

УДК 622.364:622.7:539.172.4

ЭЛЕМЕНТНЫЙ АНАЛИЗ ФОСФОРСОДЕРЖАЩИХ РУД МЕТОДОМ МЕЧЕННЫХ НЕЙТРОНОВ*

Е. А. РАЗИНКОВ, старший инженер, erazinkov@diamant-sk.ru

В. Ю. АЛЕКСАХИН, ведущий программист

Ю. Н. РОГОВ, начальник отдела программистов

М. Г. САПОЖНИКОВ, научный руководитель, проф., д-р физ.-мат. наук

ООО «Диамант», Дубна, Россия

Введение

В практике работ по добыче и обогащению различных руд необходимо определять элементный состав образцов породы, взятых непосредственно в карьере, горной выработке или на ленте конвейера обогатительной фабрики. Зачастую такие образцы имеют большую массу (несколько килограммов) и значительную крупность, на ленте конвейера они могут достигать размеров 100–300 мм. Существующие методы требуют довольно значительных затрат времени на пробоподготовку и элементный анализ таких образцов. Авторами предложен новый экспресс-метод определения элементного состава образцов руды большой массы и крупности в полевых условиях, который не нуждается в традиционной пробоподготовке. Метод основан на технологии меченых нейтронов, которая заключается в облучении объекта испытаний пучками быстрых нейтронов и последующей регистрации характеристических гамма-квантов от реакций неупругого рассеяния нейтронов [1–3]. Проверка метода была осуществлена на образцах апатит-нефелиновых руд Хибинской группы месторождений в ходе опытно-промышленной эксплуатации установки на Восточном руднике Кировского филиала АО «Апатит». В настоящей статье обсуждаются результаты проведенных испытаний.

Методика исследований

Метод меченых нейтронов (ММН) состоит в облучении руды быстрыми нейтронами с энергией 14,1 МэВ, которые возникают в бинарной ядерной реакции: $d + {}^3\text{H} \rightarrow {}^4\text{He} + n$. В этой реакции нейтрон и α -частица (ядро ${}^4\text{He}$) разлетаются практически в противоположные стороны. Поэтому регистрируя α -частицу, сопутствующую нейтрону, можно определить направление вылета нейтрона. Такая процедура называется мечением нейтронов. Меченые нейтроны, попадая в объект исследования, индуцируют реакции неупругого рассеяния: $n + A \rightarrow n' + A^*$; $A^* \rightarrow \gamma + A$, в результате которых возбуждение ядра снимается испусканием гамма-квантов с энергетическим спектром, характерным для каждого химического элемента. Регистрация характеристического γ -излучения осуществляется γ -детекторами в совпадениях с сигналом от α -детектора. Альфа-детектор выполнен в виде матрицы, каждый элемент которой отвечает за отдельный меченый пучок нейтронов. В результате вся область образца породы оказывается

Приведены результаты опытно-промышленной эксплуатации установки АГП-Ф для определения массовой доли оксида фосфора (V) в фосфорсодержащих рудах. Описан принцип действия установки по методу меченых нейтронов, который предполагает облучение руды быстрыми нейтронами с энергией 14 МэВ и регистрацию характеристического излучения гамма-квантов от реакций неупругого рассеяния нейтронов.

Ключевые слова: метод меченых нейтронов, фосфорсодержащие руды, оксид фосфора (V), портативный нейтронный генератор, альфа-детектор, гамма-детекторы, элементный анализ

DOI: 10.17580/gzh.2022.02.08

разбитой на отдельные ячейки (воксели), в которых происходит определение элементного состава. В этом состоит важное отличие ММН от других известных методов нейтронного анализа: он позволяет не просто определять энергетический спектр во всей области досмотра, а дифференцирует эту информацию по отдельным элементам выбранной области исследования.

На основе ММН созданы различные детектирующие системы, определяющие наличие взрывчатых веществ в объектах контроля, вплоть до морских контейнеров [4–12]. Разработан нейтронный сепаратор, который с помощью ММН позволяет обнаруживать алмазы, скрытые внутри кусков кимберлитовой руды, размеры которых в 10 раз превосходят размеры алмаза [4]. Выполнены первые исследования по определению элементного состава горных пород в полевых условиях с помощью переносной установки ММН [13, 14]. Измерение спектра оксида фосфора (V) показало наличие нескольких узких пиков с большим сечением образования (рис. 1). На рис. 1 показан вклад от возбуждения фосфора, кислорода и углерода, содержащегося в приемном лотке, а также результирующий спектр. Видно, что линии кислорода дают триплет в районе 6100 кэВ и три пика в районе 3000 кэВ. Линии фосфора образуют два ярко выраженных пика при энергии 1266 и 2234 кэВ. Небольшой пик при 1734 кэВ является пиком утечки от линии 2234 кэВ.

