в своем составе»). В качестве исчерпывающего перечня следует рассматривать только выражения типа «состоящий из». Кроме того, термины «первый», «второй» и «третий» и т.д.

используются просто как условные маркеры, не накладывая каких-либо численных или иных ограничений на перечисляемые объекты.

**Перечень ссылочных обозначений на чертежах:**

[0194]

- 1 – нейтронный блок
- 2 – блок гамма-детекторов
- 3 – система анализа данных
- 4 – рабочее место оператора
- 5 – гамма-детекторы
- 6 – биологическая защита
- 7 – приемный сосуд
- 8 – нейтронный генератор со встроенным альфа-детектором
- 9 – конвейер подачи образцов

## Формула

[Пункт 1] Устройство для определения элементного состава образцов твердых или жидких материалов, содержащее нейтронный блок, выполненный с приемным сосудом для размещения в нем исследуемого образца материала и снабженный:

- (а) нейтронным генератором, предназначенным для генерации потока меченых нейтронов и альфа-частиц, при этом в нейтронный генератор встроены альфа-детектор;
- (b) детекторами гамма-излучения, предназначенными для регистрации спектров характеристического гамма-излучения, возникающего при облучении образца материала потоком меченых нейтронов; и
- (с) системой анализа данных, предназначенной для сбора и анализа данных, получаемых от альфа-детектора нейтронного генератора и детекторов гамма-излучения;
- (d) биологической защитой нейтронного блока, обеспечивающей безопасную работу обсуживающего персонала,

при этом система анализа данных выполнена с возможностью определения элементного состава образца материала с использованием только гамма-квантов, попадающих в выбранный временной интервал временного спектра альфа-гамма совпадений и соответствующих образцу материала, и с использованием другой части временного спектра альфа-гамма совпадений для энергетической калибровки полученных спектров гамма-излучения при каждом измерении каждого образца.

[Пункт 2] Устройство по п. 1, в котором нейтронный генератор в нейтронном блоке расположен под исследуемым образцом материала, а детекторы гамма-излучения расположены в нейтронном блоке над исследуемым образцом материала.

[Пункт 3] Устройство по п. 1, в котором нейтронный генератор в нейтронном блоке расположен над исследуемым образцом материала, а детекторы гамма-излучения расположены в нейтронном блоке под исследуемым образцом материала.

[Пункт 4] Устройство по п. 1, в котором нейтронный генератор расположен с первой боковой стороны от исследуемого образца материала, а детекторы гамма-излучения расположены со второй, противоположной первой боковой стороны от исследуемого образца материала.

[Пункт 5] Устройство по п. 1, в котором поток меченых нейтронов в нейтронном блоке имеет форму усеченной пирамиды, и, соответственно, приемный сосуд для размещения исследуемого образца материала тоже имеет форму усеченной пирамиды.

[Пункт 6] Устройство по п. 1, которое дополнительно содержит систему подачи образца материала в приемный сосуд, например, конвейер для поочередной подачи исследуемых образцов материала.

[Пункт 7] Устройство по п. 1, в котором нейтронный блок предназначен для генерации потока меченых нейтронов и альфа-частиц при ускорении дейтронов и взаимодействии их с тритиевой мишенью за счет осуществления следующей бинарной реакции:

где  $d$  – дейтрон,  $t$  – тритон,  $\alpha$  – альфа-частица,  $n$  – нейтрон.  

$$d + t(3,5\text{МэВ}) \rightarrow \alpha + n(14,1\text{МэВ})$$

[Пункт 8] Устройство по п. 1, которое предназначено для определения элементного состава образцов горючих пород, руд или рудных материалов.

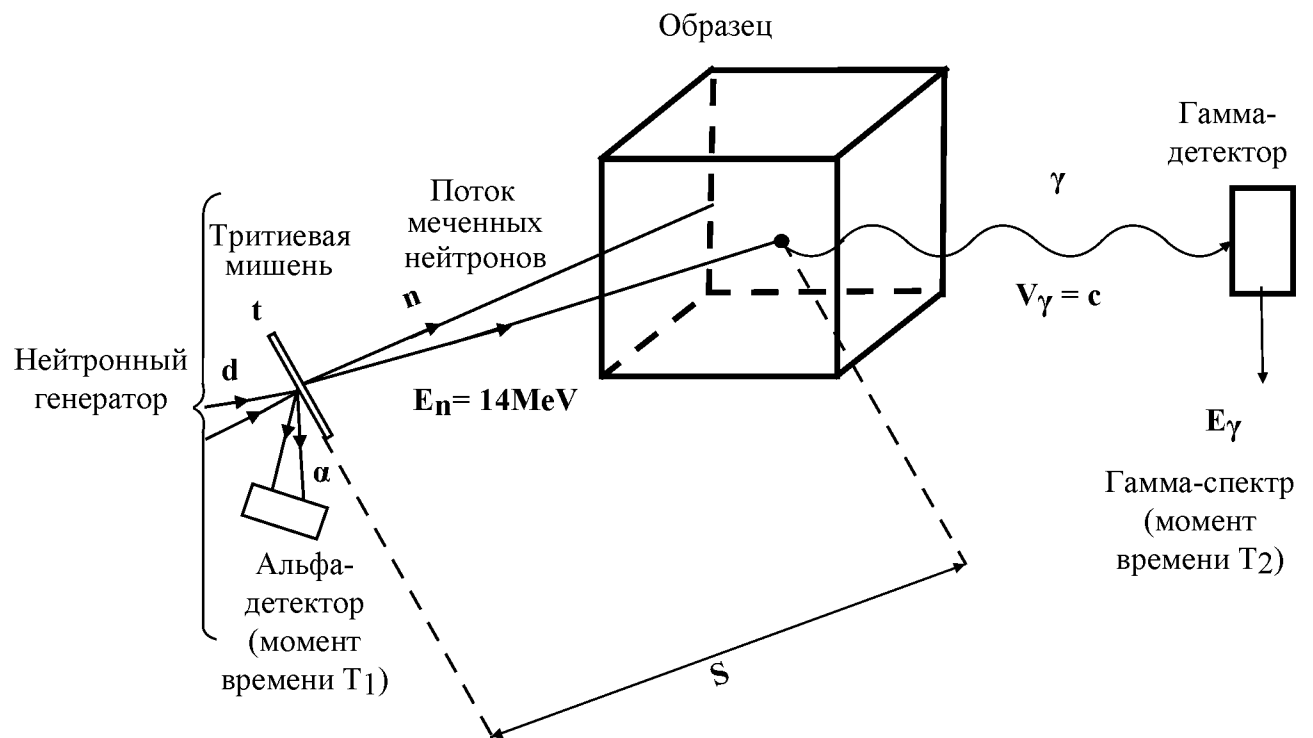
[Пункт 9] Устройство по п. 1, в котором выбранный временной интервал составляет порядка 1-100 наносекунд.

[Пункт 10] Способ определения элементного состава образцов твердых или жидких материалов, осуществляемый с использованием устройства по любому из пунктов 1-9, включающий следующие этапы:

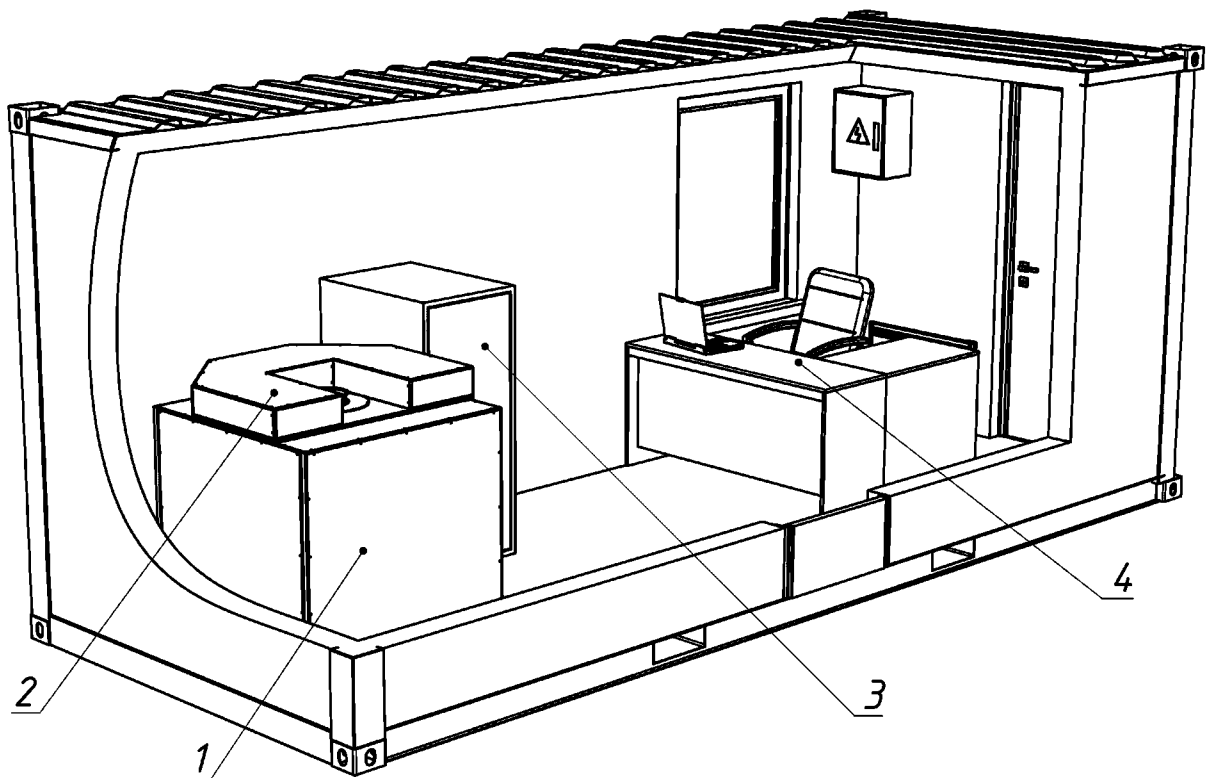
- (а) помещение исследуемого образца материала в приемный сосуд;
- (б) облучение образца материала потоком быстрых меченых нейтронов;
- (в) регистрация спектров характеристического гамма-излучения, возникающего при облучении упомянутого образца потоком быстрых меченых нейтронов на этапе (б);
- (г) анализ спектров характеристического гамма-излучения, зарегистрированных от упомянутого образца на этапе (в), с определением элементного состава образца, при этом для определения элементного состава образца используют только гамма-кванты, попадающие в выбранный временной интервал временного спектра альфа-гамма совпадений и соответствующие образцу материала, а другую часть временного спектра альфа-гамма совпадений используют для энергетической калибровки полученных спектров гамма-излучения при каждом измерении каждого образца.

[Пункт 11] Способ по п. 10, дополнительно включающий этап предварительной настройки и градуировки устройства перед этапом (а).

