ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ, 2023, том 14, № 4, с. 356–362

# ИНЖЕНЕРНОЕ ПРОЕКТИРОВАНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКОЙ АППАРАТУРЫ

УДК 539.12.04

# ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДА МЕЧЕНЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ АНАЛИЗА МАТЕРИАЛА НА КОНВЕЙЕРЕ

© 2023 г. В. Ю. Алексахин<sup>*a*, *b*</sup>, А. И. Ахунова<sup>*a*, \*</sup>, Е. А. Разинков<sup>*a*</sup>, Ю. Н. Рогов<sup>*a*, *b*</sup>, М. Г. Сапожников<sup>*a*, *b*</sup>, И. Е. Чириков-Зорин<sup>*a*, *b*</sup>

<sup>а</sup>ООО "Диамант", Дубна, Московская обл., 141980 Россия <sup>b</sup>Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, Московская обл., 141980 Россия \*E-mail: ahunova@diamant-sk.ru

Поступила в редакцию 29.07.2022 г. После доработки 29.07.2022 г. Принята к публикации 02.08.2022 г.

Обсуждаются результаты применения метода меченых нейтронов для проведения дистанционного неразрушающего анализа элементного состава вещества на конвейере. Метод меченых нейтронов состоит в облучении исследуемого вещества быстрыми нейтронами с энергией 14 МэВ, с последующей регистрацией характеристического излучения гамма-квантов. Мечение нейтронов осуществляется альфа-детектором, встроенным в нейтронный генератор.

*Ключевые слова:* быстрые нейтроны, метод меченых нейтронов, портативный нейтронный генератор, конвейерный анализатор, элементный анализ

DOI: 10.56304/S2079562922050037

#### введение

Метод меченых нейтронов (ММН) широко используется для дистанционного неразрушающего анализа элементного состава различных объектов [1-4]. В настоящей статье обсуждается применение ММН для определения элементного состава минерального сырья, транспортируемого на конвейере. Обычно для контроля состава сырья на конвейере отбирают пробы и выполняют их химический анализ. Основной недостаток этого способа – результат анализа приходит через несколько часов, что затрудняет выполнение каких-либо корректирующих воздействий на состав транспортируемого сырья. В тоже время, для многих производственных процессов, таких как спекание агломерата для выплавки чугуна или производства цемента, важно поддерживание постоянного элементного состава сырья на конвейере в определенных пределах. Всякое отклонение за эти пределы приводит к лишнему расходу топлива, производственных реагентов и экологическим проблемам. ММН позволяет проводить анализ элементного состава сырья на конвейере в режиме реального времени без какого-либо отбора проб. Информация об элементном составе сырья может предоставляться каждые 40 с.

### МЕТОД МЕЧЕНЫХ НЕЙТРОНОВ

Метод меченых нейтронов заключается в облучении исследуемого образца быстрыми нейтронами с энергией 14.1 МэВ, образующимися в результате реакции

$$d + {}^{3}\mathrm{H} \to {}^{4}\mathrm{He} + n. \tag{1}$$

Ядра гелия (альфа-частицы) регистрируются многосекторным альфа-детектором, благодаря чему мы знаем количество вылетевших нейтронов, а также направление их импульса, поскольку в бинарной реакции (1) нейтрон и альфа-частица разлетаются в противоположные стороны (при энергии дейтрона  $T_d = 50$  кэВ, угол разлета находится в интервале 174°–180°). Такая процедура называется мечением нейтронов (рис. 1).

Быстрые нейтроны, в основном, за счет реакций неупругого рассеяния типа  $(n, n'\gamma)$  возбуждают ядра исследуемого вещества. Это возбуждение снимается гамма-излучением, характерным для каждого химического элемента, что делает возможным его идентификацию.

Важной особенностью ММН является то, что регистрация гамма-квантов осуществляется только внутри окна совпадений, которое открывается в момент появления сигнала о попадании α-частицы в соответствующую секцию альфа-детектора. Это дает возможность отобрать только те γ-кванты, которые испущены ядрами исследуемого ве-



Рис. 1. Схема метода меченых нейтронов.

