

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **041338**(13) **B1**

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ

(45) Дата публикации и выдачи патента
2022.10.12

(21) Номер заявки
202092791

(22) Дата подачи заявки
2019.06.13

(51) Int. Cl. **G01N 23/22** (2018.01)
G01N 23/221 (2006.01)
G01N 23/222 (2006.01)

(54) УСТРОЙСТВО И СПОСОБ ИЗМЕРЕНИЯ ВЛАЖНОСТИ

(31) **2018902220**

(32) **2018.06.21**

(33) **AU**

(43) **2021.04.07**

(86) **PCT/AU2019/050609**

(87) **WO 2019/241830 2019.12.26**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
**КРАЙСОС КОРПОРЕЙШН
ЛИМИТЕД (AU)**

(72) Изобретатель:
Тикнер Джеймс (AU)

(74) Представитель:
**Гизатуллина Е.М., Угрюмов В.М.,
Христофоров А.А., Строкова О.В.,
Гизатуллин Ш.Ф., Костюшенкова
М.Ю., Лебедев В.В., Парамонова К.В.
(RU)**

(56) JP-A-S5977346
SU-A1-1755142
SU-A1-542406
US-A-4171485
CN-A-101004392
CN-A-1773267
SU-A1-749203
US-B2-6825459

(57) Предлагается устройство и способ для определения содержания влаги в образце вещества, подвергаемом элементному активационному анализу (ЕАА), образце вещества, содержащем по меньшей мере один элемент образца, который в ходе проведения ЕАА образует продукт активации. Способ включает следующие стадии: (i) позиционирование эталонного вещества рядом с образцом вещества, эталонного вещества, содержащего эталонный элемент, имеющий сечение захвата тепловых нейтронов, составляющее по меньшей мере 1 барн, эталонного вещества, выбранного таким образом, что его осколочный изотоп реакции захвата тепловых нейтронов представляет собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи; (ii) облучение образца вещества и эталонного образца от источника быстрых нейтронов с получением тепловых нейтронов в образце вещества; (iii) обнаружение гамма-лучей, испущенных эталонным образцом, и генерирование характеристических сигналов от обнаруженных гамма-лучей; (iv) расчет коэффициента R, который пропорционален потоку тепловых нейтронов исходя из генерированных сигналов; и (v) определение содержания влаги в образце вещества из соотношения, связывающего содержание влаги с коэффициентом R.

B1**041338****041338****B1**

Область техники, к которой относится изобретение

Настоящая заявка испрашивает приоритет согласно предварительной заявке на патент Австралии № 2018902220, поданной 21 июня 2018 г., содержание которой полностью включено в настоящую заявку посредством ссылки.

Настоящее изобретение относится к способу и устройству для определения потока тепловых нейтронов в образце вещества, подвергаемому элементному активационному анализу, и, в частности, для определения содержания влаги в образце вещества.

Предпосылки создания изобретения

Гамма-активационный анализ (ГАА), также известный как фотонный активационный анализ, представляет собой неразрушающий аналитический метод определения элементов в веществах, например в образцах минералов. Вкратце на образец воздействуют активирующим излучением (например, от источника рентгеновского излучения на основе мощного линейного ускорителя потока электронов), в результате чего в различных элементах образца индуцируются ядерные реакции. Распад любых радиоизотопов в ходе этих реакций приводит к возникновению характерных гамма-лучей, которые можно идентифицировать и определить наличие конкретных элементов или сравнить со стандартными образцами для количественного анализа.

Определение элементного состава минерального образца обычно приводится в пересчете на сухое вещество, чтобы точно определить содержание важных элементов независимо от содержания воды в образце. Соответственно это требует предварительной стадии сушки образца для удаления влаги с последующим измерением количества влаги в образце.

Для плотных веществ желательно использовать метод замедления нейтронов до тепловой скорости при измерении количества влаги в образце, поскольку нейтроны обладают высокой проникающей способностью и позволяют измерить среднее содержание воды в насыпном веществе.

Нейтроны с большой энергией или быстрые нейтроны быстро теряют энергию при столкновении с атомами водорода, которые являются важным компонентом воды. Измерение степени уменьшения энергии быстрых нейтронов, испускаемых источником в результате столкновений внутри образца, дает представление о содержании водорода в образце, что, в свою очередь, может быть связано с содержанием воды. Это требует применения источника нейтронов и электронного детектора нейтронов.

Любое рассмотрение документов, протоколов, материалов, устройств, изделий и т.п. в настоящем описании предназначено исключительно для обеспечения содержанием настоящего раскрытия. Это не предполагает, что какие-либо из этих вопросов составляют часть базы данных предшествующего уровня техники или являются общеизвестными сведениями в области, относящейся к настоящему изобретению, как она существовала в Австралии или где-либо еще до даты приоритета каждого пункта формулы изобретения в этой заявке.

Следует понимать, что в данном описании и формуле изобретения слово "содержать" и варианты этого слова, например "содержащий" и "содержит", указывает на наличие прочих признаков, компонентов целых чисел или стадий.

Краткое изложение существа изобретения

Предлагается способ определения содержания влаги в образце вещества, подвергаемом элементному активационному анализу (ЕАА), образце вещества, содержащем по меньшей мере один элемент образца, который в ходе проведения ЕАА образует продукт активации, причем способ включает

позиционирование эталонного вещества рядом с образцом вещества, эталонного вещества, содержащего эталонный элемент, имеющий сечение захвата тепловых нейтронов, составляющее по меньшей мере 1 барн, эталонного вещества, выбранного таким образом, что его осколочный изотоп реакции захвата тепловых нейтронов представляет собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи;

облучение образца вещества и эталонного образца от источника быстрых нейтронов с получением тепловых нейтронов в образце вещества;

обнаружение гамма-лучей, испущенных эталонным образцом и генерирование характеристических сигналов от обнаруженных гамма-лучей;

расчет коэффициента R , который пропорционален потоку тепловых нейтронов исходя из генерированных сигналов; и

определение содержания влаги в образце вещества из соотношения, связывающего содержание влаги с коэффициентом R .