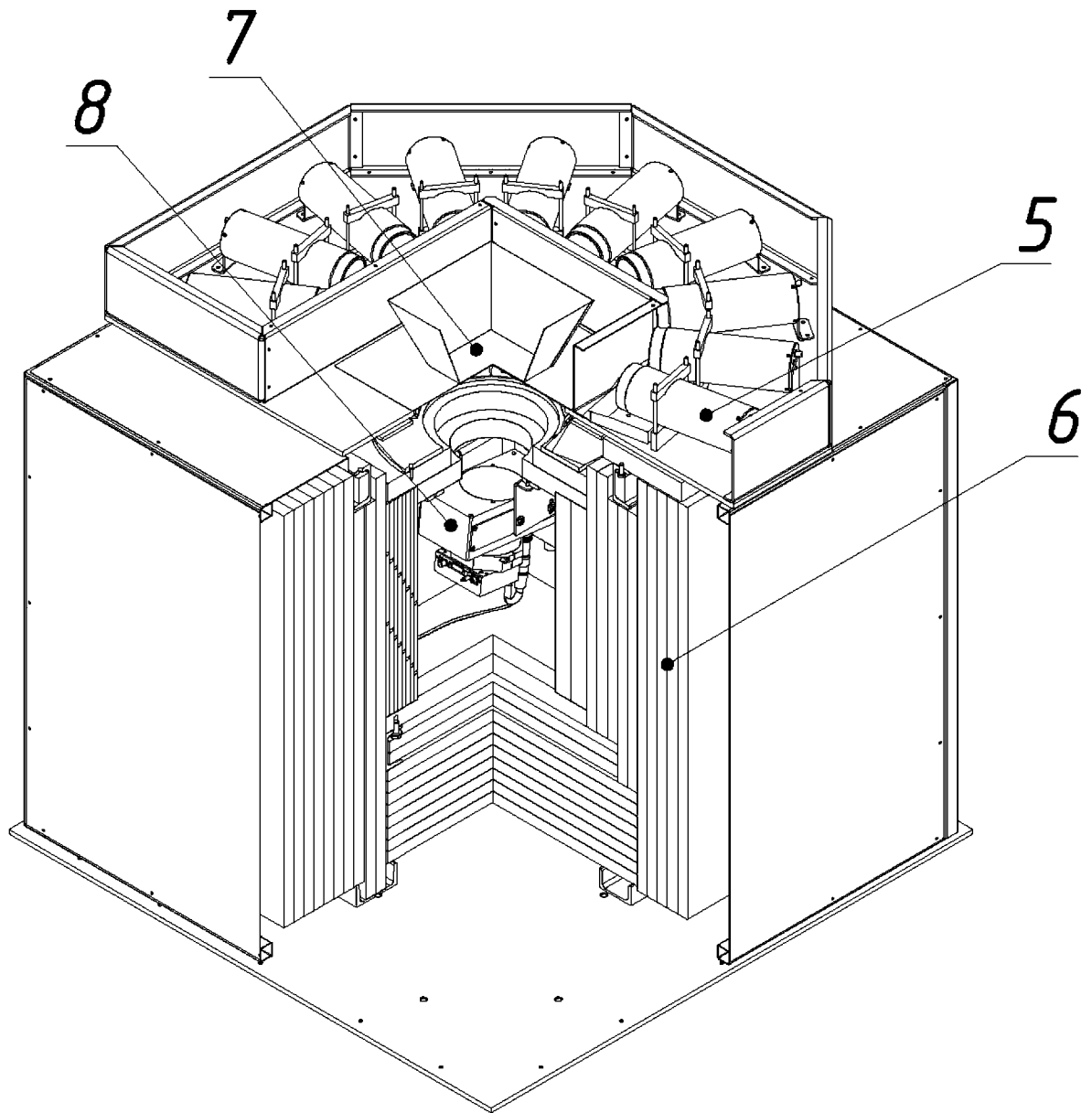
Фиг. 1



Фиг. 2

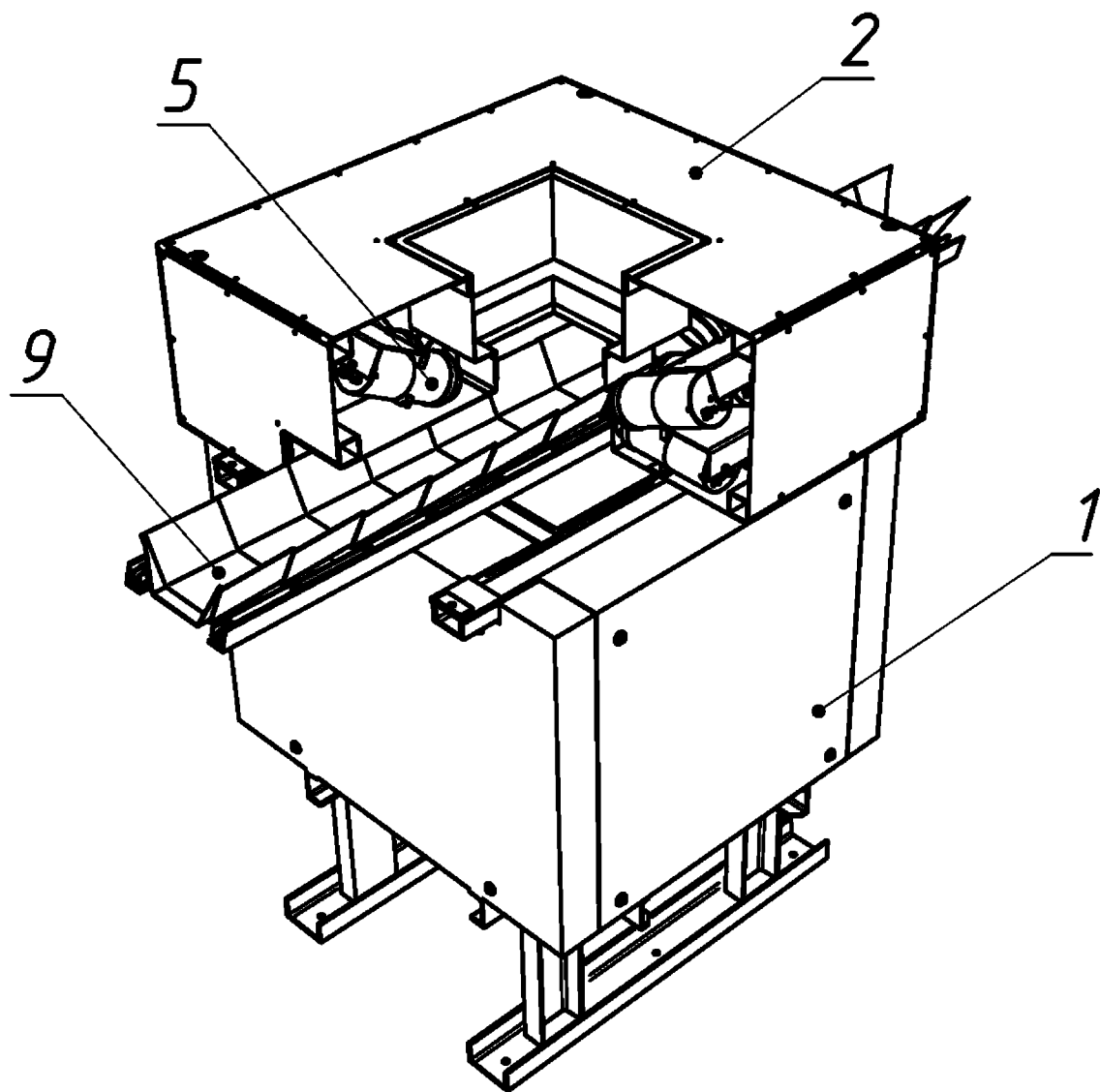


Фиг. 3



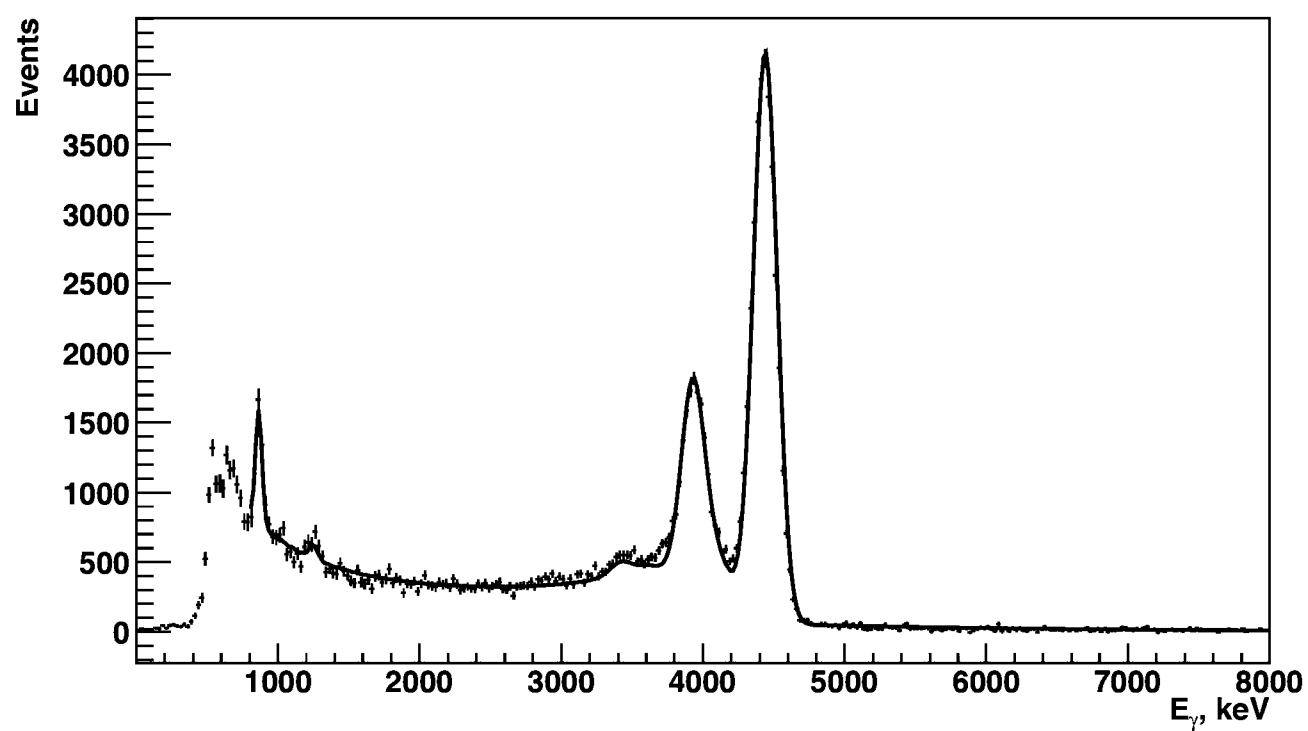


Фиг. 4

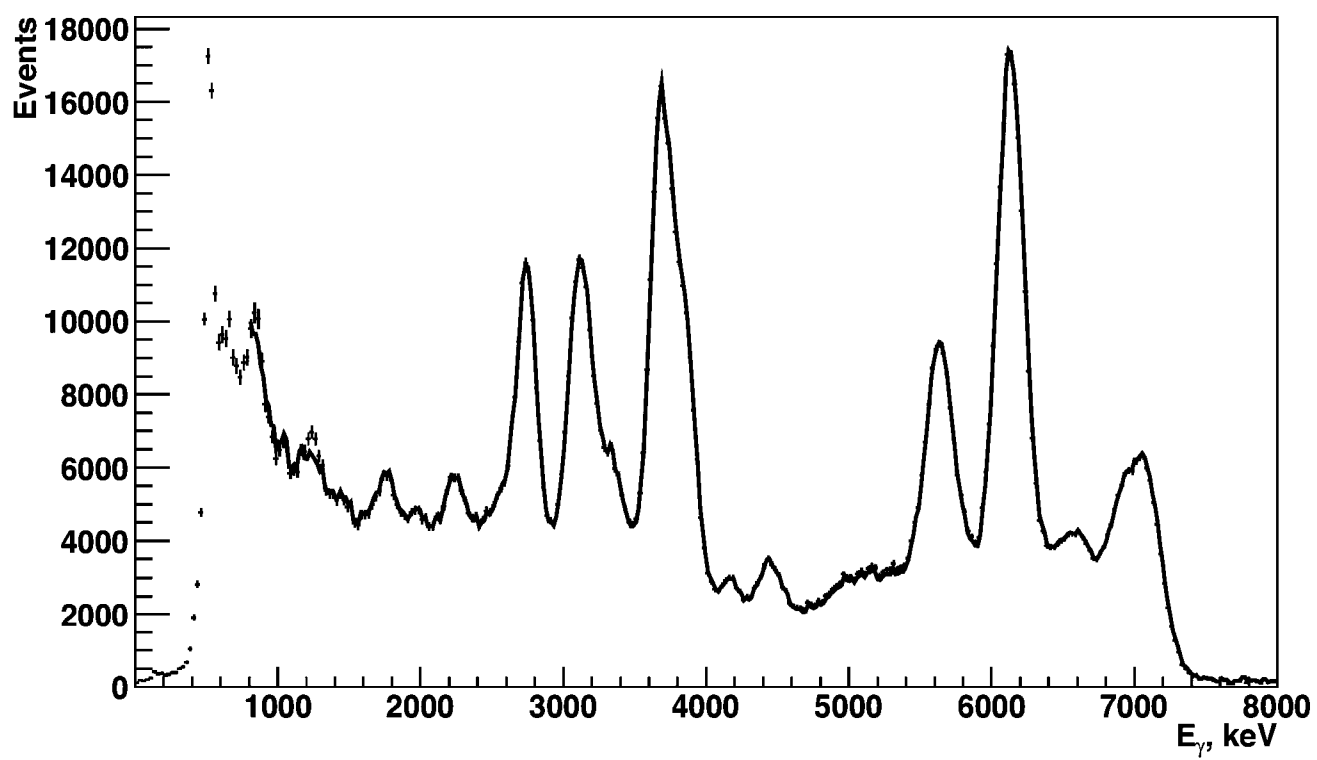


Фиг. 5

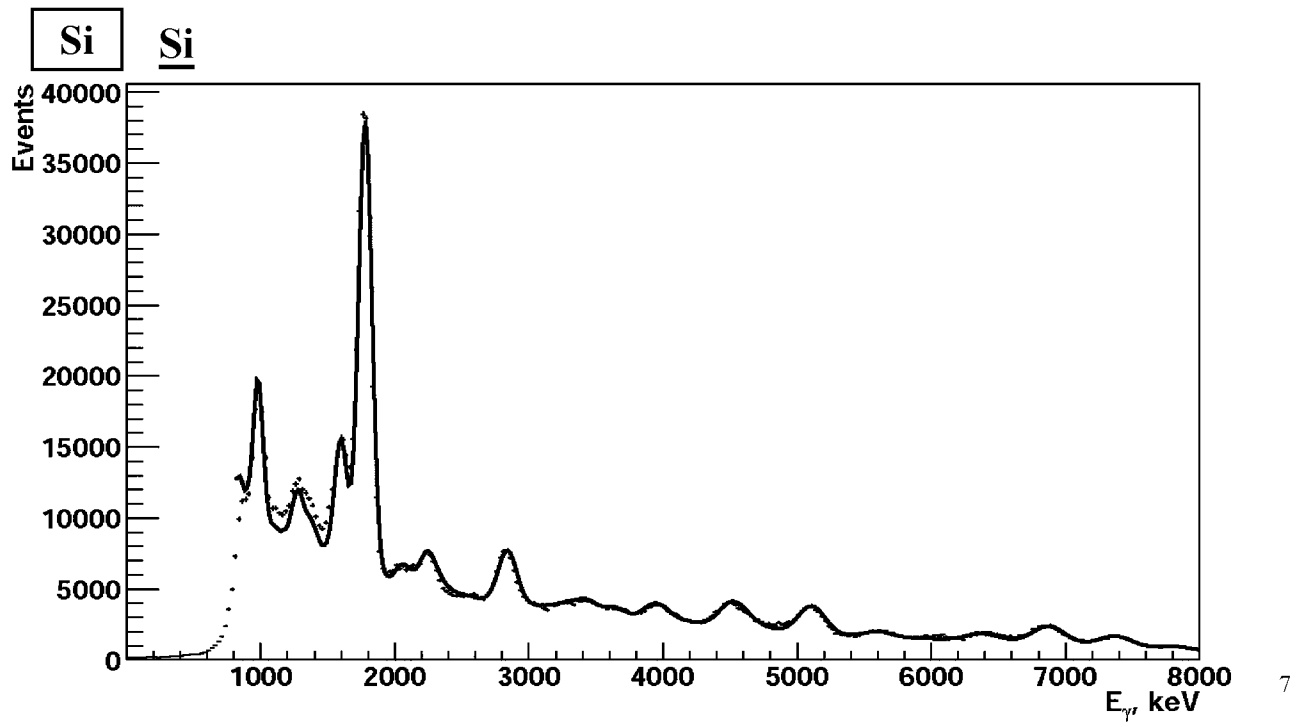
C



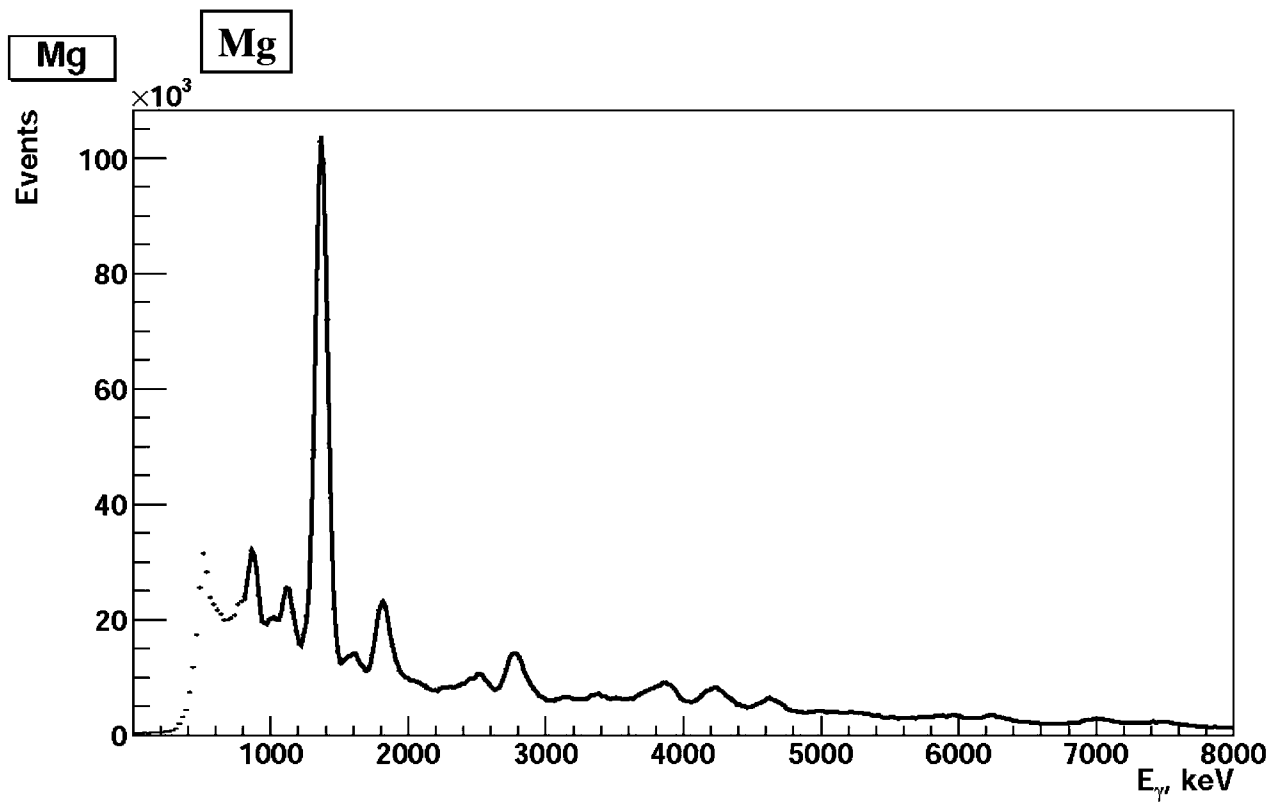
Фиг. 6