Важно отметить большое сечение возбуждения линий фосфора – 180–360 мб. Для сравнения: сечение возбуждения нейтронами 14 МэВ линии углерода составляет 180 мб, для кислорода самое большое сечение имеет линия 6130 кэВ, оно составляет 148 мб. Именно большое сечение возбуждения линий фосфора создает хорошие предпосылки для использования ММН при определении концентрации фосфора в горных породах.

Описание установки

Опытно-промышленная эксплуатация установки АГП-Ф проходила в течение 6 мес на Восточном руднике Кировского филиала

* Статья посвящается памяти докт. физ.-мат. наук В. М. Быстрицкого, внесшего большой вклад в развитие метода меченых нейтронов и создание установки АГП-Ф.

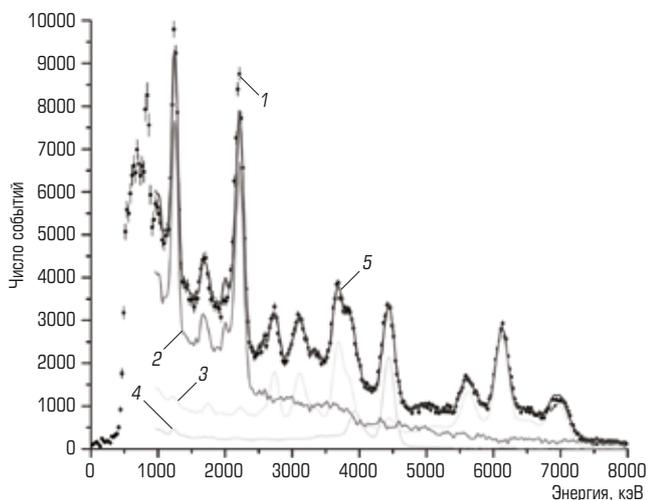


Рис. 1. Энергетический спектр гамма-квантов, возникающих при облучении быстрыми нейтронами 14 МэВ образца оксида фосфора (V):

1 – данные, полученные в процессе эксперимента;
2, 3, 4 – вклад от возбуждения фосфора, кислорода и углерода соответственно; 5 – результирующий спектр

АО «Апатит». Установку размещали в 20-футовом контейнере, оснащенном системой климат-контроля. Схема размещения установки показана на **рис. 2**. В состав установки АГП-Ф входили нейтронный модуль, блок электроники считывания и рабочее место оператора.

В нейтронном модуле (**рис. 3**) размещены: портативный нейтронный генератор ИНГ-27 со встроенным 9-пиксельным альфа-детектором, система из 12 гамма-детекторов на основе кристалла BGO, приемный лоток и биологическая защита. Габаритные размеры нейтронного модуля составляют 1200×1200×1200 мм.

Портативный нейтронный генератор ИНГ-27 создает нейтроны с энергией 14,1 МэВ. Интенсивность нейтронного пучка составляла $I = 5 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. Встроенный кремниевый альфа-детектор представлял собой матрицу 3×3 с размером пикселя 10×10 мм.

Для регистрации γ -квантов, возникающих при облучении руды пучком быстрых меченых нейтронов, использовали 12 γ -детекторов на основе кристаллов BGO диаметром 76 мм и толщиной 65 мм. Такие детекторы имеют оптимальное соотношение стоимости и качественных характеристик и хорошо зарекомендовали себя при использовании в установках ММН. Энергетическое разрешение всей системы детекторов $\Gamma_E = (4,42 \pm 0,14) \%$ на линии 4,44 МэВ. Временное разрешение системы (α - γ)-совпадений, усредненное по всей совокупности γ -детекторов, составило $\Gamma_t = (4,82 \pm 0,12) \text{ нс}$.

Важным аспектом работы установки была проверка обеспечения радиационной безопасности. Измерения радиационного фона показали, что, исходя из санитарных норм, граница зоны безопасности для населения была выбрана в радиусе 10 м от нейтронного модуля, где мощность дозы составляла 0,86 мкЗв/ч. За 6 мес работы индивидуальная эффективная доза оператора



Рис. 2. Схема размещения установки АГП-Ф в транспортном контейнере



Рис. 3. Общий вид нейтронного модуля установки АГП-Ф

АГП-Ф составила 2,1 мЗв. Допустимая годовая доза для населения составляет 1 мЗв, для работников в условиях А – 20 мЗв. Фон образца руды через 10 мин после окончания облучения был равен 0,17 мкЗв/ч, что сравнимо с естественным радиационным фоном в месте размещения установки.