В варианте осуществления соотношение может представлять собой эмпирическое соотношение, а способ может дополнительно включать определение эмпирического соотношения, связывающего содержание влаги с коэффициентом R , путем расчета коэффициента R для множества образцов вещества.

В варианте осуществления, в котором способ используется в сочетании с активационным анализом быстрыми нейтронами, источник нейтронов, используемый для активации, также служит в качестве источника быстрых нейтронов для измерения их замедления до тепловой скорости.

В варианте осуществления, в котором способ используется в сочетании с фотонным активационным анализом с использованием тормозного рентгеновского излучения, фотонейтроны, полученные в конверсионной мишени для получения тормозного излучения, действуют как источник быстрых нейтро-

нов.

В первом варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе выбирается таким образом, чтобы продукт активации, полученный в результате захвата нейтронов, представлял собой нестабильный изотоп с периодом полураспада, схожим с периодом полураспада продукта активации элемента образца. Эталонный элемент необязательно в эталонном веществе может выбираться таким образом, чтобы продукт активации, полученный в результате захвата нейтронов, представлял собой нестабильный изотоп с периодом полураспада, составляющим от 1 с до 10 мин или более предпочтительно составляющим от 3 с до 1 мин.

В первом варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе предпочтительно выбирается таким образом, чтобы гамма-лучи, испускаемые нестабильным изотопом, имели энергию, которая не интерферирует с гамма-лучами, испускаемыми по меньшей мере одним элементом образца в образце вещества.

В первом варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе предпочтительно выбирается таким образом, чтобы он отличался от элементов образца в образце вещества, или, если он присутствует в образце вещества, то его концентрация была незначительной. В этом случае предпочтительно, чтобы массовая доля эталонного элемента в образце вещества составляла менее чем 2% от массовой доли эталонного элемента в эталонном образце. Более предпочтительно, чтобы массовая доля эталонного элемента, присутствующего в образце вещества, составляла менее чем 0,5% от массовой доли эталонного элемента в эталонном веществе.

В первом или втором варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе выбирается таким образом, чтобы распространенность в природе изотопа-мишени, участвующего в реакции захвата тепловых нейтронов, составляла более чем 1%.

Коэффициент R , который пропорционален потоку тепловых нейтронов, может рассчитываться подсчетом генерируемых сигналов за период времени (t_m); определением измеренной площади пика гамма-излучения, связанного с эталонным элементом ($N\gamma_1$); определением временного коэффициента T_1 , где

$$T_1 = \frac{1}{r_1} (1 - e^{(-r_1 t_i)}) \cdot (e^{(-r_1 t_c)}) \cdot (1 - e^{(-r_1 t_m)})$$

расчетом коэффициента R , где

$$R = \frac{N\gamma_1}{T_1}$$

где t_i и t_c соответственно представляют собой время измерения облучения и выдержки, использованное для проведения элементного активационного анализа.

В любом варианте осуществления количество эталонного элемента выбирается таким образом, чтобы получить пик спектра гамма-излучения, имеющий, по меньшей мере, количество отсчетов, равное 1000, предпочтительно количество отсчетов, превышающее 4000, при режимах работы, используемых для измерения элемента образца.

В одном варианте осуществления выбранный эталонный элемент представляет собой скандий. В другом варианте осуществления выбранный эталонный элемент представляет собой скандий, а выбранный элемент образца представляет собой золото или серебро.

В любом варианте осуществления эталонное вещество может содержать второй эталонный элемент, выбранный таким образом, чтобы его осколочный изотоп, полученный в ходе реакции с пучком первичного излучения, испускаемым источником, представлял собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи, энергия которых отличается от энергии гамма-лучей, испускаемых радиоизотопом, связанным с первым эталонным элементом.

В таком варианте осуществления второй эталонный элемент предпочтительно выбирается таким образом, чтобы осколочный изотоп, связанный со вторым элементом, имел период полураспада, по существу схожий с периодом полураспада осколочного изотопа, связанного с первым эталонным элементом. Второй эталонный элемент предпочтительно выбирается таким образом, чтобы гамма-лучи, испущенные его нестабильным изотопом, имели энергию, которая не интерферирует с гамма-лучами, испущенными по меньшей мере одним элементом в образце вещества.

В одном конкретном варианте осуществления, в котором способ включает использование второго эталонного элемента; и

испускание источником высокоэнергетического рентгеновского излучения,

выбранный элемент образца представляет собой золото или серебро, выбранный эталонный элемент представляет собой скандий, второй выбранный эталонный элемент представляет собой бром, а вторая эталонная реакция представляет собой образование метасостояния ^{79}Br посредством неупругого рассеяния фотонов.

Стадия облучения образца вещества и эталонного вещества излучением от источника быстрых нейтронов и стадия измерения облученного образца вещества и эталонного вещества продолжаются в течение заранее определенного периода времени, чтобы измерить концентрацию элемента(ов) в образце вещества с требуемой степенью точности.

Предлагается устройство для определения содержания влаги в образце вещества, подвергнутом элементному активационному анализу (ЕАА), образце вещества, содержащем по меньшей мере один элемент образца, который в ходе проведения ЕАА образует продукт активации, причем устройство содержит

источник быстрых нейтронов, способный облучать образец вещества и эталонное вещество для получения тепловых нейтронов в образце вещества;

позиционирование эталонного вещества рядом с образцом вещества, эталонного вещества, содержащего эталонный элемент, имеющий сечение захвата тепловых нейтронов, составляющее по меньшей мере 1 барн, эталонного вещества, выбранного таким образом, что его осколочный изотоп реакции захвата тепловых нейтронов представляет собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи;

детекторно-измерительную станцию, физически отделенную от источника быстрых нейтронов, детекторно-измерительную станцию, содержащую,

по меньшей мере, первый детектор, способный (i) обнаруживать гамма-лучи, испущенные эталонным веществом; и (ii) генерировать характеристические сигналы от обнаруженных гамма-лучей; и

процессор, соединенный с детектором и способный осуществлять расчет коэффициента R , который пропорционален потоку тепловых нейтронов, исходя из генерированных сигналов и определять содержание влаги в образце вещества из соотношения, связывающего содержание влаги с коэффициентом R .