H<sub>2</sub>O

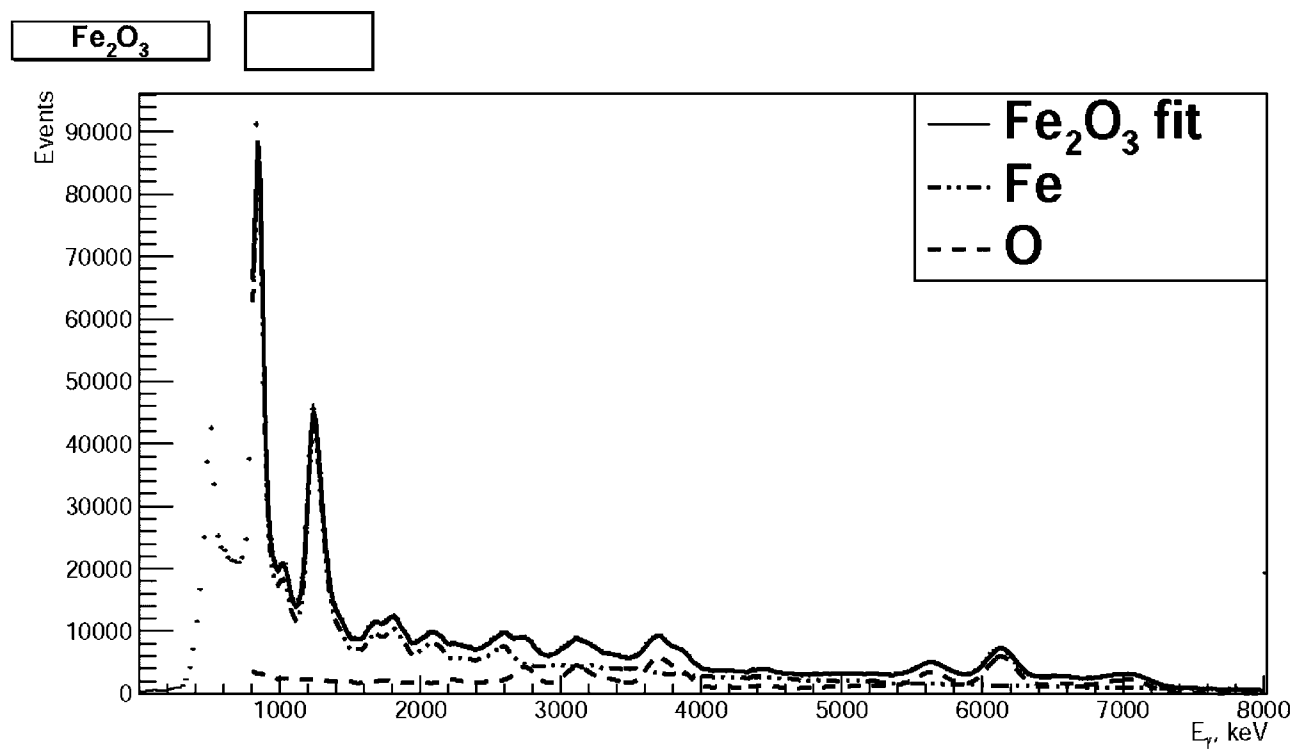
Фиг. 7



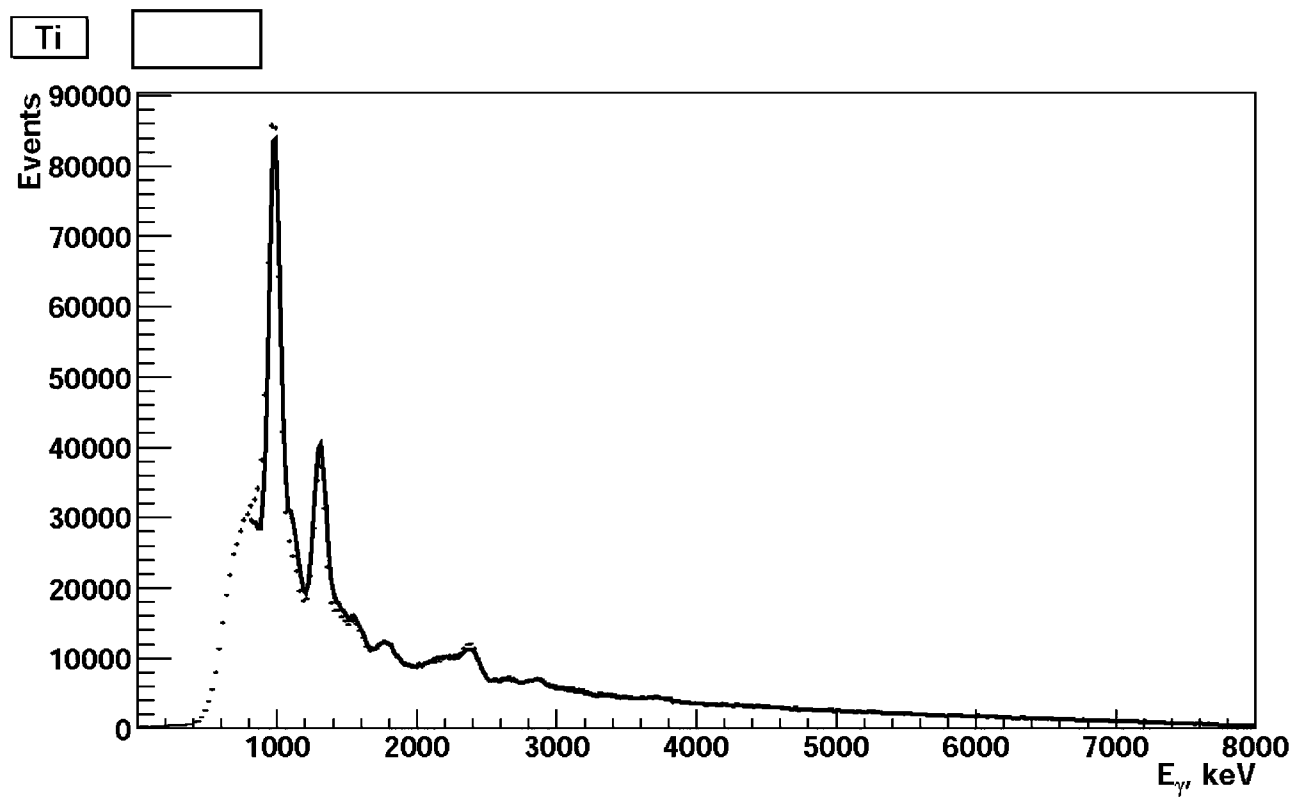
Фиг. 8



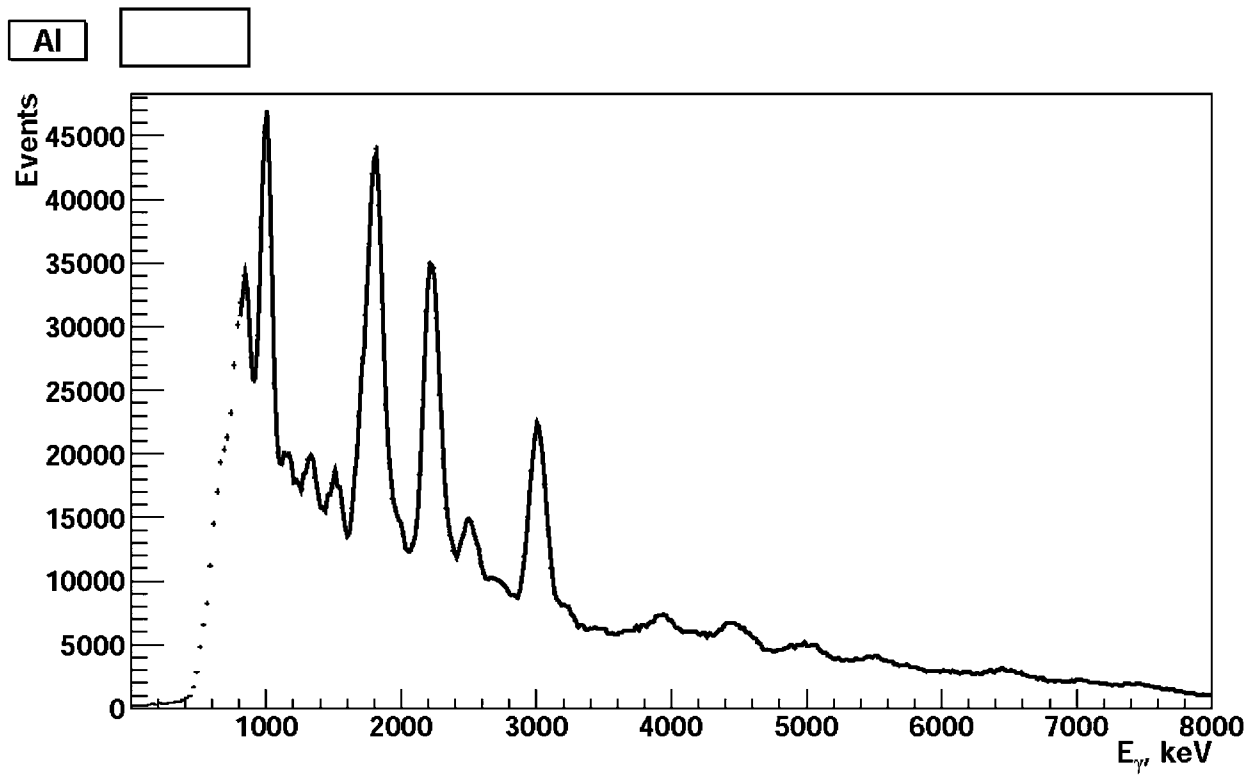
Фиг. 9



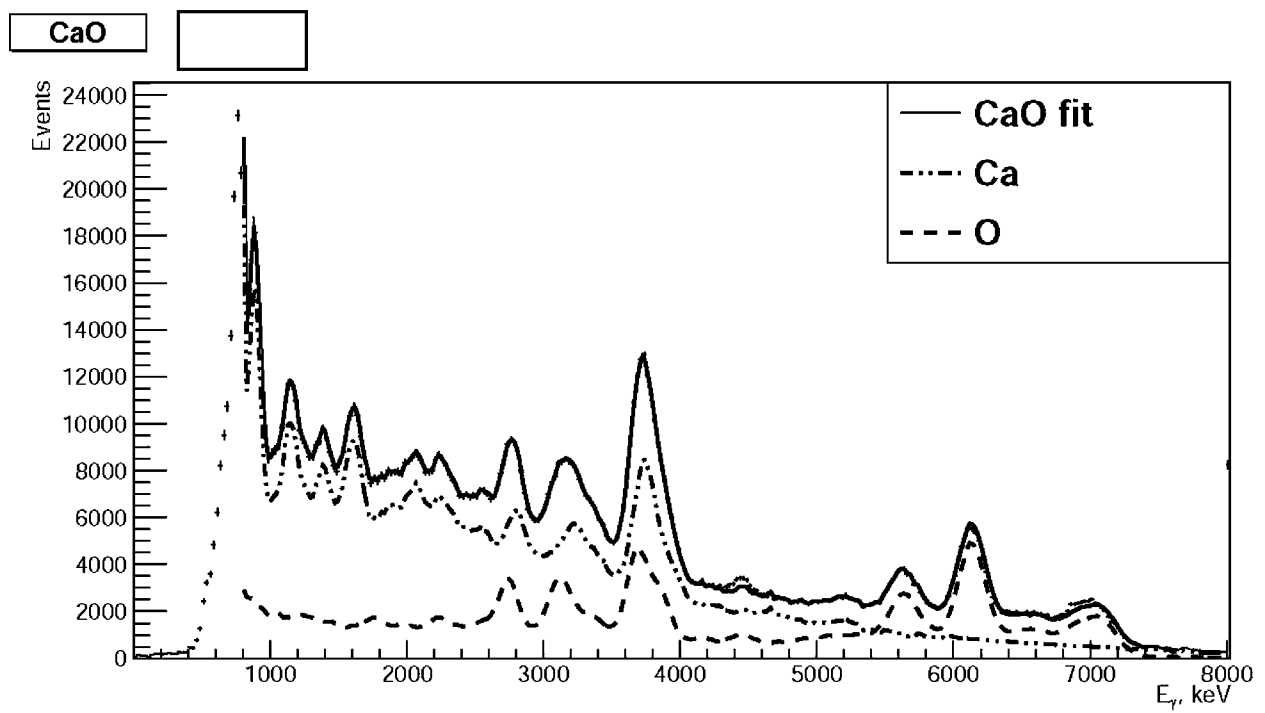
Фиг. 10



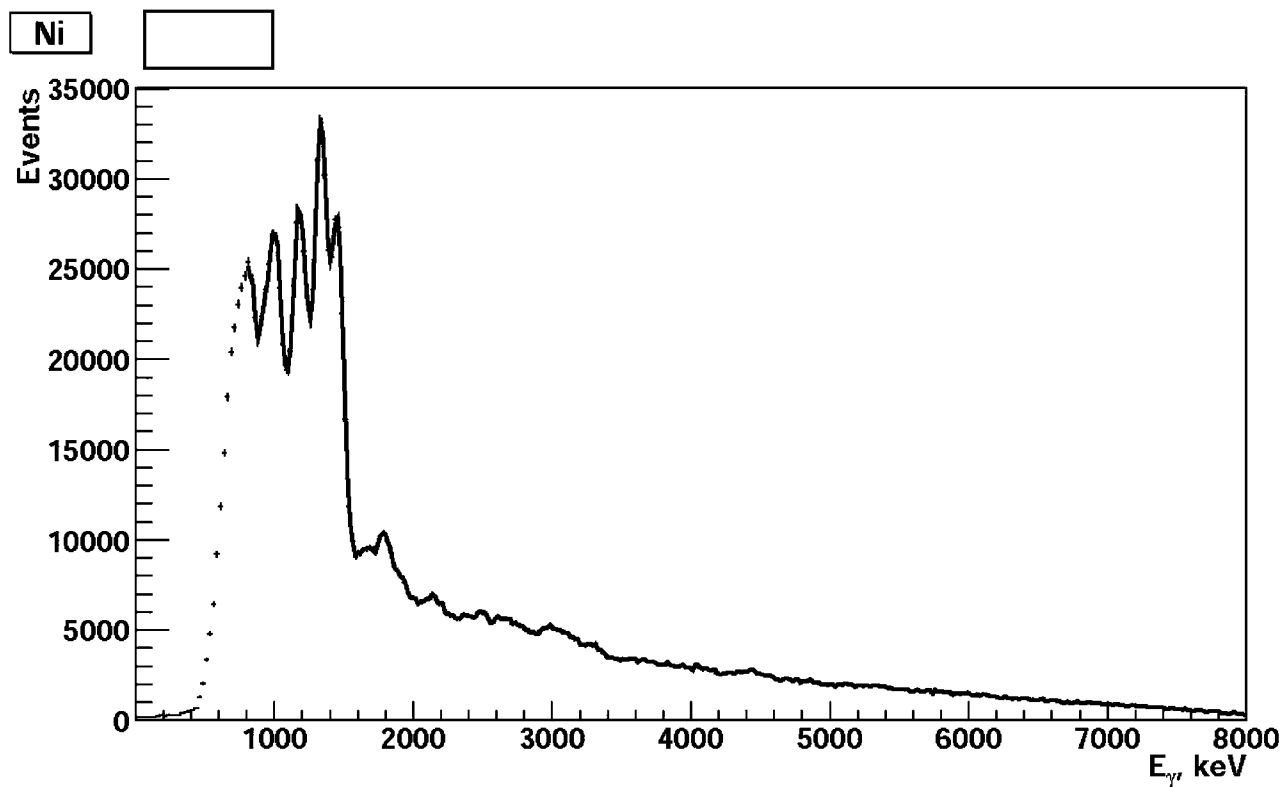
Фиг. 11



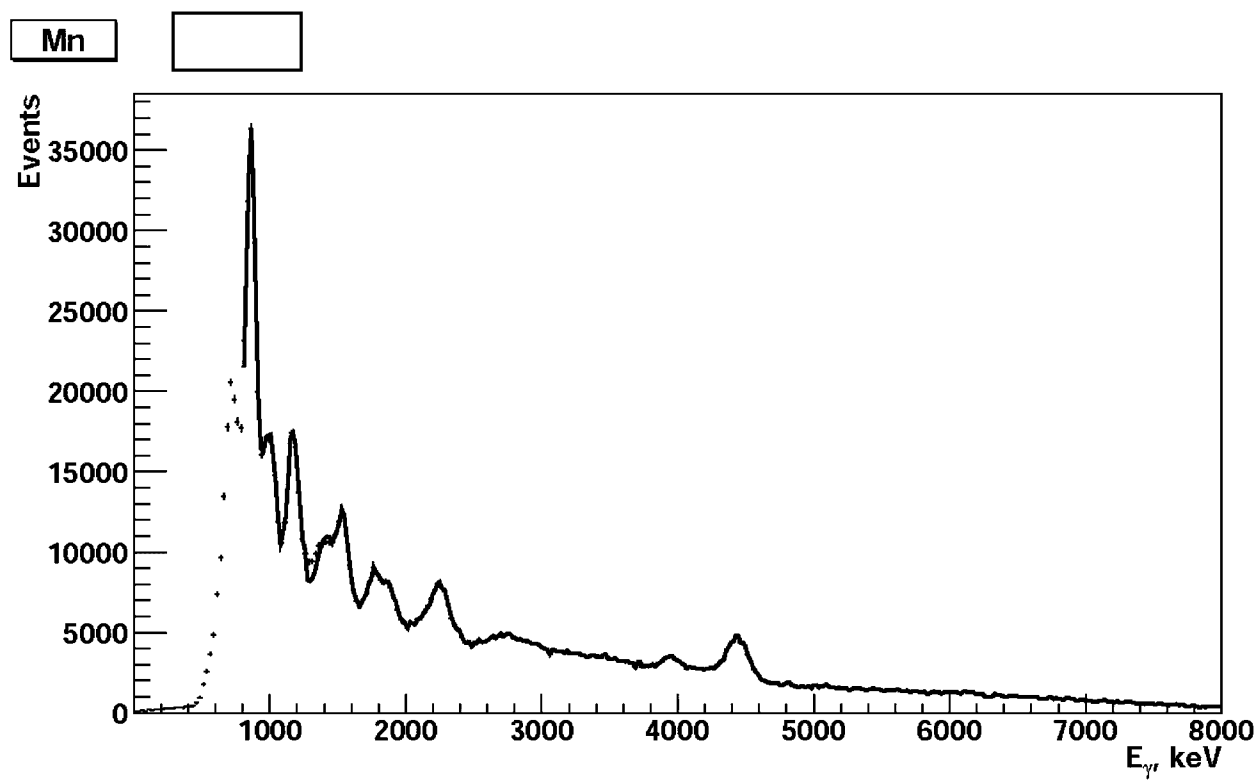