Методика измерений

Градуировку установки проводили на 69 градуировочных пробах апатит-нефелиновой руды. Масса проб составляла 5 кг, крупность проб – 3 мм. Коллекцию градуировочных проб готовили из рудных проб карьеров «Центральный», «Коашва», «Ньюорпакх» Восточного рудника КФ АО «Апатит». Градуировочные пробы апатит-нефелиновой руды были разделены на четыре класса содержания (**табл. 1**).

Образцы для измерения рядовых проб отбирали геологи из добычных забоев, карьеров и рудных складов рудников КФ АО «Апатит». Крупность материала составляла менее 100 мм, вес проб до 5–7 кг. Рядовые пробы руды доставляли непосредственно из мест добычи и сразу же измеряли на установке АГП-Ф без какой-либо сушки или дробления.

Чтобы сравнить данные по измерениям проб крупностью –100 мм с результатами химического анализа, в процедуру обработки был введен этап определения переходной характеристики. Для нахождения переходной характеристики измеряли образцы руды крупностью –100 мм, которые затем дробили до крупности –3 мм и измеряли повторно. Всего были проведены 58 двойных измерений.

Обработку спектров гамма-квантов проводили по методике, которая была подробно изложена в работе [12]. Для анализа апатит-нефелиновой руды гамма-спектр каждого образца раскладывали на отдельные составляющие путем подгонки его суммой опорных гамма-спектров от 11 элементов: Si, Mg, Fe, Al, Ca, C, O, K, Na, P, Ti, которые были измерены предварительно.

Таким образом, изначально определяли массовую концентрацию отдельного элемента, затем для удобства сопоставления с данными химического анализа выполняли пересчет в оксиды.

Результаты измерений

На **рис. 4** показано сравнение результатов химического анализа и установки АГП-Ф для измерений P_2O_5 в градуировочных пробах. Измерения градуировочных образцов проходили в режиме 3×20 мин. В качестве окончательного результата брали среднее по трем измерениям. Для описания данных во всем диапазоне содержаний были получены следующие параметры линейной и квадратичной градуировочных зависимостей:

$$Y_{XA} = 1,09 \cdot X_{MMH} + 0,58; \quad (1)$$

$$Y_{XA} = 0,0049 \cdot X_{MMH}^2 + 1,09 \cdot X_{MMH} + 1,38, \quad (2)$$

где X_{MMH} – результат измерений по данным АГП-Ф; Y_{XA} – результат химического анализа.

Результаты по абсолютному и относительному среднеквадратичным отклонениям для разных градуировок по 69 измерениям приведены в **табл. 2**.

Видно, что квадратичная градуировка работает лучше для руды I и IV классов. Поэтому в качестве основной для проведения измерений рядовых проб была выбрана градуировочная зависимость (2). Относительное СКО при измерении градуировочных проб во всем диапазоне содержаний P_2O_5 составляет $СКО_{отн} = 3,33 \%$. Для классов содержаний II–IV $СКО_{отн}$ не превышает 5 %.

Определение минимально регистрируемой концентрации было выполнено по анализу 19 образцов I класса с содержанием P_2O_5 1–6,99 %. Предел обнаружения был определен как утроенная погрешность оценки содержания P_2O_5 в этом классе. Она составила 1,71 % P_2O_5 .

Таблица 1. Классы содержаний градуировочных проб

Класс	Содержание P_2O_5 , %	Число проб
I	1–6,99	19
II	7–14,99	21
III	15–24,99	13
IV	25–40	16

Таблица 2. Абсолютное и относительное среднеквадратичные отклонения (СКО) для градуировочных проб

Содержание P_2O_5 , %	СКО, % P_2O_5 линейное	СКО, % P_2O_5 квадратичное	Среднее содержание, % P_2O_5	СКО _{отн} , % линейное	СКО _{отн} , % квадратичное
1–6,99	0,66	0,57	4,22	15,72	13,50
7–14,99	0,37	0,42	10,36	3,54	4,05
15–24,99	0,63	0,65	18,79	3,35	3,46
25–40	0,66	0,62	30,76	2,14	1,95
1–40	0,67	0,57	17,12	3,89	3,33

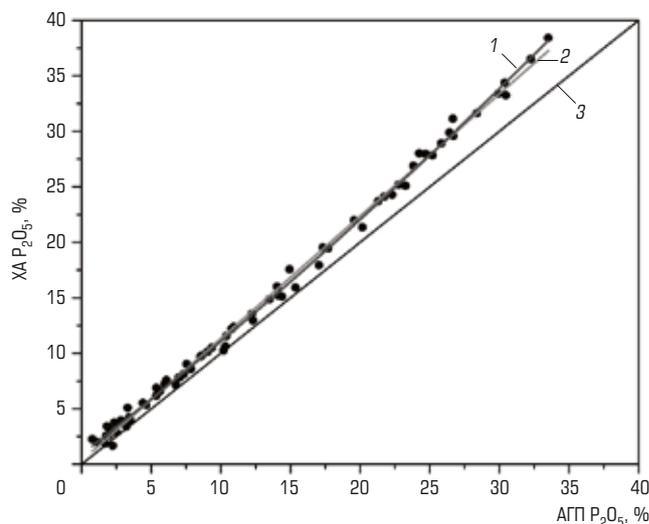


Рис. 4. Сравнение результатов химического анализа и установки АГП-Ф для P_2O_5 :