В варианте осуществления, в котором устройство дополнительно используется для осуществления активационного анализа быстрыми нейтронами, источник нейтронов, используемый для активации, также служит в качестве источника быстрых нейтронов для проведения измерений по их замедлению до тепловой скорости.

В варианте осуществления, в котором устройство дополнительно используется для осуществления фотонного активационного анализа с использованием тормозного рентгеновского излучения; фотонейтроны, полученные в конверсионной мишени для получения тормозного излучения, действуют как источник быстрых нейтронов. В таком варианте осуществления энергии фотонейтронов, образующихся посредством тормозного излучения, обычно составляют от нескольких кэВ до нескольких МэВ.

Соотношение может представлять собой эмпирическое соотношение, а процессор может дополнительно определять эмпирическое соотношение, связывающее содержание влаги с коэффициентом R , путем расчета R для множества образцов вещества.

Источником быстрых нейтронов может служить испускающий нейтроны изотопный источник, генератор нейтронов с герметичной трубкой, ускоритель частиц или источник рентгеновских лучей, производящий фотонейтроны. Источником быстрых нейтронов может быть D-D генератор нейтронов, который производит нейтроны с энергией около 2,45 МэВ, или D-T генератор нейтронов, который производит нейтроны с энергией около 14 МэВ.

Следует понимать, что детектором или детекторами может служить любой подходящий детектор, способный различать гамма-лучи, испускаемые эталонным веществом и образцом вещества. Например, детектором может служить детектор с разрешением по энергии, например детектор CdTe или детектор HPGe.

В первом варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе предпочтительно выбирается таким образом, чтобы осколочный изотоп, полученный в результате захвата нейтронов, представлял собой нестабильный изотоп с периодом полураспада, схожим с периодом полураспада продукта активации элемента образца. В одном варианте осуществления осколочный изотоп, полученный в результате захвата нейтронов, представляет собой нестабильный изотоп с периодом полураспада, составляющим от 1 с до 10 мин, а более предпочтительно составляющим от 3 с до 1 мин.

В первом варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе предпочтительно выбирается таким образом, чтобы гамма-лучи, испускаемые нестабильным изотопом, имели энергию, которая не интерферирует с гамма-лучами, испускаемыми по меньшей мере одним элементом образца в образце вещества.

В первом варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе либо отличается от элементов в образце вещества, или, если он присутствует в образце вещества, то его концентрация незначительна. В этом последнем случае массовая доля эталонного элемента в образце вещества предпочтительно составляет менее чем 2% от массовой доли эталонного элемента в эталонном веществе. Более предпочтительно, чтобы массовая доля эталонного элемента, присутствующего в образце вещества, составляла менее чем 0,5% от массовой доли эталонного элемента в эталонном веществе.

В первом или втором вариантах осуществления эталонный элемент в эталонном веществе выбирается таким образом, чтобы распространенность в природе изотопа-мишени, участвующего в реакции захвата тепловых нейтронов, составляла более чем 1%. Изотопное обогащение необязательно может использоваться для увеличения распространенности изотопа-мишени выше его естественного уровня.

В первом или втором варианте осуществления эталонный элемент в эталонном веществе выбирается таким образом, чтобы он не вступал в реакцию интерференции, в ходе которой продукт активации может образовываться в результате конкурирующих реакций с другими встречающимися в природе изотопами эталонного элемента.

В большинстве, хотя и не во всех случаях, образец вещества представляет собой порошок, гранулу или суспензию. В таких случаях контейнер для образца представляет собой герметичный контейнер.

Краткое описание фигур

Для лучшего понимания изобретения ниже приводится подробное описание примерных вариантов осуществления со ссылкой на прилагаемые фигуры.

На фиг. 1 представлено схематическое изображение устройства в соответствии с вариантом осуществления изобретения.

На фиг. 2 представлен график, показывающий экспериментально измеренные соотношения в ходе активации скандия с бромом для тринадцати образцов минеральной руды, каждый из которых измерен при четырех различных значениях влажности.

На фиг. 3 представлен график, показывающий результаты измерения влажности с использованием настоящего изобретения в сравнении с истинной влажностью для тринадцати минеральных образцов, каждый из которых измерен при четырех различных уровнях содержания воды.

Подробное описание изобретения

На фиг. 1 показано устройство для измерения содержания влаги в образце вещества, который представляет собой образец минерала. Устройство содержит станцию 100 облучения и детекторно-измерительную станцию 110. Станция 100 облучения содержит герметичный цилиндрический контейнер 101 для образца, способный удерживать образец вещества в порошкообразной, гранулированной или суспензионной форме, чей элементный состав и уровень влажности подлежит определению. Контейнер 101 для образца предпочтительно выполняется из пластмассы, не содержащей каких-либо интерферирующих элементов. Эталонное вещество 103 в форме диска входит в состав металлического носителя (магния), который содержит в себе эталонный элемент, чувствительный к тепловым нейтронам. Эталонный элемент содержится в носителе в подходящей форме. Если эталонный элемент представляет собой скандий, то металлический носитель может иметь эталонный элемент в виде Sc_2O_3 . Эталонный диск съемно крепится к внешней поверхности контейнера 101 для образца. В проиллюстрированном варианте осуществления эталонный диск 103 располагается в углубленной части цилиндрического контейнера 101 для образца. Это предпочтительно, чтобы избежать загрязнения. Контейнер 101 для образца имеет углубление в верхней части, размеры которого достаточны для вмещения эталонного диска 103.

Станция 100 облучения дополнительно содержит источник 102 излучения, способный испускать излучение в контейнер 101 для образца, содержащий эталонное вещество и транспортировочный механизм (не показан) для загрузки и удержания контейнера 101 для образца относительно источника 102 излучения, а также удаления контейнера 101 для образца по завершении облучения. Защита от радиационного излучения (не показана) предназначена для защиты операторов и детекторно-измерительной станции во время использования источника 102 излучения.