Фиг. 12



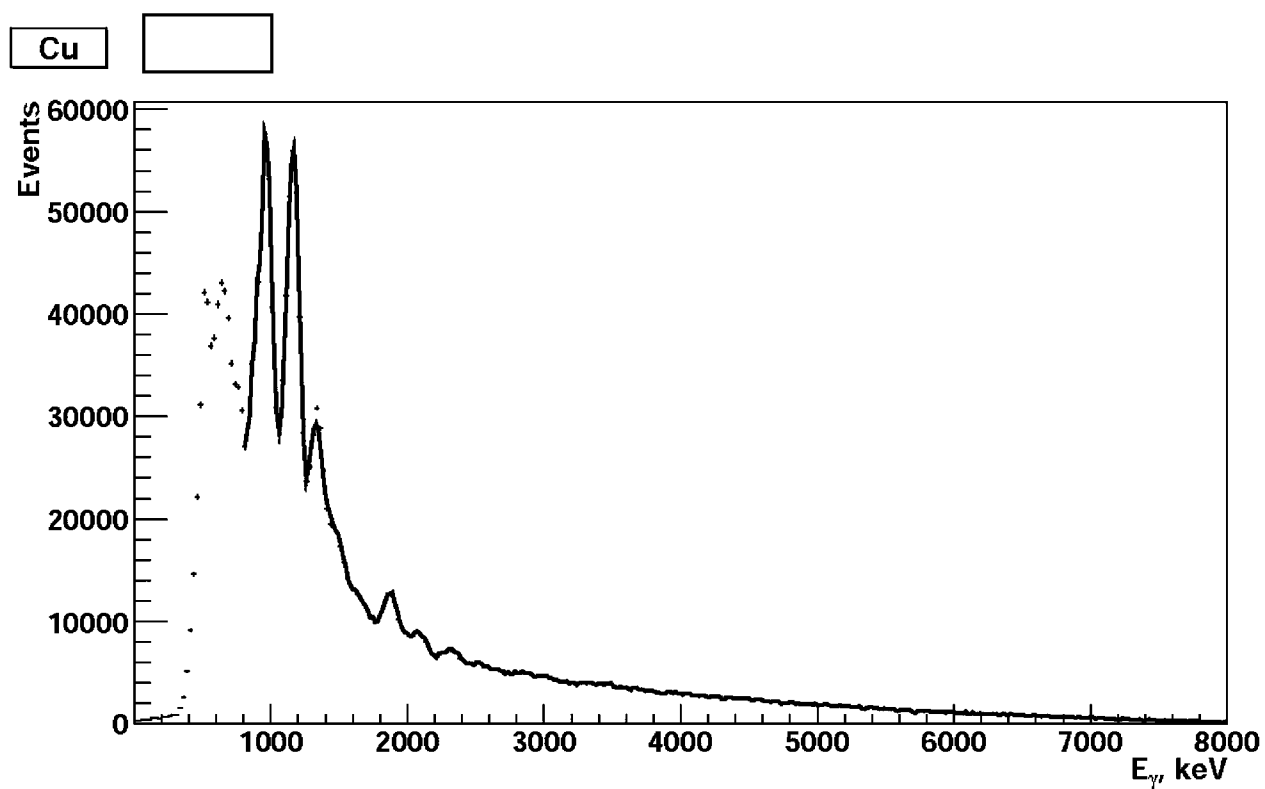
Фиг. 13



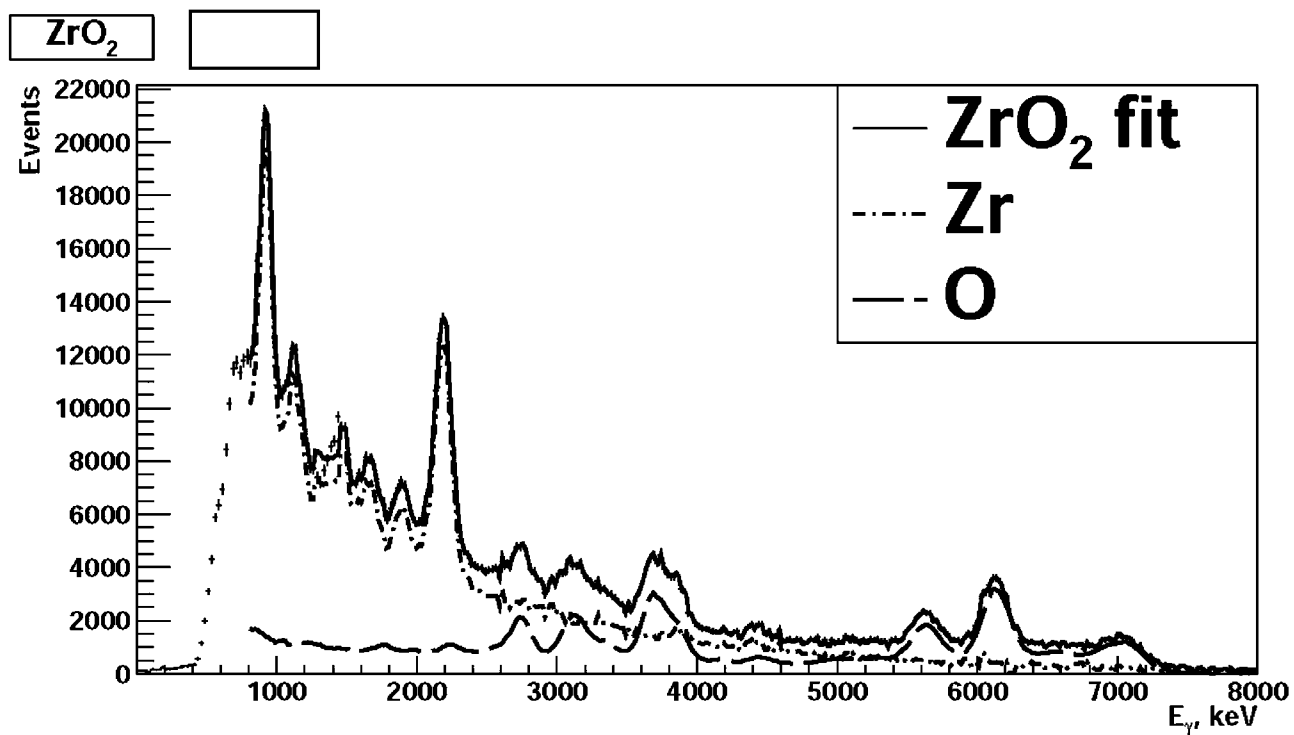
Фиг. 14



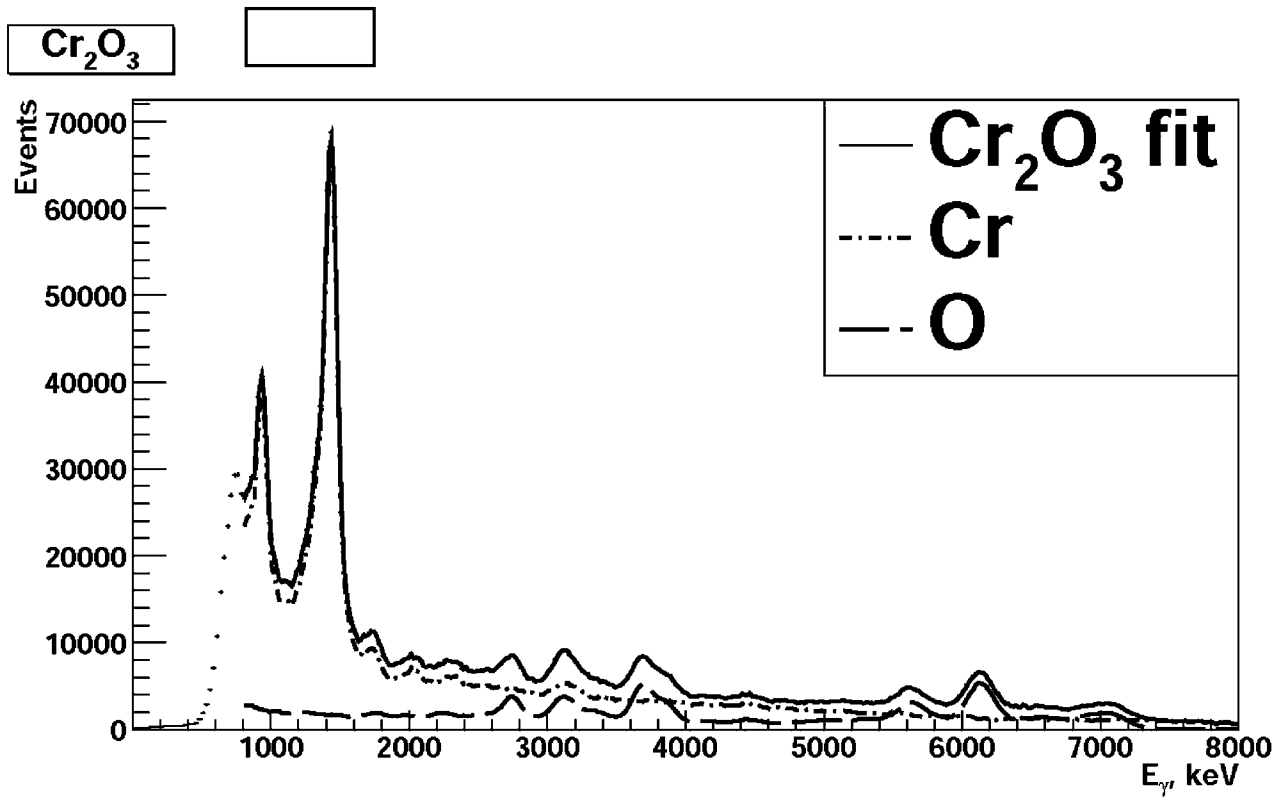
Фиг. 15



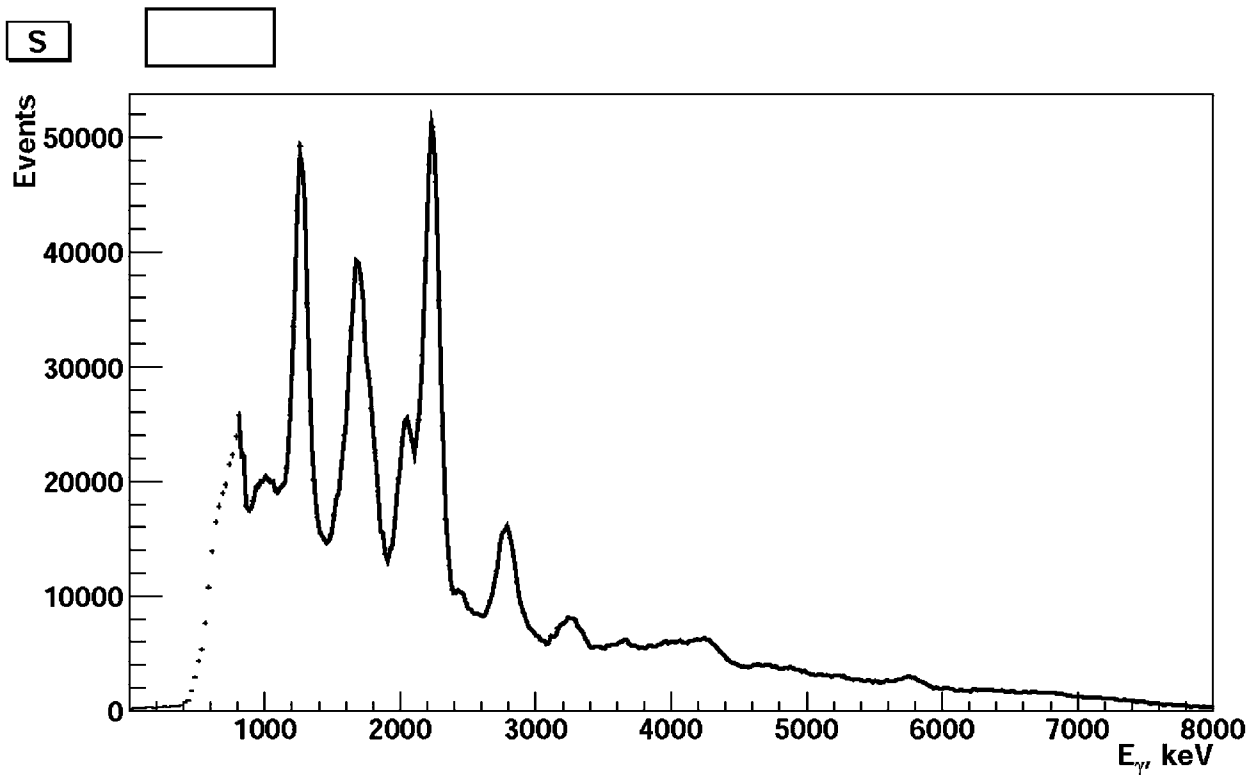
Фиг. 16



Фиг. 17

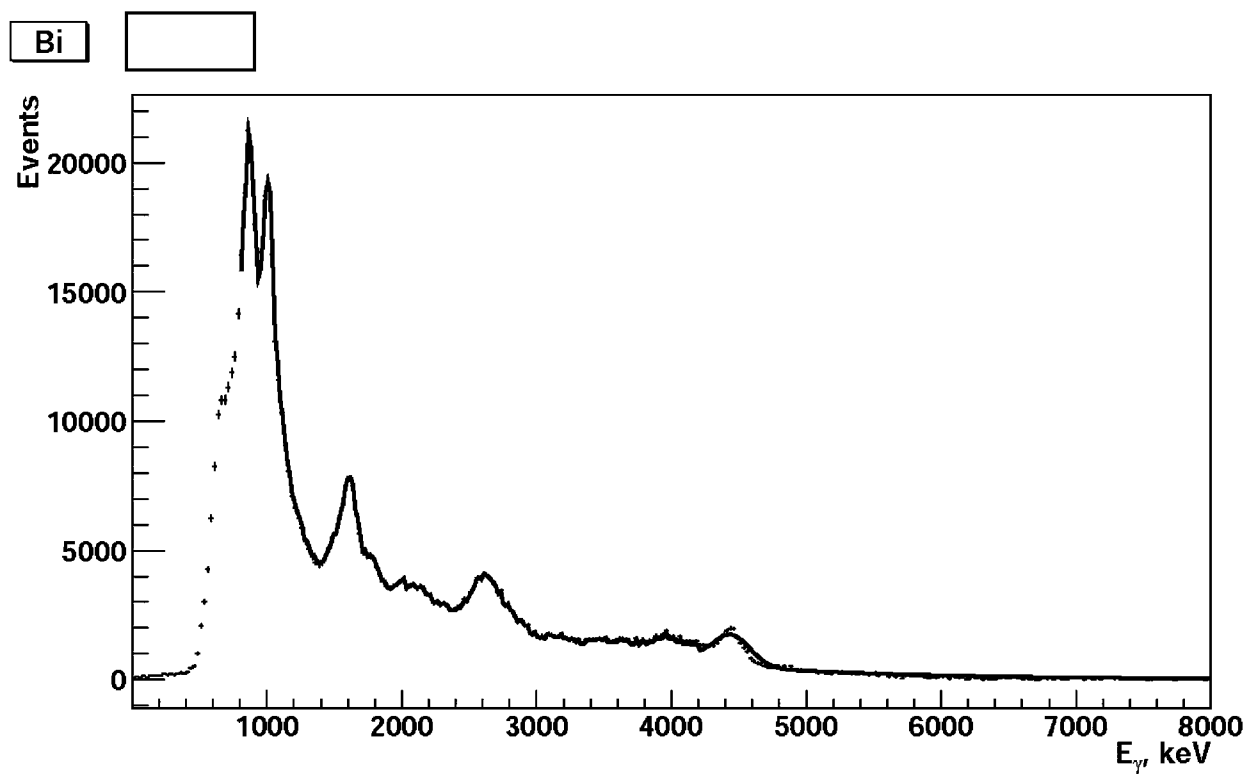


Фиг. 18

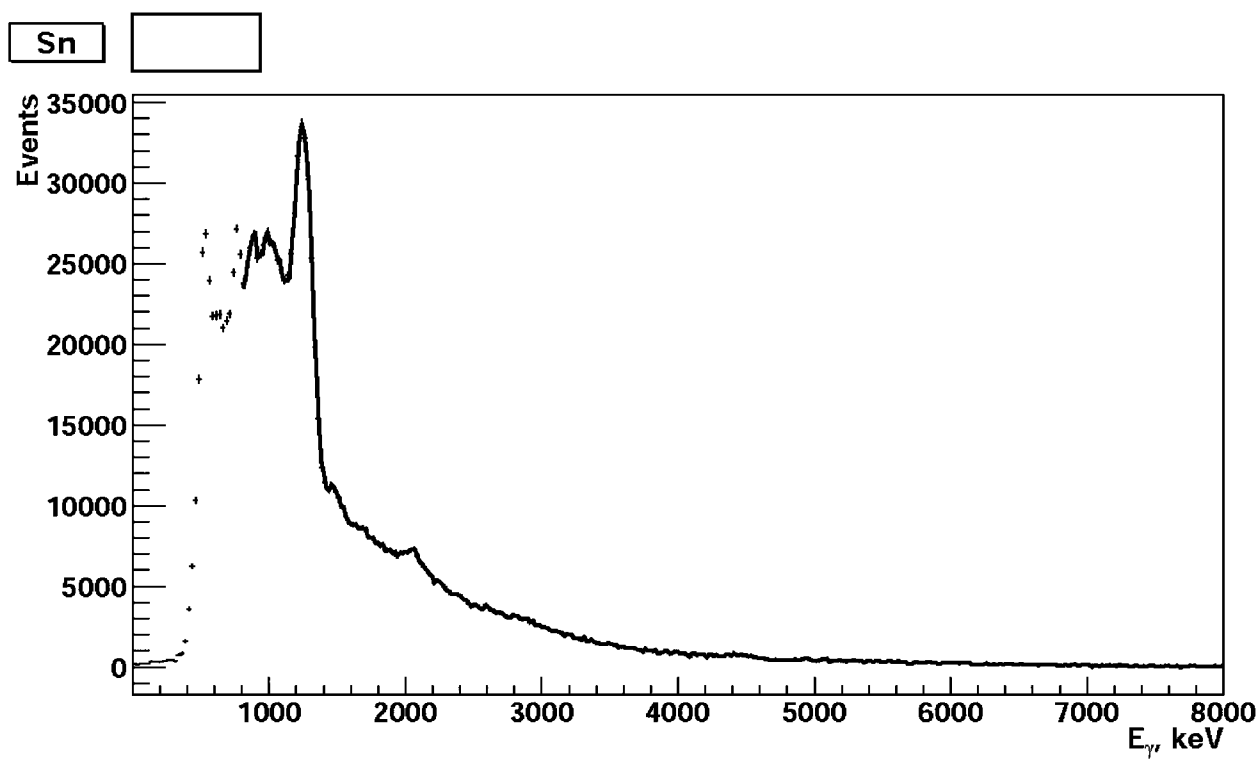