щества. В результате, соотношение сигнал/фон в ММН улучшается почти в 200 раз, по сравнению с обычными методами нейтронного анализа.

# ОПИСАНИЕ КОНВЕЙЕРНОЙ УСТАНОВКИ

Конвейерная установка представляет собой аппаратно-программный измерительный комплекс, предназначенный для анализа элементного состава вещества, находящегося на конвейере в режиме реального времени. Общий вид установки приведен на рис. 2. Нейтронный модуль установки, размещается между рабочей и холостой лентами конвейера и представляет собой раму, на которой монтируются источник нейтронов — нейтронный генератор, система детектирования γ-квантов и биологическая защита.

Портативный нейтронный генератор ИНГ-27 производства ФГУП "ВНИИА им. Н.Л. Духова" создает непрерывный поток нейтронов с энергией 14.1 МэВ и интенсивностью  $I = 5 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$ . Альфачастицы от реакции (1) регистрируются встроенным кремниевым альфа-детектором, состоящим из 9 пикселей, образующих матрицу 3 × 3. Размер пикселя —  $10 \times 10$  мм.

Для измерения энергетических спектров  $\gamma$ -квантов от реакций неупругого рассеяния нейтронов используются детекторы на основе больших (Ø 76 × 65 мм) сцинтилляционных кристаллов BGO и фотоумножителей R6233-35, произведенных компанией Hamamatsu по специальным техническим требованиям. Детекторы  $\gamma$ -квантов на основе BGO, применяемые на установке, имеют достаточно хорошее энергетическое разрешение, не хуже 10% на линии  $E_{\gamma} = 662$  кэВ от радиоактивного источника <sup>137</sup>Cs.

Основное преимущество кристаллов BGO – большой эффективный атомный номер (Z = 74) и высокая плотность ( $\rho = 7.13$  г/см<sup>3</sup>), однако существенным недостатком BGO является сильная зависимость световыхода от температуры –  $1.2\%/^{\circ}$ С, поэтому для стабилизации световыхода необходимо термостатирование кристаллов.

Система детектирования у-квантов установки состоит из двух блоков по 7 детекторов на основе



Рис. 2. Общий вид конвейерной установки для анализа элементного состава вещества на конвейере.



Рис. 3. Временной спектр гамма-квантов.



**Рис. 4.** Энергетический спектр ү-квантов из области случайных совпадений (а) и области сигналов от исследуемого объекта (б).

кристаллов BGO. Для стабилизации световыхода кристаллов BGO детекторы помещены в термостаты, которые расположены на разных сторонах конвейера. В термостатах поддерживается температура  $25 \pm 0.1^{\circ}$ C.

На рис. 3 показано типичное временное распределение сигналов от  $\gamma$ -квантов. Спектр набран в окне совпадений шириной 100 нс, которое открывается в момент прихода  $\alpha$ -частицы. Видно, что временной спектр состоит из плато случайных совпадений и пика  $\gamma$ -квантов от исследуемого объекта. Нулевая точка отсчета выбирается на временном спектре так, чтобы совпадать с максимумом пика сигналов от исследуемого объекта.

На рис. 4 показаны энергетические спектры γ-квантов, соответствующие области случайных совпадений (рис. 4а) и области сигналов от исследуемого объекта (рис. 4б).

Видно, насколько сильно отличаются энергетические спектры области случайных совпадений и области сигналов от объекта. В первом случае в энергетическом спектре хорошо виден пик при энергии 2.23 МэВ от захвата тепловых нейтронов на водороде. Тепловые нейтроны образуются при

358



**Рис. 5.** Энергетический спектр гамма-квантов образца агломерационной шихты. Штриховой линией показан вклад от кислорода, штрихпунктирной – от железа, пунктирной – от магния, короткой штриховой – от кремния, сплошной – от кальция. Точками с ошибками показаны результаты измерений.

замедлении нейтронов 14 МэВ в элементах биологической защиты, выполненной из полиэтилена. В области сигнала видно множество линий от различных элементов, имеющихся в составе изучаемого вещества.

### РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Рассмотрим работу установки на примере измерений энергетических спектров агломерационной шихты на конвейере. На рис. 5 приведен типичный энергетический спектр гамма-квантов агломерационной шихты. Обработка спектров проводилась по методике, которая была подробно изложена в [5, 6]. Гамма-спектр шихты раскладывался на отдельные составляющие путем подгонки его суммой опорных гамма-спектров от 7 элементов С, О, Al, Mg, Si, Ca, Fe, которые были измерены предварительно. Для сравнения с химическим анализом, для некоторых компонентов концентрации химических элементов были пересчитаны в концентрации оксидов Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, SiO<sub>2</sub>, CaO.

На рис. 6 показано как меняется основность агломерационной шихты, определяемой как отношение концентраций CaO/SiO<sub>2</sub>, транспортируемой по конвейеру в течение нескольких часов. Производственный процесс требует, чтобы основность шихты держалась в пределах  $1.6 \pm 0.1$ . Результаты химического анализа на данном про-

изводстве приходят через 4 ч, а как видно из данных на рис. 7 основность шихты может измениться от 1.8 до 1.2 и обратно за полчаса. Такие резкие колебания основности можно скорректировать, например, добавками CaO, но для этого необходимо знать поведение основности в режиме реального времени.

На рис. 7 приведены данные сравнения значений основности, полученных химическим анализом и методом меченых нейтронов. Данные охватывают период измерений в течение месяца.

Видно хорошее совпадение данных химического анализа и ММН. В табл. 1 приведено сравнение средних значений данных химического анализа и ММН за этот месячный период.

Выполнена проверка наличия систематических отклонений результатов ММН от результатов химического анализа. Проверялось выполнение критериев Стьюдента (*t*-статистика) и Фишера (F-критерий) для средних значений результатов ММН и химического анализа.

*t*-статистика определялась по формуле:

$$t = \left|\overline{\xi}\right| \sqrt{n} \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \left(\xi_i - \overline{\xi}\right)^2} / (n-1), \tag{2}$$

$$\xi_i = C_{\rm MMH} - C_{\rm XA},\tag{3}$$

где  $C_{\text{MMH}}$  и  $C_{\text{XA}}$  – результаты измерений *i*-ой пробы (интервала) по данным ММН и ХА соответ-



Рис. 6. Изменение основности агломерационной шихты.



Рис. 7. Сравнение данных химического анализа и ММН.

ственно,  $\overline{\xi} = \sum_{i=1}^{n} (C_{iMMH} - C_{iXA})/n, n$  – число проб в соответствующем классе.

F-статистика вычислялась по следующим формулам:

$$F = S_1^2 / S_2^2, (4)$$

$$S_1^2 = \sum_{i=1}^n \xi_i^2 / n,$$
 (5)

$$S_2^2 = \sum_{i=1}^n \left(\xi_i - \overline{\xi}\right)^2 / (n-1).$$
 (6)

Таблица 1. Сравнение средних значений основности и массовых концентраций SiO<sub>2</sub>, CaO, MgO и Fe<sub>общ</sub>

	Основность	SiO <sub>2</sub> , %	CaO, %	Fe <sub>общ</sub> , %	MgO, %
MMH	1.62	5.77	9.36	57.48	2.62
Химический анализ	1.62	5.72	9.27	57.26	2.62

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 14 № 4 2023

360

	Основность	SiO <sub>2</sub>	CaO	Fe <sub>общ</sub>	MgO
<i>t</i> -критерий	0.07	1.62	1.15	1.16	0.16
<i>t</i> -критерий, табличное значение	1.98	1.98	1.98	1.98	1.98
Критерий Фишера	0.99	1.01	1.00	1.00	0.99
Критерий Фишера, табличное значение	1.35	1.35	1.35	1.35	1.35

**Таблица 2.** Сравнение *t*-критерия и критерия Фишера, рассчитанных по экспериментальным данным и табличных значений при *n* = 125

Систематическое расхождение вычислялось по разности средних содержаний элемента:

$$\overline{\xi} = \overline{C_z} - \overline{C_x},\tag{7}$$

$$\overline{C_z} = \left(\sum_{i=1}^n C_{zi}\right) / n, \qquad (8)$$

$$\overline{C_x} = \left(\sum_{i=1}^n C_{xi}\right) / n, \qquad (9)$$

где  $C_{zi}$  и  $C_{xi}$  – результаты измерений *i*-ой пробы по данным ММН и ХА, соответственно;  $\overline{C_z}$  и  $\overline{C_x}$  – их средние значения; n – число сопоставляемых пар.