Детекторно-измерительная станция 110, которая находится в стороне от источника излучения, содержит по меньшей мере один, предпочтительно два или более детекторов 111, 112 гамма-излучения, расположенных вокруг контейнера 101 для образца. Детекторы 111, 112 гамма-излучения предназначены для обнаружения излучения от образца вещества и/или эталонного вещества и для генерации характеристических сигналов от обнаруженного излучения. Каждый из детекторов 111, 112 имеет круговое поперечное сечение и соответственно располагается над и под контейнером 101 для образца, чтобы не только подсчитывать большую часть гамма-лучей, испускаемых образцом, но также повышать единство измерений элемента образца. Кроме того, для различения разных сигналов, исходящих от элемента образца и эталонного элемента(ов) исходя из их энергии, каждый из детекторов 111, 112 гамма-излучения представляет собой энергорассеивающий детектор. Детекторно-измерительная станция 110 дополнительно содержит систему 113 обработки характеристических сигналов от обнаруженного излучения с целью определения содержания влаги в образце и концентрации по меньшей мере одного элемента образца.

Предпочтительные критерии для выбора подходящего эталонного элемента.

Критерии для выбора подходящего эталонного элемента для измерения потока тепловых нейтронов следующие. Во-первых, не следует ожидать, что элемент в эталонном диске будет присутствовать в значительных концентрациях в измеряемом образце вещества; во-вторых, один или несколько изотопов в элементе эталонного диска должны иметь высокое поперечное сечение захвата тепловых нейтронов, составляющее по меньшей мере 1 барн или по меньшей мере 10^{-24} см²; в-третьих, осколочный изотоп реакции захвата нейтронов должен представлять собой нестабильный изотоп с подходящим периодом полураспада, в идеале составляющем от 1 с до 10 мин, а более предпочтительно составляющем от 3 с до 1 мин; в-четвертых, нестабильный осколочный изотоп, образованный в ходе реакции захвата нейтронов, должен интенсивно испускать один или несколько гамма-лучей, а энергия гамма-излучения, испускаемая нестабильным изотопом, не должна интерферировать с гамма-излучением, испускаемым элементами, активированными в образце вещества.

Согласно этим требованиям часть тепловых нейтронов, образующихся в образце вещества, будет захвачена эталонным элементом в эталонном диске. Это приведет к образованию нестабильного радиоизотопа в эталонном диске со значением, пропорциональным потоку тепловых нейтронов.

Сечения активации тепловых нейтронов и способность к распаду потенциальных элементов в эталонном диске

Мишень	Пропорция (%)	$\sigma_c(b)$	Осколочный изотоп	$t_{1/2}$	Интерференция	Общее правило эмиссии гамма-лучей (кэВ)
^{176}Hf	5,26	26	^{177m}Hf	1,09 сек.	Да	Рентгеновское излучение + гамма-излучение до 466
^{166}Er	33,5	15	^{167m}Er	2,27 сек.	Да	48,2(5,37%) 49,1(9,44%) 55,5(1,01%) 55,7(1,94%) 207,8(42,4%)
^{182}W	26,5	20,7	^{183m}W	5,20 сек.	Да	Рентгеновское излучение + 99,1(8,14%) 102,5(2,42%)
						107,9(18,9%) 160,5(5,12%)
^{176}Yb	13,00	3	^{177m}Yb	6,41 сек.		Рентгеновское излучение + 104,5(76,5%) 227,0(12,6%)
^{80}Kr	2,286	4,6	^{81m}Kr	13,10 сек.		190,5 (67,7%)
^{115}In	95,71	202	^{116}In	14,10 сек.		1293,4 (1,30%)
^{76}Se	9,37	21	^{77m}Se	17,36 сек.	Да	161,9 (53,2%)
^{176}Hf	27,28	50	^{179m}Hf	18,67 сек.	Да	Рентгеновское излучение + 160,7(2,88%) 214,3(95,3%)
^{45}Sc	100,0	10	^{46m}Sc	18,75 сек.		142,5 (62,0%)
^{109}Ag	48,16	91	^{110}Ag	24,56 сек.		657,5 (4,50%)
^{103}Rh	100,0	134	^{104}Rh	42,30 сек.		555,8 (2,00%)
^{164}Dy	28,26	1700	^{165m}Dy	1,26 мин		Рентгеновское излучение + 108,2(3,01%) 515,5(1,53%)
^{107}Ag	51,84	37,6	^{108}Ag	2,38 мин		633,0 (1,76%)
^{51}V	99,75	4,9	^{52}V	3,74 мин		1434,1 (100,0%)
^{103}Rh	100,0	11	^{104m}Rh	4,34 мин		51,4(48,3%) 77,5(2,08%) 97,1(2,99%)
^{65}Cu	30,85	2,17	^{66}Cu	5,12 мин		1039,2 (9,23%)

В таблице выше перечислены элементы периодической таблицы, которые имеют сечение захвата тепловых нейтронов не менее 1 барн для изотопа, имеющего распространенность в природе не менее 1%, где реакция захвата приводит к возникновению осколочного изотопа с периодом полураспада, составляющим от 1 с до 10 мин, а указанный осколочный изотоп испускает по меньшей мере один гамма-луч с энергией выше 40 кэВ с вероятностью излучения 1% или более.

В столбце с названием "Мишень" приведен потенциальный элемент в эталонном диске и конкретный изотоп, который подвергается активации посредством захвата нейтронов. В столбце с названием "Пропорция (%)" показана распространенность в природе соответствующего изотопа, указанного в столбце "Мишень". В столбце с названием "Осколочный изотоп" приведены осколочные изотопы реакции захвата нейтронов. Обратите внимание, что осколочный изотоп может находиться в основном состоянии или в метасостоянии, причем последнее обозначается надстрочным индексом "m". В столбце с названием " $\sigma_c(b)$ " показано измеренное в барнах сечение захвата тепловых нейтронов для этого изотопа, приводящее к образованию указанного осколочного изотопа. В столбце с названием " $t_{1/2}$ " показан период полураспада осколочного изотопа. В столбце с названием "Интерференция" показаны конкурирующие реакции неупругого рассеяния, которые могут также приводить к образованию осколочного изотопа. Наконец, в столбце с названием "Общее правило эмиссии гамма-лучей" указывается энергия и интенсивность (%) основного рентгеновского или гамма-излучения, испускаемого осколочным изотопом.