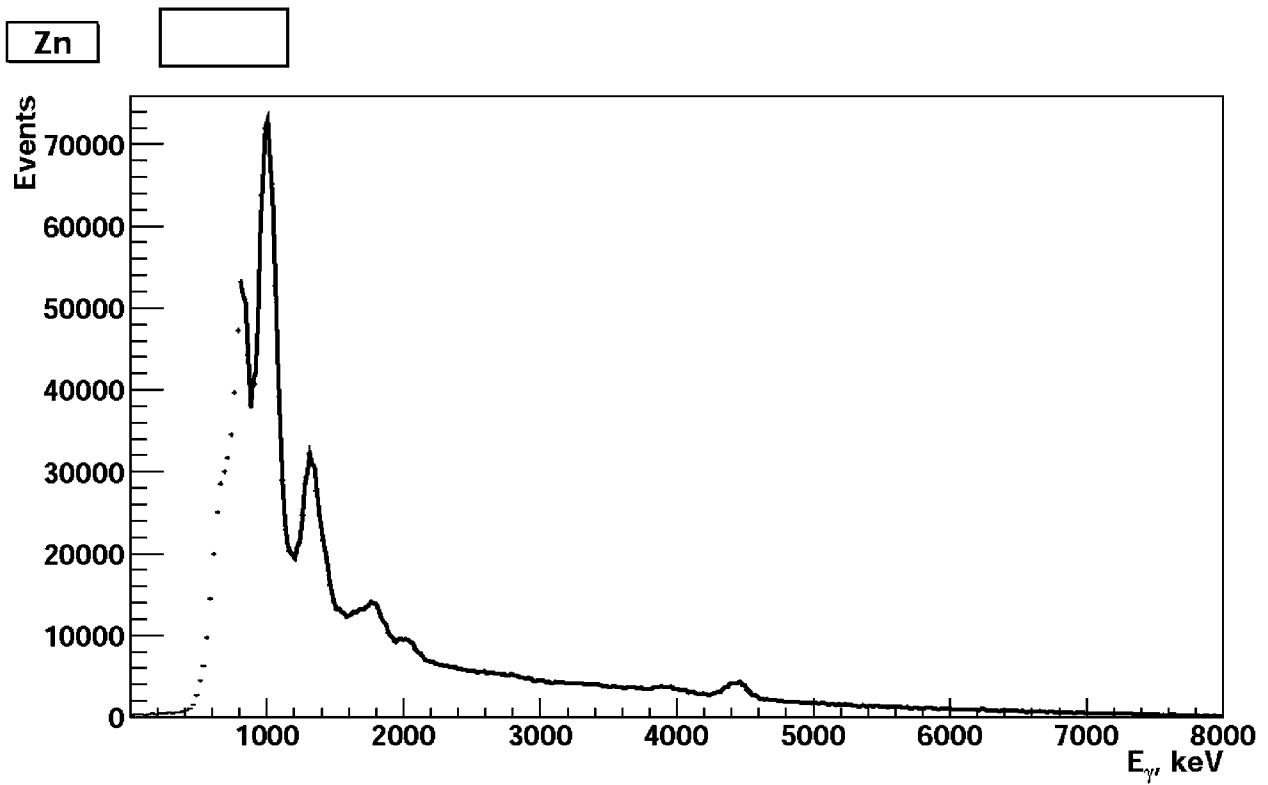
Фиг. 19



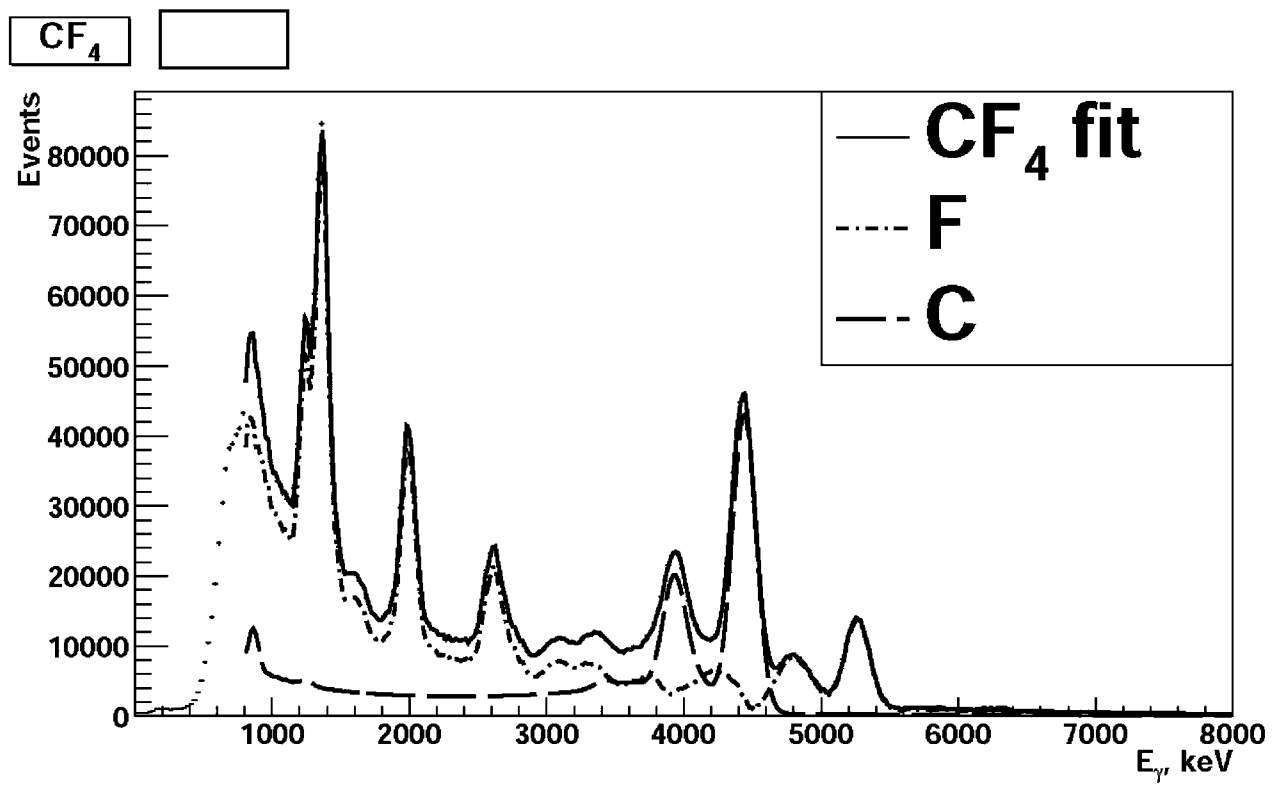
Фиг. 20



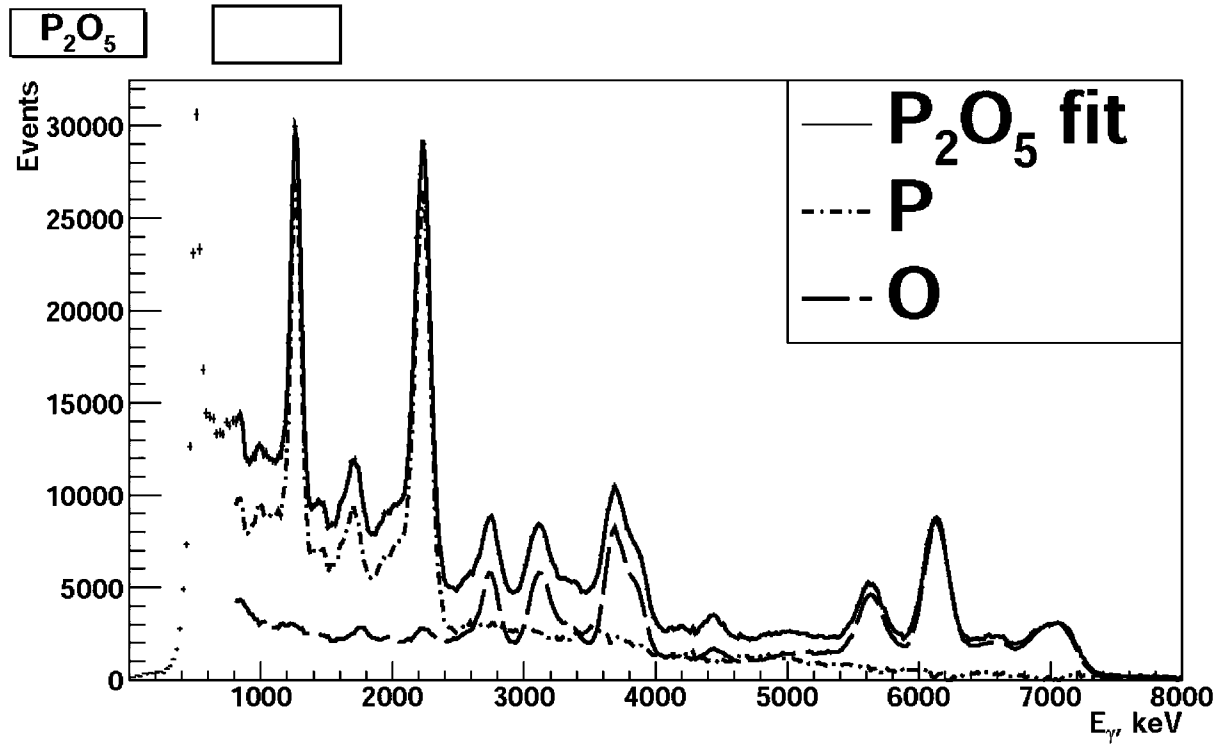
Фиг. 21



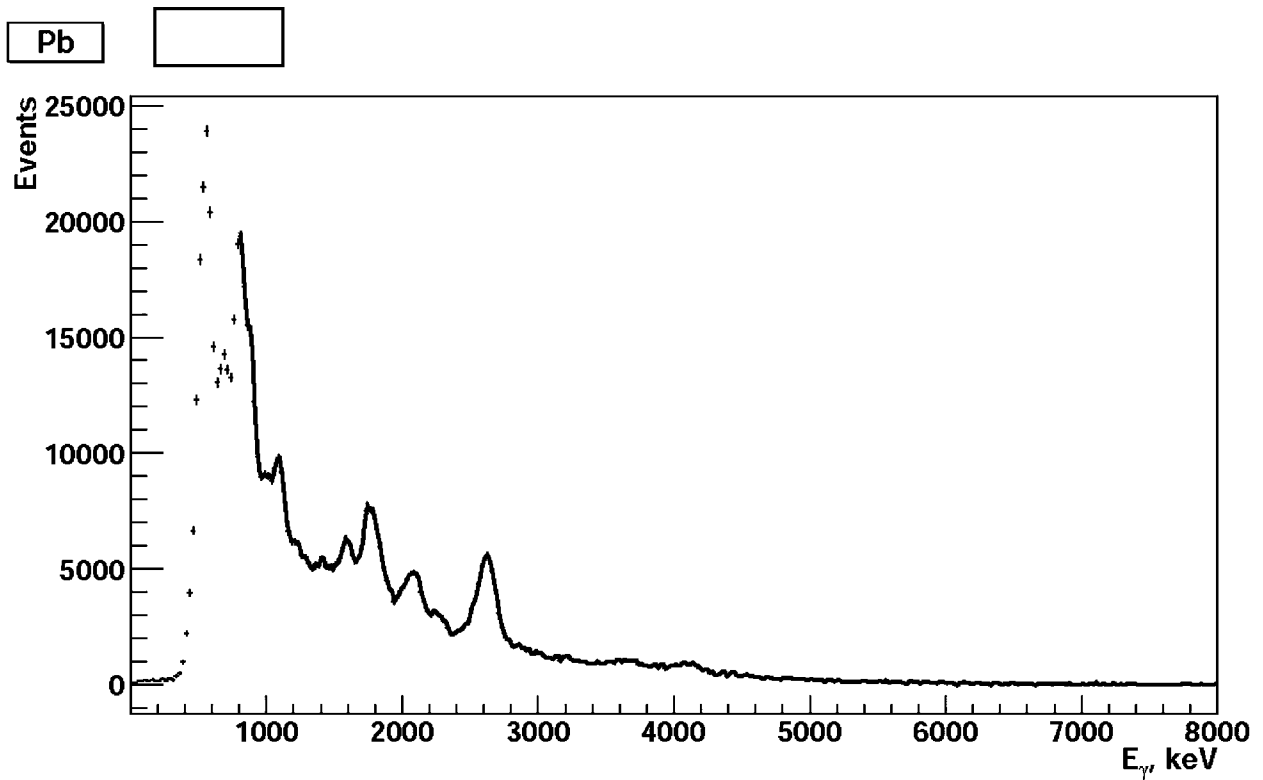
Фиг. 22



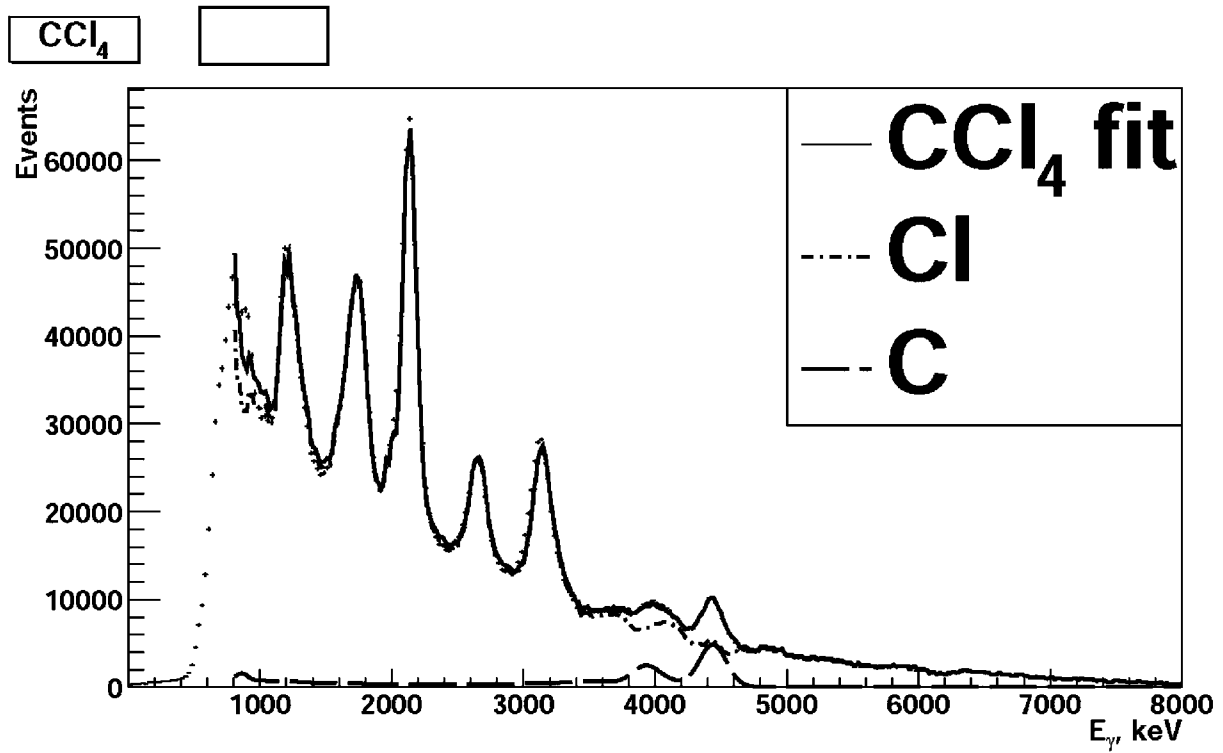
Фиг. 23



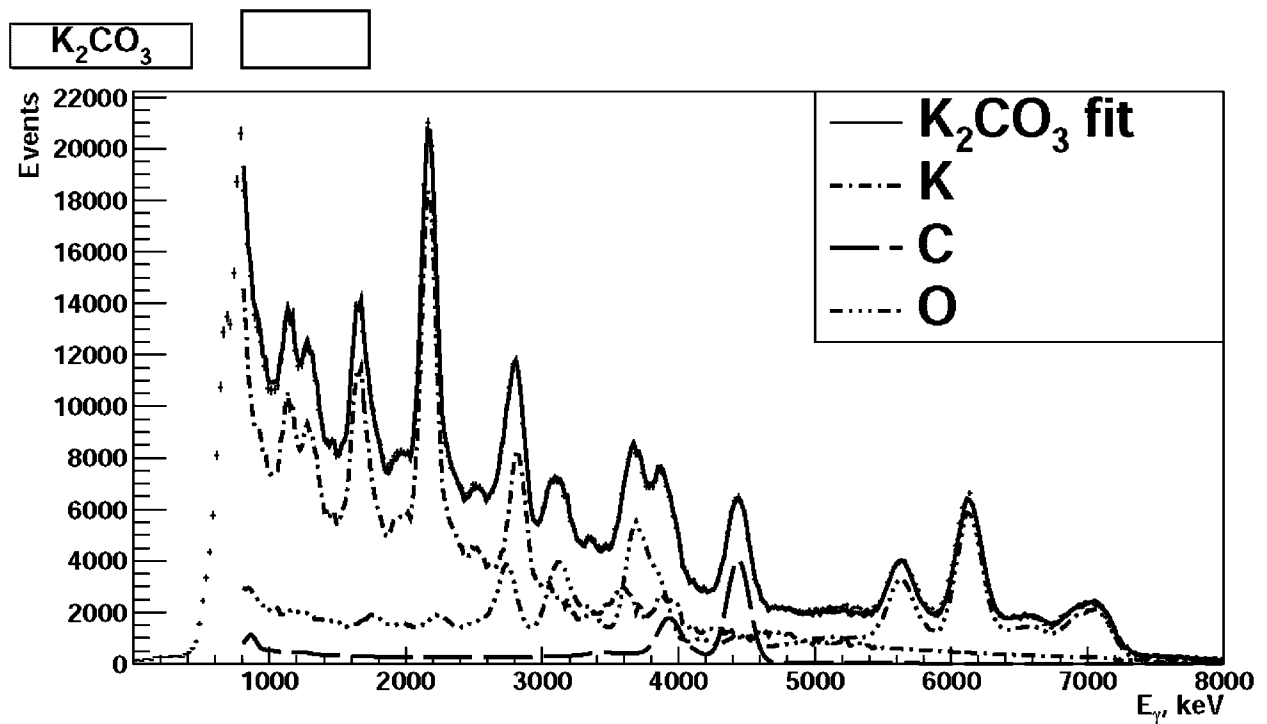