1 – линейная градуировка; 2 – квадратичная; 3 – диагональ равных значений

Для нахождения переходной характеристики измеряли образцы руды крупностью –100 мм, которые затем дробили до крупности –3 мм и измеряли повторно. Всего были проведены 58 двойных измерений. Результаты измерений показаны на **рис. 5**.

Видно, что результаты измерений практически не зависят от крупности руды. Это отражается в виде уравнения связи значения параметра АГП для руды –100 мм с параметром АГП для руды –3 мм, которое имеет вид $Y_{-3\text{ мм}} = 0,98 \cdot X_{-100\text{ мм}} + 0,21$.

Полученный результат имеет большое значение для оценки эффективности применения ММН при анализе образцов руды большой крупности. Он показывает, что в силу большой проникающей способности быстрых нейтронов с энергией 14 МэВ они взаимодействуют с ядрами всего образца, а не только с некоторым поверхностным слоем. Поэтому происходит естественное усреднение элементной концентрации по всему материалу пробы, и значение параметра АГП-Ф становится одинаковым как для пробы большой крупности, так и для размолотой до крупности –3 мм.

Измерения рядовых проб крупностью –100 мм проводили в режиме 2×10 мин. После этого пробу размалывали до крупности –3 мм и направляли на химический анализ. На **рис. 6**

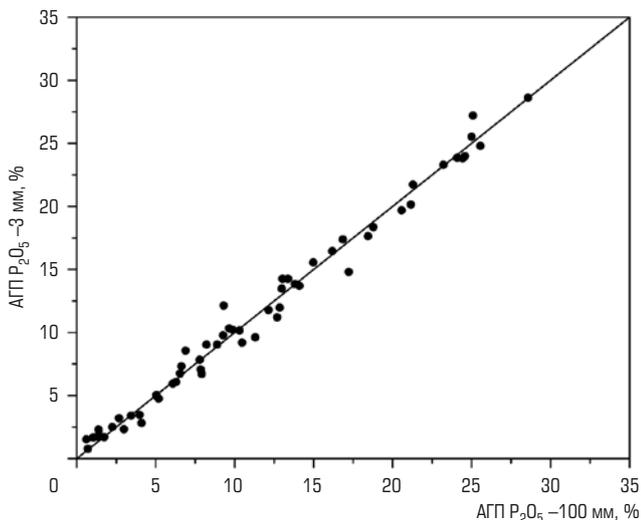


Рис. 5. Сравнение результатов установки АГП-Ф для проб крупностью –100 мм и –3 мм

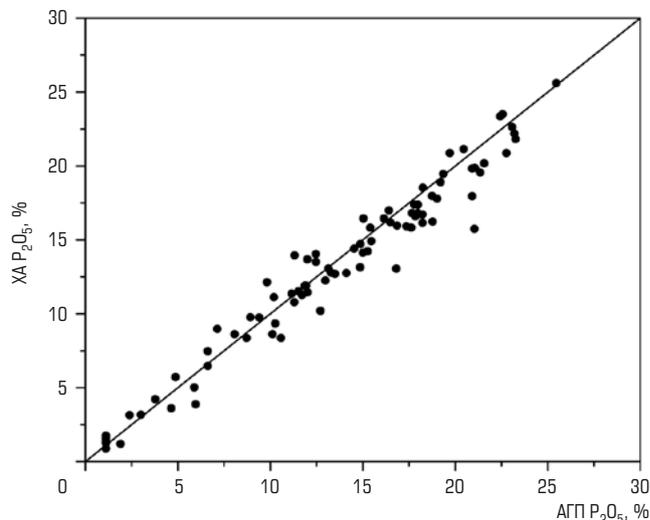


Рис. 6. Сравнение результатов установки АГП-Ф для рядовых проб крупностью –100 мм с результатами химического анализа

показаны результаты сравнения данных АГП-Ф с результатами химического анализа.

В табл. 3 приведены результаты по абсолютному и относительному СКО для измерений рядовых проб крупностью –100 мм в трех классах содержания, а также для всего диапазона.