Выбор наиболее подходящего эталонного элемента будет зависеть от концентраций и способности к распаду других элементов в образце вещества, которые подлежат измерению с помощью активационного анализа. В идеале эталонный элемент должен иметь период полураспада, схожий с периодом полураспада измеряемых продуктов активации, и создавать гамма-излучение с подходящей энергией, которое не интерферирует с гамма-излучением продукта активации. Кроме того, не следует ожидать, что эталонный элемент будет присутствовать в образцах, измеряемых при статистически значимых концентрациях.

Массовая доля эталонного элемента, присутствующего в образце, должна составлять менее 2% от массовой доли эталонного элемента в эталонном диске. Предпочтительно, чтобы массовая доля эталонного элемента, присутствующего в образце, должна составлять менее 0,5% от массовой доли эталонного элемента в эталонном диске.

Другим фактором, влияющим на выбор эталонного элемента, является отсутствие реакций интерференции. Необходимо учитывать два типа реакций интерференции. Первый тип включает образование изотопа-мишени в эталонных элементах в ходе реакций неупругого рассеяния быстрых нейтронов или фотонов. Например, осколочный изотоп ^{77m}Se , образованный в результате захвата нейтрона ^{76}Se , также может быть образован в ходе реакций $^{77}\text{Se}(g,g')^{77m}\text{Se}$ или $^{77}\text{Se}(n,n')^{77m}\text{Se}$ с распространенным в природе ^{77}Se . Возникновение таких реакций исключает потенциальный эталонный элемент из дальнейшего рассмотрения, поскольку невозможно определить, образуется ли осколочный изотоп в ходе неупругого рассеяния или в ходе захвата тепловых нейтронов.

Второй тип реакции интерференции представляет собой образование нежелательных радиоактивных продуктов активации в ходе реакций (g,g') , (n,n') , (g,n) или (n,g) на изотопе-мишени или других распространенных в природе изотопов в эталонном элементе. Если эти реакции имеют слабую способность к распаду, то они могут отрицательно влиять на измерение требуемых продуктов распада, как у эталонного элемента, так и у элементов, анализируемых в образце. Эталонные элементы, в которых изотоп-мишень составляет 100% или почти 100% от естественной распространенности изотопа в природе, являются предпочтительными, чтобы исключить или минимизировать этот класс реакций интерференции.

Для иллюстрации выбора оптимального эталонного элемента приводятся два примера. В первом примере описывается гамма-активационный анализ золота (неупругое рассеяние фотонов). В ходе реакции $^{197}\text{Au}(g,g')^{197m}\text{Au}$ получают изомерное состояние золота-197, которое имеет период полураспада 7,73 с и распадается с образованием гамма-излучения с энергией 279 кэВ. При промышленной добыче золото присутствует в низких концентрациях и поэтому важно, чтобы гамма-лучи, испускаемые эталонным элементом, имели энергию ниже 279 кэВ, чтобы избежать возможных интерференций.

С учетом элементов в таблице выше, имеющих период полураспада, схожий с периодом полураспада изомера золота (7,73 с), идеальным выбором в качестве эталонного элемента является скандий (Sc). Se и Hf исключены из-за наличия реакций интерференции, In и Ag производят гамма-лучи с энергией выше 279 кэВ, а Yb имеет статистически значимые реакции интерференции. Использование криптона-80 (Kr) нецелесообразно из-за низкой распространенности в природе его изотопов и сложности работы с газообразным эталонным элементом.

Во втором примере описывается анализ меди в ходе реакции $^{63}\text{Cu}(g,n)^{62}\text{Cu}$. Медь-62 имеет период полураспада 9,67 мин и распадается с образованием гамма-лучей с энергией 511 кэВ. При промышленной добыче медь может присутствовать в значительных концентрациях и генерировать характерные признаки интенсивного гамма-излучения. В этом случае предпочтительно, чтобы эталонный диск испускал гамма-излучение с энергией выше 511 кэВ, чтобы минимизировать интерференцию с откликом меди. В этом примере предпочтительными элементами в эталонном диске являются родий (Rh) или ванадий (V).

Следует понимать, что анализ других элементов в образце минерала может потребовать выбора других эталонных элементов. Например, если продукты активации элементов в измеряемом образце вещества имеют период полураспада значительно более длительный, чем продукты активации золота или меди, то необходимо будет использовать эталонный элемент со схожим периодом полураспада. Для облегчения этого выбора существуют таблицы распространенности в природе элементов, сечений захвата тепловых нейтронов, периодов полураспада и эмиссии гамма-излучения.

Количество эталонного элемента, используемого в эталонном диске, выбирается таким образом, чтобы гарантировать, что сигнал гамма-излучения, измеренный в детекторе, имеет достаточную амплитуду для его измерения с хорошей статистической точностью. Предпочтительно, чтобы количество используемого эталонного элемента давало пик спектра гамма-излучения, содержащий по меньшей мере 1000 отсчетов. Более предпочтительно, чтобы пик спектра гамма-излучения от эталонного элемента содержал по меньшей мере 4000 отсчетов. Качество эталонного элемента можно определить напрямую, выполнив тест с использованием известного количества эталонного элемента, например 1 г. Поскольку площадь детектируемого пика гамма-излучения пропорциональна массе используемого эталонного элемента, то его количество можно легко скорректировать для получения пика требуемой интенсивности на основе результатов этого теста.

Например, в случае измерения элементов в образцах минеральной руды методом гамма-активационного анализа с использованием ускорителя электронов мощностью 8 кВт, работающего с энергией 8,5 МэВ, подходящее количество скандия для использования в эталонном диске составляет от 1 до 3 г, что дает площадь пика в 2000-6000 отсчетов для сухого образца.

Кроме того, эталонный диск может содержать второй эталонный элемент, который вступает в реакцию с пучком первичного излучения, испускаемым источником, с образованием радиоизотопа, который испускает гамма-лучи, энергия которых отличается от энергии гамма-лучей, испускаемых первым эталонным элементом. Второй эталонный элемент следует выбирать таким образом, чтобы он имел период полураспада, схожий с периодом полураспада первого эталонного элемента, и не присутствовал в анали-

зируемых образцах в заметной концентрации. Кроме того, второй эталонный элемент следует выбирать таким образом, чтобы его осколочный изотоп не интерферировал с элементами в измеряемом образце.