Фиг. 24



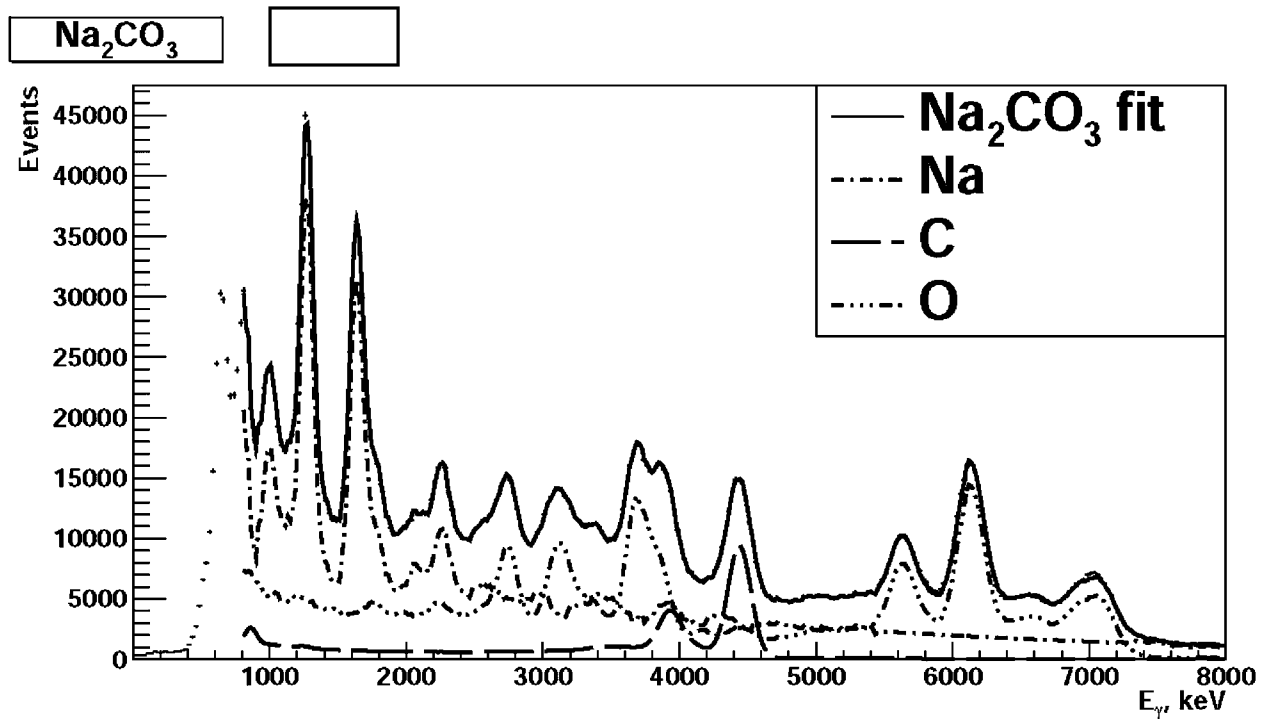
Фиг. 25



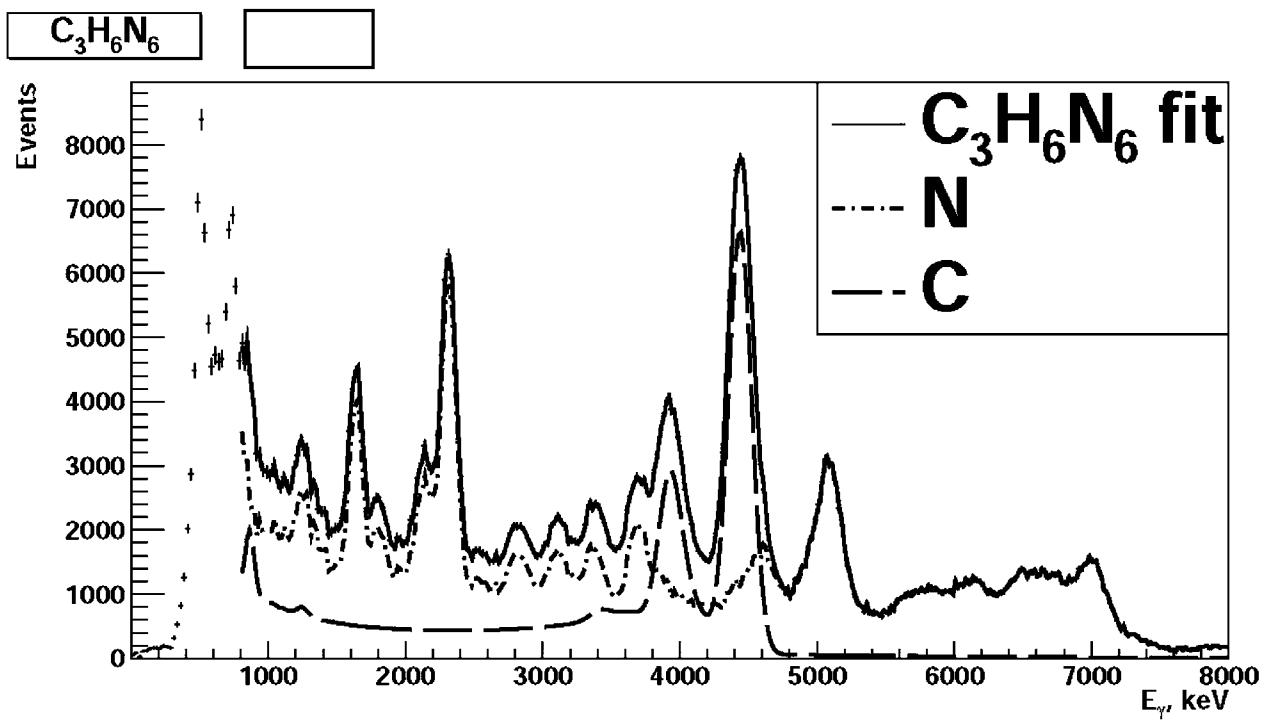
Фиг. 26



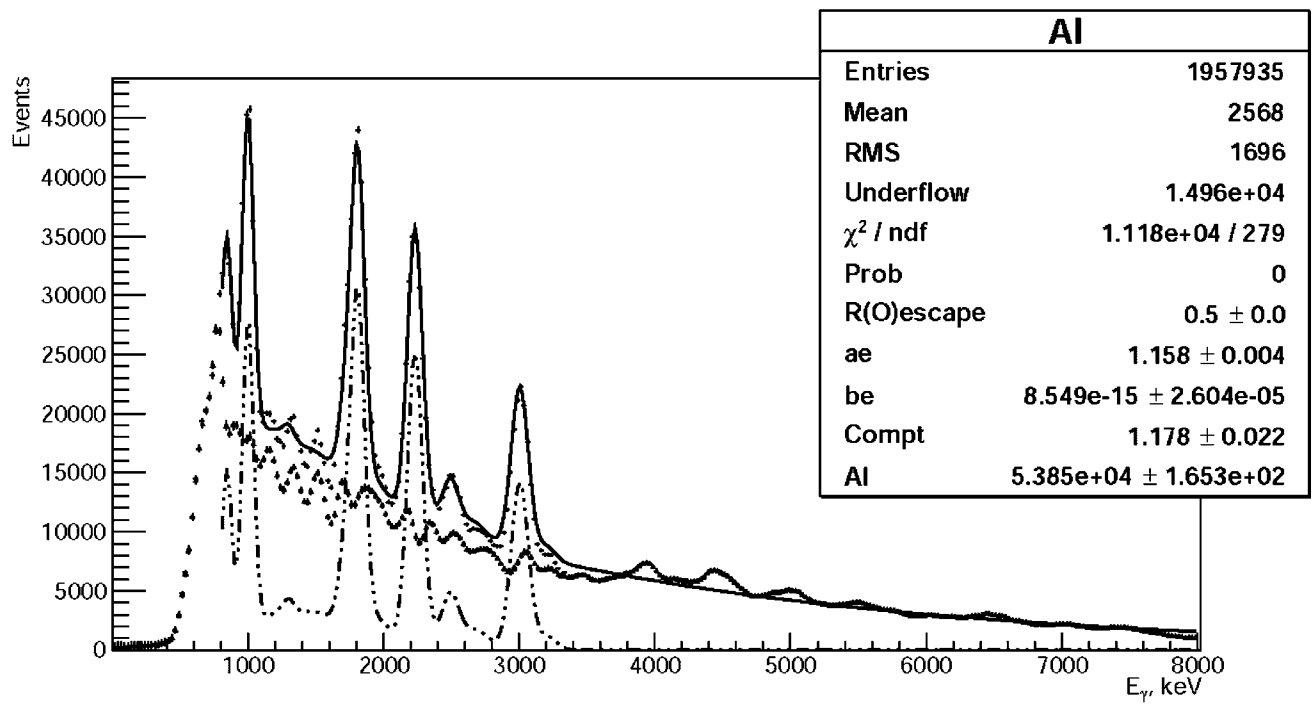
Фиг. 27



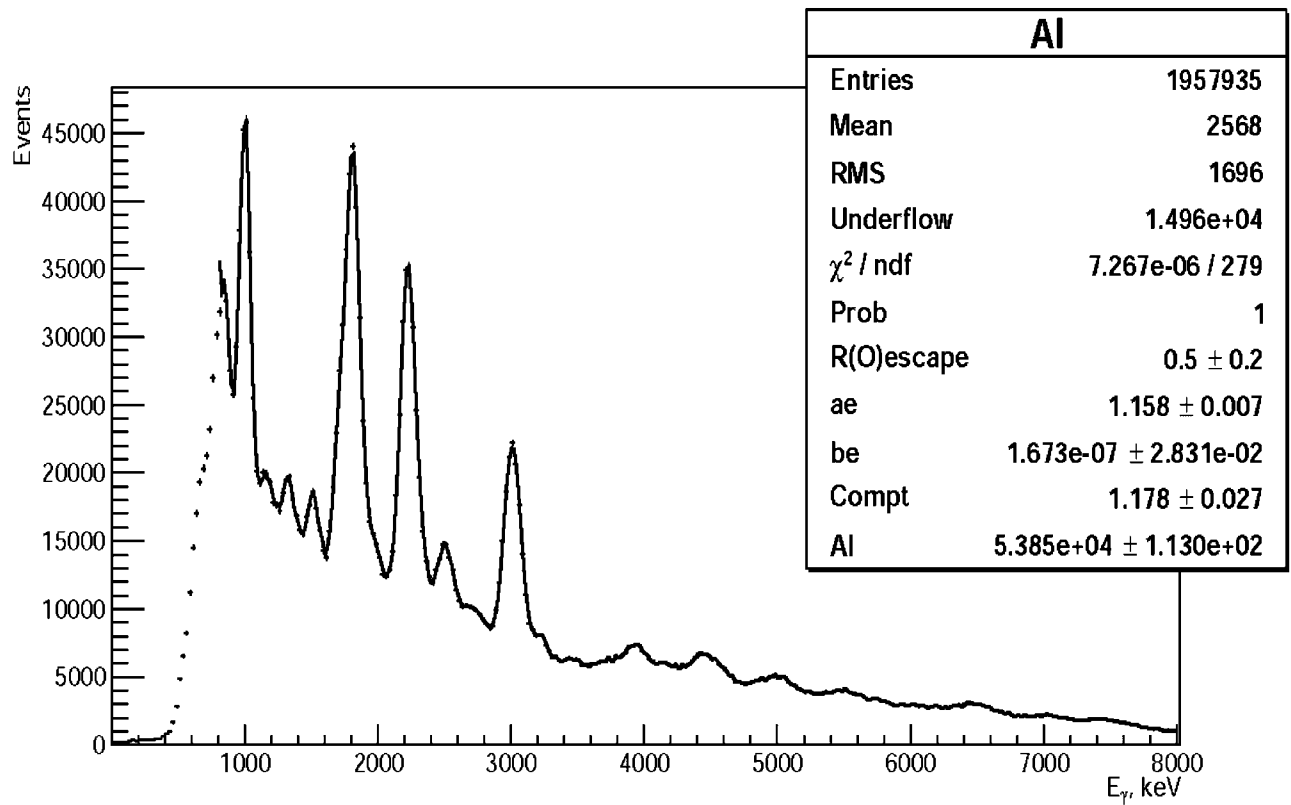
Фиг. 28



Фиг. 29

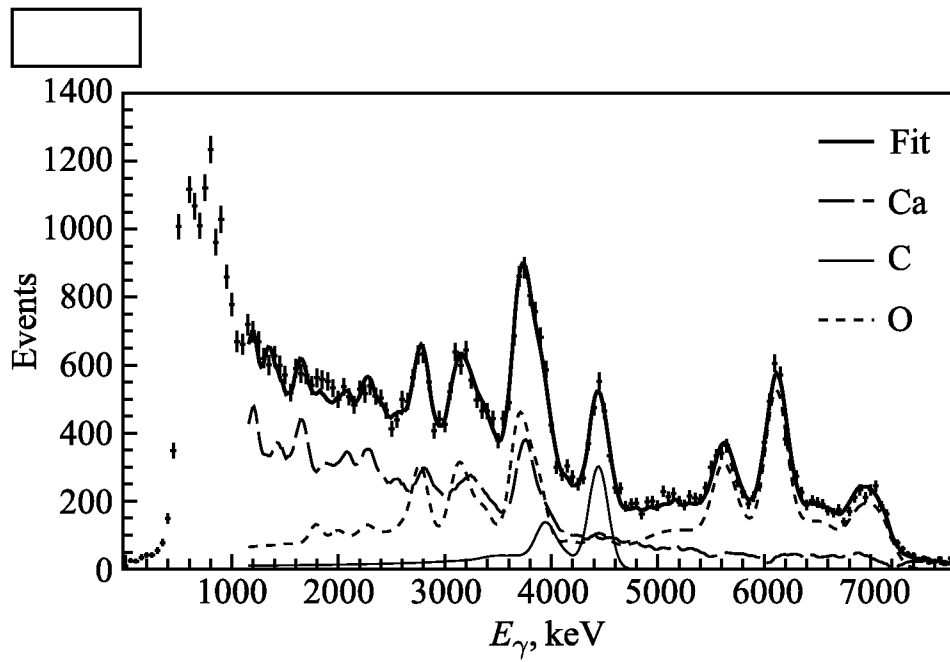


Фиг. 30



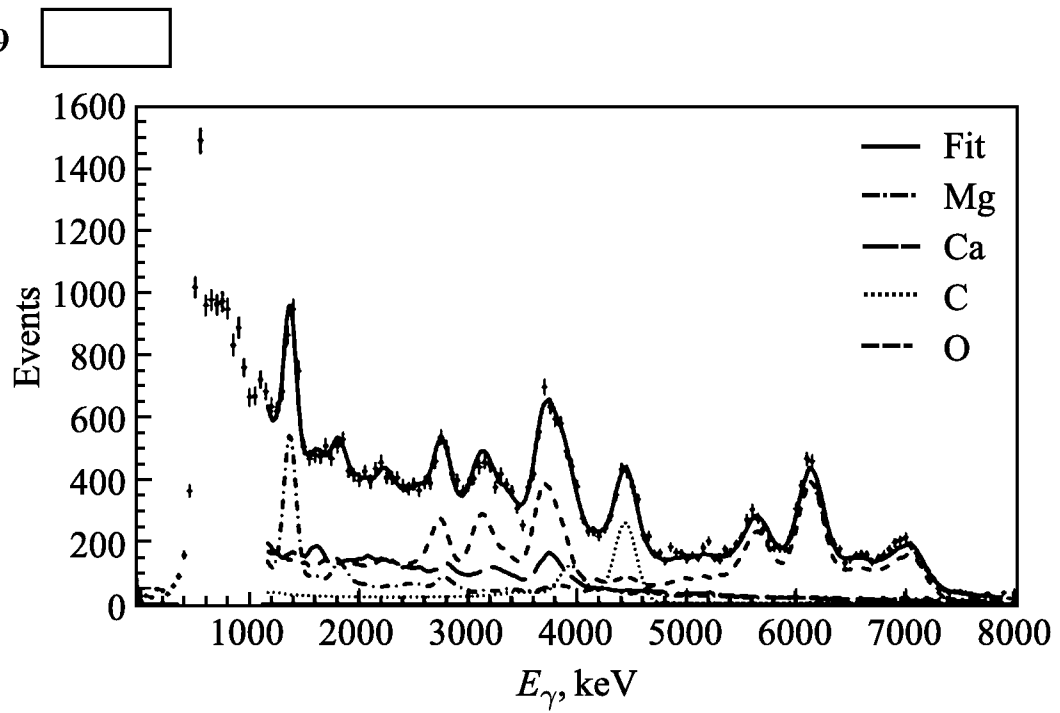