Систематическое расхождение между результатами АГП-Ф и данными химического анализа в каждом из выделенных классов вычисляли по разности средних содержаний элемента:

$$\bar{\xi} = \bar{C}_z - \bar{C}_x; \bar{C}_z = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n C_{zi}; \bar{C}_x = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n C_{xi} \quad (3)$$

где C_{zi} и C_{xi} – результаты измерений i -й пробы по данным АГП-Ф и химического анализа соответственно; \bar{C}_z и \bar{C}_x – их средние значения; n – число сопоставляемых пар.

Статистическую значимость полученного значения систематической составляющей погрешности устанавливали по критерию знаков для проверки гипотезы о равенстве числа положительных и отрицательных разностей ξ_i (μ -статистика), а также по критерию Стьюдента (t -статистика):

$$t = \frac{|\bar{\xi}| \sqrt{n}}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (\xi_i - \bar{\xi})^2 / (n-1)}}; \xi_i = C_{zi} - C_{xi} \quad (4)$$

Таблица 3. Абсолютное и относительное СКО для рядовых проб

Число проб	Содержание P_2O_5 , %	Среднее содержание P_2O_5 , %	СКО, % P_2O_5	СКО _{отн} , %
8	2–6,99	4,41	1,19	27,1
33	7–14,99	11,65	1,24	10,6
34	15–24,99	18,82	1,09	5,8
75	2–25	14,13	1,17	8,3

где ξ_i – разность результатов измерений для i -й пробы по данным АГП-Ф и химического анализа.

Использовали также критерий Фишера (F-статистика). Полученные значения μ -, t - и F-статистик сравнивали с табличными величинами при $P = 0,95$. В табл. 4 приведены результаты оценки по критерию Стьюдента.

Как видно из данных табл. 4, измеренные значения t -статистики для всех классов меньше табличных значений. Это свидетельствует об отсутствии систематической составляющей между данными АГП-Ф для проб крупностью –100 мм и результатами химического анализа.

Такая же ситуация имеет место и при проверке по критерию Фишера и по критерию знаков. Все три критерия свидетельствуют об отсутствии значимых систематических расхождений между результатами АГП-Ф для проб –100 мм и данными химического анализа.

Стабильность работы установки

Важной задачей в процессе опытно-промышленной эксплуатации (ОПЭ) установки АГП-Ф, которая длилась 6 мес, являлось определение степени стабильности работы отдельных систем, а также постоянство метрологических характеристик установки.

Таблица 4. Проверка наличия систематики по критерию Стьюдента

Содержание P_2O_5 , %	Число измерений n	$C_{z\%}$, % P_2O_5	$C_{x\%}$, % P_2O_5	ξ , % P_2O_5	$t_{изм}$	$t_{табл}$
2–6,99	8	3,83	4,41	+0,58	1,54	2,31
7–14,99	35	11,29	11,73	+0,44	1,87	2,03
15–24,99	36	18,66	18,56	–0,10	0,45	2,03

Контроль стабильности работы установки проводили путем ежедневного измерения трех контрольных проб в режиме 2×10 мин. Мерой стабильности работы аппаратуры можно считать величину относительного СКО, характеризующей отклонение последующих результатов от первого измерения контрольной пробы:

$$S_0(R) = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{(R_i - \bar{R})^2}{n}}}{\bar{R}}, \quad (5)$$

где R_i – результат измерения контрольной пробы; \bar{R} – первое измерение контрольной пробы; n – число измерений.

Результаты оценки стабильности для разных контрольных проб приведены в **табл. 5**.

Таким образом, за 6 мес ОПЭ величина отклонения от первого измерения контрольной пробы не превысила 7 %. Регулярные проверки градуировочной зависимости показали ее высокую стабильность. Все приведенные выше результаты получены с одной и той же градуировочной зависимостью (2), которую не меняли за все время проведения ОПЭ.

Выводы

Опытно-промышленная эксплуатация установки АГП-Ф на Восточном руднике АО «Апатит» хорошо отразила основные критерии определения элементного состава апатит-нефелиновых руд с помощью метода меченых нейтронов. Это прежде всего отсутствие какой-либо пробоподготовки и возможность определять элементный состав образцов большой массы (3–5 кг) и крупности (до –100 мм).

На основе измерений 75 рядовых проб крупностью –100 мм оценена точность измерений. Абсолютное значение СКО в диапазоне содержаний P_2O_5 2–25 % составляет $СКО_{\text{абс}} = 1,17\%$ P_2O_5 ($СКО_{\text{отн}} = 8,3\%$) при времени измерения 10 мин.

Измерения градуировочной коллекции в количестве 69 образцов крупностью –3 мм показали $СКО_{\text{отн}} = 3,33\%$ в диапазоне содержаний P_2O_5 1–40 %.