Второй эталонный элемент можно использовать для отслеживания любых изменений выходной мощности источника излучения, которые в противном случае привели бы к изменениям интенсивности пика гамма-излучения, измеренной у первого эталонного элемента. Обычно коэффициент R рассчитывается как

$$R = \frac{N_{\gamma 1}}{N_{\gamma 2}} \cdot \frac{T_2}{T_1}, \quad \text{Уравнение (1)}$$

где $N_{\gamma 1, 2}$ представляет собой измеренную площадь пика гамма-излучения, связанного с первым или вторым эталонным элементом, а

$T_{1, 2}$ представляет собой временной коэффициент, задаваемый как

$$T_{1, 2} = \frac{1}{r_{1, 2}} (1 - \exp(-r_{1, 2} t_i)) \cdot \exp(-r_{1, 2} t_c) \cdot (1 - \exp(-r_{1, 2} t_m)) \quad \text{Уравнение (2)}$$

где $r_{1, 2} = \ln(2)/t_{1/2}$ представляет собой скорость распада осколочного изотопа первого или второго эталонного элемента, а

t_i , t_c и t_m соответственно представляют собой время облучения, выдержки и измерения, использованное для проведения элементного активационного анализа.

Коэффициент R представляет собой параметр, величина которого пропорциональна потоку тепловых нейтронов вблизи образца, с поправкой на любое изменение выходной мощности источника излучения.

Эмпирические наблюдения показывают, что зависимость между коэффициентом R и содержанием влаги в образце ω (мас.%) выражается как

$$\frac{R(\omega)}{R(0)} = a \exp(-b\omega) \quad \text{Уравнение (3)}$$

где $R(0)$ представляет собой R , измеренное для сухого образца, а

величины a и b представляют собой константы, определенные эмпирическим путем.

Для образцов вещества аналогичного типа значение $R(0)$ примерно постоянно. Значения $R(0)$ и параметры a и b определяют путем измерения значений R для ряда образцов с различным составом и различным содержанием влаги.

Методика.

В процессе работы определяется эталонный элемент и изготавливается эталонный диск 103, выполняемый, по меньшей мере, частично в эталонном элементе. После этого порошкообразный образец вещества загружается в контейнер для образца. Робот позиционирует контейнер 101 для образца относительно эталонного диска 103. Контейнер для образца и эталонный диск 103 затем перемещаются как одно целое к источнику 102 излучения. Источник 102 излучения приводится в действие на определенный период времени для испускания излучения в образец вещества, чтобы вызвать активацию элементов внутри образца вещества.

Если метод активации представляет собой активационный анализ быстрыми нейтронами (FNAA), то испускаемые источником высокоэнергетические нейтроны будут замедляться до тепловой скорости внутри образца вещества в тесной зависимости от содержания водорода в образце.

Если метод активации представляет собой гамма-активационный анализ (ГАА), также известный как фотонный активационный анализ, то быстрые нейтроны испускаются в качестве побочного продукта активации в результате взаимодействия высокоэнергетического источника фотонов с веществами, используемыми для создания источника излучения. Например, в случае если источником фотонов является источник рентгеновского излучения, использующий ускоритель электронов и тормозную конверсионную мишень, изготовленную из вольфрама, то рентгеновские лучи с энергией выше пороговой 6,7 МэВ вызовут образование нейтронов в ходе (g,n) реакций на изотопах вольфрама в мишени. Полученные таким образом нейтроны имеют энергию в диапазоне от кэВ до МэВ, и они будут замедлены до тепловой скорости в образце вещества в прямой зависимости от содержания влаги в образце.

По окончании периода облучения робот переносит контейнер 101 для образца и эталонный диск 103 в детектор и измерительную станцию 110. Предпочтительно осуществлять перенос образца автоматически с использованием, например, робота, пневматического или электрического механизма. Однако в случае сравнительно больших периодов полураспада осколочных изотопов элемента образца и эталонного элемента контейнер 101 для образца и эталонный диск 103 можно вручную перенести на детекторно-измерительную станцию.

В детекторно-измерительной станции 110 первый детектор гамма-излучения 111 располагается рядом со стороной контейнера для образца, к которому прикрепляется эталонное вещество 103. Следовательно, этот первый детектор 111 сможет обнаруживать гамма-лучи, испускаемые диском 103 эталонного элемента, без прохождения сначала гамма-лучами образца вещества и тем самым ослабления.

Второй детектор 112 гамма-излучения располагается на стороне контейнера для образца напротив эталонного вещества. Этот второй детектор 112 используется для повышения эффективности обнаружения гамма-излучения, испускаемого образцом вещества.

Процессор 113 используется для регистрации и подсчета сигналов гамма-излучения от детекторов. Процессор предназначен для различения энергии обнаруженных гамма-лучей, позволяя отделять сигналы от активированных элементов в образце вещества (сигналы активации) от сигналов с диска 103 эталонного элемента (сигналы эталонного диска).

Контейнер 101 для образца, содержащий образец вещества, остается в детекторно-измерительной станции до тех пор, пока не истечет достаточное количество времени для подсчета сигналов активации и сигналов с эталонного диска, которые подлежат подсчету до требуемой степени точности. Контейнер 101 для образца, содержащий образец вещества, затем может использоваться для следующего цикла активации и измерения или может извлекаться из детекторно-измерительной станции, чтобы предоставить возможность анализа нового образца.

Сигнал от эталонного элемента в эталонном диске обеспечивает непосредственное измерение потока тепловых нейтронов вблизи образца вещества во время периода облучения. Этот сигнал может быть связан с содержанием водорода в образце и, следовательно, позволит определить содержание влаги в образце вещества.

На фиг. 2 показаны экспериментально измеренные соотношения в ходе активации скандия с бромом для тринадцати образцов минеральной руды, каждый из которых измерен при четырех различных значениях влажности. Модель линейной регрессии может использоваться для согласования этих данных с кривой, имеющей функциональную форму уравнения (3) и для определения значений параметров a и b . Результаты калиброванного определения влажности показаны на фиг. 3. Сходимость результатов измерений влажности составляет 0,8 мас.%, а общая погрешность составляет примерно 1,5 мас.%.