Фиг. 31

SE2869



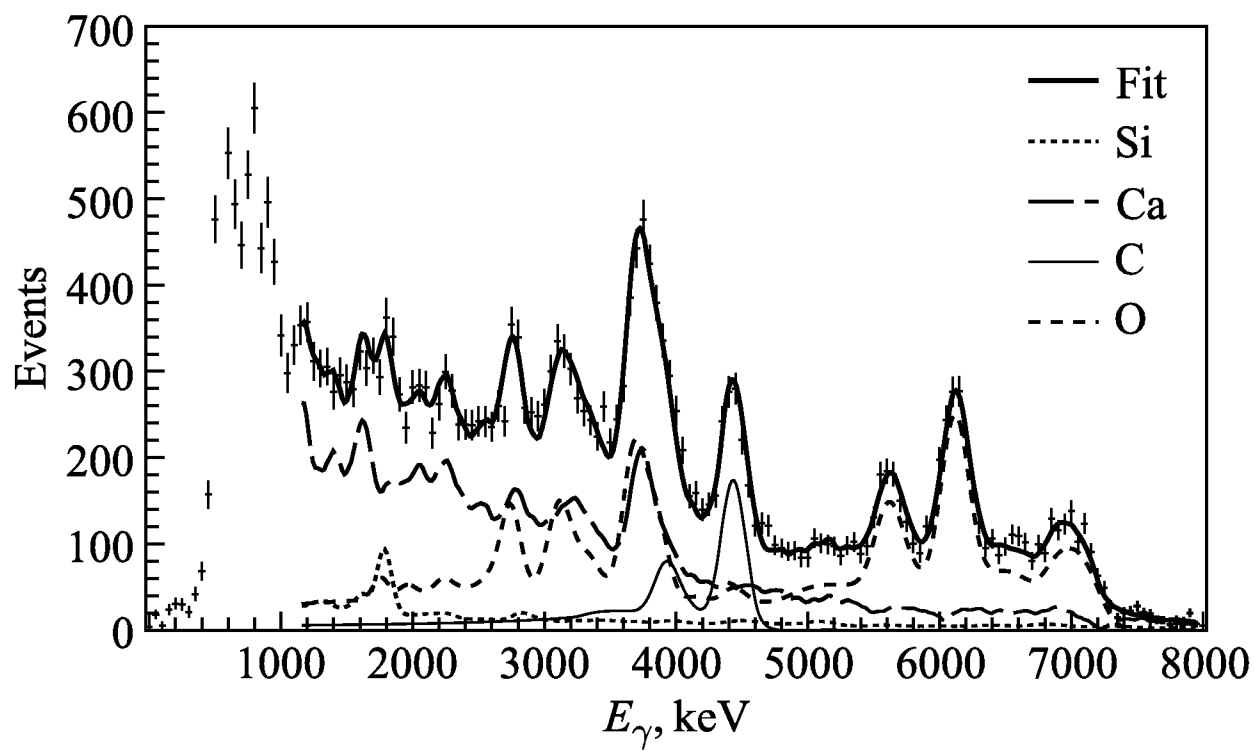
Фиг. 32

SE2789



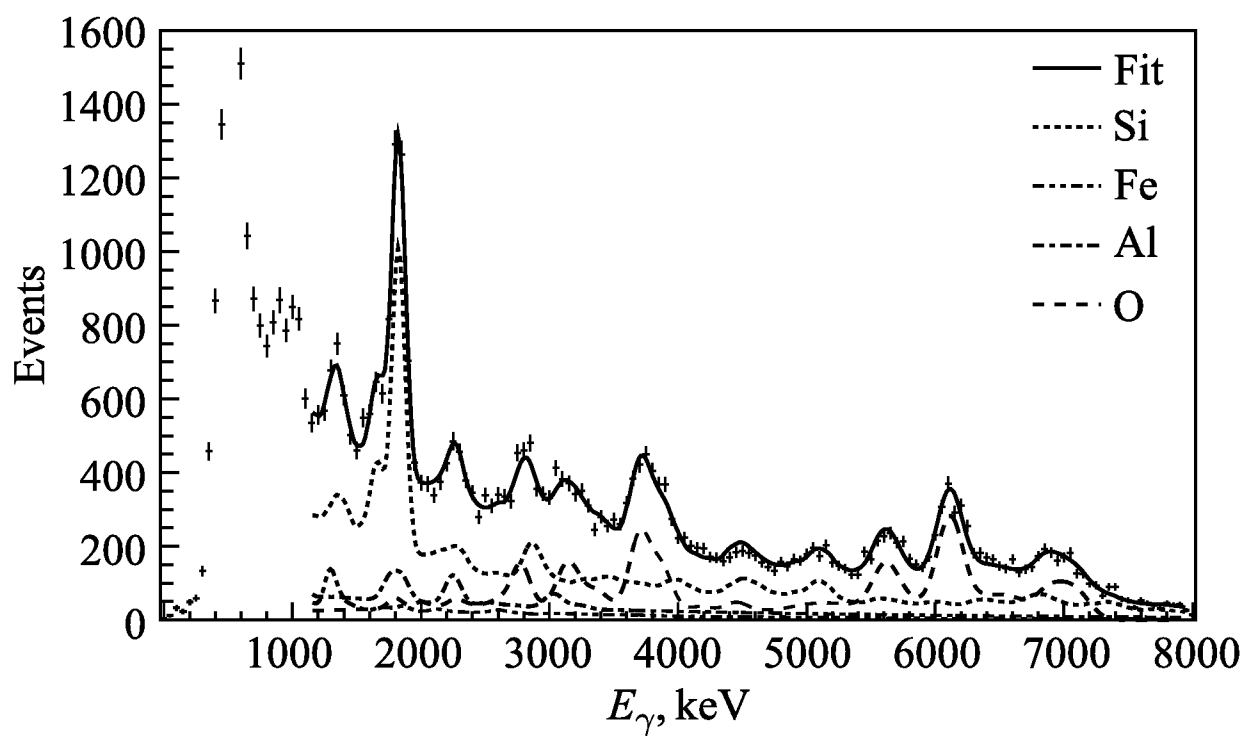
Фиг. 33

SE2803



Фиг. 34

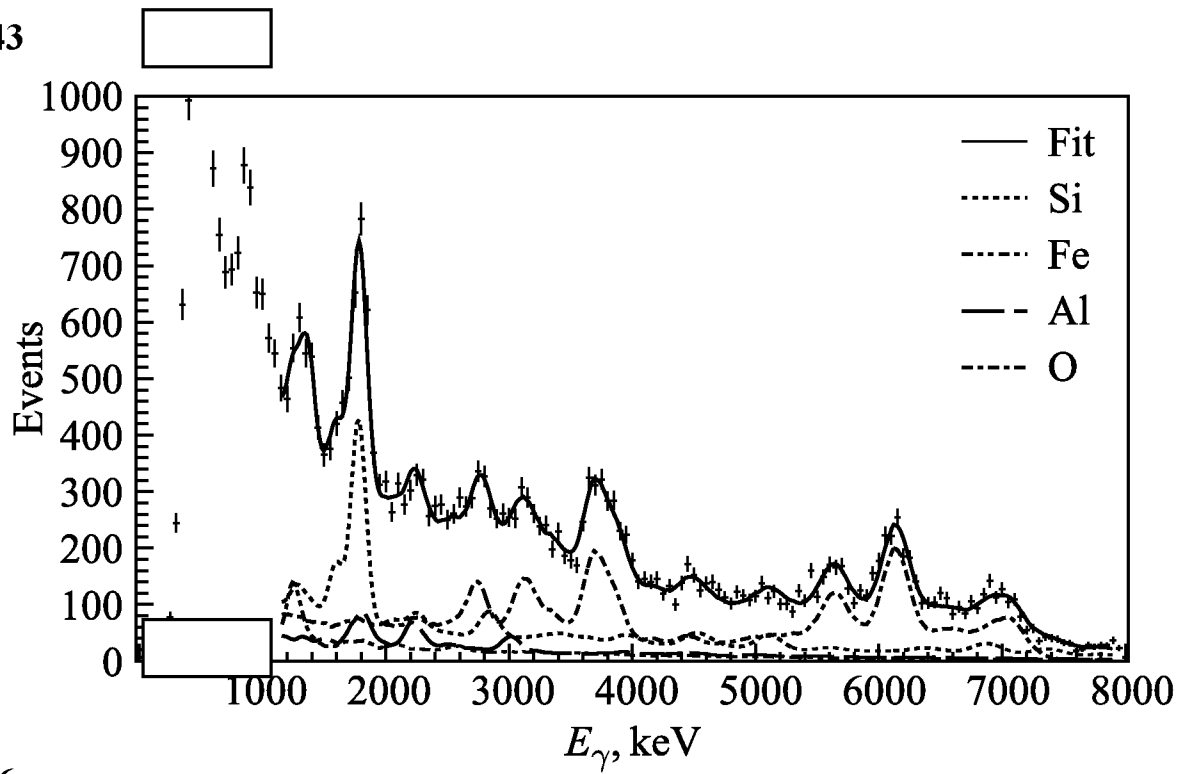
SE2840



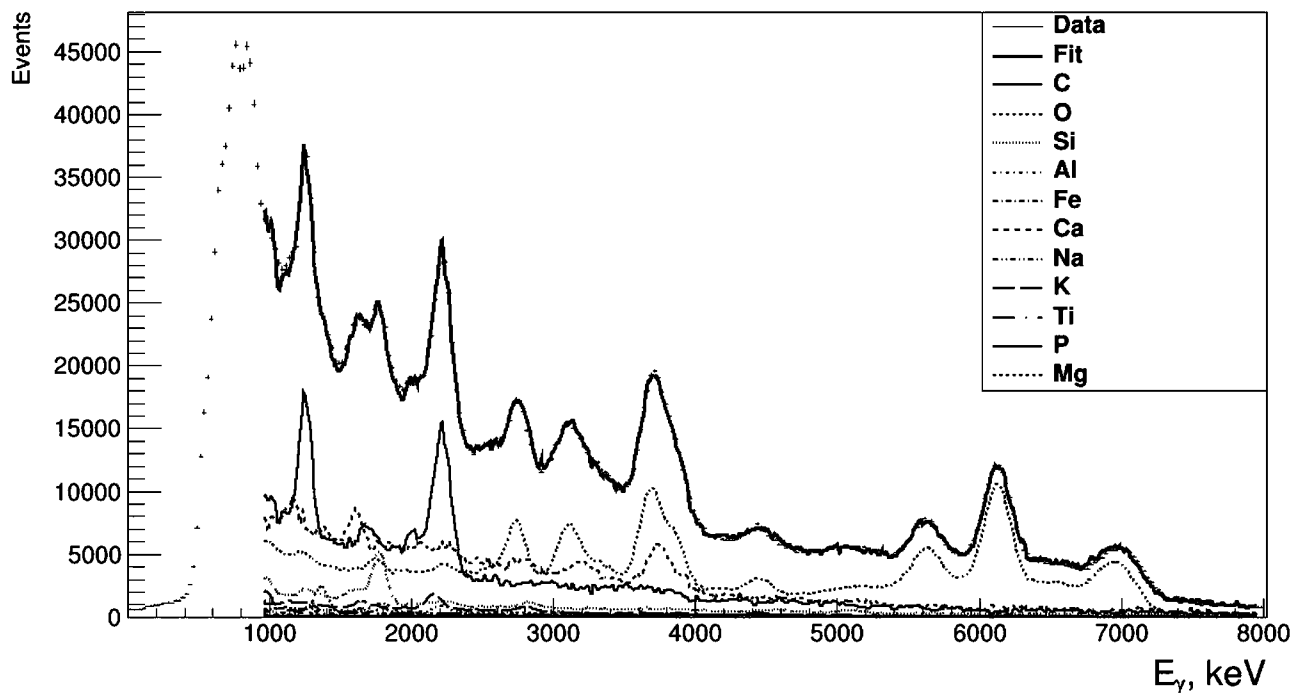


Фиг. 35

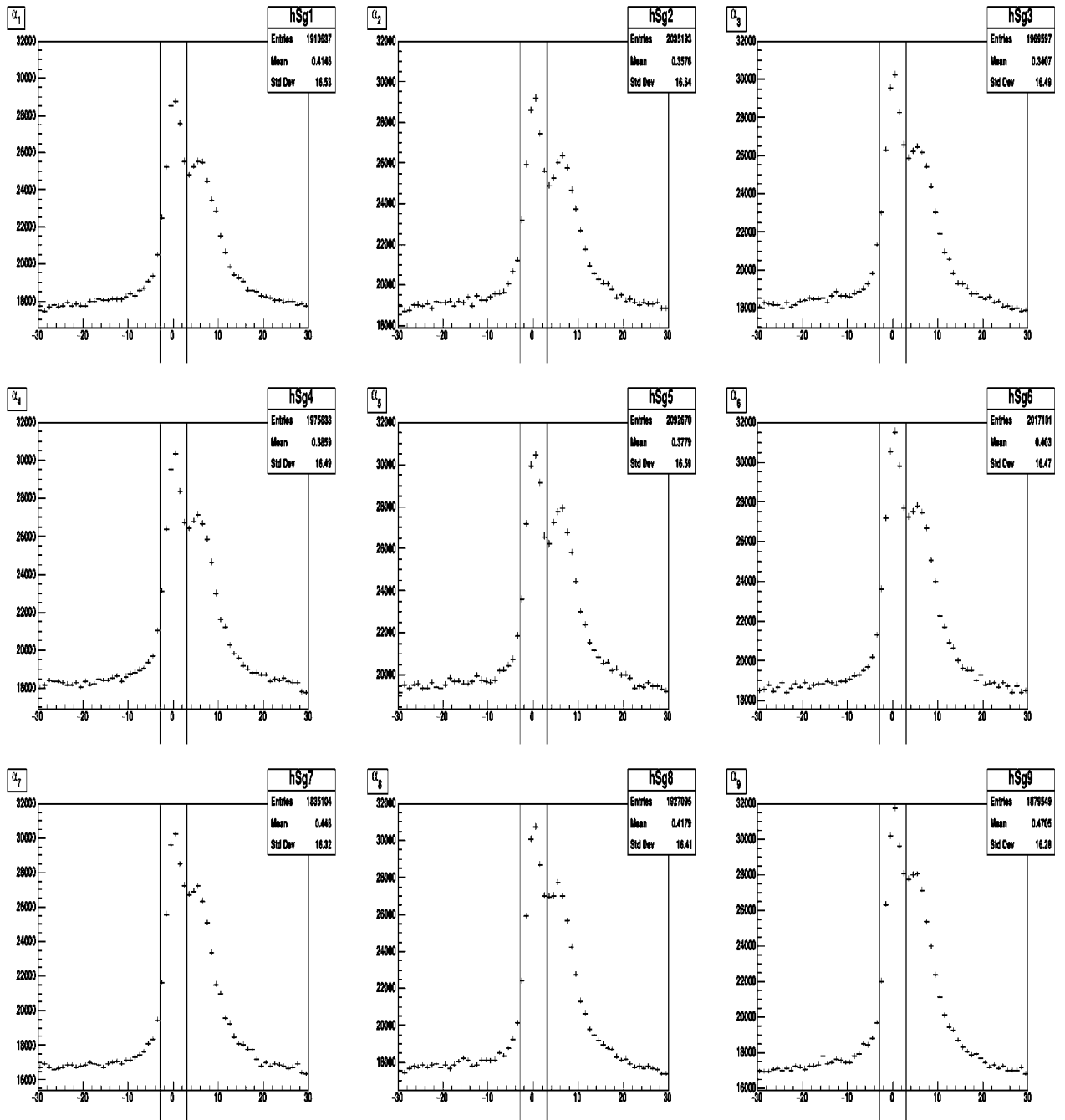
SE2843