Определена минимальная регистрируемая концентрация P_2O_5 . Она составила 1,71 %.

Измерения 58 проб крупностью –100 мм позволили определить переходную характеристику, связывающую значения параметра АГП для проб крупностью –100 и –3 мм. Получены

Таблица 5. Величина отклонений $S_0(R)$ от первого измерения контрольной пробы

Проба	Содержание P_2O_5 , %	Число измерений	$S_0(R)$, %
ДК 2-2	7,82	58	5,4
ДК 2-10	12,19	88	6,7
ДК 3-9	21,99	65	6,4
ДК 4-10	33,40	41	2,3

важные данные о простой линейной зависимости для этой характеристики. Они показывают, что в силу большой проникающей способности быстрых нейтронов с энергией 14 МэВ происходит естественное усреднение элементной концентрации по всему материалу пробы, и значение параметра АГП становится одинаковым как для пробы большой крупности, так и для размолотой до крупности –3 мм. Этот результат важен для обоснования эффективности использования ММН для конвейерной установки.

Проверена стабильность градуировочной характеристики при выполнении 1075 измерений контрольных проб. За время ОПЭ градуировочную характеристику не меняли.

Относительное СКО, характеризующее отклонение последующих результатов от первого измерения контрольной пробы, за время ОПЭ не превысило 7 %.

Проведенные испытания полностью подтвердили эффективность метода меченых нейтронов для определения элементного состава фосфорных руд. В данной работе обсуждены результаты определения содержания оксида фосфора (V). В настоящее время доказана применимость метода меченых нейтронов для определения массовых концентраций 25 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, Bi, Sb).

Авторы выражают благодарность инновационному фонду «Сколково» и С. А. Журбе за финансовую поддержку при создании прототипа опытной установки; сотрудникам Кировского филиала АО «Апатит» (ПАО) В. Б. Мельнику, И. В. Сальникову, И. Ю. Рыбину, А. А. Скрыбину, Е. В. Персиянову, Н. Б. Домосевич, Д. А. Михайлову за помощь при проведении испытаний; специалистам ООО «Диамант» Е. А. Андрееву, Е. В. Зубареву, П. П. Реунову, А. Б. Садовскому, О. Г. Тарасову, принимавшим участие в создании и испытании установки.

Библиографический список

1. *Valković V.* 14 MeV Neutrons: Physics and Applications. – Boca Raton : CRC Press, 2015. – 516 p.
2. Федоров Н. А., Грозданов Д. Н., Копач Ю. Н., Быстрицкий В. М., Третьякова Т. Ю. и др. Измерение выходов и угловых распределений γ -квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов с энергией 14,1 МэВ с ядрами магния // Известия Российской академии наук. Серия физическая. 2020. Т. 84. № 4. С. 480–486.
3. Грозданов Д. Н., Федоров Н. А., Быстрицкий В. М., Копач Ю. Н., Русков И. Н. и др. Измерение угловых распределений гамма-квантов в реакциях неупругого рассеяния нейтронов с энергией 14.1 МэВ на ядрах углерода и кислорода // Ядерная физика. 2018. Т. 81. № 5. С. 548–554.
4. Rogov Yu., Kremenets V., Sapozhnikov M., Sebele M. Application of Tagged Neutron Method for Detecting Diamonds in Kimberlite // Instruments. 2020. Vol. 4. Iss. 4. 33. DOI: 10.3390/instruments4040033

5. Рогов Ю. Н., Сапожников М. Г., Никитин Г. М., Ямов А. В. Использование метода меченых нейтронов для сухого обогащения кимберлитовой руды // Горный журнал. 2018. № 5. С. 58–62. DOI: 10.17580/gzh.2018.05.08
6. Bolshakov I., Kolesnik M., Sorokin M., Kremenets V., Razinkov E. et al. Application of Tagged Neutron Method for Element Analysis of Phosphorus Ore // International Journal of Mineral Processing and Extractive Metallurgy. 2020. Vol. 5. Iss. 4. P. 54–59.
7. Pino F., Fontana C. L., Nebbia G., Pedersen B., Varasano G. et al. Detection module of the C-BORD Rapidly Relocatable Tagged Neutron Inspection System (RRTNIS) // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2021. Vol. 986. 164743. DOI: 10.1016/j.nima.2020.164743
8. Bystritsky V. M., Rogov Yu. N., Sadovsky A. B., Sapozhnikov M. G., Nikitin G. M. Application of the tagged neutron method for diamonds detection in kimberlite // Proceedings of the XXIX International Mineral Processing Congress. – Moscow, 2018. P. 683–689.
9. Bishnoi S., Patel T., Thomas R. G., Jilju R., Sarkar P. S. et al. Study of tagged neutron method with laboratory D-T neutron generator for explosive detection // The European Physical Journal Plus. 2020. Vol. 135. Iss. 5. 428. DOI: 10.1140/epjp/s13360-020-00402-y
10. Быстрицкий В. М., Быстрицкий Вит. М., Дудкин Г. Н., Филипович М., Гази Ш. и др. Влияние кристаллической структуры дейтерированной мишени на выход нейтро-

нов в dd -реакции при ультранизких энергиях // Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. 2014. Т. 99. № 9. С. 579–585.