Преимущество по меньшей мере одного варианта осуществления изобретения состоит в том, что содержание влаги в образце вещества можно определять параллельно с элементным активационным анализом (количественный анализ образца минерала с использованием активационного анализа быстрыми нейтронами или фотонного активационного анализа). Это устраняет необходимость использовать дополнительное оборудование для обнаружения и дополнительно исключает необходимость в дополнительном источнике излучения, поскольку источник излучения, который используется для проведения элементного активационного анализа, одновременно служит источником для измерения замедления нейтронов до тепловой скорости.

Специалистам в отрасли техники, к которой относится данное изобретение, очевидно, что точность активационного анализа при низких концентрациях элементов зависит от мощности источника излучения. Однако очень мощный источник излучения способен переполнить, если не повредить, активный нейтронный детектор, который расположен вблизи от образца во время облучения (как в случае использования традиционных нейтронных влагомеров с электронным нейтронным детектором). В таких вариантах осуществления изобретения детектор может быть физически отделен и экранирован от излучения, испускаемого источником, что устраняет риск повреждения детектора.

В показанном варианте осуществления контейнер 101 для образца имеет углубление в верхней части, размеры которого достаточны для вмещения эталонного диска 103. В соответствии с другим вариантом осуществления эталонный диск может выполняться в виде неглубокой детали тарельчатой формы, представляющей собой круглое тело, имеющее стенку по периметру, а эталонное вещество обычно занимает часть круглого тела. При такой конфигурации поверхность контейнера для образца может прилегать к круглому телу, а весь контейнер для образца может удерживаться в детали тарельчатой формы, не выступая над стенкой периметра. Контейнер для образца может необязательно выступать над стенкой периметра. При любой конфигурации эталонный диск 103 и контейнер 101 для образца должны располагаться в непосредственной близости друг от друга для их одновременного облучения и измерения.

В проиллюстрированном варианте осуществления эталонный диск 103 выполняется встраиванием эталонного элемента в прочный магнетический носитель, а в альтернативных вариантах осуществления эталонный диск может выполняться полностью из эталонного элемента.

Вышеприведенное описание относится к измерению содержания влаги в образцах минералов параллельно с гамма-активационным анализом (GAA) образца. Однако изобретение также применимо для определения содержания влаги в образцах с помощью активационного анализа быстрыми нейтронами. Активационный анализ быстрыми нейтронами дополняет гамма-активационный анализ и обеспечивает высокую чувствительность для легких элементов, которые нелегко определить с помощью GAA.

Специалистам в данной области техники очевидны возможные модификации и усовершенствования изобретения. Предполагается, что такие модификации и усовершенствования входят в объем настоящего изобретения. Например, расположение источника и контейнера для образца не ограничивается описанным вариантом осуществления. В вариантах осуществления источник может располагаться над или под контейнером для образца. В еще одном варианте осуществления источник может по существу окружать контейнер для образца. Кроме того, хотя в проиллюстрированном варианте осуществления используется пара детекторов, в альтернативных вариантах осуществления может использоваться один детектор, если он располагается на той же стороне контейнера для образца, где и эталонный диск.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ определения содержания влаги в образце вещества, подвергнутом элементному активационному анализу (ЕАА), образце вещества, содержащем по меньшей мере один элемент образца, который в ходе проведения ЕАА образует продукт активации, причем способ включает

позиционирование эталонного вещества рядом с образцом вещества, эталонного вещества, содержащего эталонный элемент, имеющий сечение захвата тепловых нейтронов, составляющее по меньшей мере 1 барн, эталонного вещества, выбранного таким образом, что его осколочный изотоп реакции захвата тепловых нейтронов представляет собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи;

облучение образца вещества и эталонного образца от источника быстрых нейтронов с получением тепловых нейтронов в образце вещества; обнаружение гамма-лучей, испущенных эталонным образцом, и генерирование характеристических сигналов от обнаруженных гамма-лучей;

применение генерированных сигналов для определения потока тепловых нейтронов вблизи образца вещества; и

расчет соотношения генерированных сигналов и содержания водорода в образце вещества для определения содержания влаги образца вещества.

2. Способ по п.1, дополнительно включающий выбор эталонного элемента таким образом, чтобы осколочный изотоп, образованный в ходе захвата нейтронов, имел период полураспада, схожий с периодом полураспада продукта активации элемента образца.

3. Способ по п.2, дополнительно включающий выбор эталонного элемента таким образом, чтобы гамма-лучи, испущенные осколочным изотопом, имели энергию, которая не интерферирует с гамма-лучами, испущенными элементом образца.

4. Способ по п.2 или 3, дополнительно включающий выбор эталонного элемента таким образом, чтобы

(i) он отличался от элемента образца в образце вещества, а

(ii) в случае его наличия в образце вещества его концентрация в образце вещества была сравнительно незначительной.

5. Способ по п.4, отличающийся тем, что массовая доля эталонного элемента, присутствующего в образце вещества, составляет менее чем 2% от массовой доли эталонного элемента в эталонном веществе.

6. Способ по п.4, отличающийся тем, что массовая доля эталонного элемента в образце вещества составляет менее чем 0,5% от массовой доли эталонного элемента в эталонном образце.

7. Способ по любому из предшествующих пунктов, дополнительно включающий выбор эталонного элемента таким образом, чтобы распространенность в природе изотопа-мишени, увеличивающая осколочный изотоп, составляла более чем 1%.

8. Способ по любому из предшествующих пунктов, дополнительно включающий выбор эталонного элемента таким образом, чтобы эталонный элемент не вступал в реакцию интерференции, в ходе которой осколочный изотоп образуется в результате реакций с другими встречающимися в природе изотопами эталонного элемента, отличными от реакции захвата тепловых нейтронов.

9. Способ по любому из предшествующих пунктов, где коэффициент R , пропорциональный потоку тепловых нейтронов, рассчитывают

подсчетом генерируемых сигналов за период времени (t_m);

определением измеренной площади пика гамма-излучения, связанного с эталонным элементом (N_{γ_1});

определением временного коэффициента T_1 , где

$$T_1 = \frac{1}{T_1} (1 - e^{(-r_1 t_i)}) \cdot (e^{(-r_1 t_c)}) \cdot (1 - e^{(-r_1 t_m)})$$

а также расчетом коэффициента R , где

$$R = \frac{N_{\gamma_1}}{T_1}$$

где t_i и t_c соответственно представляют собой время измерения облучения и выдержки, использованное для проведения элементного активационного анализа.

10. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что соотношение между генерированными сигналами и содержанием водорода представляет собой эмпирическое соотношение, и отличающийся тем, что способ дополнительно включает определение эмпирического соотношения для множества образцов вещества.

11. Способ по п.9, дополнительно включающий выбор количества эталонного элемента таким образом, чтобы он давал пик спектра гамма-излучения с количеством отсчетов, по меньшей мере равным 1000.

12. Способ по п.1, отличающийся тем, что элемент образца представляет собой золото или серебро, а эталонный элемент представляет собой скандий.

13. Способ по любому из предшествующих пунктов, отличающийся тем, что эталонное вещество содержит второй эталонный элемент, а способ дополнительно включает выбор второго эталонного элемента таким образом, чтобы его осколочный изотоп реакции с первичным излучением, испускаемым

источником, представлял собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи, имеющие энергию, отличную от энергии гамма-лучей, испущенных радиоизотопом, связанным с первым эталонным элементом.

14. Способ по п.13, дополнительно включающий выбор второго эталонного элемента таким образом, чтобы осколочный изотоп, связанный со вторым эталонным элементом, имел период полураспада, по существу схожий с периодом полураспада осколочного изотопа, связанного с первым эталонным элементом.

15. Способ по п.13 или 14, отличающийся тем, что элемент образца выбирается из золота или серебра, эталонный элемент выбирается из скандия, а второй эталонный элемент выбирается из брома.

16. Устройство для определения содержания влаги в образце вещества, подвергнутом элементному активационному анализу (ЕАА), образце вещества, содержащем по меньшей мере один элемент образца, который в ходе проведения ЕАА образует продукт активации, причем устройство содержит

источник быстрых нейтронов, способный облучать образец вещества и эталонное вещество для получения тепловых нейтронов в образце вещества;

эталонное вещество, позиционированное рядом с образцом вещества, эталонное вещество, содержащее элемент, имеющий сечение захвата тепловых нейтронов, составляющее по меньшей мере 1 барн, эталонное вещество, выбранное таким образом, что его осколочный изотоп реакции захвата тепловых нейтронов представляет собой радиоизотоп, который испускает гамма-лучи;

детекторно-измерительную станцию, физически отделенную от источника быстрых нейтронов, детекторно-измерительную станцию, содержащую,

по меньшей мере, первый детектор, способный (i) обнаруживать гамма-лучи, испущенные эталонным веществом и (ii) генерировать характеристические сигналы от обнаруженных гамма-лучей; и

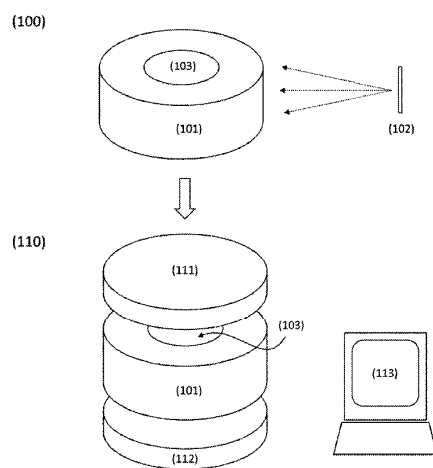
процессор, соединенный с детектором и способный применять генерированные сигналы для определения потока тепловых нейтронов и рассчитывать соотношение генерированных сигналов и содержания водорода в образце вещества для определения содержания влаги образца вещества.

17. Устройство по п.16, отличающееся тем, что источником быстрых нейтронов может служить испускающий нейтроны изотопный источник, генератор нейтронов с герметичной трубкой, ускоритель частиц или источник рентгеновских лучей, производящий фотонейтроны.

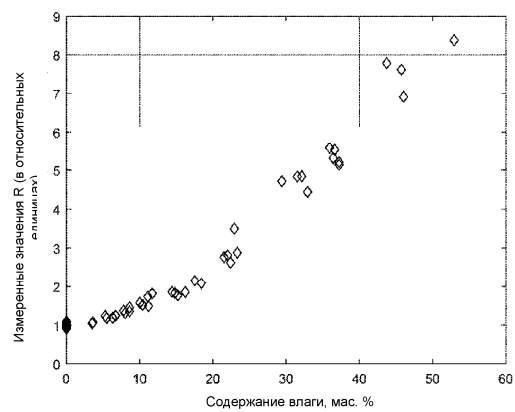
18. Устройство по п.16 или 17, отличающееся тем, что процессор может дополнительно определять эмпирическое соотношение, связывающее генерированные сигналы с содержанием водорода, для множества образцов вещества.

19. Устройство по любому из пп.16-18, отличающееся тем, что эталонное вещество размещается непосредственно примыкающим к образцу вещества, а первый детектор в ходе использования устанавливается рядом с внешней стороной эталонного вещества.

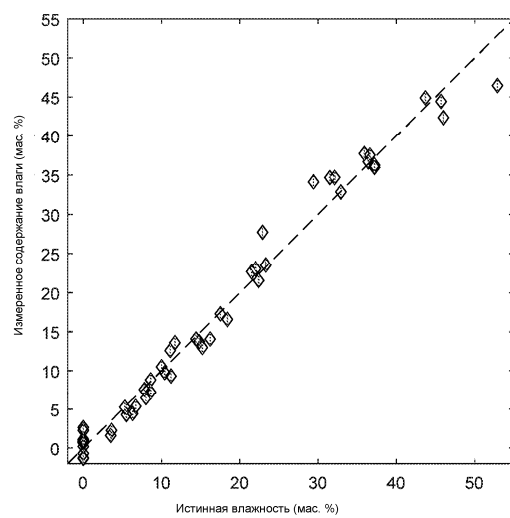
20. Устройство по п.18 или 19, дополнительно содержащее второй детектор с разрешением по энергии, который в ходе использования устанавливается рядом с внешней стороной образца вещества.



Фиг. 1



Фиг. 2



Фиг. 3