 $MMH_{cp}(\overline{C_z})$  — среднее значение содержания элемента при анализе с помощью MMH;  $XA_{cp}\overline{C_x}$  среднее значение содержания элемента при анализе с помощью химического анализа; *t* значение *t*-статистики для указанного класса содержаний

 $\left(t = \left|\overline{\xi}\right| \sqrt{n} / \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \left(\xi_{i} = C_{zi} - C_{xi} - \overline{\xi}\right)^{2} / (n-1)}\right), t_{\text{табл}} -$ критическое табличное значение *t*-статистики для количества элементов равного n и уровня достоверности 0.95 (*n* = 125)

Видим, что для всех концентраций и основности вычисленные значения *t*-критерия и F-критерия не превышают табличных значений. Это указывает на отсутствие систематических отклонений от данных химического анализа.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе метода меченых нейтронов создана установка для контроля элементного состава минерального сырья на конвейере. Установка позволяет определять элементные концентрации сырья на конвейере в режиме реального времени, без отбора проб. Проведено сравнение результатов измерений массовой концентрации отдельных элементов и оксидов, выполненных на установке, с результатами химического анализа. Проверка по критериям Стьюдента и Фишера показала отсутствие статистически значимых систематических отклонений результатов установки от данных химического анализа.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают благодарность инновационному фонду "Сколково" и С.А. Журбе за финансовую поддержку при создании установки; сотрудникам ОИЯИ и специалистам ООО "Диамант" Е.А. Андрееву, Д.А. Волкову, А.В. Гончарову, П.П. Реунову, В.К. Родионову, О.Г. Тарасову, принимавшим участие в создании и испытании установки.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. *Valkovic V.* 14 MeV Neutrons: Physics and Applications. 2015. Boca Raton: CRC Press.
- Alexakhin V.Y. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2015. V. 785. P. 9.
- Bystritsky V.M. et al. // Phys. Part. Nucl. Lett. 2008. V. 5. P. 441.
- Pesente S. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2007. V. 261 (1–2). P. 268–271.
- 5. Алесахин В.Ю. и др. Оценка возможности определения элементного состава горных пород с помощью метода меченых нейтронов. Препринт № П14-2015-52. 2015. Дубна: ОИЯИ.
- Alexakhin V.Y. et al. // Proc. 23rd Int. Sem. Interaction of Neutrons with Nuclei: Fundamental Interactions and Neutrons, Nuclear Structure, Ultracold Neutrons, and Related Topics ISINN-23. May 25-29, 2015. Dubna, Russia. P. 463.

# **Application of Tagged Neutron Method for Material Analysis on the Conveyor**

V. Yu. Alexakhin<sup>1, 2</sup>, A. I. Akhunova<sup>1, \*</sup>, E. A. Razinkov<sup>1</sup>, Yu. N. Rogov<sup>1, 2</sup>, M. G. Sapozhnikov<sup>1, 2</sup>, and I. E. Chirikov-Zorin<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup>Diamant LLC, Dubna, Moscow oblast, 141980 Russia <sup>2</sup>Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, Moscow oblast, 141980 Russia \*e-mail: ahunova@diamant-sk.ru Received July 29, 2022; revised July 29, 2022; accepted August 2, 2022

Abstract—The results of the application of the tagged neutron method for remote non-destructive analysis of the elemental composition of a material on a conveyor are discussed. The tagged neutron method consists in irradiation of the substance under study with fast neutrons with an energy of 14 MeV and registration of the induced characteristic gamma radiation. Neutron tagging is carried out by an alpha detector built into a neutron generator.

*Keywords:* fast neutrons, tagged neutron method, portable neutron generator, conveyor analyzer, elemental analysis