11. Федоров Н. А., Третьякова Т. Ю., Быстрицкий В. М., Копач Ю. Н., Русков И. Н. и др. Исследование неупругого рассеяния нейтронов на ядрах ^{27}Al // Ядерная физика. 2019. Т. 82. № 4. С. 297–304.
12. Pesente S., Nebbia G., Viesti G., Daniele F., Fabris D. et al. Progress in tagged neutron beams for cargo inspections // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2007. Vol. 261. No. 1–2. P. 268–271.
13. Alexakhin V. Y., Bystritskii V. M., Zamyatin N. I., Zubarev E. V., Krasnopyorov A. V. et al. Determination of the elemental composition of geological rocks and minerals by the method of tagged neutrons // Fundamental Interactions & Neutrons, Nuclear Structure, Ultracold Neutrons, Related Topics : 23rd International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei. – Dubna, 2015.
14. Бабин Г. В., Халимон В. И. Анализ методов деконволюции спектров в экспериментах с использованием меченых нейтронов // Известия Санкт-Петербургского государственного технологического института (технического университета). 2014. № 26(52). С. 102–108. **ТЖ**

«GORNYI ZHURNAL», 2022, № 2, pp. 51–56

DOI: 10.17580/gzh.2022.02.08

Elemental analysis of phosphorus ores using the tagged neutron method

Information about authors

E. A. Razinkov¹, Senior Engineer, erazinkov@diamant-sk.ru

V. Yu. Aleksakhin¹, Leading Program Designer

Yu. N. Rogov¹, Head of Programming Office

M. G. Sapozhnikov¹, Research Manager, Professor, Doctor of Physical and Mathematical Sciences

¹Diamant LLC, Dubna, Russia

Abstract

The results of the pilot operation of the AGP-F facility in determination of mass fraction of phosphorus pentoxide in phosphorus ores are discussed. The facility operates by the tagged neutron method, irradiates ore with fast neutrons with an energy of 14 MeV and records the characteristic emission of gamma rays from inelastic neutron scattering reactions. The pilot operation of the AGP-F facility at Vostochny Mine of Apatit JSC well demonstrated the main features of the elemental analysis of apatite–nepheline ores using the tagged neutron method. This is primarily the absence of any sample preparation and the ability to determine the elemental composition of samples of large mass (3–5 kg) and size (up to 100 mm). Based on measurements of 75 ordinary samples with a particle size of ~100 mm, the measurement accuracy was estimated. The absolute value of the standard deviation in the range of P_2O_5 contents of 2–25% is $\text{RMS}_{\text{abs}} = 1.17\% \text{P}_2\text{O}_5$ ($\text{RMS}_{\text{rel}} = 8.3\%$) with a measurement time of 10 minutes. Measurements of the calibration collection of 69 samples with a size of ~3 mm showed $\text{RMS}_{\text{rel}} = 3.33\%$ in the range of P_2O_5 of 1–40%. The minimal concentration of P_2O_5 was determined. It was 1.71%. Measurements of 58 samples with size of ~100 mm made it possible to determine a transient response that relates the values of the AGP parameter for samples with size of ~100 mm and with size of ~3 mm. An important result was obtained on the simple linear dependence of this characteristic. It shows that due to the high penetrating power of fast neutrons with an energy of 14 MeV, a natural averaging of the elemental concentration over the entire sample material occurs and the value of the AGP parameter becomes the same for both the large-sized sample and small ones. This result is important to for the future use of TNM for a conveyor system. The tests have fully confirmed the consistency of the tagged neutron method for determining the elemental composition of phosphorus ores. The applicability of the tagged neutron method for determining mass concentrations of 25 chemical elements (Na, Mg, C, N, O, F, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Zr, Pb, Sn, Bi, Sb) is verified.

This article is devoted to the memory of Dr. Phys.-Math. V. M. Bystritsky who greatly contributed to the tagged neutron method development and the AGP-F facility engineering.