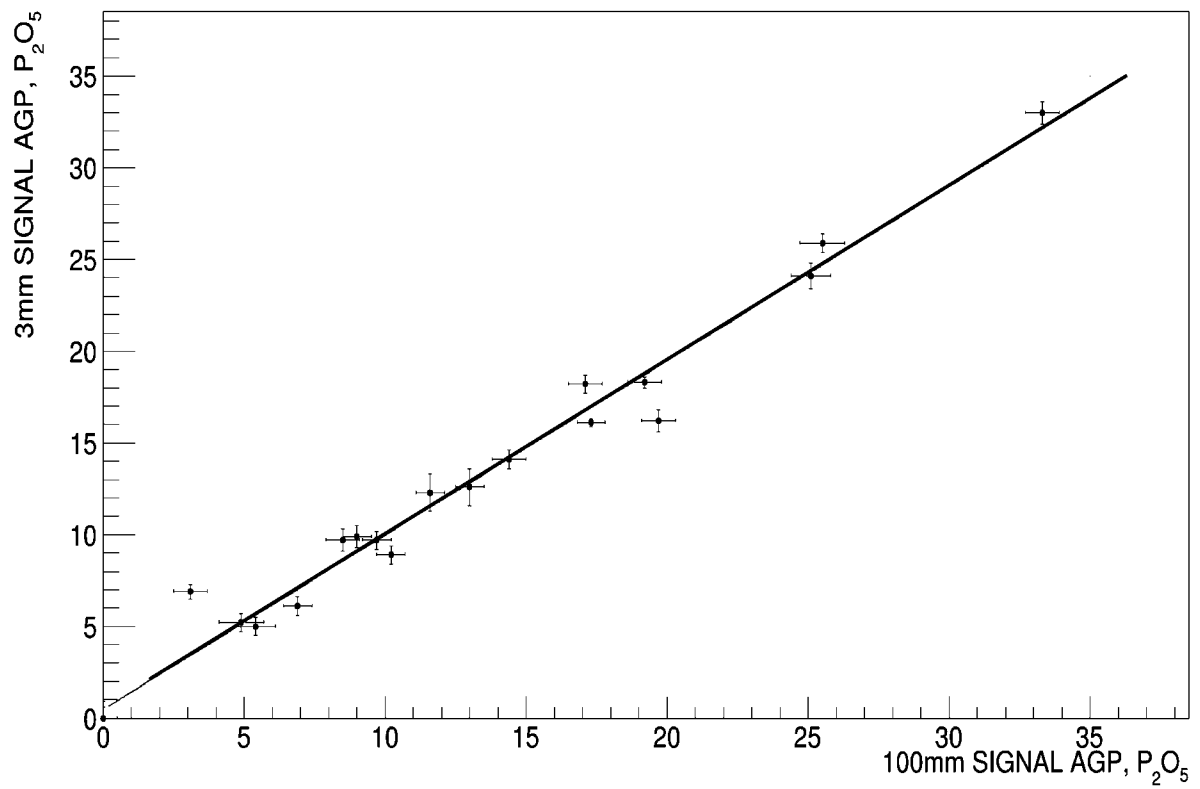
Фиг. 36



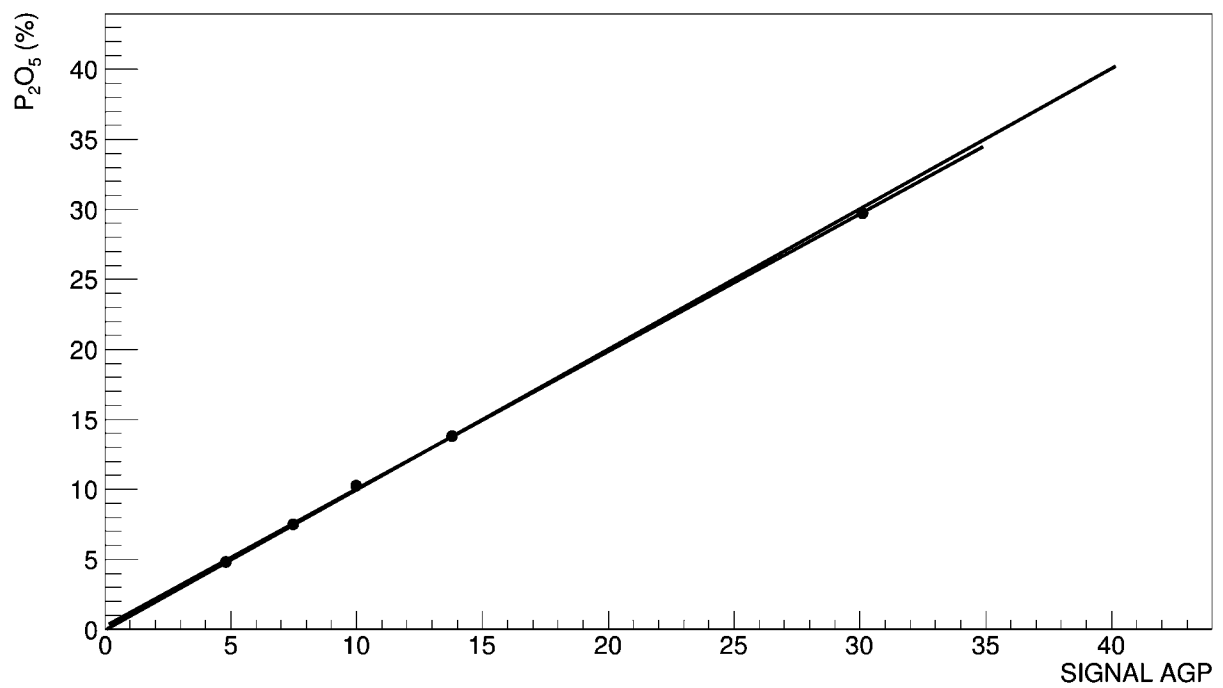
Фиг. 37



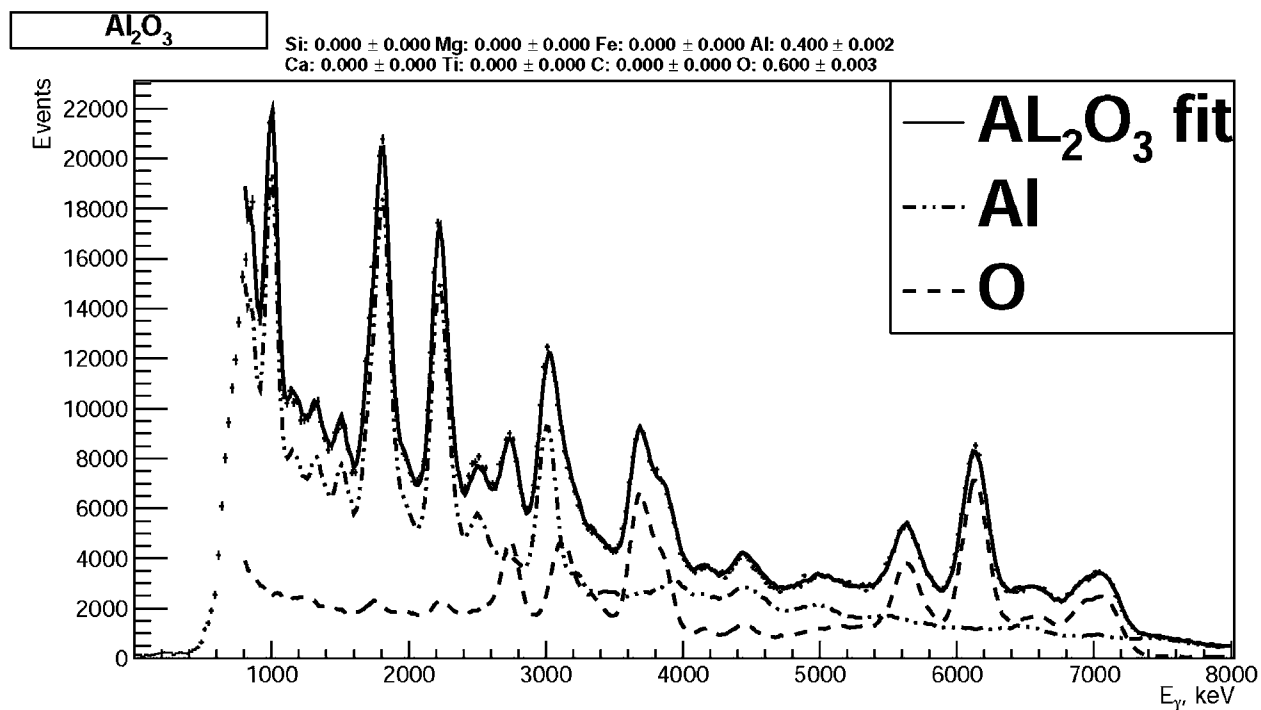
Фиг. 38.



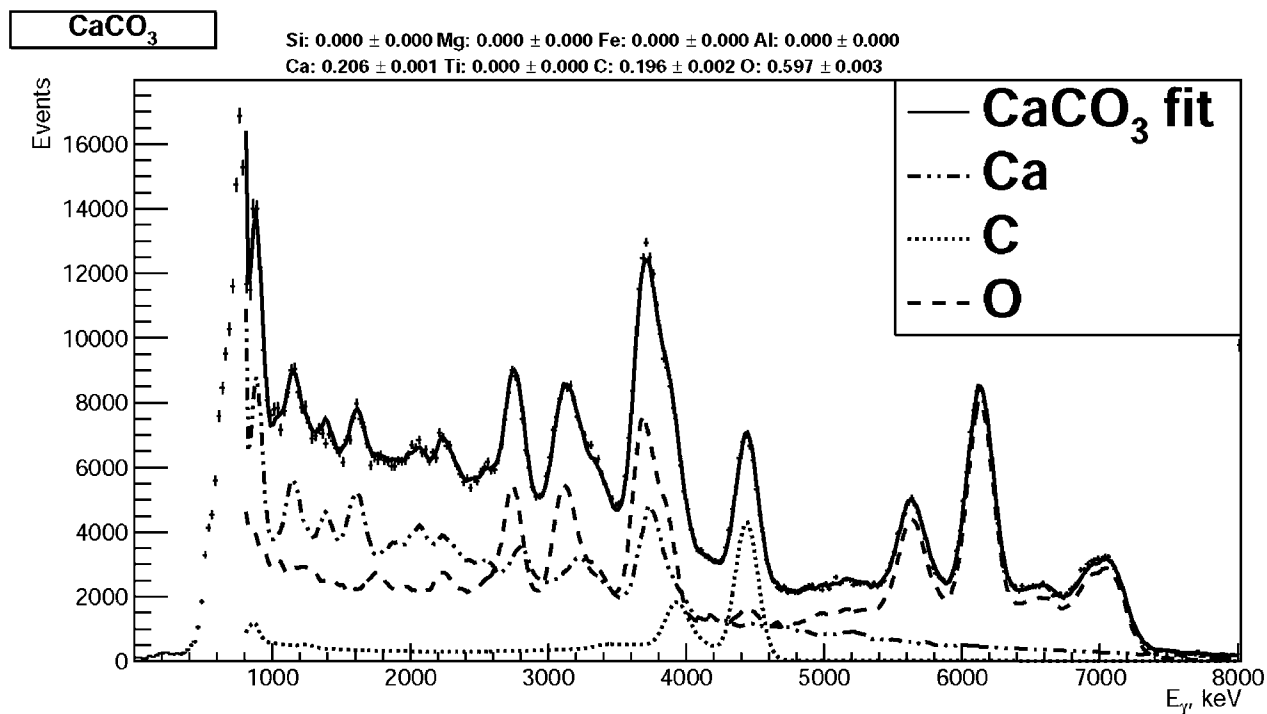
Фиг. 39.

 $2\sigma = 0.348\%$ 

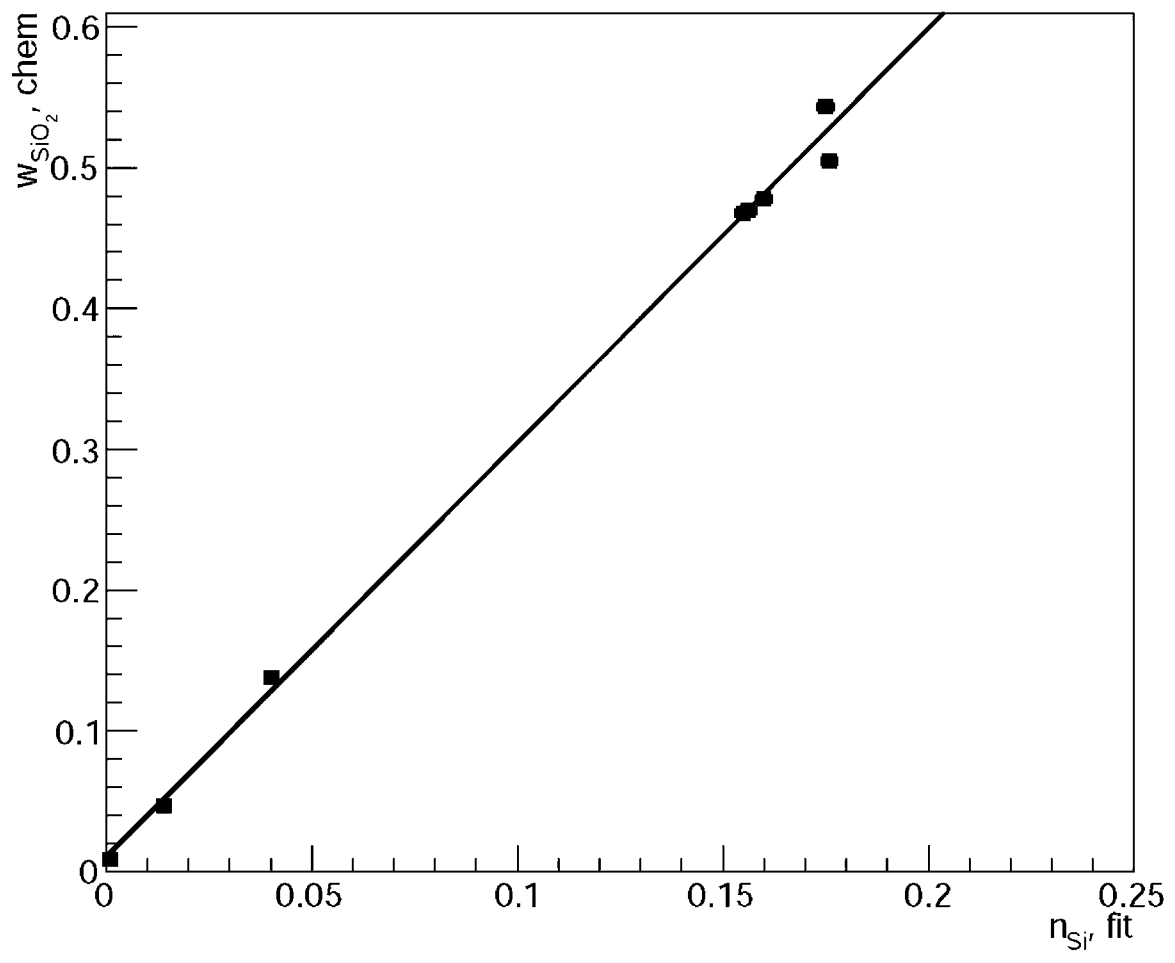
Фиг. 40.



Фиг. 41.



Фиг. 42



Фиг. 43.