The authors express their deep gratitude to: S. A. Zhurba and Skolkovo Innovation Center for the sponsorship of the pilot facility manufacturing; V. B. Melnik, I. V. Salnikov, I. Yu. Rybin, A. A. Skryabin, E. V. Persyanov, N. B. Domosevich and D. A. Mikhailov from Apatit's Division in Kirov for the help in experimentation; E. A. Andreev, E. V. Zubarev, P. P. Reunov, A. B. Sadovsky and O. G. Tarasov from Diamant LLC for the participation in engineering and testing of AGP-F facility.

Keywords: tagged neutron method, phosphorus ore, phosphor oxide (V), portable neutron generator, alpha detector, gamma detector, elemental analysis.

References

1. Valković V. 14 MeV Neutrons: Physics and Applications. Boca Raton : CRC Press, 2015. 516 p.
2. Fedorov N. A., Grozdanov D. N., Kopatch Yu. N., Bystritsky V. M., Tretyakova T. Yu. et al. Measuring the Yields and Angular Distributions of γ Quanta from the Interaction between 14.1 MeV Neutrons and Magnesium Nuclei. *Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics*. 2020. Vol. 84, No. 4. pp. 367–372.
3. Grozdanov D. N., Fedorov N. A., Bystritsky V. M., Kopatch Yu. N., Ruskov I. N. et al. Measurement of Angular Distributions of Gamma Rays from the Inelastic Scattering of 14.1-MeV Neutrons by Carbon and Oxygen Nuclei. *Physics of Atomic Nuclei*. 2018. Vol. 81, No. 5. pp. 588–594.
4. Rogov Yu., Kremenets V., Sapozhnikov M., Sebele M. Application of Tagged Neutron Method for Detecting Diamonds in Kimberlite. *Instruments*. 2020. Vol. 4, Iss. 4. 33. DOI: 10.3390/instruments4040033
5. Rogov Yu. N., Sapozhnikov M. G., Nikitin G. M., Yamov A. V. Application of the tagged neutron method to dry processing of kimberlite. *Gornyi Zhurnal*. 2018. No. 5. pp. 58–62. DOI: 10.17580/gzh.2018.05.08
6. Bolshakov I., Kolesnik M., Sorokin M., Kremenets V., Razinkov E. et al. Application of Tagged Neutron Method for Element Analysis of Phosphorus Ore. *International Journal of Mineral Processing and Extractive Metallurgy*. 2020. Vol. 5, Iss. 4. pp. 54–59.
7. Pino F., Fontana C. L., Nebbia G., Pedersen B., Varasano G. et al. Detection module of the C-BORD Rapidly Relocatable Tagged Neutron Inspection System (RRTNIS). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*. 2021. Vol. 986. 164743. DOI: 10.1016/j.nima.2020.164743
8. Bystritsky V. M., Rogov Yu. N., Sadovsky A. B., Sapozhnikov M. G., Nikitin G. M. Application of the tagged neutron method for diamonds detection in kimberlite. *Proceedings of XXIX International Mineral Processing Congress*. Moscow, 2018. pp. 683–689.
9. Bishnoi S., Patel T., Thomas R. G., Jilju R., Sarkar P. S. et al. Study of tagged neutron method with laboratory D-T neutron generator for explosive detection. *The European Physical Journal Plus*. 2020. Vol. 135, Iss. 5. 428. DOI: 10.1140/epjp/s13360-020-00402-y
10. Bystritsky V. M., Bystritskii Vit. M., Dudkin G. N., Filipowicz M., Gazi S. et al. Effect of the Crystal Structure of a Deuterated Target on the Yield of Neutrons in the dd Reaction at Ultralow Energies. *Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*. 2014. Vol. 99. Iss. 9. P. 497–502.
11. Fedorov N. A., Tretyakova T. Yu., Bystritsky V. M., Kopatch Yu. N., Ruskov I. N. et al. Investigation of Inelastic Neutron Scattering on ^{27}Al Nuclei. *Physics of Atomic Nuclei*. 2019. Vol. 82, No. 4. pp. 343–350.
12. Pesente S., Nebbia G., Viesti G., Daniele F., Fabris D. et al. Progress in tagged neutron beams for cargo inspections. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 2007. Vol. 261, No. 1–2. pp. 268–271.
13. Alexakhin V. Y., Bystritskii V. M., Zamyatin N. I., Zubarev E. V., Krasnopyorov A. V. et al. Determination of the elemental composition of geological rocks and minerals by the method of tagged neutrons. *Fundamental Interactions & Neutrons, Nuclear Structure, Ultracold Neutrons, Related Topics: 23rd International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei*. Dubna, 2015.
14. Babin G. V., Khalimon V. I. Analysis of methods for spectra deconvolution in experiments with tagged neutron use. *Izvestiya Sankt-Petersburgskogo gosudarstvennogo tekhnologicheskogo instituta (tekhnicheskogo universiteta)*. 2014. No. 26(52). pp. 102–108.